

## Lasers femtoseconde Yb3+: BOYS et Yb3+: SYS Pierre Raybaut

### ▶ To cite this version:

Pierre Raybaut. Lasers femtoseconde Yb3+: BOYS et Yb3+: SYS. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2003. Français. NNT: . tel-00004436v3

### HAL Id: tel-00004436 https://pastel.hal.science/tel-00004436v3

Submitted on 26 May 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.



<u>N° d'ordre :</u> 7354



## UNIVERSITÉ PARIS XI UFR SCIENTIFIQUE D'ORSAY

### THÈSE

Présentée

Pour obtenir

## Le GRADE de DOCTEUR EN SCIENCES

## DE L'UNIVERSITÉ PARIS XI ORSAY

PAR

## Pierre Raybaut

# Sujet: Lasers femtoseconde Yb<sup>3+</sup>: BOYS et Yb<sup>3+</sup>: SYS

Soutenue le 7 novembre 2003, devant la commission d'examen composée de :

M. Alain Brun *(directeur de thèse)* M. Marc Brunel *(rapporteur)* M. Jean-Paul Chambaret M. Franck Falcoz

- M. Patrick Georges
- M. François Salin (rapporteur)
- M. Bruno Viana (Invité)

### REMERCIEMENTS

Tout d'abord, je remercie pour leur accueil Pierre Chavel, directeur du Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, Alain Brun, professeur à l'Ecole Supérieure d'Optique (ESO) et responsable du Groupe d'optique non-linéaire, et enfin Patrick Georges qui dirige l'Equipe Lasers Solides et Applications (ELSA) dans laquelle se sont effectués les travaux de la présente thèse.

Je tiens à témoigner de toute ma reconnaissance à l'ensemble de la commission d'examen constituée par ordre alphabétique de MM. Alain Brun, Marc Brunel, Jean-Paul Chambaret, Franck Falcoz, Patrick Georges, François Salin et Bruno Viana.

Le travail exposé dans les pages qui suivent est le fruit de nombreuses collaborations avec des laboratoires extérieurs à l'Institut d'Optique. Je remercie donc Jean-Paul Chambaret et Frédérika Augé (Laboratoire d'Optique Appliquée, Palaiseau), Daniel Vivien, Gérard Aka et Bruno Viana (Laboratoire de Chimie Appliquée de l'Etat Solide de l'Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Paris), Catherine Le Blanc (Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses, Palaiseau), Jean-Pierre Huignard et Christian Larat (Thalès Research and Technologies, Orsay), Eric Lallier et Franck Falcoz (Thalès Laser, Orsay), et Daniel Kaplan et Pierre Tournois (Fastlite, Xtec., Palaiseau).

Au sein de l'Institut d'Optique, je tiens à remercier vivement Lionel Jacubowiez, Thierry Avignon et Marie-Thérèse Plantegenest (service des travaux pratiques de l'ESO) pour leur aide précieuse, mais également Jacky Robin (service technique de l'Institut d'Optique) pour ses dépannages rapides et efficaces.

Naturellement, je souhaite remercier tous les membres de l'équipe de recherche qui a été la mienne pendant trois ans. En particulier, j'ai beaucoup apprécié de travailler avec Patrick Georges et François Balembois, qui sont sans doute les deux supérieurs hiérarchiques que je regretterai le plus pour avoir su combiner efficacité, génie et bonne humeur au quotidien. Je remercie également Frédéric Druon qui a contribué fortement à mon travail tout au long de cette thèse, Gérard Roger qui a toujours trouvé des solutions aux problèmes de mécanique que j'ai rencontré (parfois avant même qu'ils ne se présentent), et Sébastien Chénais que j'ai souvent consulté pour obtenir un regard extérieur sur mes simulations numériques. Par ailleurs, premièrement la vie quotidienne de l'équipe s'est déroulée agréablement grâce aux doctorants (par ordre chronologique, Claude Doulé, Stéphane Victori, Elvire Guiot, Renaud Lebrun, Sébastien Chénais, Sylvie Yiou, Sébastien Forget, Yann Louyer, Mathieu Jacquemet et Aude Bouchier), au scientifique du contingent (le seul et l'unique Sébastien Pelletier), et aux permanents (par ordre alphabétique, François Balembois, Frédéric Druon, Patrick Georges, Thierry Lépine, Gaëlle Lucas-Leclin, et Gérard Roger). Deuxièmement, j'ai eu la chance de rencontrer Elvire Guiot et Sébastien Pelletier qui sont maintenant devenus des amis très proches, et Thierry Lépine (Maître de Conférences à l'ESO mais aussi astronome amateur chevronné) à qui je souhaite de réussir dans l'aventure de l'antenne de l'ESO à Saint-Etienne.

Enfin, je remercie mes parents et mes amis de m'avoir soutenu tout au long de cette formidable expérience professionnelle. Dans cette course effrénée aux résultats, l'effort final particulièrement intense – la dernière année de thèse – m'est apparu très facile grâce à l'incomparable soutien de ma fiancée, Myriam, à qui je dois bien plus que des remerciements.

### **NOTATIONS**

Les références bibliographiques sont citées dans le texte sous la forme d'un nombre en exposant, chaque nombre étant associé à une ou plusieurs références. Pour éviter toute confusion, les notes de bas de page ne sont pas numérotées mais indiquées par une astérisque. Par ailleurs, les renvois à un paragraphe et à une page donnée du texte sont notés avec les abréviations usuelles « § » et « p. ».

Les composés chimiques auxquels il est fait allusion sont généralement notés de manière abrégée, selon la liste présentée dans le tableau 0-1 (pour plus de détails sur ces cristaux, voir l'annexe IV, p. 159).

Acronyme	Nom complet	Acronyme	Nom complet
SYS	SrY <sub>4</sub> (SiO <sub>4</sub> ) <sub>3</sub> O	YAG	$Y_3Al_5O_{12}$
GdCOB	Ca <sub>4</sub> GdO(BO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	KGW	KGd(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>
 BOYS	$Sr_3Y(BO_3)_3$	KYW	KY(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>

Tableau 0-1 - Liste des composés chimiques et signification de leurs acronymes.

Quelques équations impliquant des grandeurs physiques diverses sont présentées dans la suite du texte. La notation de ces grandeurs n'étant pas systématiquement universelle ou évidente, le lecteur pourra se reporter au tableau 0-2 qui regroupe l'ensemble des symboles ou notations particulières employés par la suite.

Symbole	Unité	Désignation
$E_i$	cm <sup>-1</sup>	Énergie du niveau atomique <i>i</i>
$N_i$	cm <sup>-3</sup>	Population du niveau atomique i
$\Delta N = N_2 - N_1$	cm <sup>-3</sup>	Différence de population entre les deux niveaux d'une transition laser
$\beta = \Delta N/N$	-	Taux d'inversion de population
$\beta_{sat}$	-	Taux d'inversion de population saturé
$\left$	-	Taux d'inversion de population saturé moyenné sur tout le matériau laser
$\lambda_0$	nm	Longueur d'onde centrale du laser
$\sigma_{e}$ (respectivement $\sigma_{a}$ )	pm²	Section efficace d'émission (resp. d'absorption) du matériau laser
Φ	m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup>	Flux de photons
$\Phi_{sat}$	m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup>	Flux de photons de saturation
Ι	$W/cm^2$	Intensité intracavité d'un laser (grandeur photométrique correspondante : éclairement)

I <sub>sat</sub>	$W/cm^2$	Intensité de saturation d'un matériau laser
I <sub>sat,AS</sub>	$W/cm^2$	Intensité de saturation d'un absorbant saturable
J	J/cm <sup>2</sup>	Fluence intracavité d'un laser
Ε	J	Energie contenue dans une impulsion
$\Delta\lambda$	nm	Largeur à mi-hauteur du spectre d'émission du laser
$\Delta \lambda_g$	nm	Largeur à mi-hauteur du spectre de gain du laser
$\Delta \lambda_a$	nm	Largeur à mi-hauteur du spectre d'absorption du milieu amplificateur
M <sup>2</sup>	-	Qualité de faisceau d'un laser ( $M^2 \ge 1$ )
$\Delta t$	fs	Durée des impulsions produite par un laser mesurée par autocorrélation
Κ	W/m/K	Conductivité thermique d'un matériau laser
$G_0$	-	Gain petit signal
$g_0 = \ln G_0$	cm <sup>-1</sup>	Gain petit signal linéique (ou logarithmique)
<i>n</i> <sub>2</sub>	-	Indice de réfraction non linéaire
$\Delta R$	-	Profondeur de modulation d'un absorbant saturable
$\Delta R_{ns}$	-	Pertes non saturables d'un absorbant saturable
$ au_{AS}$	ps	Temps de récupération d'un absorbant saturable
$\sigma_{\scriptscriptstyle AS}$	pm <sup>2</sup>	Section efficace d'absorption d'un absorbant saturable
$T_R$	ns	Temps d'aller-retour d'une cavité
$J_{sto}$	J/cm <sup>2</sup>	Fluence stockée dans un matériau laser
$ au_c$	S	Temps de création
$\Delta \lambda_{entrée}$ (respectivement $\Delta \lambda_{sortie}$ )	nm	Dans le cas d'un amplificateur régénératif : largeur à mi- hauteur du spectre injecté (resp. amplifié)
$\chi = \left( \Delta \lambda_{entrée} - \Delta \lambda_{sortie} \right) / \Delta \lambda_{entrée}$	%	« Réduction spectrale » d'un amplificateur régénératif

Tableau 0-2 – Liste des notations utilisées dans le texte

Enfin, le tableau 0-3 résume toutes les abréviations utilisées dans ce texte.

Abréviation	Désignation
KLM	« Kerr Lens Mode-locking » pour verrouillage de modes par lentille de Kerr
GVD	« Group Velocity Dispersion » pour dispersion de vitesse de groupe (en fs²)
SPM	« Self-Phase Modulation » pour automodulation de phase
QML	« Q-switch Mode-Locking » pour verrouillage de modes commuté par les pertes
SESAM	« SEmiconductor Saturable Absorber Mirror » pour miroir absorbant saturable à semi-conducteur

Tableau 0-3 - Liste des notations utilisées dans le texte

#### Notations

## TABLE DES MATIÈRES

INTRODUCTION GÉNÉRALE	9
CHAPITRE 1	11
1.1 INTRODUCTION HISTORIQUE	11
1.2 POMPAGE OPTIQUE PAR DIODE LASER	
1.2.1 Les différents types de lasers	
1.2.2 Structure des diodes laser	
1.2.3 Propriétés spectrales	
1.2.4 Propriétés spatiales	
1.2.5 Application au pompage optique de matériaux laser solides	
1.3 IMPULSIONS BRÈVES	
1.3.1 Profil temporel d'une impulsion laser	
1.3.2 Production d'impulsions courtes	
1.3.3 Dispersion	
1.3.4 Caractérisation temporelle	
1.3.5 Caractérisation spectrale	
1.3.6 Limitation par transformée de Fourier	
1.4 AMPLIFICATION À DÉRIVE DE FRÉQUENCE	
1.4.1 Compresseurs d'impulsions à réseaux	
1.4.2 Etireurs d'impulsions à réseaux	
1.4.3 Facteur d'étirement	
1.5 LASERS YITTERBIUM FEMTOSECONDE	
1.5.1 Etat de l'art	
1.5.2 Nouveaux cristaux dopés à l'ion ytterbium	
1.5.3 Spectroscopie de l'ion ytterbium	
1.5.4 Proprietes laser	
1.6 CONCLUSION	
CHAPITRE 2	
2.1 INTRODUCTION	51
2.2 EFFETS NON LINÉAIRES	
2.2.1 Autofocalisation	
2.2.2 Automodulation de phase	53
2.2.3 Absorbants saturables	
2.3 VERROUILLAGE DE MODES PASSIF	
2.3.1 Les deux catégories de verrouillage des modes	
2.3.2 Mécanisme de formation d'impulsions par verrouillage des modes en phase passif	
2.3.3 V errouillage de modes à l'aide de dispositifs de type absorbant saturable rapide	
2.3.4 Absorbants saturables semi-conducteurs	
2.3.5 Régime soliton	
2.3.6 Lamite de stabilité du verrouillage des modes passif	
2.4 RESULTATS D'EXPERIENCES	
2.4.1 Point de comparaison	

2.4.2 Oscillateur femtoseconde Yb: BOYS	
2.4.3 Oscillateur femtoseconde Yb: SYS	75
2.5 CONCLUSION	77
CHAPITRE 3	79
3.1 INTRODUCTION	
3.2 AMPLIFICATION RÉGÉNÉRATIVE	
3.2.1 Régime libre	
3.2.2 Régime injecté	
3.3 MODÉLISATION D'UN AMPLIFICATEUR RÉGÉNÉRATIF YTTERBIUM	
3.3.1 Gain et inversion de population saturés	
3.3.2 Formalisme de Frantz-Nodvik appliqué à un laser quasi-trois niveaux	
3.3.3 Rétrécissement spectral par le gain	
3.4 SIMULATION DES PHÉNOMÈNES DE RELAXATION DANS UN LASER YTTERBIUM	
3.4.1 Modèle, algorithme et résultats de la simulation	98
3.4.2 Origine des oscillations de relaxation	102
3.4.3 Influence du temps de vie du matériau laser	103
3.5 MISE EN ŒUVRE EXPÉRIMENTALE DE L'AMPLIFICATION À DÉRIVE DE FRÉQUENCE	105
3.5.1 Vue globale de l'amplification à dérive de fréquence	105
3.5.2 Etireur d'impulsions	106
3.5.3 Compresseur d'impulsions	108
3.5.4 Caractérisation de l'étireur et du compresseur	109
3.6 RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX DE L'AMPLIFICATEUR RÉGÉNÉRATIF YB: SYS	110
3.6.1 Matériaux laser envisagés pour l'amplificateur régénératif	110
3.6.2 Seuil de dommage en régime impulsionnel.	112
3.6.3 Cavité de base de l'amplificateur régénératif Yb :SYS en régime continu	113
3.6.4 Amplificateur régénératif Y b: SYS en régime libre	116
3.6.5 Caractérisation de l'amplificateur régénératif Yb: SYS en régime injecté	118
3.6.6 Amplificateur régénératif Y b: SYS en régime injecté par un oscillateur Y b: BOYS	120
3.6./ Amplificateur regeneratif Y b: SYS en regime injecte par un oscillateur Y b: SYS	122
3.6.8 Conclusion : comparaison avec d'autres amplificateurs regeneratifs ytterbium	125
3.7 ATTENUATION ET SIMULATION DU RETRECISSEMENT SPECIRAL PAR LE GAIN	126
2.7.1 Amplificateur regeneratif 1 b: S1S    1 AG en regime injecte	12/
2.7.2 Niloduiditon de l'amplitude specificie avec un fuire acousio-optique programmable	130 120
3.7.5 Resultats de simulations numeriques de l'ampajadieur 10:515    1/4G : perspectives	120
	142
CONCLUSION GENERALE	143
ANNEXE I : Propagation, extension spatiale, et qualité d'un faisceau laser	145
ANNEXE II : Fluctuations lentes de l'intensité laser dues à l'échauffement d'un miroir dichroïque.	149
ANNEXE III : Comparaison entre Yb: SYS et Yb: YSO par simulation numérique	153
ANNEXE IV : Propriétés de cristaux dopés à l'ytterbium	159
PUBLICATIONS ET CONFÉRENCES DE L'AUTEUR	161
RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES	163

### **INTRODUCTION GÉNÉRALE**

Dès son invention, le laser est apparu comme une source optique aux propriétés uniques. En particulier, un laser est équivalent à une source ponctuelle d'une très grande brillance (on parle aussi de « directivité » du faisceau laser). La conséquence directe de cette cohérence spatiale hors du commun est l'intensité lumineuse colossale émise par un laser. La recherche de puissances instantanées toujours plus grandes a conduit au développement de lasers capables de produire des impulsions brèves (d'une durée de 10<sup>-14</sup> à 10<sup>-12</sup> secondes) dont les champs d'application s'articulent autour de deux thèmes principaux : l'étude de phénomènes ultra-rapides de nature physique, chimique, ou encore biologique (fluorescence résolue en temps), et la concentration d'une densité d'énergie extrêmement importante dans un petit volume (applications industrielles telles que le micro-usinage de pièces métalliques ou de diélectriques).<sup>1</sup>

Le travail effectué au cours de cette thèse au sein de l'Équipe Lasers Solides et Applications<sup>\*</sup> consiste à mettre en évidence le potentiel de nouveaux matériaux laser pour le développement de sources laser à impulsions brèves. La technologie qui a été choisie est celle des lasers solides utilisant des cristaux dopés avec l'ion ytterbium, que nous appellerons *lasers ytterbium* dans tout ce mémoire par soucis de concision. Cette technologie permet de réaliser des sources compactes, fiables et rentables grâce au pompage optique direct par diode laser. Les matériaux laser employés sont développés par le *Laboratoire de Chimie Appliquée de l'État Solide*,<sup>†</sup> avec qui notre équipe entretient une collaboration très fructueuse depuis plusieurs années. En particulier, les cristaux récemment découverts d'Yb<sup>3+</sup>: BOYS et d'Yb<sup>3+</sup>: SYS ont de larges spectres d'émission, autorisant ainsi la production d'impulsions de durées typiques allant de 70 à 100 fs, à des longueurs d'onde d'émission avoisinant le micron. Afin d'atteindre des énergies par impulsion de l'ordre du millijoule, à une cadence inférieure au kilohertz, nous avons réalisé une chaîne laser comportant un oscillateur produisant des impulsions courtes, et un étage d'amplification. L'ensemble de cette chaîne exploite les propriétés de ces nouveaux cristaux laser dopés à l'ion ytterbium, dont le comportement au sein de cavités laser en régime continu est connu depuis peu,<sup>2</sup> mais dont les performances en régime femtoseconde n'avaient jamais été étudiées auparavant.

Dans le premier chapitre intitulé « Introduction aux lasers ytterbium femtoseconde », nous traiterons de notions générales sur les lasers solides à impulsions brèves, et sur les matériaux laser dopés à l'ion ytterbium. Dans le

<sup>\*</sup> Du Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, UMR 8501 du CNRS, bât. 503, 91403 Orsay cedex.

<sup>†</sup> De l'École Nationale Supérieure de Chimie de Paris, UMR 7574 du CNRS, 11 rue Pierre et Marie Curie, 75231 Paris Cedex 05.

deuxième chapitre, nous aborderons la théorie de la production d'impulsions laser brèves, ainsi que les résultats expérimentaux obtenus avec des oscillateurs femtoseconde basés sur les cristaux d'Yb<sup>3+</sup>: BOYS et d'Yb<sup>3+</sup>: SYS. Enfin, au cours du troisième chapitre, après quelques développements théoriques, nous présenterons les résultats obtenus à l'issue d'expériences et de simulations d'amplificateurs régénératifs d'impulsions basés sur l'Yb<sup>3+</sup>: SYS, ainsi que les perspectives de ces travaux, notamment à travers la manipulation spectrale d'impulsions.

#### Chapitre 1

### INTRODUCTION AUX LASERS YTTERBIUM FEMTOSECONDE

Après une introduction historique sur l'invention du laser, ce premier chapitre présente successivement les différents aspects d'un laser ytterbium femtoseconde : les lasers solides (par l'intermédiaire du pompage optique), la production d'impulsions courtes et, enfin, les matériaux laser utilisés dans ces sources d'impulsions brèves.

#### 1.1 Introduction historique



Niels Bohr (1885-1962)

« L'énergie emmagasinée par un atome ne peut prendre que certaines valeurs particulières formant une suite discontinue », telle est l'hypothèse formulée par le physicien Niels Bohr au début du siècle dernier afin d'expliquer le spectre de raies de l'onde électromagnétique émise par un atome soumis à une excitation.

Au début du XX<sup>ème</sup> siècle, les connaissances scientifiques conduisaient à une représentation assez précise de la structure de la matière.<sup>3</sup> Le siècle précédent avait donné naissance à l'hypothèse moléculaire à partir des lois quantitatives de la chimie (Dalton, Avogadro), puis à l'électron grâce aux expériences de Jean Perrin. Parallèlement, la structure de l'atome se dévoilait progressivement et aboutit à la découverte des ions positifs et des isotopes (J.-J. Thomson), qui ont permis l'introduction du numéro atomique Z (ordre de classement dans le tableau périodique des éléments) et du nombre de masse A d'un atome.

Durant la première décennie du XX<sup>ème</sup> siècle, Hertz et Maxwell ont participé au développement tant expérimental que théorique de l'électromagnétisme. La théorie électromagnétique permettait de rendre compte de l'ensemble des phénomènes de l'optique ondulatoire et de l'optique géométrique. Afin d'expliquer également les processus liés à la structure microscopique de la matière, un lien fut établi entre le modèle de l'atome de Thomson (les électrons sont élastiquement liés au noyau) et la théorie électromagnétique. Le résultat permis d'interpréter de manière satisfaisante les expériences d'interaction entre un champ électromagnétique et un atome comme la diffusion du rayonnement

par un atome (diffusion Thomson, diffusion Rayleigh) ou les phénomènes d'absorption (bandes d'absorption correspondant à des fréquences de résonances liées au mouvement de l'électron). En revanche, le phénomène pourtant fondamental de l'émission de rayonnement électromagnétique demeurait sans explication convaincante.

La décennie suivante fut marquée par l'abandon du modèle de l'atome de Thomson suite aux expériences de déviation de particules  $\alpha$  menées par Rutherford en 1911, ce qui ouvrit la voie au modèle de l'atome d'hydrogène de Bohr issue de la balbutiante théorie quantique. Le développement de cette dernière fut ponctué par les travaux de Planck et de Louis de Broglie, et par les débats tumultueux désormais célèbres entre Bohr et Einstein. La théorie quantique a permis d'expliquer les phénomènes d'émission de rayonnement électromagnétique par l'introduction de la quantification des niveaux énergétiques de l'atome. À l'origine, la première idée de quantification avait été introduite par le physicien allemand Planck en 1900 pour expliquer la forme du spectre du rayonnement électromagnétique issu d'un four élevé à une certaine température. Le spectre continu issu d'une source thermique (à présent décrit par la loi de Planck) et le spectre de raies issu de sources lumineuses à décharge (expliqués par la structure des niveaux d'énergie des atomes ionisés issue de la théorie quantique) furent ainsi expliqués. Désormais, la dualité onde-corpuscule introduite par la théorie quantique permettait de caractériser la lumière à la fois par sa nature ondulatoire (« onde électromagnétique », propagation, diffraction) et par sa nature corpusculaire (« photon », énergie, quantité de mouvement).



Figure 1-1 - Représentation schématique d'un système à deux niveaux

Comme le suggère ce bref résumé historique, les interactions entre matière et rayonnement se produisent de façon quantifiée. D'un point de vue microscopique, ces échanges d'énergie se réalisent sous la forme de collisions se produisant à des instants non individuellement prédictibles, mais dont il est possible de déterminer la probabilité d'apparition. En particulier, si un atome est soumis à l'excitation d'un faisceau lumineux de fréquence identique à celle de l'une de ses transitions, des processus d'absorption et d'émission vont apparaître. Cette situation porte le nom de *résonance optique*, et correspond aux transitions de niveaux d'énergie  $E_1$  (état fondamental) et  $E_2$  (état excité) d'un atome en présence de photons d'énergie  $hv_{21} = E_2 - E_1$ , où *h* est la constante de Planck et  $v_{21}$  la fréquence des photons (figure 1-1). La mécanique quantique de l'interaction électron-photon permet de caractériser ces transitions en terme de probabilité, et au moyen d'équations décrivant les populations de ces niveaux. La population  $N_1$  (respectivement  $N_2$ ) du niveau  $E_1$  (resp.  $E_2$ ) est définie comme le nombre d'atomes au repos (resp. excités) par unité de volume. Les transitions radiatives entre les niveaux 2 et 1 sont de trois types : l'absorption, l'émission spontanée et l'émission stimulée (figure 1-2).

Tout d'abord, l'absorption de photons, découverte en 1905 par Wood, correspond au fait que l'onde électromagnétique perd (exponentiellement) de l'intensité à mesure qu'elle pénètre dans un milieu en lui cédant de la chaleur. Lorsqu'un atome au repos « absorbe » un photon, il est promu de l'état fondamental à l'état excité. La probabilité d'un tel événement est proportionnelle au flux de photons traversant le milieu.



Figure 1-2 - Vues schématiques des différentes transitions radiatives

L'émission spontanée correspond à la désexcitation naturelle (sans excitation extérieure) de l'atome et à l'émission consécutive d'un photon de fréquence  $v_{21}$  dans une direction arbitraire. Même si l'état d'énergie  $E_2$  correspond à un état stationnaire de l'atome, il ne s'agit pas pour autant d'un état stable car sa durée de vie  $\tau$  (également appelée *temps de fluorescence*) est finie. La probabilité d'une telle désexcitation est inversement proportionnelle à  $\tau$ .

Enfin, l'émission stimulée ou émission induite est le processus symétrique à celui de l'absorption : si un atome excité interagit avec un photon incident dont la fréquence est en résonance avec la transition concernée, alors il existe une probabilité pour que l'atome se désexcite en émettant un photon. Contrairement au cas de l'émission spontanée, l'émission stimulée s'effectue selon une direction préférentielle. Plus précisément, le photon ainsi émis est rigoureusement identique au photon incident (quantité de mouvement, fréquence, polarisation et phase identiques). Historiquement, c'est par une analogie avec la théorie classique du rayonnement (Einstein, 1917) que la notion d'émission induite vit le jour. Suivant la différence de phase entre le mouvement libre de l'électron et la force électromagnétique (due à l'interaction avec le rayonnement dans lequel est plongé l'atome), cette dernière se comporte comme une force accélératrice (augmentation de l'amplitude de l'oscillation de l'électron, donc de son énergie : absorption) ou au contraire comme une force de freinage (perte d'énergie : émission induite). La symétrie de ces deux phénomènes apparaît ainsi clairement : ils ont la même probabilité de se produire. Cette hypothèse conduisit Einstein à exprimer des relations entres les probabilités des différentes transitions radiatives, qui ne furent démontrées qu'au cours de la décennie suivante (grâce à la théorie quantique du rayonnement électromagnétique), et vérifiées expérimentalement qu'en 1928 par Landenbourg et Kopferman. Si l'on note  $A_{21}$  et  $B_{21}$  les probabilités respectives de l'émission spontanée et de l'émission stimulée, les relations d'Einstein conduisent à l'équation

 $A_{21}/B_{21} = 8\pi h/\lambda^3$ , où  $\lambda$  est la longueur d'onde du photon. Lors du phénomène d'émission stimulée, le photon émis est donc rigoureusement identique au photon incident. Autrement dit, le photon induit vient renforcer l'onde incidente en augmentant son énergie. Or la mécanique quantique nous permet de montrer qu'un système à deux niveaux plongé dans un milieu traversé par une onde électromagnétique de fréquence  $V_{21}$  est globalement absorbant :  $N_2 < N_1$ . Même si l'émission stimulée équivaut à un gain d'énergie, ce gain est parallèlement compensé par l'absorption. Par conséquent, un système à deux niveaux ne peut pas être un milieu à gain, c'est-à-dire vérifier la condition inverse  $N_2 > N_1$ , connue sous le nom de *condition d'inversion de population*, auquel cas l'émission stimulée l'emporte sur l'absorption. Comme nous le retrouverons par la suite, il faut donc au moins trois niveaux pour qu'il y ait inversion de population.

La quantité de lumière émise grâce à l'émission stimulée est proportionnelle au flux de photons incidents identiques à ceux émis, et à la population du niveau excité. Si par le biais d'une contre-réaction, l'onde optique associée interagit de nouveau avec la matière, alors ce flux de photons va s'amplifier exponentiellement : c'est *l'effet laser*. Ce phénomène ne peut néanmoins avoir lieu que dans des conditions bien particulières. Par exemple, l'émission spontanée, qui est un processus en compétition avec l'émission stimulée, doit être défavorisée car elle va à l'encontre de l'effet laser.

L'équation démontrée par Einstein nous montre que l'émission spontanée – phénomène nuisible à l'inversion de population – devient négligeable pour de grandes longueurs d'onde. C'est précisément dans le domaine hertzien qu'a été démontré expérimentalement pour la première fois en 1954 un effet d'amplification dans un milieu présentant une inversion de population, appelé aussi *milieu à gain* ou *milieu amplificateur*.



Charles Townes (1915-)

Son inventeur, le physicien américain Townes, lui a donné le nom de «MASER» pour « Microwave Amplification by Stimulated Emission of Radiation » que l'on peut traduire littéralement par « amplification de micro-ondes par émission stimulée de rayonnement ». Le dispositif équivalent dans le domaine des fréquences optiques porte le nom de « LASER » où la première lettre du terme anglais « Light » a été substituée à celle de « Microwave » car il s'agit alors d'un amplificateur de lumière.

La méthode utilisée par Townes pour réaliser l'inversion de population pour le premier MASER était très particulière (méthode de tri sur un jet atomique ou moléculaire) et sans rapport direct avec le présent mémoire. Par contre, les MASER à trois niveaux proposés indépendamment par Basov et Prokhorov en 1955 et Bloembergen en 1956 sont les premiers dispositifs à utiliser une méthode de « pompage » (pompage qui était alors hertzien). Cette méthode consiste à utiliser un niveau d'énergie supplémentaire (d'énergie supérieure à celle du niveau 2) afin d'augmenter la population du niveau 2. C'est par une méthode équivalente que Maiman réalisa en 1960 le premier laser, qui était alors basé sur du rubis, c'est-à-dire un cristal d'alumine  $Al_2O_3$  dopé au ions  $Cr^{3+}$  (que l'on note

couramment Cr3+: Al2O3). Il s'agissait alors du pompage optique d'une transition optique au moyen d'un puissant flash de photographe, le spectre de la raie émise par le laser étant située dans le rouge.



Nikolaï G. Basov (1922-2001)

Aleksandr M. Prokhorov (1916-2002)

Avant de poursuivre, notons que cette succession de découvertes scientifiques a marqué le début de l'ère des lasers, dont l'apparition spectaculaire dans les laboratoires de recherche a été ponctuée par la remise du prix Nobel de physique en 1964, à l'américain Townes et aux russes Basov et Prokhorov, pour leurs travaux aux répercutions scientifiques et technologiques sans précédent.

À l'allumage d'un laser continu, le pompage optique\* excite les atomes du milieu amplificateur jusqu'à ce que l'inversion de population soit satisfaite, instant à partir duquel le gain disponible à l'intérieur de la cavité dépasse l'unité. En fonction de l'ampleur des pertes passives réparties dans la cavité (transmission résiduelle des miroirs, diffusion, diffraction, absorption dans le milieu amplificateur, etc.), l'effet laser (ou « faisceau laser ») s'établit après un bref instant nécessaire pour que le gain dépasse les pertes. Cette dernière condition s'appelle le seuil d'oscillation *laser.* On définit ainsi l'inversion de population au seuil  $\Delta N_{seuil}$  (figure 1-3).



Inversion de population en fonction du pompage



Figure 1-3 - Vue simplifiée de la dynamique d'un laser en régime continu

À présent, revenons à nos transitions atomiques et à l'intérêt du pompage optique pour la satisfaction de la condition d'inversion de population. De manière générale, il existe des lasers dits à trois niveaux (qui se divisent en deux catégories) et des lasers dits à quatre niveaux (figure 1-4). L'avantage principal des lasers à quatre niveaux et à trois niveaux de type I est leur seuil d'oscillation laser<sup>†</sup> qui est beaucoup plus bas que dans le cas des lasers à trois niveaux de type II. En effet, contrairement aux deux autres types de diagrammes d'énergie, dans le cas du laser à trois niveaux de type II, les atomes qui se désexcitent par émission stimulée (ou éventuellement spontanée) restent sur le niveau bas de la transition laser (niveau 1) jusqu'à ce qu'ils soient de nouveaux pompés optiquement vers le

<sup>\*</sup> Nous utiliserons l'expression « faisceau de pompe » lorsqu'il s'agit du faisceau issu d'une diode laser de pompe par exemple.

<sup>&</sup>lt;sup>†</sup> Le seuil d'oscillation laser correspond au niveau de flux de photons traversant le milieu amplificateur au-delà duquel la condition d'inversion de population est satisfaite.

niveau 3. Mais la stagnation des atomes sur le niveau 1 va à l'encontre d'une forte valeur de la différence de population  $\Delta N = N_2 - N_1$ .



Figure 1-4 – Les différents types de diagrammes d'énergie des lasers : les flèches droites représentent des transition radiatives et les flèches ondulées des transitions non radiatives. Concernant les désexcitations (flèches orientées vers le bas du schéma), les transitions de type non radiatif sont considérées très rapides vis-à-vis de celle de type radiatif.

En revanche, dans le cas des deux autres types de diagrammes d'énergie, les atomes du niveau 1 sont très rapidement évacués vers le niveau 0. Cette absence de stagnation sur le niveau 1 permet d'atteindre des différences de population  $\Delta N$  plus importantes : l'inversion de population  $\Delta N > 0$  est donc obtenue même pour un faible flux de photons, comme le montre la figure 1-5 où est représenté le *taux d'inversion de population* ou *densité d'inversion*  $\beta$ , grandeur sans dimension définie par  $\beta = \Delta N/N$ .





Figure 1-5 – Comparaison entre un système à quatre niveaux ou à trois niveaux de type I (trait continu), et système à trois niveaux de type II (trait pointillé)

Figure 1-6 – Schéma d'un oscillateur laser dans le domaine optique

De manière générale, la réalisation d'un laser nécessite un milieu amplificateur, au sein duquel est réalisée l'inversion de population permettant d'amplifier l'onde électromagnétique résonnante. Afin que l'onde amplifiée soit amplifiée de nouveau, et ainsi de suite, pour finalement conduire à l'apparition d'un effet laser, il faut disposer d'une contreréaction optique. Le signal optique amplifié doit être en effet réinjecté dans le milieu amplificateur pour être de nouveau amplifié : c'est le principe de l'*oscillation laser*. Dans le MASER à ammoniac de Townes, le milieu amplificateur était dans une cavité métallique à parois réfléchissantes confinant le champ électromagnétique dans les trois dimensions de l'espace.



Arthur L. Schawlow (1921-1999)

En 1958, Townes, Schawlow, Basov et Prokhorov montrèrent que dans le domaine optique, il suffisait de confiner la lumière dans une direction de l'espace seulement pour obtenir une cavité résonnante : ils utilisèrent alors un interféromètre de Fabry-Pérot entourant le milieu amplificateur. Dans le domaine optique, la contre-réaction optique sera donc sous la forme d'une cavité à miroirs (figure 1-6).

#### 1.2 Pompage optique par diode laser

#### 1.2.1 Les différents types de lasers

Au début du XXI<sup>ème</sup> siècle, quarante ans après la réalisation du premier laser, un grand nombre de sources coexistent sur le marché prolifique des lasers. Les domaines d'applications sont très variés, tout autant que les catégories de lasers. Ces derniers se regroupent généralement suivant quatre familles selon les principes physiques exploités pour leur réalisation :

- les lasers mettant en jeu des niveaux discrets, atomiques ou moléculaires : l'inversion de population résulte du transfert résonnant d'énergie (laser hélium-néon et laser à gaz carbonique), de réactions chimiques (le laser à HF est un exemple de « laser chimique »), de l'excitation par un processus dynamique, d'autres processus de collisions (laser à argon ou à krypton, laser à cuivre, laser à vapeurs métalliques, laser à azote) ou encore par pompage optique (lasers à CH<sub>3</sub>F, CH<sub>3</sub>I, etc.) ;
- les lasers à ions dilués dans une matrice solide ou « lasers solides » : le premier laser (le laser à rubis) était un laser solide pompé par lampe flash ;
- les lasers à colorant qui sont caractérisés par une grande accordabilité en longueur d'onde, mais aussi par les contraintes imposées par l'utilisation de jets à colorant ;
- les lasers à semi-conducteurs ou « diodes laser » qui sont connus pour leur compacité, leur rendement et leur fiabilité, mais qui ne disposent pas d'un faisceau d'une qualité remarquable.

Nous allons à présent nous intéresser à la dernière famille citée ci-dessus, celle des diodes laser, qui interviendront par la suite en tant que sources de pompage optique, pour la réalisation de lasers appartenant à une autre famille, celle des lasers solides.

#### 1.2.2 Structure des diodes laser

L'émission de lumière par un semi-conducteur s'obtient usuellement par la recombinaison de paires électron-trou dans une zone où elles sont présentes en excès vis-à-vis de l'équilibre thermodynamique. Cette recombinaison s'opère de manière naturelle dans une jonction *p-n* polarisée en direct : c'est le phénomène d'injection électrique. Le courant d'injection qui traverse la jonction entraîne l'apparition d'un flux d'électrons et de trous, flux qui est compensé à l'équilibre par différents processus de recombinaison :

- non radiatifs, tels que la recombinaison de Shockley-Read-Hall due à la présence d'impuretés dans le semi conducteur, ou la recombinaison Auger due à l'interaction électron-électron;
- la recombinaison radiative spontanée, équivalent de l'émission spontanée vue précédemment ;
- la recombinaison stimulée, équivalent de l'émission stimulée vue précédemment.

Augmenter le courant d'injection revient à augmenter la densité de porteurs hors d'équilibre dans le semiconducteur. Lorsque la densité de porteurs augmente, la différence entre les énergies des quasi-niveaux de Fermi des bandes de valence ( $E_{Fr}$ ) et de conduction ( $E_{Fc}$ ) augmente. Dès que l'écart entre les deux quasi-niveaux de Fermi excède la bande interdite ( $E_g$ ), toute onde électromagnétique composée de photons d'énergie comprise entre  $E_g$  et  $E_{Fc}$ -  $E_{Fr}$  est amplifiée : c'est la condition de Bernard-Durrafourg. L'égalité  $E_g = E_{Fc} - E_{Fr}$  correspond quant à elle au seuil de transparence du matériau semi-conducteur.

Au-delà du seuil de transparence, trois cas peuvent se présenter :

- l'émission spontanée l'emporte sur l'émission stimulée : nous sommes alors en présence d'un diode électroluminescente ou « DEL »;
- le milieu est le siège d'une inversion de population mais les pertes de la cavité sont supérieures au gain du milieu : la diode est en régime d'amplificateur optique ou de diode superluminescente ;
- l'émission stimulée l'emporte sur l'émission spontanée et les pertes de la cavité sont inférieures au gain du milieu : la diode est en régime d'oscillation laser (« diode laser »).

Dans ce dernier cas, il y aura oscillation laser si l'on parvient à réaliser une contre-réaction optique. Cette étape est réalisée de manière assez naturelle dans le cas des diodes laser. En effet, la méthode la plus simple consiste à utiliser la réflexion de Fresnel à l'interface entre le semi-conducteur et l'air. Le cristal semi-conducteur est clivé à ses deux extrémités le long du même plan cristallographique : les deux miroirs ainsi formés sont alors exactement parallèles. Le facteur de réflexion de cette interface est relativement grand (0,32 pour du GaAs) grâce au fort indice de réfraction caractéristique des matériaux semi-conducteur, mais les pertes associées sont importantes pour le développement d'un laser. Cependant, la densité de centres émetteurs disponibles et la section efficace d'émission sont beaucoup plus grandes que pour les autres types de laser : le gain est donc suffisamment grand pour autoriser de telles pertes en transmission des miroirs de la cavité. Entre ces deux miroirs, les photons oscillant sont confinés dans la région amplificatrice qui se comporte comme un guide d'ondes. En effet, la zone de l'hétérostructure semi-conductrice où s'effectue la recombinaison électron-trou correspond au semi-conducteur ayant la plus petite bande d'énergie interdite et donc le plus fort indice de réfraction.

Contrairement aux diodes à homojonction, les diodes à hétérojonction sont des diodes p-n dans lesquelles les zones p et n sont réalisées à partir de semi-conducteurs de bandes interdites différentes. Elles présentent des courants de seuil plus faibles que les homojonctions grâce à un meilleur confinement des porteurs et un meilleur recouvrement entre la zone de gain et le champ électromagnétique. C'est pourquoi leur utilisation est très répandue notamment dans le domaine des diodes laser de puissance (puissance de sortie de quelques watts par émetteur de dimensions typiques de 1 $\mu$ m par 100 $\mu$ m).



Figure 1-7 – À gauche, représentation schématique de la jonction d'une diode laser. A droite, exemples de diodes laser (la règle graduée en millimètres illustre la compacité de ces sources laser).

Le matériau constituant les diodes laser et ses propriétés singulières (gain très important notamment) conduisent à la réalisation de sources rentables, fiables et très compactes (figure 1-7).

#### 1.2.3 Propriétés spectrales

Les phénomènes physiques évoqués plus haut nous permettent de déduire que la longueur d'onde émise par une diode laser est fortement dépendante de  $E_g$ : c'est le choix du matériau et le dopage qui sont liés à la bande interdite du semi-conducteur. Autrement dit, la longueur d'onde d'émission d'une diode laser varie en fonction de la composition chimique du matériau semi-conducteur (une variation de 1% de la concentration d'aluminium entraîne un changement de la longueur d'onde de 1 nm dans le cas du GaAlAs) et se déplace avec la température (à raison de 0,3nm/K pour une diode laser en GaAlAs).

Dans les unités couramment utilisées, la longueur d'onde d'émission d'une diode laser est donnée par :

$$\lambda(\mu m) = \frac{1,24}{E_g(eV)}.$$

Pour un matériau donné, la longueur d'onde émise va également dépendre de la température et du courant d'injection (relié à la différence d'énergie  $E_{Fe} E_{Fp}$ ).

#### 1.2.4 Propriétés spatiales

Le faisceau issu d'une diode laser se présente sous la forme d'un cône ovale (figure 1-8). L'astigmatisme très prononcé se mesure angulairement par les divergences totales dans le plan parallèle (« axe lent ») et dans le plan perpendiculaire à la jonction (« axe rapide »). Le faisceau émis suivant l'axe rapide est gaussien\* ( $M^2=1$ ) avec un rayon au col très petit (de l'ordre du micron), donc très divergent (d'une largeur typique à  $1/e^2$  de 40 à 60°). Sa divergence est le résultat de la diffraction par la structure multicouche de la diode laser – dans cette direction, la surface émissive de la diode est en effet d'une dimension (typiquement 1µm) comparable à la longueur d'onde (entre 0,975 et 0,980 µm dans la présente étude). Selon l'axe lent, la partie émissive de la diode laser a une dimension de 100 à 500 fois plus grande. Le faisceau ne sera donc plus gaussien mais fortement multimode ( $M^2 \gtrsim 10$  à 20), et d'une divergence moins grande (de 10 à 20° à  $1/e^2$ ).



Figure 1-8 - Vue schématique de la divergence spatiale du faisceau issu d'une diode laser.

<sup>\*</sup> Voir l'annexe I portant sur la propagation, l'extension, et la qualité d'un faisceau laser, p.145.

#### 1.2.5 Application au pompage optique de matériaux laser solides

L'utilisation de diodes laser en tant que sources de pompage optique<sup>4</sup> permet de concevoir des sources laser compactes, performantes, fiables, d'un rendement énergétique élevé (jusqu'à 50%, à comparer aux rendements de 10<sup>-5</sup> à 10<sup>-4</sup> des lasers à argon ou à krypton qui sont des lasers de pompe courants) et d'un coût raisonnable. La simplicité de mise en œuvre expérimentale, la maintenance quasi inexistante et la diversité de l'offre commerciale sont des arguments supplémentaires en faveur de leur utilisation répandue dans les laboratoires et dans l'industrie.

La qualité d'un système de pompage optique peut se résumer en la satisfaction de trois conditions que nous allons développer, et qui sont les suivantes :

- un bon recouvrement spatial du faisceau laser et du faisceau de pompe,
- une intensité de pompe supérieure au seuil correspondant à l'oscillation laser,
- et une longueur d'onde adaptable à l'absorption du matériau laser.

Nous allons voir que les diodes laser satisfont les deux dernières conditions, et même la première moyennant quelques précautions.

#### Recouvrement spatial

Tout d'abord, le pompage optique d'un milieu à gain placé au sein d'une cavité résonnante nécessite donc un bon recouvrement spatial entre le faisceau de pompe et le faisceau gaussien résonnant. Cette condition doit de plus être satisfaite tout au long de leur propagation dans le milieu amplificateur pour garantir un gain maximal. Or, le faisceau gaussien résonnant étant par définition d'une qualité idéale (M<sup>2</sup>=1), cela signifie que le faisceau de pompe devrait idéalement être gaussien. Compte tenu de la médiocre qualité spatiale du faisceau issu d'une diode laser (dans la direction lente), le pompage optique par diode laser ne permettra donc pas de satisfaire rigoureusement cette condition de recouvrement des faisceaux. En revanche, si le milieu à gain est suffisamment court, il existe une méthode de remise en forme simple à mettre œuvre expérimentalement qui permet d'ajuster la forme du faisceau de pompe à celle du faisceau de cavité de sorte que le pompage soit particulièrement efficace. Cette technique consiste à utiliser un système optique de deux afocaux composé de lentilles cylindriques affectant respectivement l'axe rapide et l'axe lent du faisceau issu de la diode laser. Ainsi, sans toutefois diminuer le M<sup>2</sup> du faisceau, l'angle d'incidence et la taille du faisceau de pompe sont ajustés au niveau du milieu à gain de sorte que le recouvrement soit le meilleur possible. Afin d'améliorer ce recouvrement, nous pouvons également ajouter un système de deux prismes placés perpendiculairement de sorte que le M<sup>2</sup> global du faisceau (qui est le produit du M<sup>2</sup> dans la direction x et du M<sup>2</sup> dans la direction y) soit amélioré dans une direction et détérioré dans l'autre : globalement, le M<sup>2</sup> reste le même, mais la divergence du faisceau devient plus symétrique. Le but est donc d'homogénéiser le faisceau de pompe pour

optimiser le recouvrement (figure 1-9). Dans le cadre de la conception de sources laser monomodes spatialement, ce recouvrement ne sera satisfaisant que sur de petites distances dans le milieu à gain (quelques millimètres), ce qui signifie que ce dernier doit être particulièrement court : le pompage optique par diode laser est donc bien adapté au cas des lasers solides.





Figure 1-9 – Remise en forme du faisceau issu d'une diode laser (4W à 980 nm émis par un monoruban de 1 $\mu$ m x 100 $\mu$ m) par un système constitué de deux afocaux (lentilles cylindriques) et de deux prismes (ajustement supplémentaire de la taille et de l'angle du faisceau de pompe dans le milieu amplificateur). Le banc de pompe présenté ici a été utilisé pour la réalisation de l'amplificateur régénératif (voir Chapitre 3).

#### Intensité de pompe

La condition de recouvrement des faisceaux est une des contraintes du pompage optique qui contribue à l'obtention de l'oscillation laser, c'est-à-dire au dépassement du seuil du laser. Pour satisfaire cette dernière condition, et une fois le recouvrement optimisé, l'intensité du faisceau de pompe doit être suffisamment grande pour réaliser l'inversion de population dans le milieu à gain, ce qui est rendu possible par la disponibilité commerciale de diodes laser de puissance.

#### Longueur d'onde de pompe

Pour des raisons technologiques, les diodes laser de puissance n'émettent qu'à certaines longueurs d'onde suivant le matériau laser à semi-conducteur utilisé, et certaines d'entre-elles coïncident avec des raies d'absorption de

matériaux laser solides (tableau 1-1). Par ailleurs, la longueur d'onde du pompage optique doit être ajustée à une valeur la plus proche possible du maximum d'absorption du milieu amplificateur. Pour y parvenir, d'une part, le dopage du semi-conducteur permet d'adapter la longueur d'onde d'émission sur de grandes plages de longueurs d'onde (grossièrement, de 900 à 1000 nm pour une diode laser InGaAs par exemple).

-	Dopage du matériau laser à pomper	Longueur d'onde de pompe	Matériau laser à semi- conducteur
	Cr <sup>3+</sup>	670 nm	AlGaInP
	Nd <sup>3+</sup>	808 nm	GaAlAs
	Yb <sup>3+</sup>	940 et 980 nm	InGaAs

Tableau 1-1 - Les principales diodes laser de pompe et les matériaux associés

D'autre part, un ajustement plus fin est réalisé grâce à un asservissement en température dans le cas d'une diode laser, pourvu qu'il existe un matériau semi-conducteur dont la bande interdite corresponde à une longueur d'onde voisine de celle visée. La largeur spectrale typique des diodes laser (jusqu'à 3 nm) permet, quant à elle, de couvrir convenablement la bande d'absorption du matériau laser.

Enfin, l'utilisation de diodes laser comme source de pompage optique permet d'exploiter de nouveaux matériaux lasers non envisageables via les sources de pompages classiques que sont les lasers à gaz et les lampes flash. En particulier, le Nd :YVO<sub>4</sub>, l'Yb :YAG et le Tm :YAG se sont révélés grâce à l'apparition du pompage par diode.

#### 1.3 Impulsions brèves

La production, le traitement (amplification, caractérisation) et l'utilisation d'impulsions *brèves* nécessitent un certain nombre de précautions. Les impulsions dites brèves ont une durée typiquement inférieure à la picoseconde, ce qui explique l'appellation d'*impulsions femtoseconde* ou de *sources laser femtoseconde*. Si de telles impulsions laser sont désormais utilisées couramment en laboratoire, la conservation de leurs propriétés et leur caractérisation temporelle sont tout aussi importantes que leur production.

#### 1.3.1 Profil temporel d'une impulsion laser

Dans l'hypothèse de couplages spatio-temporels faibles, le champ électrique (défini comme la projection du vecteur champ électrique sur sa direction de polarisation) E(r,z,t) régnant dans un faisceau laser quelconque peut s'exprimer de la façon suivante, comme le produit d'une composante temporelle par une composante spatiale :

$$E(r, z, t) = E_t(t)E_s(r, z)$$

La composante temporelle du champ électrique peut elle-même se décomposer en trois facteurs : la modulation M(t), la porteuse (fonction représentant les oscillations du champ électrique de période égale à la longueur d'onde  $\lambda_0$  ou de fréquence égale à  $v_0 = \omega_0/2\pi$  où  $\omega_0$  est la pulsation) et le facteur de phase temporelle (la phase temporelle est notée  $\varphi_t$ ) :  $E_t(t) = M(t)e^{i\omega_0 t}e^{i\varphi_t}$ .

Selon l'application visée, différents régimes d'oscillation laser correspondant à différents types de modulations temporelles (figure 1-10) sont réalisables.<sup>5</sup> Le *régime impulsionnel*, caractérisé par la puissance crête (c'est-à-dire la puissance instantanée maximale d'une impulsion, exprimée en watts), ou par la puissance moyenne du laser, ou encore par l'énergie contenue dans chaque impulsion du laser (exprimée en joules), et par M(t) qui peut revêtir différentes formes (gaussienne, lorentzienne, sécante hyperbolique, etc.).



Figure 1-10 – Profil temporel de l'amplitude (trait fin bleu) et de l'intensité (trait épais vert) du champ électrique dans le cas du régime continu (onde plane monochromatique), du régime quasi-continu et du régime impulsionnel (cas particulier d'une impulsion de profil gaussien)

Suivant les phénomènes physiques mis en jeu lors de sa création, la modulation de la composante temporelle du champ électrique caractérisant une impulsion laser peut être de différentes formes. Pour chacune d'entre elles, la durée de l'impulsion  $\Delta t$ , définie comme la largeur à mi-hauteur de M(t), et la largeur à mi-hauteur  $\Delta v$  de la transformée de Fourier de M(t) notée  $\tilde{M}(\omega)$  (avec  $\omega = 2\pi v$ ) sont reliées par l'inégalité :

$$\Delta t \Delta \upsilon \geq K.$$

Équation 1-1

À chaque forme d'impulsion est associée une valeur de K:

- fonction gaussienne :  $M(t) = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{\pi}\Delta t}e^{-\frac{4\ln 2}{\Delta t^2}t^2}$  avec K=0,441 ;
- fonction lorentzienne :  $M(t) = \frac{1}{1 + \frac{4t^2}{\Delta t^2}}$  avec K=0,142 ;

- fonction sécante hyperbolique : 
$$M(t) = \frac{1}{\cosh\left[\frac{2\ln(\sqrt{2}+1)}{\Delta t}t\right]}$$
 avec K=0,315

Expérimentalement, il existe plusieurs moyens pour obtenir un régime impulsionnel :

- par modulation du gain (la pompe est modulée : « gain-switching ») ;
- par modulation des pertes ou déclenchement par commutation de perte (« Q-switching ») ;
- par verrouillage des modes en phase ( $\varphi_t = 0$  pour tous les modes) ou « mode-locking ».

Dans le cadre de notre étude, nous nous intéresserons aux deux dernières méthodes. La modulation de pertes interviendra dans l'amplificateur régénératif (chapitre 3) alors que le verrouillage des modes en phase sera effectué au sein de l'oscillateur femtoseconde (chapitre 2).

#### 1.3.2 Production d'impulsions courtes

Dans le cas du régime continu, la puissance de sortie d'un laser multimode n'est pas rigoureusement constante. En effet, les fluctuations parfois observables (suivant la longueur de la cavité laser) de cette puissance proviennent de l'oscillation simultanée de plusieurs modes longitudinaux – ceux pour lesquels le gain dépasse les pertes de la cavité – dont les phases respectives sont indépendantes et arbitraires. Si la largeur spectrale du gain ( $\Delta v$ ) du milieu amplificateur est suffisamment grande pour que plusieurs modes oscillent en même temps, et sans contrôle de leur phase temporelle, la puissance de sortie est donc « bruitée » : il s'agit d'une succession de maxima aléatoirement répartis dans le temps.

En revanche, si par un procédé quelconque on parvient à synchroniser la phase de ces modes longitudinaux, la puissance du laser se présentera sous la forme d'une succession de paquets de maxima, séparés par une durée égale à l'inverse de l'écart fréquentiel  $\Delta f$  entre deux modes (figure 1-11). Les modes longitudinaux sont alors dits synchronisés ou verrouillés en phase : ce régime porte le nom de *verrouillage des modes en phase* (en anglais, « mode-locking »). Dans le cas d'une cavité laser linéaire de longueur L, la cadence  $\Delta f$  de ses impulsions est inversement égale au temps d'aller-retour  $T_R$  d'une impulsion dans la cavité, et s'écrit donc :  $\Delta f = 1/T_R = c/2L$ . Pour une longueur de cavité typique d'environ un mètre, la cadence des impulsions produites par verrouillage des modes sera donc de l'ordre de la centaine de mégahertz.

Le verrouillage des modes permet d'atteindre des durées d'impulsion laser plus courtes que d'autres méthodes de génération d'impulsions laser telles que le déclenchement par commutation des pertes. En revanche, la cadence des impulsions étant liée à la longueur de la cavité, cette technique ne permet pas de produire directement une impulsion unique, ou un train d'impulsions à faible taux de répétition (quelques hertz). D'autres techniques de productions d'impulsions courtes existent, mais les durées visées sont en général plus grandes. De plus, ces méthodes ne sont pas applicables aux lasers solides.<sup>5</sup>



Figure 1-11 – Intensité en fonction du temps, résultant de l'oscillation de (*a*) deux modes en phase à l'origine des temps (t=0), (*b*) cinq modes en phase à t=0, (*c*) dix modes déphasés aléatoirement les uns par rapport aux autres t=0, et (*d*) dix modes en phase à t=0. Cette simulation du verrouillage en phase de N modes consiste simplement à ajouter les amplitudes de chaque mode et à tracer l'intensité résultante en fonction du temps. Lorsque les modes sont en phase à l'origine des temps, les pics d'intensité observés s'affinent et grandissent quand N augmente. Par contre, dans le cas d'un déphasage aléatoire à l'origine des temps, l'intensité est bruitée.

#### 1.3.3 Dispersion

Lors de sa propagation, si une impulsion laser voit ses composantes spectrales subir des déphasages différents, alors le milieu dans lequel elle se propage est dit dispersif. Si ce dernier est de plus supposé transparent (non absorbant – son indice est un nombre réel), le déphasage  $\varphi(\omega)$  résultant d'une propagation sur une distance L s'écrit :

 $\varphi(\omega) = k(\omega)L$  où  $k(\omega)$  est le module du vecteur d'onde.

Dans le cas particulier d'un milieu non dispersif, le déphasage varie linéairement avec la fréquence, ce qui signifie que la durée du trajet L parcouru par l'impulsion est indépendante de la longueur d'onde :

$$\varphi(\omega) = \frac{L}{c}\omega$$
;  $\frac{d\varphi}{d\omega}(\omega) = cte$ 

Par contre, si le milieu est dispersif, le déphasage est une fonction a priori inconnue de la fréquence, son allure dépendant des propriétés du matériau constituant le milieu de propagation. Afin de caractériser cette fonction, on écrit le développement en série de Taylor<sup>\*</sup> du déphasage autour de la pulsation centrale  $\omega_0$  pour faire apparaître l'écart à la linéarité, ce qui nous donne :

$$\varphi(\omega) = \varphi(\omega_0) + \varphi'(\omega_0)(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\varphi''(\omega_0)(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}\varphi'''(\omega_0)(\omega - \omega_0)^3 + \dots$$

où  $\varphi'(\omega)$ ,  $\varphi''(\omega)$  et  $\varphi'''(\omega)$  sont les dérivées successives de la phase spectrale. Si  $\varphi''(\omega_0)$  est non nul, le milieu est dit à dérive de fréquence linéaire (« linear frequency chirp » en anglais). Si  $\varphi'''(\omega_0)$  est non nul, le milieu est dit à dérive de fréquence quadratique (« quadratic chirp » en anglais).

$$\begin{cases} \varphi'(\omega_0) = k'(\omega_0)L\\ \varphi''(\omega_0) = k''(\omega_0)L \text{ avec } k'(\omega_0) = \frac{1}{v_g}, \ k''(\omega_0) \equiv \beta'' \text{ et } k'''(\omega_0) \equiv \beta'''.\\ \varphi'''(\omega_0) = k'''(\omega_0)L \end{cases}$$

Dans les équations ci-dessus, k'représente l'effet de la vitesse de groupe  $v_g$  de l'impulsion, et ne correspond pas à un élargissement de cette dernière, mais à un décalage de son centre par rapport à la même impulsion se propageant dans le vide. De la même façon que  $\beta''$  (qui est une notation usuelle pour k'') exprime la dispersion de vitesse de groupe (ou du deuxième ordre),  $\beta'''$  (ou k''') exprime le troisième ordre de dispersion en fs<sup>3</sup>/m (tableau 1-2).

-MM	Matériau transparent	$m{\beta''}$ à 1050 nm	$\pmb{\beta}^{\prime\prime\prime}$ à 1050 nm
	Silice	17 000 fs²/m	43 000 fs <sup>3</sup> /m
	BK7	23 000 fs²/m	47 000 fs <sup>3</sup> /m
	SF10	110 000 fs <sup>2</sup> /m	98 000 fs <sup>3</sup> /m

Tableau 1-2 – Dispersions du deuxième et du troisième ordre pour des matériaux transparents courants

Dans le cas d'une impulsion gaussienne limitée par transformée de Fourier, et si l'on note  $\omega_0$  sa pulsation centrale et  $\Delta t_{entrée}$  sa durée initiale, le champ électrique  $E_{entrée}$  s'écrit :

$$E_{entrée}(t) = E_0 e^{i\omega_0 t} e^{-\frac{2(\ln 2)t^2}{\Delta t_{entrée}^2}}.$$

Après propagation sur une distance *l* dans un milieu dispersif d'indice  $n(\lambda)$  dont on limite la dispersion introduite à l'ordre deux, le champ électrique  $E_{sortie}$  s'écrit :

$$E_{sortie}(t) = E_0 e^{i(\omega_0 t - \varphi)} e^{-\Gamma(t - \varphi')^2} \quad \text{où} \quad \Gamma = \left(\frac{\Delta t_{entrée}}{2\ln 2} + 2i\varphi''\right)^{-1} \quad \text{et} \quad \varphi'' = \frac{\lambda_0^3 l}{2\pi c^2} \frac{d^2 n(\lambda)}{d\lambda^2}$$

<sup>\*</sup> Ce développement est restreint ici à l'ordre trois, mais peut évidemment s'étendre indéfiniment. Néanmoins, même pour des impulsions ultra-brèves (d'une durée inférieure à la cinquantaine de femtosecondes) un développement jusqu'à l'ordre cinq fournit généralement des informations suffisantes sur l'allure de la phase spectrale.

L'effet de cette dispersion est principalement un élargissement de l'impulsion, qui conduit à une durée  $\Delta t_{sortie}$  qui s'exprime de la façon suivante :

$$\Delta t_{sortie} = \Delta t_{entrée} \sqrt{1 + \frac{{\varphi''}^2}{\Delta t_{entrée}}^2 16(\ln 2)^2}$$

Équation 1-2



Figure 1-12 – (a) Évolution de la durée d'une impulsion au cours de sa propagation dans un milieu présentant une dispersion d'ordre deux  $\beta''=50fs^2/cm$ . (b) Relation entre la durée à l'entrée et la durée à la sortie d'un milieu introduisant une dispersion d'ordre deux  $\varphi''$  variant linéairement de 0 à 1000 fs<sup>2</sup>.



Figure 1-13 – Simulation de l'élargissement d'une impulsion de profil temporel sécante hyperbolique au cours de sa propagation (sur 15 cm, à raison d'une courbe par centimètre parcouru) dans un milieu dispersif non absorbant caractérisé par  $\beta''=50 fs^2/cm$ . La conservation de l'énergie implique que l'amplitude maximale de l'impulsion décroisse au cours de sa propagation afin que son intégrale reste constante.

Selon l'équation 1-2, la dispersion a pour conséquence directe un élargissement de l'enveloppe temporelle de l'impulsion (figures 1-12 et 1-13) qui est d'autant plus grand que la durée de l'impulsion est petite.

Par exemple, dans un milieu dispersif, la dérivée de la vitesse de groupe  $v_{e}$  par rapport à la fréquence peut s'écrire :

$$\frac{dv_g}{dv} = -v_g^2 \beta''$$

où  $\beta''$  est la dispersion de vitesse de groupe du milieu exprimée en fs<sup>2</sup>/m. Cette dernière relation illustre bien l'élargissement de l'impulsion au cours de sa propagation : les différentes composantes spectrales ne se propagent pas à la même vitesse, les hautes longueurs d'onde prenant de l'avance sur les basses longueurs d'onde.

La dispersion du milieu est un phénomène à prendre impérativement en compte dès que la largeur spectrale du rayonnement devient comparable aux variations d'indice en fonction de la longueur d'onde. En particulier, dans une source laser à impulsions brèves, la dispersion doit être compensée à l'intérieur de la cavité. La source majeure de dispersion est alors la dispersion normale introduite par le milieu à gain. Cette dispersion rencontrée par l'impulsion au cours d'un aller-retour dans la cavité est positive : elle peut être compensée par des systèmes dits *à dispersion négative ou anormale* (comme une paire de prismes judicieusement placés – 1.4.1, p.34).

#### 1.3.4 Caractérisation temporelle

En pratique, la durée d'une impulsion brève ne peut se mesurer directement. En effet, les temps de réponse des détecteurs utilisables tels que les photodiodes PIN silicium ou les photodiodes InGaAS sont supérieurs de plusieurs ordres de grandeur aux durées qui nous intéressent (tableau 1-3).

6	Type de photodiode	Bande de sensibilité spectrale	Temps de montée typiques	Surface sensible associée
	Ge	800-1800 nm	220 ns	Ø 5 mm
	Si	350-1100 nm	20 ns	3,6 mm x 3,6 mm
	PIN Si	200-1100 nm	< 0,1 ns	Ø 1 mm
	InGaAs	800-1800 nm	5 ns	Ø 1 mm
	InGaAs	800-1800 nm	0,1 ns	Ø 0,1 mm

Tableau 1-3 – Temps de réponse des détecteurs sensibles autour de 1µm les plus répandus (données issues des spécifications techniques des fournisseurs les plus connus)

Par conséquent, nous sommes contraints d'effectuer une mesure indirecte qui peut se réaliser par l'intermédiaire d'un système optique appelé *autocorrélateur*. Au lieu de s'intéresser directement au profil temporel des impulsions, ce dispositif permet d'en mesurer la fonction d'autocorrélation, à partir de laquelle – moyennant une hypothèse sur la forme temporelle des impulsions – est déduite leur véritable durée. L'inconvénient de cette mesure est de perdre toute information sur la symétrie de l'enveloppe temporelle de l'impulsion, car la fonction d'autocorrélation est par définition une fonction paire. Si le train d'impulsions produit par la source laser à caractériser est régulier, alors l'utilisation d'un autocorrélateur en mode *multi-coups* est envisageable.



Figure 1-14 – Schéma (gauche) et photographie (droite) de l'autocorrélateur « multi-coups » utilisé pour la caractérisation temporelle de la chaîne laser présentée dans les deux chapitres suivants.

Prenons le cas de l'autocorrélateur que nous avons utilisé pour caractériser la chaîne laser présentée dans les chapitres suivants. Il s'agit d'un autocorrélateur en montage non colinéaire caractérisant des impulsions laser infrarouges (dont la longueur d'onde avoisine le micron). Le montage expérimental est celui d'un interféromètre de Michelson dont le miroir (ou coin de cube) d'un des deux bras est rendu mobile, et aligné de sorte que les deux faisceaux soient séparés spatialement lorsqu'ils se rejoignent après la lame séparatrice (c'est le cas de l'autocorrélation non colinéaire, illustré par la figure 1-14). Ces deux impulsions dont l'écart temporel est contrôlé par un pot vibrant monté derrière le miroir mobile, sont ensuite focalisées dans un cristal doubleur (KDP ou BBO) après lequel le signal vert d'autocorrélation est dissocié du signal infrarouge soit spectralement, soit spatialement (comme dans notre cas où il s'agit d'un montage non-colinéaire) et mesuré par un photomultiplicateur. Un circuit électronique de contrôle permet d'amplifier le signal ainsi mesuré. Le résultat est directement visualisable sur un écran d'oscilloscope en le réglant de sorte qu'il affiche le signal du photomultiplicateur en fonction du signal de position du pot vibrant. La calibration en millimètres de ce dernier à l'aide de déplacements d'un des miroirs permet d'en déduire une échelle graduée en femtosecondes (au déplacement de ce miroir correspond un certain temps d'aller-retour pour les impulsions).

La mesure du signal d'autocorrélation, noté  $S_{ac}(t)$  correspond physiquement à une grandeur proportionnelle à la puissance instantanée du faisceau vert issu du cristal doubleur, et s'exprime en fonction du champ électrique des impulsions incidentes de la façon suivante :

$$S_{ac}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} |E_t(t)|^2 |E_t(t-\tau)|^2 dt$$

Par exemple, dans le cas d'une impulsion de type sécante hyperbolique :

$$\left|E_{t}(t)\right|^{2} = \frac{1}{\cosh\left[\frac{2\ln\left(\sqrt{2}+1\right)}{\Delta t}t\right]^{2}} \text{ et } S_{ac}(t) = \frac{3}{\sinh\left(\frac{C}{\Delta t}t\right)^{2}} \left[\frac{C}{\Delta t} t \coth\left(\frac{C}{\Delta t}t\right) - 1\right] \text{ avec } C = 2,720.$$

La largeur à mi-hauteur du signal d'autocorrélation  $\Delta t_{AC}$  et la durée  $\Delta t$  des impulsions associées sont alors reliées par  $\Delta t = \Delta t_{AC}/1,543$  (figure 1-15).



Figure 1-15 – Allure temporelle (en intensité) d'une impulsion de type sécante hyperbolique (trait continu) et de son autocorrélation (trait pointillé)

Si le train d'impulsions à caractériser n'est pas suffisamment stable ou si la cadence des impulsions est trop faible (typiquement inférieure à la centaine de hertz), il sera nécessaire de mettre en place un autocorrélateur *mono-coup* qui effectue la mesure sur une seule impulsion, contrairement au précédent dont la mesure est le résultat d'une moyenne sur un grand nombre d'impulsions.

Enfin, notons que d'autres systèmes de caractérisation temporelle d'impulsions brèves existent comme les caméras à balayage de fentes (en régime picoseconde). Contrairement à l'autocorrélateur qui ne donne accès qu'à la puissance temporelle des impulsions, des systèmes d'analyse plus complets existent également et permettent de déduire via un algorithme de calcul (et certaines hypothèses) à la fois l'amplitude et la phase temporelles. Les systèmes les plus connus permettant ce type de caractérisation d'impulsions courtes sont le SPIDER<sup>6</sup> (de l'anglais « Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction ») et le FROG<sup>7</sup> (de l'anglais « Frequency-Resolved Optical Gating »), qui sont apparus à la fin des années 90.

#### 1.3.5 Caractérisation spectrale

D'une manière générale, l'expérience permet de mesurer le spectre d'un rayonnement électromagnétique à l'aide d'un composant dispersif comme un réseau de diffraction (inscrit dans un système optique tel qu'un monochromateur par exemple). La grandeur mesurée via un détecteur optique (photodiode au silicium par exemple) est une puissance optique variant avec la longueur d'onde. Avec les notations présentées §1.3.1 (p. 23), la transformée de Fourier du champ électrique s'écrit  $\tilde{E}_t(\omega) = m(\omega)e^{i\varphi_{\omega}(\omega)}$  où  $m(\omega) = |\tilde{E}_t(\omega)|$  est l'amplitude spectrale, et  $\varphi_{\omega}(\omega)$  est la phase spectrale. La grandeur mesurée après dispersion spatiale des composantes spectrales du faisceau est proportionnelle au carré de l'amplitude spectrale :  $P_{diff} \propto m(\omega)^2$ .

Toute mesure classique du spectre d'un faisceau laser fournit le carré de l'amplitude spectrale, mais ne donne donc aucune information sur la phase spectrale, qui est pourtant une grandeur importante dans le domaine des impulsions brèves. En effet, si toutes les composantes spectrales ne sont pas en phase (phase spectrale non constante), alors la durée de l'impulsion laser est plus grande que sa valeur limite donnée par l'équation 1-1 (p.24).

#### 1.3.6 Limitation par transformée de Fourier

En revanche, si toutes les composantes spectrales de l'impulsion sont en phase, l'impulsion est dite *limitée par transformée de Fourier* : la largeur à mi-hauteur de son spectre est identique à celle de la transformée de Fourier de sa forme temporelle. Dans ces conditions, *plus le spectre d'une impulsion est large, plus sa durée est courte*, d'où l'intérêt d'utiliser des milieux amplificateurs à spectre large au sein de sources lasers d'impulsions brèves (tableau 1-4).

$ \land $	Durée d'impulsion $\Delta t$ (fs)	Δλ (nm) pour un profil gaussien	Δλ (nm) pour un profil sécante-hyperbolique
	500	3,3	2,4
	100	16,5	11,8
	50	33	23,6
	30	55	39,3
	10	165	118

Tableau 1-4 – Durée d'impulsion et bande spectrale associée à une longueur d'onde centrale de 1060 nm, pour des impulsions ayant un profil de type gaussien ( $\Delta t.\Delta v \sim 0,441$ ) ou sécante-hyperbolique ( $\Delta t.\Delta v \sim 0,315$ ).

La limite de la transformée de Fourier correspondant à l'égalité  $\Delta t \Delta v = K$  ne sera en pratique jamais atteinte, les composantes spectrales de l'impulsion n'étant pas rigoureusement en phase. Divers éléments d'une chaîne amplificatrice introduisent des déphasages spectraux tels que leur compensation tout au long de la chaîne est parfois difficile. La mesure de la largeur spectrale et de la durée des impulsions conduira par déduction à une valeur du *produit temps-fréquence*  $\Delta t \Delta v$ . L'écart au cas idéal de la transformée de Fourier sera alors quantifié grâce au produit temps-fréquence expérimental. Plus ce dernier sera proche de K, plus le profil spectral sera de qualité.

#### 1.4 Amplification à dérive de fréquence

Les impulsions laser produites par un oscillateur femtoseconde fonctionnant sur le principe du verrouillage des modes en phase sont très peu énergétiques (du dixième de nanojoules à quelques nanojoules). La plupart des applications nécessitent des énergies plus élevées qui ne sont généralement atteintes que par le biais d'amplificateurs.\* Étant très courtes, ces impulsions présentent de très fortes puissances crêtes, et par conséquent des fluences crêtes potentiellement dangereuses vis-à-vis des seuils de dommages des optiques. En effet, une impulsion de 120 fs contenant 1 nJ présente une puissance crête de 8 kW environ. Focalisée sur un diamètre de 300 µm, cette même impulsion correspond à une fluence d'approximativement 10 MW/cm<sup>2</sup>, alors que les seuils de dommage typiques des optiques (verres, silice, etc.) se situent seulement trois ordres de grandeur au-dessus, soit autour de quelques GW/cm<sup>2</sup>. Afin de pouvoir néanmoins amplifier de telles impulsions sans dépasser ce seuil de dommage, une solution consiste à diminuer la fluence crête des impulsions en allongeant leur durée. Or, il ne s'agit pas de perdre la cohérence temporelle de ces impulsions, processus qui serait irréversible. Développée expérimentalement dans les années 80, l'idée de l'*amplification à dérive de fréquence* (ou « CPA » de « Chirped Pulse Amplification » en anglais) fournie une solution brillante à ce problème.<sup>8</sup>



Figure 1-16 – Illustration du principe de l'amplification à dérive de fréquence : enveloppe et allure du champ électrique en fonction du temps, et ordres de grandeur des énergie par impulsion après chaque composant. L'oscillateur produit des impulsions courtes de faible énergie (a), l'étireur allonge la durée de ces impulsions en séparant temporellement leurs composantes spectrales de sorte que le rouge soit en avance sur le bleu (b), l'amplificateur augmente l'énergie des impulsions (c), et le compresseur restitue leur durée initiale (d).

<sup>\*</sup> Sauf pour les oscillateurs de forte énergie : allongement de la cavité laser pour diminuer la cadence, ou technique du « disque mince laser ».\*

Cette technique consiste à étirer temporellement les impulsions en appliquant un déphasage spectral linéaire à celles-ci par l'intermédiaire d'un système optique appelé *étireur*. Profitant du large spectre de ces impulsions, l'étireur permet d'étaler dans le temps leurs différentes composantes spectrales, en utilisant un réseau de diffraction et un système d'imagerie de sorte que son extension spatiale soit la même à l'entrée et à la sortie du montage. Ainsi, les impulsions sont étirées temporellement d'un facteur typique de 2000 à 4000, diminuant par conséquent du même facteur la puissance crête des impulsions. Après l'amplification ainsi rendue possible, l'application de la loi de phase spectrale inverse par un *compresseur*, permet de comprimer temporellement les impulsions jusqu'à leur durée d'origine (figure 1-16). Si l'amplificateur apporte des modifications sensibles sur les ordres supérieurs à deux de la phase spectrale des impulsions, cette dernière ne sera plus compensée correctement par le compresseur dont la loi de déphasage spectral est quadratique. Autrement dit, seule une dispersion d'ordre inférieur ou égal à deux peut être rigoureusement corrigée par le compresseur). Par conséquent, la durée finale des impulsions est généralement supérieure à leur durée initiale compte tenu des dispersions d'ordre supérieur introduites lors de l'étirement ou de l'amplification.

L'étirement et la compression d'impulsions au sens de l'amplification à dérive de fréquence, sont réalisés par des systèmes combinant quatre éléments dispersifs (ou l'équivalent de deux) et un système d'imagerie dans le cas de l'étirement.<sup>9</sup> Dans le cas du compresseur d'impulsions, les réseaux de diffraction ont l'avantage de conduire à des montages compacts, mais ayant une transmission moyenne, tandis que les prismes dispersifs utilisés à incidence de Brewster permettent d'obtenir des pertes quasi-nulles, mais au prix d'un encombrement assez important. Cependant, dans la suite de ce texte, nous n'évoquerons que les compresseurs d'impulsions à réseaux car, contrairement à leurs homologues à prismes, ils permettent d'introduire de fortes valeurs de dispersion négative.

#### 1.4.1 Compresseurs d'impulsions à réseaux

Le *compresseur à réseaux*<sup>10</sup> est basé sur le principe suivant. En imposant un chemin optique plus long pour les hautes longueurs d'onde (« rouge ») que pour les basses (« bleu »), ce système introduit une dispersion négative (figure 1-17b). La principale différence avec un *compresseur à prismes*<sup>11</sup> (figure 1-17a) est qu'une petite distance de séparation entre les deux réseaux suffit à introduire une dispersion négative importante. Les pertes importantes (de l'ordre de 60% pour le système complet) dues aux efficacités de diffraction des réseaux interdisent généralement l'utilisation d'un tel système à l'intérieur d'une cavité oscillante.

Que ce soit dans le compresseur à prismes ou à réseaux, l'utilisation d'un dièdre dans le montage (figure 1-17) permet d'effectuer deux passages dans le système pour s'affranchir de la dispersion spatiale du faisceau.



Figure 1-17 – Compresseur à prismes (a), et compresseur à réseaux séparés par la distance  $l_c$  (b). Les échelles ne sont pas respectées : la distance entre les angles au sommet des prismes serait plus grande si les deux systèmes avaient le même facteur de compression. Le miroir du compresseur peut être remplacé par un dièdre pour effectuer deux passages dans le système à des hauteurs différentes.

De manière générale, les compresseurs permettent d'annuler la dispersion de vitesse de groupe à une longueur d'onde donnée (annulation qui reste très correcte pour tout le spectre d'une impulsion courte), mais ne compensent pas parfaitement la dispersion du troisième ordre. Plus précisément, alors que les compresseurs à prismes compensent trop la dispersion du troisième ordre (elle devient négative), les compresseur à réseaux ne la compensent pas assez (elle reste positive). Cette constatation générale a conduit à la compression efficace d'impulsions de seulement quelques femtosecondes<sup>12</sup> en combinant un système à réseaux et un système à prismes.

En ce qui concerne la chaîne laser femtoseconde que nous avons développée, nous avons utilisé un compresseur à réseaux en fin de chaîne afin de compenser les fortes valeurs de dispersion positive introduites par l'étireur (§3.5.3, p.108), et un système analogue à un compresseur à prismes à l'intérieur de la cavité de l'oscillateur femtoseconde pour compenser les faibles valeurs de dispersion positive apportées par le matériau laser.

#### 1.4.2 Étireurs d'impulsions à réseaux



Figure 1-18 – Étireur d'impulsions à deux réseaux. Le facteur d'étirement est proportionnel à la distance  $l_e$ -f.

L'étireur d'impulsion classique se présente sous la forme de deux réseaux anti-parallèles, entre lesquels est placé un système afocal de grandissement égal à -1. Introduisant une dispersion positive (place le « rouge » en avance sur le
« bleu »), son rôle est inverse par rapport au compresseur d'impulsion. En général, il s'agit d'un système composé de deux lentilles (figure 1-18).

Cependant, les aberrations chromatiques introduites par ces dernières – qui détériorent la qualité d'une éventuelle compression – ne peuvent être ni négligées, ni corrigées. Si, par contre, ce système est remplacé par un télescope à miroirs, alors l'aberration chromatique est supprimée. En outre, cela permet d'utiliser un réseau holographique avec un revêtement en or sous une incidence proche du montage de Littrow,  $\arcsin(\lambda_0/2p)$  où  $\lambda_0$  est la longueur d'onde centrale et *p* le pas du réseau, garantissant ainsi une efficacité de diffraction supérieure. Le télescope d'un étireur idéal doit satisfaire trois conditions : présenter un grandissement égal à -1, fournir une image du premier réseau parfaitement stigmatique sur l'axe, et ne pas présenter de coma sur l'axe (de sorte que la longueur d'onde qui est diffractée selon un angle donné par le premier réseau parvienne sur le second réseau exactement sous le même angle). Une approche envisageable est alors celle de l'étireur basé sur un triplet breveté par Öffner en 1971,<sup>13,64</sup> qui est constitué de deux miroirs sphériques concentriques : l'un concave, et l'autre convexe. Cette combinaison optique offre l'avantage d'être complètement symétrique. Par conséquent, les seules aberrations susceptibles d'apparaître sont l'aberration sphérique et l'astigmatisme. Ces dernières sont néanmoins globalement annulées par la succession des deux miroirs grâce à un rapport de rayons de courbure égal à -2. De plus, il n'existe pas de coma sur l'axe dans cette configuration, et un stigmatisme parfait est assuré pourvu que l'objet soit placé exactement au centre de courbure commun des deux miroirs.<sup>14</sup>



Figure 1-19 – Schéma d'un étireur d'impulsions de type Öffner. Les impulsions sont injectées sous le dièdre, qui sert à effectuer un second passage dans le télescope à une hauteur différente. La distance  $2(l_e - f)$  est mise en évidence sur le schéma pour permettre une comparaison aisée avec un étireur classique (figure 1-18).

Pour augmenter le facteur d'étirement, une configuration alternative est utilisée, dans laquelle le réseau est placée en avant du centre de courbure (figure 1-19), ce qui provoque l'apparition d'aberration sphérique résiduelle qui est généralement considérée comme négligeable. Ce montage ne comporte qu'un seul réseau, le rôle du second étant joué par l'image de ce réseau par le triplet d'Öffner. La qualité de l'ensemble du montage dépend certes de l'alignement, mais aussi des qualités de surface des différents éléments (par exemple, le réseau ne doit pas comporter de défauts plus grands que  $\lambda/10$  à  $\lambda/4$ ).

Dans notre chaîne laser femtoseconde qui est présentée en détails dans le chapitre 3, l'étireur d'impulsions est un étireur de type Öffner, ce qui nous permet d'obtenir un facteur d'étirement assez grand tout en introduisant un minimum d'aberrations (§3.5.2, p.106).

### 1.4.3 Facteur d'étirement

Dans le cas d'un étireur (ou d'un compresseur) à réseaux, la vitesse de groupe s'exprime de la manière suivante :

$$\frac{d\varphi}{d\omega} = \frac{L}{c} \frac{1 + \cos\theta}{\cos(i - \theta)} \quad \text{avec} \quad \theta(\omega) = i - \arcsin\left(\frac{2\pi c}{\omega p} - \sin i\right)$$

où *c* est la vitesse de la lumière dans le vide,  $\omega$  est la pulsation, *i* est l'angle d'incidence sur le premier réseau, *p* est le pas du réseau et *L* est le *facteur d'étirement*. Dans le cas du compresseur à réseaux,  $L = l_c$ , et dans le cas de l'étireur,  $L = 2(l_e - f)$ . En dérivant l'équation ci-dessus donnant la vitesse de groupe, on obtient l'expression de la dispersion de vitesse de groupe :

$$\varphi'' = -L \frac{\lambda^3}{\pi c^2 p^2} \left[ 1 - \left(\frac{\lambda}{p} - \sin i\right)^2 \right]^{-\frac{3}{2}}.$$

~ /

Grâce à l'équation 1-2 obtenue p.28, nous pouvons évaluer la modification apportée à la durée d'impulsions étirées (ou compressées). La dispersion de vitesse de groupe typique introduite par ce genre de dispositif est de l'ordre de 10<sup>7</sup> fs<sup>2</sup>. Pour une durée d'impulsion de 100 fs, nous avons donc :

$$\frac{{\varphi''}^2}{\Delta t_{entrée}^{4}} 16(\ln 2)^2 \sim 10^7.$$

Nous pouvons alors négliger ce terme dans l'équation 1-2, et nous sommes amené à conclure que la durée des impulsions étirées (ou compressées) est directement proportionnelle au facteur d'étirement :

$$\Delta t_{sortie} = 4 (\ln 2) \frac{\varphi''}{\Delta t_{entrée}} \propto \frac{L}{\Delta t_{entrée}}.$$

La dispersion du second ordre est proportionnelle au facteur d'étirement, aussi bien pour un étireur que pour un compresseur à réseaux. Par ailleurs, leurs principes étant parfaitement symétriques, il apparaît ici clairement que si un étireur et un compresseur sont disposés en cascade et que  $l_c = -2(l_e - f)$ , alors la dispersion due au premier sera rigoureusement compensée par le second. C'est précisément cette idée qui est exploitée pour mettre en œuvre un système d'amplification à dérive de fréquence.

### 1.5 Lasers ytterbium femtoseconde

Avant d'aborder les réalisations expérimentales d'oscillateurs femtoseconde et d'amplificateurs régénératifs, nous allons présenter les caractéristiques des matériaux laser utilisés dans la présente thèse, qui sont de nouveaux cristaux dopés à l'ytterbium.

1.5.1	Etat de	e l'art
-------	---------	---------

Matériau	$\Delta t_{exp}  (fs)$	$\lambda_0 \left( nm \right)$	$\Delta\lambda$ (nm)	$\sigma_e(\lambda_0) \ (pm^2)$	τ (μs)	K (W/m/K)
Ti: Saphir	5	790 (660-1100)	180	28	3,2	34
Cr: LiSAF	12	846 (760-950)	100	4,8	67	3,1
Nd: verre	60	1053	22	4,0	360	0,8
Yb: verre	60	1030	35	0,05	1300	0,8

Tableau 1-5 – Comparaison entre différents matériaux laser adaptés à la production d'impulsions brèves. Pour chaque matériau,  $\Delta\lambda$  est la largeur à mi-hauteur du spectre d'émission,  $\Delta t_{exp}$  est la durée expérimentale des impulsions produites,  $\sigma_c(\lambda_0)$  est la section efficace d'émission à la longueur d'onde d'émission centrale du laser  $\lambda_0$ ,  $\tau$  est le temps de fluorescence et K la conductivité thermique du matériau non dopé.

Dans le domaine de la génération d'impulsions brèves, la suprématie des lasers basés sur le cristal de saphir dopé au titane (Ti<sup>3+</sup>: Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ou Ti:Saphir) depuis plus de dix ans,<sup>15</sup> est pleinement justifiée par l'excellent comportement thermique et la grande largeur spectrale d'émission de ce dernier.<sup>16</sup> D'une part, une conductivité thermique élevée garantie une bonne évacuation de la chaleur dissipée dans le matériau laser, et par conséquent une meilleure stabilité temporelle et une bonne tenue au flux. D'autre part, comme nous l'avons vu dans les paragraphes précédents, un matériau laser à spectre d'émission *très* large permet la génération d'impulsions *très* courtes (tableau 1-5). En pratique, les lasers à Ti:Saphir ont permis d'atteindre des durées record inférieures à 5 fs.<sup>17</sup> Cependant, l'absorption maximale du Ti:Saphir se situe dans le vert, et les seules sources laser actuellement susceptibles de pomper optiquement un milieu amplificateur à cette longueur d'onde sont des dispositifs complexes, tels que des lasers à Nd : YVO<sub>4</sub> doublés intracavité eux-mêmes pompés par diodes.

En revanche, l'utilisation de matériaux dont la longueur d'onde d'absorption maximale est accessible par des diodes laser de puissance permet de développer des sources compactes, fiables, rentables et peu onéreuses. Néanmoins les conditions que ces milieux doivent satisfaire pour être adaptés à la production d'impulsions brèves sont si restrictives qu'il n'existe pas à l'heure actuelle de cas idéal : il est donc nécessaire d'opter pour un compromis.

De manière générale, les longueurs d'onde des pics d'absorption d'un matériau laser sont liées à l'ion dopant (tableau 1-1, p.23). Suivant la nature de l'hôte, les spectres d'émissions et d'absorption présentent des formes variables, mais préservant approximativement la position des pics principaux. Un matériau ne pourra donc être pompé par diode que si l'ion dopant présente un pic d'absorption à une longueur d'onde adéquate. Pour choisir un matériau satisfaisant à la condition de pompage direct par diode, nous pouvons raisonner uniquement sur le dopant.

Trois catégories de matériaux laser sont alors susceptibles de convenir à la production d'impulsion brèves, et sont associées aux dopants respectifs suivants : néodyme, chrome et ytterbium. Les *matériaux dopés au néodyme* peuvent être directement exclus compte tenu de leur largeur spectrale d'émission trop étroite pour envisager de produire des impulsions courtes (à l'exception des verres dopés au néodyme qui, quant à eux, présentent de mauvaises propriétés thermiques). Les lasers basés sur des *matériaux dopés au chrome* tels que les colquirites (Cr<sup>3+</sup>: LiSrAlF<sub>6</sub> ou Cr: LiSAF, Cr<sup>3+</sup>: LiSrGaF<sub>6</sub>, Cr<sup>3+</sup>: LiCaAlF<sub>6</sub>, etc.) ont de larges bandes d'émission, et peuvent être pompés par des diodes laser émettant à 670 nm. Cependant, même s'ils ont permis la génération d'impulsions ayant des durées avoisinant les 10 fs,<sup>18</sup> leurs performances se sont vite avérées limitées à haute puissance,<sup>19</sup> à cause d'un mauvais comportement thermique, d'une forte absorption par l'état excité, et de la faible puissance des diodes laser émettant à 670 nm. En revanche, les *matériaux dopés à l'ion ytterbium* présentent à la fois un bon comportement thermique et des largeurs spectrales adaptées à la production d'impulsions brèves.

### 1.5.2 Nouveaux cristaux dopés à l'ion ytterbium

Schématiquement et toutes proportions gardées, les matériaux dopés à l'ytterbium habituels se regroupent en deux catégories : les matériaux à fort gain et à spectre relativement étroit (Yb: KGW, Yb: KYW ou Yb: YAG), et les matériaux à faible gain et à spectre large (Yb: verre). La frontière séparant ces deux catégories n'est pas rigoureuse : elle se situe aux environs de 100 fs en terme de durée d'impulsion expérimentale (ou de 50 fs pour une durée d'impulsion théorique), et de 0,1 pm<sup>2</sup> en terme de section efficace d'émission.

ĮSĮ.	Matériau	$\Delta t_{th}(fs)$	$\Delta\lambda$ (nm)	$\lambda_0(nm)$	$\sigma_{e}(\lambda_{0}) (pm^{2})$	$\tau$ (ms)	K (W/m/K)
	Yb: SYS	16	75	1070	0,3	0,82	2,8-1,6
	Yb: BOYS	16	75	1062	0,2	1,24	1,5
	Yb: YSO	17	$\approx 70$	1056	0,4	0,67	4,4
	Yb: GdCOB	27	44	1032	0,5	2,44	≈ 2,1
	Yb: verre	33	35	1080	0,05	1,3	0,85
	Yb: KGW	47	25	1040	2,8	0,75	3,8
	Yb: YAG	120	9	1030	2,2	0,95	11

Tableau 1-6 – Comparaison entre différents matériaux laser dopés à l'ion ytterbium, adaptés à la génération d'impulsions brèves. Pour chaque matériau,  $\Delta\lambda$  est la largeur à mi-hauteur du spectre de gain (l'obtention de cette valeur est expliquée au §1.5.4, p.46),  $\Delta t_{th}$  est la durée théorique des impulsions produites (déduites de  $\Delta\lambda$ ),  $\sigma_e(\lambda_0)$  est la section efficace d'émission à la longueur d'onde d'émission  $\lambda_0$ ,  $\tau$  est le temps de fluorescence et K la conductivité thermique du matériau non dopé. Les matrices hôtes telles que le SYS, le BOYS ou encore le GdCOB se placent, quant à elle, à l'intersection de ces deux catégories. En effet, comme le montre le tableau 1-6, le gain de ces *nouveaux cristaux dopés à l'ytterbium* est certes plus faible que ceux du KGW <sup>20</sup> ou du YAG, mais toute de même dix fois plus grand que celui du verre. D'autre part, leur bande spectrale est largement comparable à celle du verre, au point qu'un oscillateur femtoseconde à base d'Yb: BOYS produit expérimentalement des impulsions de 69 fs de durée<sup>21</sup> (assez proche des 60 fs de l'équivalent basé sur l'Yb: verre). Par ailleurs, la croissance de ces cristaux peut s'effectuer par la méthode de Czochralski<sup>22</sup>, ce qui permet de produire des échantillons de taille importante ayant de bonnes propriétés optiques (figure 1-20). Ces nouveaux cristaux dopés à l'ion ytterbium sont majoritairement produits et étudiés pour la première fois par le *Laboratoire de Chimie Appliquée de l'Etat Solide* de l'*Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Paris*, avec qui nous collaborons efficacement depuis de nombreuses années.



Figure 1-20 – Méthode de Czochralski. À gauche, vue intérieure d'un système commercial de croissance cristalline. À droite, exemple d'échantillons d'Yb: SYS.

### Stratégie choisie : spectres de gain très larges

Comme nous le verrons dans le chapitre 3, pour atteindre des durées d'impulsions typiques de 300 à 500 fs en sortie d'un amplificateur régénératif avec la technologie que nous avons choisie, deux approches sont possibles. La première consiste à exploiter des matériaux laser dont le gain est élevé mais dont la bande spectrale est relativement étroite (Yb: KGW, Yb: KYW).<sup>20</sup> Le succès de cette première technique provient principalement du fait que les fortes sections efficaces d'émission des cristaux employés permettent d'amplifier les impulsions avec un nombre d'allers-retours très réduit dans l'amplificateur, ce qui a pour effet de limiter la réduction de la largeur spectrale associée, et donc de garantir une durée d'impulsion relativement proche de la durée initiale. La seconde approche permet en fin de chaîne (après amplification) d'atteindre des performances similaires, mais exploite des matériaux laser dont la bande spectrale est très large et dont le gain est faible. Le but est alors de développer un oscillateur produisant des impulsions très courtes (d'une durée de l'ordre de la centaine de femtosecondes) de sorte que la durée finale des impulsions amplifiées soit la plus petite possible : c'est la stratégie adoptée dans la présente thèse.

Au cours de cette thèse, l'approche que nous avons choisie pour la réalisation d'un laser à impulsions brèves a donc été de développer un oscillateur et un amplificateur régénératif basés sur de nouveaux cristaux dopés à l'ion ytterbium présentant des spectres les plus larges possibles, privilégiant ainsi la durée des impulsions à leur énergie finale. Car, comme nous venons de le voir, ces nouveaux cristaux présentent des sections efficaces d'émission moins grandes que d'autres matériaux dopés à l'ytterbium, mais pourraient conduire à la production d'impulsions plus courtes. Parmi les cristaux étudiés se trouvaient l'Yb: SYS, l'Yb: BOYS, l'Yb: GdCOB et l'Yb: YSO. Les principales différences entre ces cristaux sont visibles sur leurs spectres d'émission (figure 1-21). Leurs structures cristallographiques les divisent en deux classes : les *borates* (Yb: GdCOB et Yb: BOYS), caractérisés par une température de fusion congruente basse (entre 1400 et 1500°C), et les *silicates* (Yb: YSO et Yb: SYS) dont la température de fusion est plus haute (plus de 2000°C), ce qui entraîne une croissance plus difficile, mais de meilleures propriétés thermo-mécaniques.



Figure 1-21 – Spectres d'émission de nouveaux cristaux dopés à l'ion ytterbium (Yb: SYS en magenta pointillés épais, Yb: YSO en noir pointillés fins, Yb: BOYS en rouge, Yb: GdCOB en bleu) comparés à l'Yb: verre, référence en terme de forme et de largeur spectrale d'émission.

#### Oxoborate de calcium et de gadolinium dopé à l'ytterbium – Yb: GdCOB

Grâce à une large bande d'émission centrée à environ 1030 nm, l'Yb: GdCOB est un matériau intéressant pour la génération d'impulsions brèves.<sup>23</sup> Cependant, d'une part les tests de matériaux encore plus récents émettant à des longueurs d'onde plus élevées (autour de 1060-1070 nm) au sein d'oscillateurs femtoseconde nous ont contraint à exclure le GdCOB pour la réalisation finale de notre chaîne laser amplifiée, simplement par manque d'oscillateur à 1030-1040 nm. D'autre part, le long temps de fluorescence du GdCOB (trois fois plus long que celui du SYS par exemple) entraîne un stockage d'énergie important, ce qui a l'inconvénient d'éventuellement provoquer des

endommagements de ce matériau à cause d'oscillations de relaxation dont l'amplitude est particulièrement grande (pour plus de détails sur ce phénomène, voir §3.4, p.98).

#### Borate de strontium et d'yttrium dopé à l'ytterbium – Yb: BOYS

En terme de largeur spectrale d'émission et de forme régulière du spectre d'émission, l'Yb: verre est une référence (figure 1-21). Connu depuis quelques années,<sup>24</sup> l'Yb: BOYS a des propriétés assez proches tout en ayant les avantages d'offrir un gain plus élevé, et de meilleures propriétés thermiques car il s'agit d'un cristal et non d'un matériau amorphe. D'un point de vue cristallographique, ce borate de structure rhomboédrique dispose de deux sites différents dans lesquels l'ytterbium peut se substituer à l'yttrium. Un désordre structurel supplémentaire probablement dû à des défauts d'anti-sites entre le strontium et l'ytterbium explique la largeur peu commune des transitions optiques de ce cristal. Ainsi a-t-il conduit à la réalisation d'un oscillateur femtoseconde très performant<sup>21</sup> et avec une plage d'accordabilité en longueur d'onde s'étendant de 1051 à 1070 nm. Cependant, de par le caractère aléatoire non encore maîtrisé de la croissance de ces cristaux, nous n'avons disposé que d'un seul échantillon satisfaisant jusqu'à ce jour (utilisé pour développer un oscillateur femtoseconde). L'étude de ce cristal pour développer une chaîne femtoseconde complète était donc prématurée. Notons toutefois qu'il existe une version améliorée du BOYS, dont l'intérêt est d'améliorer les propriétés thermomécaniques médiocres de ce dernier. Il s'agit du Sr<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>)<sub>3</sub>Y(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>), (ou « CaBOYS ») dans lequel les ions strontium sont remplacés partiellement ou totalement par des ions calcium Ca<sup>2+</sup>, ions divalents de taille inférieure permettant de renforcer la structure du cristal pour éviter l'apparition de fractures.<sup>32</sup>

### Orthosilicate d'yttrium dopé à l'ytterbium – Yb: YSO

Le premier cristal silicaté que nous allons évoquer est l'YSO qui est connu depuis longtemps en dopage au néodyme,<sup>25</sup> au chrome,<sup>26</sup> au thulium,<sup>27</sup> ou encore en codopage à l'erbium et à l'ytterbium.<sup>28</sup> L'YSO dopé à l'ion ytterbium développé conjointement par le *LETI* (CEA Grenoble) et le *LCAES*, a été récemment étudié, en pompage par diode.<sup>2</sup> Malgré une température de fusion élevée (environ 2000°C), la croissance par la technique de Czochralski de ce cristal est bien maîtrisée. Par ailleurs, il existe deux types de sites de substitution possibles pour l'ion ytterbium.<sup>29</sup> La figure 1-21 montre bien que le spectre d'émission de l'Yb: YSO est très perturbé aux hautes longueurs d'onde qui sont précisément celles auxquelles on travaille. Ces oscillations du spectre peuvent avoir des conséquences catastrophiques dans un amplificateur régénératif d'impulsions brèves. En effet, le gain de ces matériaux n'étant pas très élevé, de nombreux passages (de l'ordre de 150 allers-retours, soit 300 passages) sont nécessaires pour qu'une impulsion laser à amplifier parvienne à extraire toute l'énergie stockée dans le milieu à gain. Cela signifie très grossièrement que le spectre de l'impulsion est multiplié par le gain spectral (qui présentera des oscillations analogues à celle du spectre d'émission) pris à la puissance du nombre de passages. Autrement dit, à l'issue d'une centaine d'allers-retours dans la cavité de l'amplificateur, le spectre de l'impulsion sera fortement modulé, ce qui se traduira en sortie d'amplificateur par un rétrécissement spectral important, et donc une durée

d'impulsion beaucoup plus grande à la sortie qu'à l'entrée (nos propos sont démontrés de manière numérique en annexe III, p.153).

### Oxyapatite d'yttrium et de strontium dopé à l'ytterbium – Yb: SYS

Les matériaux dopés à l'ytterbium ayant les meilleures performances laser (en terme de gain) sont les fluoroapatites – tels que  $Sr_5(PO_4)_3F$  (SFAP),  $Ca_5(PO_4)_3F$  (CFAP),  $Sr_5(VO_4)_3F$  (SVAP), qui présentent des sections efficaces d'émission particulièrement grandes (6,2 pm<sup>2</sup> pour le SFAP à 1046 nm). Cependant les largeurs spectrales (~4 nm) de ces matériaux ne conviennent pas à la production d'impulsions brèves. De plus, ils sont difficiles à produire sous la forme de monocristaux volumineux. Certains membres de la famille des apatites – famille qui englobe celle des fluoroapatites et partage leurs inconvénients – présentent néanmoins des propriétés très intéressantes : ce sont les oxyapatites. Parmi ces derniers, les composés CaLa<sub>4</sub>(SiO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>O et CaY<sub>4</sub>(SiO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>O (CYS) dopés au néodyme ou à l'holmium ont été étudiés en tant que matériau laser.<sup>30</sup> Le second apparaît plus intéressant que le premier en raison d'une substitution plus facile de l'yttrium par l'ytterbium. Étudié récemment en dopage à l'ytterbium et pompage par diode, le composé SrY<sub>4</sub>(SiO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>O (SYS) est un proche voisin du CYS. Contrairement aux composés tels que le SFAP, le SYS présente un spectre d'émission très large (plus large que celui de l'Yb: verre), et une section efficace d'émission plus grande que celles des autres nouveaux cristaux sur presque toute la bande spectrale d'émission.



Figure 1-22 – Structure cristallographique du SYS mettant en évidence les sites 4f et 6h, où l'ytterbium peut se substituer à l'yttrium ou au strontium.

Dans la structure cristallographique du SYS (figure 1-22), les tétraèdres SiO<sub>4</sub> sont disposés de sorte qu'il existe deux types de sites d'accueil pour les cations  $Sr^{2+}$  et  $Y^{3+}$ , correspondants aux positions de Wyckoff notées *4f* et *6h*. Les sites 6h sont exclusivement occupés par l'yttrium, alors que les sites 4f sont occupés à moitié par l'yttrium et par le strontium. Étant analogue à l'yttrium en terme de taille et de charge, l'ytterbium se substitue à l'yttrium sans préférence marquée pour un site ou un autre, pourvu qu'il soit occupé par l'yttrium. En pratique, les ions ytterbium se répartissent sur les sites 6h et 4f, avec une probabilité trois fois plus grande sur le premier que sur le second. La largeur spectrale caractérisant l'Yb: SYS est précisément due à ce désordre structurel.

Au cours de la présente thèse, un oscillateur femtoseconde<sup>31</sup> et un amplificateur régénératif performants ont été développé autour du cristal d'Yb: SYS, qui semble donc convenir à nos exigences. Outre sa bande spectrale particulièrement large due à l'existence de multiples sites d'accueil au sein de la matrice de SYS pour l'ion ytterbium, ce nouveau cristal présente une courbe d'émission très régulière et adaptée à l'émission à des longueurs d'onde situées entre 1060 et 1070 nm. Contrairement à l'Yb: BOYS, nous possédions quelques échantillons d'Yb: SYS, suffisamment pour développer une chaîne complète basée sur ce cristal.

### 1.5.3 Spectroscopie de l'ion ytterbium

Lorsqu'il est soumis au champ cristallin d'une matrice hôte (SYS, GdCOB, YAG, KGW, etc.), l'ion ytterbium présente un diagramme d'énergie assez simple, constitué de deux multiplets :  ${}^{2}F_{7/2}$ , le niveau fondamental, et  ${}^{2}F_{5/2}$  (voir partie gauche de la figure 1-23). Ces multiplets sont respectivement scindés en quatre et trois sous-niveaux Stark. Cette spectroscopie simplifiée ne tient évidemment pas compte de la présence d'états dont les énergies sont trop éloignées de celles des niveaux  ${}^{2}F_{7/2}$  et  ${}^{2}F_{5/2}$  : ne sont sélectionnés que les états participant à l'effet laser à une longueur d'onde de travail avoisinant le micron. La simplicité du diagramme des niveaux d'énergie de l'ytterbium entraîne en général<sup>32</sup> l'absence de transferts d'énergie non-radiatifs donnants lieux à des mécanismes d'« up-conversion » ou de relaxation croisée, phénomènes nuisibles à l'effet laser.



Figure 1-23 –  $\hat{A}$  gauche, diagramme des niveaux d'énergie de l'ion ytterbium soumis au champ cristallin d'une matrice de SYS (Yb: SYS). Chaque double flèche représente une transition optique possible (associée au pompage optique à gauche, et à l'émission à droite) sur laquelle est indiquée la longueur d'onde correspondante. Pour chaque sous-niveau, l'énergie associée est indiquée à droite en cm<sup>-1</sup>, et la population relative à l'équilibre thermodynamique (à l'ambiante) au dessus en pourcentage.  $\hat{A}$  droite, courbes expérimentales des sections efficaces d'émission  $\sigma_e$  (en haut) et d'absorption  $\sigma_a$  (en bas) de l'Yb: SYS en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$ , à température ambiante. Le fait qu'il ne s'agisse pas de spectres de raies est principalement dû à l'interaction électron-phonon (voir texte).

#### Laser quasi-trois niveaux

Dans le cadre de notre étude, la longueur d'onde de pompe choisie correspond au maximum d'absorption de l'ytterbium, autour de 977 nm. Dans ce cas de figure, un laser ytterbium est un *système quasi-trois niveaux*, c'est-à-dire une configuration équivalente à un laser trois niveaux de type I (figure 1-4, p.16), mais ne comportant que deux niveaux réels. Le pompage sur ce que l'on appelle la raie à zéro phonon (en anglais, « zero line ») a l'avantage de profiter de l'énorme absorption de l'ytterbium à cette longueur d'onde (voir partie droite de la figure 1-23), mais son inconvénient majeur est de pomper à une longueur d'onde à laquelle l'émission est également très importante. Cela implique une diminution de l'efficacité du pompage, et, par conséquent, de l'inversion de population de saturation (inversion de population maximale atteinte à la fin du régime transitoire), qui sera alors limitée à environ 50% de la densité totale d'ions.\* Néanmoins, cette configuration de pompage a également l'avantage de conduire à un faible défaut quantique : la différence entre l'énergie d'un photon de pompe et celle d'un photon émis varie de 2,6 à 10% selon la longueur d'onde d'émission, et avoisine les 8% pour une émission autour de 1,06 µm. Cette grandeur correspond à une quantité d'énergie qui sera libérée sous forme de chaleur : plus le défaut quantique est faible, plus le comportement thermique et les performances laser en seront améliorés.

### Population thermique des niveaux

Selon l'éclatement des niveaux d'énergie par le champ cristallin (qui dépend de la matrice hôte), l'inversion de population est contrecarrée par la population thermique des sous-niveaux du multiplet fondamental. En général, l'influence de ce phénomène est prise en compte via le *facteur d'occupation de Boltzmann* de chaque sous-niveau, défini comme la fraction de population du sous-niveau par rapport à la population totale du multiplet (calculée suivant la loi de Bolztmann). Sur la figure 1-23, les facteurs d'occupation de Boltzmann du multiplet fondamental, sont indiqués à l'équilibre thermodynamique à gauche de chaque sous-niveau dans le cas de l'Yb: SYS. Il apparaît clairement que leur contribution n'est pas négligeable vis-à-vis des transitions lasers indiquées.

#### Elargissement homogène des raies d'émission

Chaque raie d'émission a un élargissement inhomogène qui est majoritairement dû au caractère « multisite » de la matrice dopée. En effet, si l'ion dopant a plusieurs sites d'accueil possibles au sein d'une même maille cristalline de la matrice hôte, les niveaux électroniques de l'ion vont être légèrement décalés en énergie d'un site à l'autre, à cause des différences entre les structures cristallines qui entourent l'ion dans chaque site. Ainsi, les transitions vont s'élargir de manière inhomogène. De plus, chacune de ces transitions subit un élargissement homogène dû à l'interaction électron-phonon entre les vibrations du réseau cristallin et les niveaux électroniques de l'ion dopant. Cette interaction est nettement plus importante dans le cas d'un matériau dopé à l'ytterbium, que dans celui du même matériau dopé au néodyme par exemple. C'est cette interaction qui explique le fait que le diagramme de

<sup>\*</sup> Notons ici que les pompages à 936 et à 907 nm auraient conduit à un système quasi-quatre niveaux, et donc à une inversion de population maximale plus grande. Cependant l'absorption à ces longueurs d'onde est nettement moins importante.

niveaux d'énergie de l'ytterbium ne conduit pas à une émission sous la forme d'un spectre de raies, mais à un spectre d'émission continu et large. Les lasers ytterbium présenteront donc une émission ayant un élargissement qui est globalement homogène.

### 1.5.4 Propriétés laser

Dans le cas d'un laser quasi-trois niveaux, comme un laser ytterbium, nous pouvons exprimer l'équation temporelle de l'évolution de la population  $N_2$  du niveau excité ( ${}^{2}F_{5/2}$ ) de la façon suivante :

$$\frac{dN_2}{dt} = (\sigma_a N_1 - \sigma_e N_2) \frac{hc}{\lambda} I + (\sigma_a N_1 - \sigma_e N_2) \frac{hc}{\lambda_p} I_p$$

en fonction de la population du niveau bas de la transition laser  $N_I$  (à ne pas confondre avec le niveau fondamental), des sections efficaces d'émission  $\sigma_e$  et d'absorption  $\sigma_a$ , de l'intensité laser I, de l'intensité de pompe  $I_p$  et des longueurs d'onde du laser  $\lambda$  et de la pompe  $\lambda_p$ .

Le gain linéique g (cm<sup>-1</sup>) défini par  $\frac{dI}{dz} = gI$ , s'exprime alors :  $g = \sigma_e N_2 - \sigma_a N_1 = (\sigma_e + \sigma_a)N_2 - \sigma_a N_1$ 

avec  $N = N_1 + N_2$ . En introduisant la grandeur sans unité  $\beta$ , appelée *taux d'inversion de population* et la grandeur  $\sigma_g$ (cm<sup>2</sup>), appelée *section efficace de gain*, définies respectivement par  $\beta = \Delta N/N$  et  $\sigma_g = g/N$  avec  $\Delta N \approx N_2$  (en l'absence d'effet laser), il vient la relation suivante :

$$\sigma_{g}(\lambda) = \left[\sigma_{e}(\lambda) + \sigma_{a}(\lambda)\right]\beta - \sigma_{a}(\lambda).$$

Équation 1-3

Par ailleurs, la grandeur  $\beta$  est proportionnelle à l'inversion de population, et dépend donc de la puissance de pompe : nous avons déjà vu l'allure de la cette dépendance au §1.1 lorsque nous comparions les lasers trois niveaux de type II aux lasers quatre niveaux et trois niveaux de type I. Dans le présent paragraphe, nous simulons des lasers basés sur les cristaux d'Yb: SYS et d'Yb: BOYS (le choix de ces matériaux est dû au fait qu'ils interviennent largement dans la suite de ce mémoire). Dans la figure 1-24, les variations de  $\beta$  en fonction de la puissance de pompe sont représentées dans le cas de l'Yb: SYS, de l'Yb: BOYS et de l'Yb: GdCOB (pour comparaison). Lorsque la puissance de pompe augmente apparaît le phénomène de *saturation de l'absorption* qui est dû au fait que plus le niveau fondamental est dépeuplé, moins l'absorption est efficace. L'équation 1-3 nous permet par exemple d'étudier le comportement spectral du gain en fonction du taux d'inversion dans le cas de l'Yb: SYS et de l'Yb: BOYS (figure 1-25). Ainsi, dans ces deux cas, nous observons un décalage du maximum de la courbe de gain vers les basses longueurs d'onde lorsque  $\beta$  augmente. D'autre part, plus  $\beta$  est grand, plus la largeur à mi-hauteur du spectre de gain est importante, et par conséquent plus la durée des impulsions associées à ce matériau laser est potentiellement brève : ce phénomène est spectaculaire dans le cas de l'Yb: SYS pour lequel la largeur spectrale de gain augment de 50 à 75 nm lorsque le taux d'inversion augmente de 10 à 50%.



Figure 1-24 – Simulation de l'évolution du taux d'inversion moyen en fonction de la puissance de pompe à 976 nm pour l'Yb: SYS (trait continu épais), l'Yb: BOYS (trait continu fin), et l'Yb: GdCOB (trait pointillé). Outre la différence de gain entre ces trois matériaux, ces courbes mettent en évidence la saturation de l'absorption, plus marquée dans le cas du SYS et du BOYS que dans celui du GdCOB. La valeur de  $\beta_{moyen}$  résulte d'une moyenne le long de l'axe optique du cristal (long de 5 mm).

La largeur spectrale de gain la plus importante que nous puissions obtenir avec un laser basé sur un matériau dopé à l'ytterbium donné est la valeur correspondant à un taux d'inversion de population de 50 % (limitation due au caractère « quasi-trois niveaux » des lasers ytterbium, voir §1.5.3). C'est justement cette valeur qui est considérée pour calculer la valeur théorique minimale de la durée des impulsions que l'on peut espérer produire en employant un tel matériau laser (tableau 1-6, p.39). Afin de produire ou d'amplifier des impulsions les plus courtes possibles, il faudra donc expérimentalement s'assurer que le taux d'inversion de population est le plus grand possible.

Le taux d'inversion de population étant lié à l'effet laser (l'établissement de l'effet laser conduit notamment à une baisse de l'inversion de population) nous pouvons établir un raisonnement intéressant par l'observation des courbes de la figure 1-25. Lors de l'allumage d'un laser ytterbium, le gain total par aller-retour augmente progressivement au cours du temps jusqu'à ce qu'il dépasse les pertes totales de la cavité. Dès cet instant, l'effet laser apparaît et provoque un dépeuplement significatif du niveau excité, c'est-à-dire une diminution de  $\beta$ . Autrement dit, le spectre de gain se décale vers les hautes longueurs d'onde jusqu'à ce qu'un équilibre s'instaure entre le gain total par allerretour et les pertes totales de la cavité laser.



Figure 1-25 – *En haut,* simulation de l'évolution de la section efficace de gain en fonction de la longueur d'onde, pour différentes valeurs du taux d'inversion de population  $\beta$  (*à gauche* le cas de l'Yb: BOYS, et *à droite* celui de l'Yb: SYS). Les courbes en pointillés relient les maxima des courbes en trait plein. *En bas,* évolution de la largeur spectrale de gain en fonction du taux d'inversion de population : les points représentés correspondent aux largeurs à mi-hauteur des différentes courbes représentées en haut de la figure.



Figure 1-26 – Simulation du comportement spectral d'un laser ytterbium continu : puissance de sortie en fonction de la longueur d'onde, pour différents couplages de sortie (trait fin), spectre correspondant à la puissance de sortie optimale (trait épais), et courbe reliant les maxima des spectres (trait pointillé). Un cristal d'Yb: SYS est pompé optiquement dans une cavité laser oscillante, de sorte que sans effet laser le taux d'inversion soit égal à 6%. Avec effet laser, nous introduisons des pertes variables en changeant successivement de coupleur de sortie de 1 % à 10 %. Un optimum existe (à 5 %) pour la puissance de sortie, car plus le couplage est élevé, plus la puissance de sorti est potentiellement grande mais aussi plus les pertes sont élevées. Hormis les longueurs d'onde, les valeurs numériques ne sont sensées montrer ici que des tendances.

De ce raisonnement, nous pouvons déduire une propriété importante du comportement spectral d'un laser ytterbium. *Si le gain augmente, ou si les pertes diminuent, la longueur d'onde centrale du spectre émis par un laser ytterbium subit un décalage vers les hautes longueurs d'onde.* Au contraire, si les pertes augmentent (par exemple, à travers l'augmentation du couplage de sortie, c'est-à-dire de la transmission du miroir de sortie comme l'illustre la figure 1-26), ou si le gain diminue, alors le spectre émis se décale vers le bleu. Nous observerons ce comportement caractéristique des lasers ytterbium tout au long de ce mémoire de thèse, aussi bien dans l'étude d'oscillateurs femtoseconde (chapitre 2) que celle d'amplificateurs régénératifs (chapitre 3).

### 1.6 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons vu les notions de base nécessaires à la compréhension du contexte scientifique dans lequel s'inscrit la présente thèse. Ce tour d'horizon nous a permis de présenter des concepts élémentaires sur l'effet laser à travers une introduction historique, puis les multiples avantages et particularités du pompage optique par diode laser, permettant ainsi d'entrer dans le monde des lasers solides directement pompés par diode. Ensuite, nous avons abordé les notions théoriques liées aux impulsions laser brèves et à leur caractérisation, avant de présenter les avantages de nouveaux cristaux dopés à l'ion ytterbium – l'Yb: SYS et l'Yb: BOYS – pour la production de telles impulsions. Cet ensemble d'arguments que nous avons tenté de rassembler en gardant un ton le plus général possible, nous conduit naturellement à insister sur l'intérêt des lasers femtoseconde ytterbium pompés par diode utilisant ces nouveaux matériaux. En particulier, nous avons développé deux oscillateurs femtoseconde utilisant respectivement les cristaux d'Yb: SYS et d'Yb: BOYS (chapitre 2), et un amplificateur régénératif basé sur des échantillons différents d'Yb: SYS (chapitre 3).

## Chapitre 2

# **OSCILLATEURS FEMTOSECONDE YTTERBIUM**

L'étude théorique d'un oscillateur femtoseconde ytterbium est complexe à cause de la multitude d'effets physiques intervenant lors de la formation d'impulsions brèves. C'est un domaine de recherche en pleine ébullition depuis quelques années, où chaque nouvelle observation expérimentale nécessite l'ajout d'une nouvelle brique à cet édifice théorique, contredisant parfois d'anciennes idées reçues. L'organisation de ce chapitre entre partie théorique et partie expérimentale est volontairement disproportionnée, afin de donner au lecteur tous les éléments indispensables à la compréhension des phénomènes intervenant dans un oscillateur femtoseconde ytterbium. Du rappel des effets non linéaires impliqués, au mécanisme de formation d'impulsions brèves, en passant par les instabilités du régime impulsionnel, nous traitons la plupart des phénomènes physiques tels qu'ils sont connus à ce jour. Nous présenterons enfin les résultats expérimentaux que nous avons obtenus avec des oscillateurs femtoseconde basés sur les cristaux d'Yb: SYS et d'Yb: BOYS.

### 2.1 Introduction

Le domaine des lasers solides à impulsions brèves a été bouleversé par la découverte des propriétés du saphir dopé au titane (Ti:Sa), le matériau laser possédant le spectre d'émission le plus large à l'état de nos connaissances. Les lasers Ti:Sa ont provoqué une véritable révolution dans le domaine de la physique des phénomènes ultra-rapides dès la découverte du verrouillage de modes par effet Kerr, inondant un marché jusqu'alors dominé par les lasers à colorant. Cette transition a rapidement donné naissance à de nouvelles méthodes de verrouillage des modes en phase, indispensables pour le bon fonctionnement de ces dispositifs. En effet, la formation d'impulsions dans un laser à colorant est le résultat de l'équilibre entre saturation du gain du milieu amplificateur et saturation de l'absorption d'un milieu non linéaire présent dans la cavité. Or, contrairement aux lasers à colorant qui présentent des durées de vie de l'état excité très courtes (~10ns), les lasers solides de manière générale ont des temps de fluorescence 10<sup>3</sup> à 10<sup>5</sup> fois plus longs. Par conséquent, le gain ne sature que très peu entre chaque impulsion, et ne peut être responsable de la formation d'impulsions. Pour cette nouvelle classe de lasers à laquelle appartiennent les lasers ytterbium, il est donc nécessaire d'employer d'autres techniques de verrouillage des modes en phase.

L'utilisation d'un *absorbant saturable rapide*\* est tout d'abord apparue indispensable, et se retrouve donc dans deux de ces nouvelles techniques. La première, appelée *verrouillage de modes par addition d'impulsions*,<sup>33</sup> est basée sur l'addition cohérente d'impulsions ayant subit une automodulation de phase. La deuxième, connue sous le nom de *verrouillage de modes par lentille de Kerr*, et découverte en 1990,<sup>34</sup> exploite le phénomène d'autofocalisation dans le matériau laser en tant qu'absorbant saturable rapide artificiel.<sup>35</sup> Ces deux méthodes sont donc basées sur l'effet Kerr optique. Les effets non linéaires associés sont quasi-instantanés à l'échelle de temps des durées d'impulsion visées : les mécanismes impliqués dans la formation des impulsions sont donc assimilables à des absorbants saturables rapides.

Plus récemment, l'emploi d'*absorbants saturables lents* s'est avéré adapté pour la production d'impulsions courtes.<sup>36</sup> Ainsi, l'utilisation d'*absorbants saturables à semi-conducteurs*,<sup>37</sup> combinée avec un verrouillage de modes par lentille de Kerr, a permis dès 1997 de produire des impulsions (directement issues d'un oscillateur) d'une durée inférieure à la dizaine de femtosecondes.<sup>38</sup> Enfin, la formation de *solitons temporels* permet de stabiliser et de réduire encore plus la durée des impulsions produites grâce à des absorbants saturables à semi-conducteurs.

### 2.2 Effets non linéaires

### 2.2.1 Autofocalisation

Étudions la propagation d'un faisceau laser dont l'intensité a un profil spatial I(r) gaussien, dans un milieu non linéaire présentant une susceptibilité non linéaire du troisième ordre (milieu  $\chi^{(3)}$ ). L'indice de réfraction du milieu est alors donné par la relation ci-dessous, c'est l'*effet Kerr optique* :

$$n(r) = n_0 + n_2 I(r).$$

La conséquence de cette relation est que – pour un milieu dont le  $n_2$  est positif – l'indice de réfraction est plus grand au centre du faisceau qu'en ses extrémités. Lors de la traversée d'une faible épaisseur  $e_0$  de matériau non linéaire, l'effet d'un tel gradient d'indice est strictement analogue à celui produit par une lentille convergente constituée d'un matériau d'indice  $n_0$ , et imposant un chemin optique e(r) plus long en son centre qu'en ses bords suivant la loi :

$$e(r) = e_0 \left( 1 + \frac{n_2}{n_0} I(r) \right).$$

Lorsque l'impulsion se propage dans un milieu épais, ce processus est accentué car la focalisation du faisceau entraîne une augmentation de I(r) (et donc de la vergence de la lentille équivalente) tout au long de la traversée du

<sup>\*</sup> Qualifier un absorbant saturable de « rapide » est évidemment relatif. Ici, nous sous-entendons que de tels matériaux non linéaires ont des temps de récupération comparables à la durée finale des impulsions produites.

milieu. La diminution de la focale de la lentille s'arrête lorsque la taille du faisceau est suffisamment petite pour que la diffraction s'équilibre avec l'effet Kerr (figure 2-1). Cet effet, qui porte le nom de *lentille de Kerr*, est exploité dans une technique de verrouillage de modes évoquée par la suite (§2.3.3, p.60).



Figure 2-1 – Autofocalisation schématisée d'un faisceau laser traversant un milieu non linéaire ayant un  $n_2$  non nul.

### 2.2.2 Automodulation de phase

Étudions à présent l'effet analogue à l'autofocalisation transposé dans le domaine temporel, qui est une autre conséquence de l'effet Kerr optique. Considérons la propagation d'une impulsion laser dont l'intensité a un profil temporel I(t), dans un milieu  $\chi^{(3)}$  dont l'indice s'écrit de la façon suivante :

$$n(t) = n_0 + n_2 I(t).$$

La dépendance temporelle de l'indice de réfraction a une incidence complexe sur la phase et le spectre de l'impulsion traversant ce milieu. Le champ électrique décrivant cette dernière s'écrit :

$$E(t) = M(t)e^{i(\omega_0 t - kx)}$$

où M(t) est une sécante-hyperbolique normalisée,  $\omega_b$  est la pulsation centrale de l'impulsion, k est le module du vecteur d'onde, et x la position le long de l'axe de propagation de l'impulsion. Après propagation dans un milieu ayant un  $n_2$  non nul et d'épaisseur L, le champ électrique devient :

$$E(t) = M(t)e^{i\omega_0\left(t - \frac{L}{c}n(t)\right)}.$$

L'effet observé sur l'expression temporelle du champ électrique est singulier. En effet, lorsque  $n_2$  est positif, l'automodulation de phase entraîne l'apparition de nouvelles fréquences : des basses fréquences (rouge) sur le front montant, et des hautes fréquences (bleu) sur le front descendant de l'impulsion (figure 2-2). En calculant la transformée de Fourier de l'expression temporelle du champ électrique, soit le spectre de l'impulsion, nous observons un élargissement dû à ces nouvelles composantes spectrales (figure 2-3). Alors que la durée des impulsions n'est strictement pas affectée par ce phénomène (à condition que le milieu ne soit pas dispersif), le spectre de l'impulsion s'élargit donc globalement.



Figure 2-2 – Schéma de principe de l'automodulation de phase d'une impulsion (dont les composantes spectrales sont initialement toutes en phase) dans un milieu non linéaire. Après avoir traversé ce milieu, l'impulsion comporte de nouvelles fréquences.



Figure 2-3 – Simulation numérique de l'influence de l'automodulation de phase sur le spectre d'une impulsion traversant un milieu non linéaire ayant un  $n_2$  non nul. Ces spectres ont été obtenus par transformée de Fourier discrète des champs électriques d'impulsions traversant des épaisseurs de matériau différentes, induisant des déphasages dus à l'automodulation de phase différents.

Plus le rapport L/c est grand, plus le déphasage induit par l'automodulation de phase est grand, et plus le spectre est large (figure 2-3). C'est une propriété utilisée dans un concept particulièrement efficace de compression

d'impulsions permettant de produire des impulsions ultra-brèves (<10 fs) dans une fibre optique. L'idée générale est d'injecter des impulsions dans une fibre optique qui est choisie *monomode*, de sorte que le faisceau ne diverge pas au cours de sa propagation (augmentant ainsi l'interaction non-linéaire). L'automodulation de phase est alors en compétition avec la dispersion, dont l'effet est contraire, et l'élargissement du spectre des impulsions peut être considérable.

### 2.2.3 Absorbants saturables

Le dernier effet non linéaire que nous abordons est celui de la saturation de l'absorption. Afin de verrouiller les modes en phase dans un oscillateur laser, il est parfois utile d'employer un composant optique dont la transmission augmente avec l'intensité du faisceau laser le traversant (figure 2-4).



Figure 2-4 – Simulation de la saturation de l'absorption d'un système deux niveaux. : coefficient d'absorption linéique en fonction de l'intensité (a1) en échelle linéaire et (a2) en échelle logarithmique, et transmission en fonction de l'intensité (b1) en échelle linéaire, et (b2) en échelle logarithmique.

Un tel matériau, appelé absorbant saturable, est caractérisé par les propriétés macroscopiques suivantes :

- la *fluence de saturation*, notée  $J_{sat,AS}$ , qui est la fluence à partir de laquelle la transmission augmente sensiblement : un matériau est dit *n* fois saturé lorsqu'il est soumis à une fluence *n* fois plus grande que la fluence de saturation (nous ne citerons pas ici la grandeur voisine qui est l'*intensité de saturation*, notée  $I_{sat,AS}$  évoquée un peu plus loin);

- la *profondeur de modulation*, notée  $\Delta R$ , qui est la différence entre la transmission à intensité très grande devant l'intensité de saturation et la transmission à intensité nulle;
- les *pertes non saturables*, notées  $\Delta R_{ns}$ , qui correspondent à l'absorption résiduelle du matériau soumis à une impulsion de fluence très grande devant la fluence de saturation ;
- le *temps de récupération* ou la *réponse percussionnelle*, noté  $\tau_{AS}$ , qui est le temps nécessaire au retour à l'équilibre de l'absorbant saturable.

La profondeur de modulation est le maximum de pertes saturables par une impulsion incidente de fluence  $J_{inc}$  très grande devant la fluence de saturation. Le coefficient de pertes en amplitude maximal est noté  $q_0$  et défini par :

$$\Delta R = 1 - e^{-2q_0} \approx 2q_0$$
 si  $q_0 << 1$ .

La section efficace d'absorption  $\sigma_{AS}$  de l'absorbant saturable dans le cas d'une cavité linéaire, et le coefficient d'absorption  $\alpha$  sont données par les relations suivantes :

$$J_{sat,AS} = \frac{h\nu}{2\sigma_{AS}} \quad ; \quad \alpha = \sigma_{AS}N_D$$

où hv est l'énergie du photon, et  $N_D$  est la densité d'atomes de l'absorbant.

Nous pouvons également exprimer l'intensité de saturation de la manière suivante :

$$I_{sat,AS} = \frac{J_{sat,AS}}{\tau_{AS}}$$



Figure 2-5 – Simulation de l'effet de la saturation de l'absorption sur une impulsion de profil temporel de type sécante hyperbolique : (a) cas d'un absorbant saturable rapide (courbes normalisées), (b) cas d'un absorbant saturable lent. Pour comparaison, les profils temporels avant (trait continu) et après (trait pointillé) l'absorbant saturable sont superposés.

Les absorbants saturables dits rapides réagissent instantanément au flux de photons auquel ils sont exposés (figure 2-5a). Dans le cas d'une impulsion traversant un absorbant saturable rapide, le résultat est un rétrécissement de la durée de cette dernière car l'absorption est plus forte en ses extrémités qu'en son maximum. En revanche, si la

même impulsion traverse un matériau absorbant saturable lent, alors la saturation intervient avec un certain temps de retard : le résultat est une impulsion de profil temporel asymétrique (figure 2-5b).

Le caractère « lent » ou « rapide » d'un absorbant saturable est évidemment lié à la durée des impulsions considérées. Pour des impulsions brèves (< 1 ps), tous les milieux non linéaires sont des absorbants saturables lents. L'effet équivalent à un absorbant saturable rapide est réalisable en exploitant les processus non linéaires du matériau laser (verrouillage de modes par lentille de Kerr, ou par addition cohérente d'impulsions – méthode interférométrique qui n'est plus utilisée actuellement en raison de problèmes de stabilité).

### 2.3 Verrouillage de modes passif

#### 2.3.1 Les deux catégories de verrouillage des modes

Les méthodes permettant de réaliser un laser déclenché par verrouillage des modes en phase (§1.3.2, p.25) s'inscrivent dans deux catégories principales. La première catégorie de verrouillage de modes en phase, connue sous le nom de verrouillage de modes actif sort du cadre de cette thèse.



modes sont verrouillés passivement.

Figure 2-7 – Rôle de l'absorbant saturable dans le verrouillage des modes passif

#### Verrouillage des modes passif

La seconde catégorie de verrouillage des modes en phase est basée sur l'idée de *favoriser une concentration d'énergie importante en un point de la cavité laser en insérant un milieu non linéaire*. Si les conditions sont bien choisies, cela se traduit par la formation d'une impulsion unique se propageant dans la cavité. Sélectionner un maximum d'intensité unique (pour un aller dans la cavité) dans le domaine temporel équivaut à établir une relation de phase entre les modes longitudinaux dans le domaine spectral. Ce concept porte le nom de verrouillage de modes passif et nécessite l'utilisation d'un absorbant saturable (figure 2-6) : c'est la combinaison de la saturation de l'absorption et de celle du gain du milieu amplificateur qui est à l'origine de la formation d'impulsions courtes (dans le cas des lasers solides, seul l'absorbant saturable est responsable de la formation des impulsions). La présence de l'absorbant saturable favorise le régime impulsionnel car sa transmission n'est grande que pour de fortes intensités crêtes (figure 2-7) : cela signifie qu'il introduit des pertes importantes pour le régime continu (caractérisé par de petites intensités crêtes) et de faibles pertes pour le régime impulsionnel (caractérisé par de grandes intensités crêtes).

### 2.3.2 Mécanisme de formation d'impulsions par verrouillage des modes en phase passif

Les propriétés non linéaires du matériau laser et de l'absorbant saturable, qui déterminent la dynamique du gain et des pertes d'un laser basé sur le verrouillage des modes passif, sont à l'origine des différents mécanismes de formation d'impulsions.



Figure 2-8 – Mécanismes de formation d'impulsions dans le cas du verrouillage de modes passif utilisant : (a) un absorbant saturable lent et une saturation du gain, (b) un absorbant saturable rapide, (c) un absorbant saturable lent (et le régime soliton, même s'il n'apparaît pas sur la figure). La zone grisée représente la « fenêtre de gain net ». Notons que dans les cas (b) et (c), la saturation du gain est négligeable, et n'intervient donc pas dans le mécanisme de formation des impulsions.

#### (a) Absorbant saturable lent et saturation du gain

Dans le cas d'un laser à colorant dont les modes sont verrouillés en phase passivement à l'aide d'un absorbant saturable lent (figure 2-8a), la formation d'impulsions courtes suit le schéma suivant. Dans les premiers instants suivant l'allumage du laser, la présence d'un absorbant saturable favorise la formation d'un pic d'intensité unique dans la cavité laser. Considérons un instant pour lequel ce pic correspond à une impulsion qui n'a pas encore atteint sa durée minimale. D'une part, à chaque passage à travers l'absorbant saturable lent, l'impulsion devient de plus en plus dissymétrique (figure 2-5, p.56) : l'avant de l'impulsion est atténué alors que l'arrière n'est pas affecté. D'autre part, à chaque passage à travers le matériau laser, le gain est maximal pour l'avant de l'impulsion mais sature pour l'arrière : l'avant de l'impulsion est amplifié, alors que l'arrière est inchangé. Après de nombreux allers-retours de ce

type, l'impulsion subit un rétrécissement de sa durée et une augmentation de son maximum, car son centre est globalement amplifié (amplifié par le matériau laser, et non atténué par l'absorbant saturable) et ses extrémités sont globalement atténuées (non amplifiées par le matériau laser, et atténuées par l'absorbant saturable). Cette situation est possible car le gain sature moins vite que les pertes : le laps de temps pendant lequel le gain est supérieur au pertes, appelé *fenêtre de gain net*, est relativement court. En effet, l'absorbant saturable a un temps de récupération inférieur au temps d'aller-retour de la cavité laser  $T_R$  (typiquement de l'ordre de la dizaine de nanosecondes), qui est le temps séparant chaque impulsion, alors que le temps de fluorescence du matériau laser avoisine la durée  $T_R$ .

#### (b) Absorbant saturable rapide

Si le temps de fluorescence est très grand devant  $T_R$ , ce qui est le cas des lasers solides, alors cette dynamique de formation d'impulsion n'est plus valable. C'est pourquoi, à la fin des années 80, il est tout d'abord apparu indispensable d'utiliser un absorbant saturable rapide pour produire des impulsions courtes avec des lasers solides. Sachant que le gain ne sature pas à l'échelle de temps donnée par  $T_R$ , il est désormais considéré comme constant au cours du temps. Dans cette nouvelle situation, l'utilisation d'un absorbant saturable rapide permet de réduire la fenêtre de gain net à un intervalle de temps proche de la durée d'impulsions visée (figure 2-8b). Ce gain net permet l'amplification de l'impulsion de manière analogue à la situation précédente, mais sans saturation du gain.

#### (c) Absorbant saturable lent et régime soliton

Dans le cas récemment étudié du régime soliton stabilisé par un absorbant saturable lent, la fenêtre de gain net ne se ferme pas immédiatement après le passage de l'impulsion (figure 2-8c). Cela est possible en régime soliton car le profil temporel de l'impulsion résulte de l'équilibre entre l'effet non linéaire de l'automodulation de phase et l'effet linéaire de la dispersion de vitesse de groupe. Le bruit et les instabilités qui pourraient se former n'ont pas une intensité crête suffisante pour être sensibles aux effets non linéaires, et vont donc s'étaler dans le temps à cause de la dispersion de vitesse de groupe (qui est indépendante de l'intensité crête). Même si ces derniers apparaissent dans la fenêtre de gain net, qui est assez large compte tenu du long temps de récupération de l'absorbant saturable, ils seront soumis à des pertes plus importantes que le soliton à cause de leur largeur temporelle importante, et s'atténueront donc dans le temps jusqu'à disparaître complètement. Ce mécanisme de formation d'impulsion a été vérifié expérimentalement dès 1995,39 puis décrit théoriquement l'année suivante.40 Contrairement au verrouillage des modes par lentille de Kerr, le régime soliton permet d'utiliser un véritable absorbant saturable, indépendant du matériau laser. L'avantage de cette situation est qu'il est désormais possible d'optimiser indépendamment l'automodulation de phase et la saturation de l'absorption de sorte que l'auto-démarrage du laser soit fiable et conduise à un régime impulsionnel dans lequel l'automodulation de phase n'est pas excessive. De plus, nous pouvons optimiser la cavité laser sans qu'il soit nécessaire de se placer en limite de stabilité (comme dans le cas du verrouillage des modes par lentille de Kerr, où cela permet d'accentuer l'effet d'autofocalisation). Disposer d'un absorbant saturable réel comporte aussi des inconvénients liés au fait qu'il est potentiellement dommageable, et qu'il

doit être optimisé pour une large bande spectrale pour la production d'impulsion ultra-brèves. Ces deux points sont toutefois expérimentalement maîtrisables.<sup>41</sup>

L'avantage des cas (a) et (b) est de s'affranchir de l'amplification du bruit éventuel intervenant en dehors de la fenêtre de gain net (car l'intervalle de temps associé est très étroit) et, de plus, d'éviter les instabilités du train d'impulsions dues à ces perturbations. Par ailleurs, notons que même si cela n'est pas précisé dans le texte pour des raisons de simplification, un régime soliton s'installe aussi dans les cas (a) et (b), mais son rôle est moins fondamental que dans le cas (c).

Notons que seuls les cas (b) et (c) sont applicables à un laser solide pour les raisons invoquées en introduction de ce chapitre. Par conséquent, nous n'évoquerons plus le cas (a) dans la suite de ce mémoire.

### 2.3.3 Verrouillage de modes à l'aide de dispositifs de type absorbant saturable rapide

#### Verrouillage de modes par addition d'impulsions

La technique de verrouillage de modes par addition d'impulsions fut la première utilisant un effet d'absorbant saturable rapide pour les lasers solides. Cependant, sa mise en œuvre expérimentale nécessitait une stabilisation interférométrique de la longueur de la cavité laser. La complexité expérimentale de cette méthode fut à l'origine de son remplacement par une technique beaucoup plus simple à mettre en œuvre, que nous allons maintenant aborder.



Figure 2-9 – Illustration du principe du verrouillage des modes par lentille de Kerr : une fente introduit des pertes importantes en (a) régime continu, et favorise ainsi le (b) régime impulsionnel.

### Verrouillage de modes par lentille de Kerr

En régime femtoseconde, la puissance crête des impulsions circulant dans la cavité est beaucoup plus grande que les puissances instantanées en régime continu. Par conséquent, l'autofocalisation est plus importante dans le premier cas que dans le second. Cela signifie qu'en régime femtoseconde, le diamètre du mode oscillant dans la cavité est plus petit qu'en régime continu. Or nous pouvons facilement introduire des pertes plus importantes pour des grandes tailles de faisceau que pour des petites, simplement à l'aide d'un diaphragme ou d'une fente, afin de favoriser le régime impulsionnel (figure 2-9).

En conclusion, si une fente de largeur ajustable est insérée dans la cavité laser, et si le régime impulsionnel est initié par un mécanisme quelconque (vibration d'un miroir, absorbant saturable), alors nous obtenons un régime impulsionnel appelé *verrouillage des modes par lentille de Kerr* (en anglais, « Kerr Lens Mode-Locking (KLM) »). Cette technique, qui appartient à la catégorie des verrouillages de modes passifs, est basée sur un absorbant saturable rapide quasi-idéal dont la profondeur de modulation est réalisée grâce à l'autofocalisation et à la fente, soit par une diminution des pertes due à la présence d'une fente de largeur adaptée,<sup>35,42</sup> soit par l'augmentation du gain due à un meilleur recouvrement au niveau du matériau laser entre le mode propre de la cavité laser et le faisceau de pompe.<sup>43</sup> Pour accentuer cet effet et favoriser encore plus l'oscillation d'impulsions courtes, la cavité laser est généralement utilisée en limite de stabilité, afin de la rendre plus sensible au moindre effet de focalisation supplémentaire.<sup>44</sup> La conséquence est un manque de stabilité du régime femtoseconde, ce qui est l'inconvénient majeur du KLM. D'autre part, les intensités crêtes en régime impulsionnel sont au moins six ordres de grandeur au dessus de celles en régime continu. Même si des lasers démarrant automatiquement basé sur du KLM ont été démontrés,<sup>45</sup> le temps nécessaire à l'amorce du régime impulsionnel est de l'ordre de plusieurs millisecondes. C'est pourquoi, un mécanisme extérieur est généralement requis pour concevoir un laser « autodémarrant » basé sur le KLM.<sup>46</sup>

Dans le cadre de notre étude, nous utiliserons un verrouillage des modes passif avec un absorbant saturable semiconducteur (§2.3.4, p.61), afin de disposer d'une meilleure stabilité (§2.3.6, p.67) et d'un démarrage automatique du laser (§2.3.4, p.61).

### 2.3.4 Absorbants saturables semi-conducteurs

Les avancées technologiques en matière de croissance des matériaux semi-conducteurs et la possibilité de réaliser des bandes d'énergie interdite paramétrables, ont permis la mise au point d'absorbants saturables à base de semiconducteurs, dont les caractéristiques sont contrôlables de manière assez précise soit pendant la phase de croissance soit par le choix des matériaux et de la structure de l'empilement. Ces paramètres sont principalement la longueur d'onde d'absorption, la fluence de saturation et le temps de récupération. Appliqués au domaine des lasers impulsionnels, ces absorbants saturables ont conduit à la réalisation expérimentale de verrouillages de modes stables (§2.3.6, p.67) avec des matériaux laser à long temps de fluorescence, ce qui était impossible avec des absorbants saturables classiques.<sup>52</sup> De plus, les miroirs absorbants saturables à semi-conducteurs (en anglais « Semiconductor Saturable Absorber Mirror (SESAM) ») ont l'avantage d'avoir une réponse percussionnelle en deux temps (figure 2-10). En effet, les processus de thermalisation et de diffusion de porteurs intrabande ont un temps caractéristique de 10 à 100 fs, alors que les processus de piégeage et de recombinaison interbande sont plus lents : de quelques picosecondes à la nanoseconde suivant les paramètres de croissance.<sup>47</sup> La *saturation rapide de l'absorption* a pour propriété de stabiliser les lasers femtoseconde.



Figure 2-10 - Réponse percussionnelle typique d'un SESAM en « deux temps ».

La présence d'un absorbant saturable dans la cavité laser permet un démarrage automatique du verrouillage des modes : on parle d'*auto-démarrage* d'un laser femtoseconde. Le temps nécessaire à ce démarrage est, sous certaines approximations,<sup>54</sup> donné par la relation suivante :

$$T_{d\acute{e}marrage} \propto \frac{1}{\frac{dR}{dI}\Big|_{I\approx 0}} I$$

#### Équation 2-1

où R est le facteur de réflexion de l'absorbant saturable et I est l'intensité laser incidente (figure 2-11a). Le démarrage automatique ne sera possible que pour une pente à l'origine de la courbe R(I) suffisamment grande ; cela paraît logique car dans ce cas une faible variation de I se traduira par une forte variation de R. Par conséquent, le temps de démarrage automatique diminue lorsque l'intensité de saturation diminue. Cependant, il existe une borne inférieure de l'intensité de saturation au dessous de laquelle des instabilités de type « Q-switch » font leur apparition (§2.3.6, p.67) :

$$\left|\frac{dR}{dI}\right|I < \frac{T_R}{\tau_{stim}}$$

Équation 2-2

où  $\tau_{stim}$  est la durée de vie du niveau excité du matériau laser en tenant compte de l'effet laser, et  $T_R$  est le temps d'aller-retour dans la cavité laser. Une pente dR/dI relativement faible, soit une intensité de saturation relativement grande, est donc préférable pour la stabilité du laser. Le fait de pouvoir ajuster ce paramètre expérimentalement lors de la fabrication du SESAM est donc très intéressant, car cela nous permet de nous situer dans l'intervalle de valeurs de l'intensité de saturation pour lequel le laser démarre automatiquement dans un régime stable, ou selon l'application visée de choisir volontairement un régime commuté par les pertes.



Figure 2-11 – Variation du facteur de réflexion d'un miroir absorbant saturable à semi-conducteur dans le cas (a) d'une intensité continue, et dans le cas (b) d'impulsions courtes. L'intensité de saturation  $I_{sat,AS}$  et l'énergie de saturation  $E_{sat,AS}$  sont indiquées schématiquement sur les courbes.

Or les SESAM peuvent avoir un temps de récupération suffisamment court pour qu'il soit négligeable devant le temps d'aller-retour de la cavité laser ( $\tau_{AS} << T_R$ ), et on peut montrer<sup>54</sup> que cela satisfait alors les conditions données par l'équation 2-1 et l'équation 2-2.

Néanmoins, une fois que le laser a démarré en verrouillage des modes, une autre condition (sur l'énergie des impulsions cette fois) doit être satisfaite afin de garantir un régime stable. Supposons que la durée des impulsions  $\Delta t$  est telle que  $\Delta t < \tau_{AS} \ll T_R$ . Alors, on peut montrer que le critère de stabilité s'écrit :

$$\left|\frac{dR}{dE}\right| E < \frac{T_R}{\tau_{stim}}.$$

Équation 2-3

Cette fois-ci, le laser ayant démarré en verrouillage de modes, ce sont les impulsions qui saturent l'absorption et non le continu comme précédemment. Cette condition est facilement satisfaite si  $E >> E_{sat,AS}$ , ce qui a l'avantage de maximiser la profondeur de modulation, et ainsi de minimiser la durée des impulsions (figure 2-11b). En revanche, si l'énergie par impulsion est choisie trop grande, alors des impulsions multiples peuvent apparaître.<sup>48</sup> En effet, lorsque  $E >> E_{sat,AS}$ , les pertes dues au SESAM ne sont plus dépendantes de l'énergie par impulsion (justement à cause de la saturation excessive de l'absorption). Au-delà d'une certaine énergie par impulsion, deux impulsions vont osciller avec des durées plus longues et des énergies plus faibles que les impulsions du régime stable. Ainsi, ces deux impulsions ont un spectre plus étroit, ce qui leur permet de disposer de plus de gain (à cause de la largeur finie du spectre de gain), et de pertes égales car ces dernières ne dépendent plus de l'énergie par impulsion. Ce régime à impulsions multiples s'instaure typiquement pour un SESAM saturé de trois à cinq fois. Expérimentalement, il sera donc nécessaire d'ajuster la fluence incidente sur le SESAM de manière à saturer le plus possible l'absorption sans apparition d'impulsions multiples. C'est ce phénomène qui va limiter la durée minimale potentiellement atteignable avec un laser donné.



Figure 2-12 – Schéma de la structure d'empilement d'un SESAM. L'épaisseur de chaque couche de GaAs et d'AlAs constituant le miroir de Bragg est de  $\lambda_0/2$ , où  $\lambda_0$  est la longueur d'onde d'optimisation du SESAM.

Les miroirs à absorbants saturables semi-conducteurs ont été développés sous plusieurs formes. Entre 1992 et 1996, quatre déclinaisons de SESAM ont été étudiées.<sup>37</sup> Les principales différences entre ces différents schémas de principe concernaient les facteurs de réflexion des miroirs entourant l'absorbant saturable, et l'épaisseur de ce dernier. L'absorbant saturable que nous avons utilisé pour la réalisation expérimentale de l'oscillateur femtoseconde Yb: SYS est de type SESAM anti-reflets (figure 2-12) et nous a été fourni par nos collaborateurs industriels de *Thalès Research and Technologies*.

### 2.3.5 Régime soliton

Les lasers solides femtoseconde peuvent produire des impulsions brèves de type *soliton temporel* simplement à l'aide d'un verrouillage de modes assisté par un absorbant saturable lent.<sup>49,40</sup> Dans ce régime d'oscillation du laser, l'impulsion est formée par l'équilibre entre l'effet linéaire de la dispersion de vitesse de groupe négative (figure 2-13b), et l'effet non linéaire de l'automodulation de phase (figure 2-13a). Le verrouillage des modes en phase est réalisé par l'effet soliton, et le rôle de l'absorbant saturable est uniquement de démarrer ce régime et de le stabiliser. Cette méthode permet ainsi de produire des impulsions de durées bien plus courtes que le temps de récupération de l'absorbant saturable (figure 2-8, p.58).

En un aller-retour dans la cavité laser, l'impulsion oscillante rencontre successivement de la dispersion de vitesse de groupe (en anglais « Group Velocity Dispersion (GVD) »), de l'automodulation de phase (en anglais « Self-Phase Modulation (SPM ) » ), du gain, des pertes, un filtre spectral dû à la largeur finie du spectre de gain, un coupleur de sortie (avec une certaine bande passante en longueur d'onde), et une absorption et un déphasage dépendant du temps dus à l'absorbant saturable (figure 2-14).



Figure 2-13 – Simulation (*a*) de l'automodulation de phase et (*b*) de la dispersion de vitesse de groupe négative, effets se compensant dans le régime soliton. La première ligne de graphiques représente l'indice de réfraction non linéaire (*a*) de forme sécante hyperpolique ou (*b*) de forme parabolique. La deuxième ligne illustre les modifications apportées aux oscillations du champ électrique d'une impulsion traversant ce milieu. La troisième ligne montre la répartition temporelle des fréquences composant cette impulsion (la fréquence instantanée étant proportionnelle à la dérivée partielle de l'indice par rapport au temps).



Figure 2-14 - Schéma de la cavité d'un laser femtoseconde en régime soliton

L'enveloppe temporelle lentement variable A(T,t) de l'impulsion à l'instant t et à l'aller-retour T est solution de l'équation de Schrödinger non linéaire: <sup>50</sup>

$$T_{R}\frac{\partial A(T,t)}{\partial T} = -iD\frac{\partial^{2}A}{\partial t^{2}} + i\delta|A|^{2}A + \left[g - l + D_{g,f}\frac{\partial^{2}}{\partial t^{2}} - q(T,t)\right]A(T,t)$$

Équation 2-4

où *D* est la GVD (en fs<sup>2</sup>), *l* représente les pertes indépendantes de la longueur d'onde par aller-retour, et q(T,t) est la réponse percussionnelle de l'absorbant saturable.  $\delta$  est le coefficient de SPM défini par :

$$\delta = \frac{2\pi}{\lambda_0} S n_2 L_K$$

où  $\lambda_0$  est la longueur d'onde centrale, *S* est la section du mode propre de la cavité au niveau du matériau laser,  $n_2$  est l'indice de réfraction non linéaire, et  $L_K$  est la longueur du milieu non linéaire sur un aller-retour (soit le double de la longueur du cristal pour une cavité linéaire). *g* est le gain saturé défini par  $g = g_0/(1 + E/E_{sat})$  où  $g_0$  est le gain petit signal et avec :

$$E = \int_{-T_R/2}^{T_R/2} \left| A(T,t) \right|^2 dt \, .$$

Enfin, la grandeur notée  $D_{gf}$  est définie par :

$$D_{g,f} = \frac{g}{\Delta v_g^2} + \frac{1}{\Delta v_p^2}$$

où  $\Delta v_g$  et  $\Delta v_p$  sont les largeurs à mi-hauteur du gain et des pertes spectrales. L'équation 2-4 est une équation de Ginzburg-Landau généralisée qui n'a pas de solution analytique connue. Sans les termes dissipatifs dus au gain et aux pertes, cette équation se simplifie quelque peu et admet une solution fondamentale  $A_s(T,t)$  de type soliton lorsque la GVD est négative :

$$A_{S}(T,t) = A_{0}\operatorname{sech}[x(T,t)]e^{i\theta(T,t)} \text{ où } x = \frac{1}{\tau} \left( t + 2Dp_{0}T - t_{0} \right), \quad \theta = -p_{0}t - D\left(\frac{1}{\tau^{2}} - p_{0}^{2}\right)\frac{T}{T_{R}} + \theta_{0} \quad \text{et} \quad A_{0} = \sqrt{\frac{E}{2\tau}}.$$

Les paramètres du soliton que sont  $p_0$ ,  $t_0$ ,  $\theta_0$  ne sont pas fixés ici car il s'agit d'une solution générale de l'équation 2-4. De l'équilibre entre GVD et SPM qui est responsable de la formation du soliton, on tire une relation fondamentale entre la durée  $\Delta t$  des impulsions et leur énergie E:

$$\Delta t = \frac{1,76DS\lambda_0}{4\pi n_2 L_K} \frac{1}{E}.$$

Équation 2-5



# 2.3.6 Limite de stabilité du verrouillage des modes passif

Figure 2-15 – Puissances instantanées (traits continus) et puissances crêtes (traits discontinus) en fonction du temps pour *(a)* un laser par verrouillage de modes stable, et pour *(b)* un laser par verrouillage de modes présentant des instabilités de type « Q-switch ».

Les lasers solides peuvent produire des impulsions courtes par verrouillage des modes passif, grâce à l'insertion d'un absorbant saturable dans la cavité laser. Cependant, ce dernier est également à l'origine d'une tendance au « Q-switching » qui peut amener le laser à fonctionner dans un régime appelé *verrouillage de modes commuté par les pertes* (en anglais « Q-switched Mode-Locking (QML) »). Dans ce régime, le train d'impulsions dont la cadence est typiquement de l'ordre de 100 MHz, est modulé par des oscillations de type « Q-switch » dont la fréquence avoisine le kilohertz (figure 2-15). Par opposition à ce régime, le verrouillage des modes non modulé est parfois appelé « verrouillage des modes continu » (en anglais « cw mode-locking »), même si cette dénomination peut paraître ambiguë.

Ces instabilités sont généralement indésirables\* à cause des fortes variations en énergie par impulsion. La puissance moyenne reste la même dans les deux régimes, mais les énergies par impulsion en QML sont plus grandes, les rendant ainsi potentiellement dangereuses soit pour l'application visée, soit pour les optiques elles-mêmes (entraînant par exemple des piqûres sur le SESAM).

Le QML a été observé depuis longtemps dans le cas des lasers solides dont le temps de fluorescence est plus grand que la microseconde.<sup>51</sup> Mais ces instabilités étaient impossibles à supprimer à cause d'un manque de paramètres modifiables des absorbants saturables alors utilisés. C'est grâce à un absorbant saturable semi-conducteur que le premier laser solide à long temps de fluorescence fut démontré expérimentalement en régime stable.<sup>52</sup> Ce type de matériau non linéaire présente en effet l'avantage d'avoir des paramètres pertinents ajustables sur plusieurs ordres

<sup>\*</sup> Pour des applications telles que la conversion de fréquences, la fabrication précise de microstructures, ou encore la chirurgie, le régime QML est intéressant dans la mesure où la durée des impulsions reste brève, et l'énergie contenue dans chaque impulsion est considérablement augmentée.

de grandeurs, ce qui a permis d'effectuer des études systématiques de la transition entre régime stable et QML, appelée *limite de stabilité*.

La limite de stabilité dépend donc des propriétés de l'absorbant saturable, mais aussi de celles du matériau laser et de la cavité laser. Afin de prédire l'apparition du « Q-switch », plusieurs études théoriques ont vu le jour et ont introduit la notion de *critère de stabilité* tout d'abord pour un laser continu,<sup>53</sup> ensuite pour un laser à verrouillage des modes continu en régime picoseconde,<sup>54</sup> et enfin en régime femtoseconde.<sup>55</sup>

Le modèle théorique décrivant le régime picoseconde permet d'établir le critère de stabilité ci-dessous, moyennant quelques simplifications analogues à celles que nous développerons plus loin dans le cas du régime soliton.

$$J_{AS}^{2} > J_{sat} J_{sat,AS} \Delta R \frac{S}{S_{AS}}$$

Équation 2-6

où  $J_{AS}$  est la fluence de l'impulsion au niveau de l'absorbant saturable,  $J_{satt}$  et  $J_{satt,AS}$  sont les fluences de saturation respectives du matériau laser et de l'absorbant saturable, S et  $S_{AS}$  sont les sections respectives du mode propre de la cavité au niveau du matériau laser et au niveau de l'absorbant saturable, et  $\Delta R$  est la profondeur de modulation de l'absorbant saturable. Pour garantir une bonne stabilité, il est donc nécessaire que l'énergie par impulsion soit grande (i.e. fort gain petit signal et faibles pertes), que les fluences de saturation soit petites, et que la profondeur de modulation soit faible. De plus, un compromis doit être trouvé pour que l'auto-démarrage du laser soit également possible, car une valeur minimale de la fluence de saturation est alors nécessaire. Par ailleurs, la fluence incidente sur l'absorbant saturable ne peut pas être démesurément augmentée : la limite haute à ne pas dépasser est celle correspondant soit à un endommagement du matériau, soit à l'apparition d'impulsions multiples.

En régime femtoseconde démarré et stabilisé à l'aide d'un SESAM, les propriétés du soliton entraînent une diminution du seuil de stabilité (d'un facteur quatre, typiquement). L'origine physique de ce meilleur comportement pour ce type de laser est la suivante. Considérons que notre laser est dans un régime stable, produisant un train d'impulsions brèves régulier. Si l'énergie d'une impulsion s'élève brutalement suite à une oscillation de relaxation, alors cette impulsion devient plus sensible aux effets non linéaires, et en particulier à l'automodulation de phase qui provoque un élargissement de son spectre. Or une impulsion dont le spectre est plus large bénéficie d'un gain effectif moins grand, à cause de la largeur finie du spectre de gain du matériau laser. Globalement, l'oscillation d'une telle impulsion est donc défavorisée par rapport au régime stable, ce qui explique la diminution de l'énergie d'impulsion critique au-delà de laquelle le régime est stable. Les deux principaux changements apportés par le modèle théorique du régime femtoseconde sont la prise en compte de la largeur spectrale du gain et des impulsions (via la relation ci-dessous) et des effets du soliton.

Le gain effectif pour les impulsions circulant dans la cavité peut s'écrire :

$$g_{eff} = \frac{\int g(\upsilon)I(\upsilon)d\upsilon}{\int I(\upsilon)d\upsilon}$$

où g(v) et I(v) sont les profils spectraux respectifs du gain et de l'impulsion intracavité. Une analyse de stabilité linéarisée des équations différentielles d'évolution temporelle de l'énergie par impulsion  $E = J_{AS}S_{AS}$  et du gain g, conduit au critère de stabilité suivant :

$$E\left[\frac{dg_{eff}(E)}{dE} - \frac{dq_{p}(E)}{dE}\right]_{\overline{E}} < \frac{T_{R}}{\tau} + \frac{E}{E_{sat}}\frac{g_{eff}}{g}$$

Équation 2-7

où E est la valeur de l'énergie par impulsion en régime stable,  $\tau$  est le temps de fluorescence du matériau laser, et  $q_p(E)$  représente les pertes par aller-retour sur l'énergie par impulsion introduites par l'absorbant saturable pour une énergie E d'impulsion intracavité donnée.

Le premier terme du membre de gauche de l'équation 2-7 met en évidence le fait que plus  $\tau$  est grand devant  $T_R$ ( $\tau > T_R$  pour tous les lasers solides en général), plus le laser aura tendance à présenter des instabilités : c'est le cas des lasers ytterbium pour lesquels  $\tau/T_R > 10^5$ . De plus, dans un laser femtoseconde typique, le point de fonctionnement est bien au-delà du seuil d'oscillation, ce qui nous amène à négliger dans le membre de gauche le premier terme devant le second.



Figure 2-16 – Allure typique du facteur de réflexion d'un SESAM en fonction de l'énergie des impulsions incidentes en échelle logarithmique (selon la référence 55).

Pour tirer profit de la profondeur de modulation maximale du SESAM, la fluence de l'impulsion doit être suffisamment élevée pour « blanchir » l'absorbant saturable (figure 2-16). Cette condition est satisfaite si le SESAM est environ cinq fois saturé.

Si l'on suppose que  $R_{ns} \approx 1$  (ou, ce qui est équivalent :  $\Delta R_{ns} \approx 0$ ), alors on montre que le facteur de réflexion non linéaire R(E) du SESAM pour une impulsion incidente d'énergie E s'écrit :

$$R(E) \approx 1 - \Delta R \frac{E_{sat,AS}}{E}$$

Ces simplifications nous permettent de réécrire l'équation 2-7 de la manière suivante :

$$\left[\frac{g_{eff}}{g} - \frac{dg_{eff}}{dE}\right]_{\overline{E}} E^2 > E_{sat} E_{sat,AS} \Delta R.$$

Équation 2-8

Grâce à l'équation soliton (équation 2-5, p.66) :

$$\Delta t = \frac{1,76DS\lambda_0}{4\pi n_2 L_K} \frac{1}{E} \qquad \text{avec} \qquad \Delta t \Delta \upsilon_g \ge 0,315$$

nous pouvons en déduire le critère de stabilité pour un laser femtoseconde en régime soliton :

$$E_{sat}gK^{2}E^{3} + E^{2} > E_{sat}E_{sat,AS}\Delta R$$
 avec  $K = \frac{4\pi n_{2}L_{K}}{D_{2}S\lambda_{0}\Delta\upsilon_{g}}\frac{0.315}{1.76}$ 

Équation 2-9

où  $n_2$  est l'indice de réfraction non linéaire,  $L_K$  est la longueur de propagation dans le milieu Kerr par aller-retour dans la cavité laser (c'est le double de la longueur du matériau laser pour une cavité linéaire),  $D_2$  traduit la quantité de dispersion de vitesse de groupe négative par aller-retour sensée compenser la dérive de fréquence due à l'automodulation de phase, S est la section du mode propre de la cavité au niveau du matériau laser,  $\lambda_0$  est la longueur d'onde centrale des impulsions, et  $\Delta v_g$  est la largeur spectrale du gain. Ce critère de stabilité est très utile dans la mesure où il peut s'évaluer numériquement à l'aide de mesures expérimentales élémentaires.

# 2.4 Résultats d'expériences

### 2.4.1 Point de comparaison

Avant de présenter les résultats expérimentaux obtenus avec l'oscillateur femtoseconde Yb: SYS, nous rappelons ici brièvement les travaux se rapprochant de la présente étude (tableau 2-1). Le lecteur pourra se référer au tableau 1-6 (p.39) pour des informations supplémentaires sur les matériaux laser évoqués ici.

(S)	Matériau	$\Delta t_{exp}$ (fs)	$\Delta t_{th}  (fs)$	$\lambda_0 \left( nm \right)$	Principe de l'absorbant saturable	Référence
	Yb: verre	58	33	1020	SESAM	56
	Yb: KYW	71	46	1025	KLM	57
	Yb: GdCOB	89	27	1044	SESAM	23
	Yb: KGW	112	47	1045	SESAM	58
	Yb: YAG	340	120	1031	SESAM	59

Tableau 2-1 – Comparaison entre les résultats expérimentaux obtenus avec des oscillateurs femtoseconde basés sur différents matériaux dopés à l'ion ytterbium.

L'Yb: verre est le matériau laser qui a permis – en pratique – d'obtenir les impulsions les plus courtes avec un oscillateur femtoseconde ytterbium. La durée prévue théoriquement correspond à des impulsions supposées limitées par transformée de Fourier, et s'obtient en mesurant la largeur à mi-hauteur du spectre de gain pour un taux d'inversion  $\beta$  proche de celui auquel le laser fonctionne (ici environ 50%). La durée théorique  $\Delta t_{db}$  déduite de ce raisonnement est une limite rarement atteinte par un matériau laser (le contre-exemple le plus célèbre étant le saphir dopé au titane).

La différence parfois importante entre durée théorique et durée expérimentale provient de nombreux facteurs : la largeur spectrale de l'absorbant saturable, les propriétés de l'échantillon choisi en tant que matériau laser (longueur, dopage, saturation du gain, ...) et les propriétés intrinsèques du matériau laser (spectres d'émission et d'absorption).

#### La largeur spectrale de l'absorbant saturable

L'utilisation d'un SESAM nécessite une optimisation adaptée de ce dernier à la fois à la longueur d'onde centrale du spectre de gain mais aussi à sa largeur à mi-hauteur de sorte que cet absorbant saturable limite le moins possible la durée des impulsions. Nous voyons bien que dans le cas bien particulier de l'oscillateur Yb: KYW cité dans le tableau 2-1, qui utilise un verrouillage de modes par lentille de Kerr, soit un absorbant saturable dont les propriétés ne dépendent pas de la longueur d'onde, la durée expérimentale obtenue est extrêmement proche de la durée
théorique : toute la bande spectrale de l'Yb: KYW a été exploitée, mais dans un régime nettement moins stable que celui que l'on pourrait obtenir avec un SESAM.

#### L'allure du spectre d'émission

Plus le spectre est régulier aux longueurs d'onde voisines de la longueur d'onde d'émission, plus on peut se rapprocher de la limite théorique. Ainsi, dans le cas de l'Yb: verre, le spectre d'émission est extrêmement régulier, et conduit justement à la durée mesurée la plus proche de la durée théorique dans le tableau 2-1. Par contre, le spectre d'émission de l'Yb: GdCOB est de toute évidence plus irrégulier que celui de l'Yb: verre : il présente en effet des ondulations bien visibles aux environs de sa longueur d'onde optimale d'émission, qui sont en partie responsables de l'écart important entre durée théorique et durée expérimentale.

#### Propriétés du matériau laser

Enfin, la durée expérimentale des impulsions dépend évidemment des propriétés du matériau laser. En particulier, le taux d'inversion de population moyen doit être le plus grand possible sur tout le milieu amplificateur, c'est-à-dire que nous devons assurer une saturation du gain la plus forte possible. Vu que le taux d'inversion de population est d'autant plus grand que l'intensité laser de pompe est grande, nous devons choisir un matériau le plus court possible de sorte qu'en moyenne l'intensité laser soit la plus grande possible sur tout le matériau (pour éviter une absorption de la pompe trop importante). En effet, en règle générale, la largeur spectrale de gain est d'autant plus grande que le taux d'inversion de population est grand.

Parmi les nouveaux cristaux dopés à l'ytterbium, l'Yb: SYS et l'Yb: BOYS nous ont permis de développer deux oscillateurs femtoseconde au cours de cette thèse, que nous allons maintenant présenter.

#### 2.4.2 Oscillateur femtoseconde Yb: BOYS



Figure 2-17 - Cavité de l'oscillateur Yb: BOYS

L'oscillateur femtoseconde Yb: BOYS a été réalisé avec un cristal de 3 mm de long, dopé à 20%, traité anti-reflets, et pompé optiquement par une ou deux diodes laser diamétralement opposées émettant respectivement 2 W (à gauche du montage) et 1,6 W (à droite) comme indiqué sur la figure 2-17. La puissance incidente totale sur le cristal s'élève à 1,1 W dans la configuration de pompage par une seule diode (n°2), et à 2,5 W dans la configuration de pompage à deux diodes. Le rayon au col du mode propre de la cavité laser est de 27  $\mu$ m (au niveau du cristal). La dispersion de vitesse de groupe introduite par le cristal est compensée par une paire de prisme en SF10 séparés de 28 cm. De manière à démarrer le laser automatiquement en régime impulsionnel, et à stabiliser le régime soliton, nous utilisons un SESAM (fourni par *High Q Laser*) sur lequel est focalisé le faisceau laser respectivement sur un diamètre de 80  $\mu$ m avec un miroir concave de 300 mm de rayon de courbure, et sur un diamètre de 120  $\mu$ m avec un miroir concave de 500 mm de courbure.



Figure 2-18 - (a) Autocorrélation et (b) spectre des impulsions les plus courtes produites par l'oscillateur Yb: BOYS.

### Pompage optique par une seule diode

C'est en pompant le cristal uniquement avec la diode laser n°2 que nous avons obtenu les meilleures performances en terme de durée d'impulsion. Ainsi, la durée d'impulsion la plus courte obtenue grâce à cet oscillateur est de 69 fs (obtenue par un ajustement à une sécante hyperbolique, voir figure 2-18a), et le spectre correspondant est large de 18 nm et centré à 1062 nm (figure 2-18b), conduisant à un produit temps-fréquence de 0,33. La puissance moyenne du faisceau laser issu du coupleur de sortie de 2% s'élève alors à 80 mW, pour une cadence de 113 MHz, ce qui correspond à une énergie de 0,7 nJ par impulsion. Le régime impulsionnel obtenu est très stable, et exempt de phénomènes tels que des instabilités de type QML.



Figure 2-19 – Plage d'accordabilité de l'oscillateur femtoseconde Yb: BOYS. Les courbes en noir indiquent les cas où le pompage est assuré par une seul diode de pompe (n°2) et les courbes en bleu indiquent les cas où le pompage est assuré par deux diodes de pompe.

L'excellente stabilité du régime impulsionnel nous permet d'accorder le laser par translation de la fente située entre la paire de prismes et le coupleur de sortie. Nous obtenons alors une plage d'accordabilité de 1051 nm à 1064 nm, avec une durée d'impulsion inférieure à 86 fs, ce qui représente à notre connaissance la plus grande plage d'accordabilité pour un laser ytterbium produisant des impulsions de durée plus courte que la centaine de femtosecondes. De plus, en augmentant la puissance intracavité (en changeant le coupleur de sortie), la plage d'accordabilité s'étend continûment de 1062 à 1070 nm (pour des durées d'impulsion inférieures à 75 fs), ce qui représente une accordabilité globale de 19 nm (figure 2-19).

#### Pompage optique par deux diodes

Pour augmenter la puissance de sortie de l'oscillateur, nous mettons en place la configuration de pompage optique à deux diodes. Avec les deux diodes laser n°1 et n°2, nous obtenons des impulsions ayant une durée de 86 fs, avec une puissance moyenne de 300 mW. Le spectre des impulsions est alors large de 15 nm et centré sur 1068 nm, et le taux de répétition est de 105 MHz. Cette configuration de pompage à deux diodes nous permet d'accorder le laser sur 9 nm, de 1068 nm à 1076 nm (figure 2-19). Cette plage d'accordabilité est centrée sur une longueur d'onde plus haute que celle obtenue en configuration de pompage à une seule diode. Ce décalage vers les hautes longueurs d'onde est caractéristique des lasers ytterbium,\* et provient du fait que le taux d'inversion  $\beta$  est fortement dépendant du gain (ou des pertes) de la cavité, que le spectre de gain est centré à une longueur d'onde d'autant plus haute que  $\beta$  est faible. Puisque dans le cas du pompage par deux diodes le gain est plus élevé que dans le cas d'une seule diode, le spectre se décale vers les hautes longueurs d'onde.

En conclusion, nous avons développé le premier oscillateur femtoseconde utilisant un cristal d'Yb: BOYS, qui nous a permis de produire des impulsions d'une durée minimale de 69 fs. Les propriétés de ce matériau laser sont très intéressantes, notamment grâce à des similitudes de son spectre d'émission avec celui de l'Yb: verre, mais aussi du fait des bonnes propriétés thermiques et des grandes sections efficaces caractérisant les cristaux.

<sup>\*</sup> Pour plus de détails, nous invitons le lecteur à se reporter au §1.5.4, p.46.

### 2.4.3 Oscillateur femtoseconde Yb: SYS

L'oscillateur femtoseconde que nous avons réalisé est basé sur une cavité classique au sein de laquelle nous avons placé tous les éléments évoqués de manière générale dans les paragraphes précédents du présent chapitre (figure 2-20).<sup>31</sup>



Figure 2-20 - Cavité de l'oscillateur Yb: SYS

Tout d'abord, le matériau laser est un cristal d'Yb: SYS traité anti-reflets, dopé à 6%, et long de 3 mm. Cet échantillon est pompé optiquement par le faisceau laser issu d'une seule diode laser\* de 4W monoruban (1µm par 100µm) qui a été remis en forme par un système anamorphoseur. Cette fois-ci, disposant d'une diode laser particulièrement brillante, nous n'avons pas jugé nécessaire d'utiliser une seconde diode de pompe comme dans le cas de l'oscillateur Yb: BOYS, pour des raisons de compacité, et parce que cette diode nous permet d'atteindre des puissances de sorties supérieures à celle obtenues grâce au pompage optique par deux diodes présenté au paragraphe précédent.

Les miroirs dichroïques qui entourent le matériau laser permettent à la fois de transmettre la pompe (975 nm) et de réfléchir efficacement le mode propre de la cavité ( $\approx$ 1070 nm). D'un côté de la cavité, le mode propre est focalisé sur un SESAM (fourni par *Thalès Research and Technologies*) après un bras collimaté. Ce SESAM est composé d'un miroir de Bragg centré à 1060 nm, et d'un absorbant saturable (InGaAs) de 30 nm d'épaisseur dont la croissance a été effectuée à basse température. L'optimisation du fonctionnement de l'oscillateur, c'est-à-dire le compromis permettant d'avoir les durées les plus courtes tout en ayant un régime impulsionnel stable et démarrant automatiquement, a conduit à une section  $S_{AS}$  du mode propre au niveau du SESAM de 80 µm de diamètre. De l'autre côté de la cavité, un système composé de deux prismes en SF10 permet de compenser la dispersion positive

<sup>\*</sup> Le développement de nouvelles diodes laser a permis une montée en puissance, mais surtout en brillance, ce qui explique la présence d'une seule diode laser dans l'oscillateur Yb: SYS au lieu de deux dans l'oscillateur Yb: BOYS.

introduite dans la cavité,\* de sorte que les impulsions soient les plus brèves possibles. La quantité de GVD introduite par la paire de prismes vise à la fois à compenser la dispersion positive, mais aussi à réaliser un équilibre avec la SPM générée au sein du matériau laser. L'oscillateur fonctionne donc en régime soliton, dont le démarrage automatique et la stabilisation sont assurés par un SESAM.



Figure 2-21 - (a) Autocorrélation et (b) spectre des impulsions les plus courtes produites par l'oscillateur Yb: SYS (courbes expérimentale en trait continu, et courbe théorique en trait pointillé).

Les impulsions les plus courtes produites par l'oscillateur femtoseconde Yb: SYS ont une durée de 94 fs selon l'ajustement des données expérimentales à une sécante hyperbolique (figure 2-21). Leur spectre centré à 1070 nm est large de 14 nm, ce qui correspond à un produit temps-fréquence de 0,35. Ces impulsions ont été obtenues pour une distance de 30 cm entre les prismes, et pour une puissance de pompe de 3,6 W. À travers un coupleur de sortie de 2%, la puissance moyenne en sortie est de 110 mW pour une cadence de 108 MHz. L'énergie par impulsion est donc d'environ 1 nJ.



Figure 2-22 - (a) Autocorrélation et (b) spectre des impulsions les plus énergétiques produites par l'oscillateur Yb: SYS (courbes expérimentale en trait continu, et courbe théorique de forme sécante hyperbolique en trait pointillé).

Les impulsions les plus énergétiques produite par l'oscillateur Yb: SYS ont une durée de 110 fs et un spectre large de 12 nm centré à 1066,5 nm (figure 2-22), conduisant à un produit temps-fréquence de 0,36. L'énergie par impulsion s'élève à 4,2 nJ, soit une puissance moyenne de sortie de 420 mW à une cadence de 98 MHz.

<sup>\*</sup> Ce système de deux prismes utilisé pour compenser la séparation spatiale des longueurs d'onde au niveau du coupleur de sortie, est présenté de manière détaillée dans le contexte des compresseurs d'impulsions au §1.4.1, p.34.

# 2.5 Conclusion

Les nouveaux cristaux dopés à l'ion ytterbium que sont l'Yb: SYS et l'Yb: BOYS ont des spectres d'émission particulièrement larges, et peuvent conduire à la production d'impulsions inférieures à 70 fs. En dépit des inconvénients liés à l'ion ytterbium (comme les instabilités de type QML) ou du fait qu'il s'agisse de matériaux nouveaux (et donc parfois mal connus), nous sommes parvenus à réaliser deux oscillateurs femtoseconde présentant une excellente stabilité, et dont les performances les placent parmi les meilleurs de leur catégorie. Plus précisément, seul l'Yb: verre, matériau amorphe, a conduit à la production d'impulsions plus courtes : environ 60 fs (tableau 2-2). L'Yb: SYS et l'Yb: BOYS, deux nouveaux cristaux pour la réalisation de lasers femtoseconde, sont donc des candidats très prometteurs dont les propriétés spectrales commencent à peine à être exploitées.

Matériau	$\Delta t_{exp}\left( fs\right)$	$\Delta t_{th}(fs)$	$\lambda_0(nm)$	Référence
Yb: verre	58	33	1020	SESAM
Yb: BOYS	69	19	1062	21
Yb: KYW	71	46	1025	KLM
Yb: GdCOB	89	27	1044	SESAM
Yb: SYS	94	16	1070	31
Yb: KGW	112	47	1045	SESAM
Yb: YAG	340	120	1031	SESAM

Tableau 2-2 – Comparaison entre les résultats expérimentaux obtenus avec des oscillateurs femtoseconde basés sur différents matériaux dopés à l'ion ytterbium.

Dans le cadre du développement d'une chaîne laser complète, ces nouveaux cristaux sont a priori également adaptés à l'amplification d'impulsions laser au sein d'amplificateurs multipassages de type régénératif. Comme nous allons voir dans le chapitre 3, l'Yb: SYS a conduit à la réalisation d'une chaîne laser complète (production et amplification d'impulsions).

# Chapitre 3

# **AMPLIFICATEURS RÉGÉNÉRATIFS YTTERBIUM**

Dans le chapitre 1, nous avons abordé les concepts élémentaires et généraux sur les lasers ytterbium à impulsions brèves. Ensuite, un exposé théorique sur la formation de telles impulsions dans un oscillateur femtoseconde ytterbium, nous a permis de comprendre le fonctionnement d'un tel dispositif expérimental. Enfin nous avons présenté les performances des oscillateurs que nous avons réalisés à partir de nouveaux cristaux dopés à l'ytterbium (Yb: BOYS et Yb: SYS). Dans ce dernier chapitre, nous verrons que le cristal d'Yb: SYS est particulièrement bien adapté à la réalisation d'un amplificateur régénératif, conduisant ainsi au développement d'une chaîne laser femtoseconde complète basée sur ce nouveau matériau.

### 3.1 Introduction

La conception de sources laser très puissantes et très brillantes nécessite l'utilisation d'amplificateurs d'impulsions. La production d'impulsions énergétiques est en effet basée sur la combinaison d'un oscillateur et d'un amplificateur à un ou plusieurs étages. De manière générale, le but de l'amplificateur est d'augmenter l'énergie des impulsions incidentes, en permettant d'atteindre des énergies beaucoup plus élevées que celles produites par un oscillateur seul.

En régime femtoseconde, l'amplification à dérive de fréquence est essentielle pour s'affranchir des endommagements d'optiques, ou d'effets non-linéaires nuisibles. Par ailleurs, cette technique expérimentale nécessite une bonne gestion de la dispersion tout au long de la chaîne laser, assurée par un étireur d'impulsions placé avant l'amplificateur, et d'un compresseur d'impulsions en fin de chaîne. Afin de mieux comprendre les lois auxquelles obéit l'amplificateur régénératif, nous allons aborder les différents éléments et leur rôle au sein de sa cavité laser. Un approfondissement théorique permettra ensuite de modéliser, puis de simuler l'amplificateur au sein de la chaîne femtoseconde. Bien que l'amplification à dérive de fréquence permette de diminuer la puissance crête des impulsions, des endommagements peuvent survenir à cause d'oscillations de relaxation. Nous expliquerons l'origine de ces phénomènes qui ont un rôle important dans la réalisation expérimentale de notre amplificateur régénératif. Enfin, nous présenterons les résultats expérimentaux qui sont encourageant, et s'accordent bien avec les calculs numériques, ouvrant ainsi la voie à de nouvelles perspectives d'expérimentations.

# 3.2 Amplification régénérative

Dans le domaine de l'amplification d'impulsions laser, il existe plusieurs géométries et principes mis en œuvre. L'idée d'un *amplificateur multipassage* consiste à utiliser un milieu amplificateur donné, qui, à l'instant initial (précédent l'arrivée d'une impulsion), est le siège d'une forte inversion de population, et à transporter l'impulsion à amplifier de sorte qu'elle effectue un nombre de passages  $N_p$  dans le milieu à gain. Ainsi, à chaque passage, l'impulsion gagne en énergie en puisant dans l'énergie stockée initialement dans le milieu amplificateur. Au cours de cette amplification, plusieurs phénomènes sont rencontrés. Tout d'abord, l'énergie stockée n'étant pas infinie, il existe un nombre de passages optimal, permettant d'extraire la quasi-totalité de cette dernière, à partir duquel il faut interrompre le processus et récupérer l'impulsion amplifiée. Au-delà de cet instant précis, le gain par passage – directement relié à l'énergie stockée – ne sera plus suffisant pour dépasser le niveau des pertes par passage, et l'impulsion s'amortira au fur et à mesure, perdant progressivement l'énergie gagnée au cours de l'amplification. D'autre part, le gain par passage n'est ni constant, ni linéaire en fonction de  $N_p$ . Son évolution est en réalité liée à la fluence de l'impulsion à amplifier. Si cette dernière est faible devant la fluence de saturation du milieu, alors le gain sera proche du gain petit signal. Dans le cas contraire, le gain va brusquement chuter après chaque passage : c'est le phénomène de *saturation du gain*. À cela s'ajoutent des effets localisés spatialement comme l'élévation de température du milieu à gain ou la *saturation de l'absorption*, dont il est essentiel de prendre en compte pour modéliser fidèlement un amplificateur.

L'étage d'amplification d'une chaîne laser peut comporter plusieurs types d'amplificateurs multipassages, dans lesquels les impulsions effectuent soit quelques passages (de 2 à 16) à fort gain – c'est le cas d'un *amplificateur multipassage géométrique* (gain global allant de 10 à 30 dB), soit de très nombreux passages à faible gain : c'est le principe d'un *amplificateur régénératif* (gain global allant de 50 à 70 dB). Etant donné le faible gain des matériaux laser que nous utilisons ici, l'utilisation d'un amplificateur régénératif est quasiment obligatoire. En effet, les oscillateurs femtoseconde basés sur des technologie de pompages par diode classiques (ce qui exclut les disques minces laser), produisent des impulsions contenant quelques nanojoules. Pour atteindre le millijoule, six ordres de grandeur audessus, le gain considérable que fournit un amplificateur régénératif est bien adapté. En revanche, un tel montage expérimental est plus coûteux, et plus complexe à mettre en œuvre que son homologue géométrique.

#### 3.2.1 Régime libre

Le principe de l'amplification régénérative est basé sur un grand nombre de passages dans un milieu ayant un faible gain. Pour chaque passage dans ce milieu, la position du faisceau laser à amplifier (le *signal*) doit permettre un bon

recouvrement avec le faisceau de pompe (la *pompe*). Par ailleurs, entre chaque passage, les impulsions doivent subir le moins de pertes possibles.

La meilleure façon de satisfaire ces deux critères est de placer le milieu à gain de l'amplificateur régénératif dans une cavité oscillante. La pompe et le mode propre de la cavité sont alignés simplement en optimisant un effet laser dans la cavité ainsi réalisée. Si un moyen permet d'insérer une impulsion laser dans cette dernière, de sorte que sa direction de propagation soit parfaitement confondue avec le mode de la cavité, alors un recouvrement excellent entre signal et pompe est garanti pour plusieurs centaines de passages. Naturellement, cela présuppose qu'il est également possible d'extraire l'impulsion de cette cavité une fois amplifiée.



Figure 3-1 - Cavité laser de base d'un amplificateur régénératif

Un amplificateur régénératif est dit *isolé* ou en *régime libre* (de l'anglais « free running ») lorsque l'on ne lui injecte pas de signal à amplifier. En pratique, il s'agit d'un laser déclenché par modulations des pertes (figure 3-1). Les pertes sont modulées en introduisant dans la cavité un polariseur, et une cellule de Pockels alimentée par une haute tension périodique (combinée ici avec une lame quart d'onde, pour des raisons de commodités expérimentales). La polarisation du laser est imposée par une *lame polarisante* (ou polariseur) : dans le cas de la figure 3-1, la polarisation du laser est horizontale car la lame est disposée en transmission. Pour introduire des pertes maximales, il suffit alors de tourner la polarisation de 90° : c'est un des rôles de la cellule de Pockels. Cette dernière sert aussi à l'injection et à l'éjection d'une impulsion dans la cavité. Grâce à un dispositif électronique de contrôle alimentant la cellule de Pockels en haute tension, l'utilisateur peut d'une part régler la valeur de cette haute tension (qui correspond au déphasage introduit), et, d'autre part, les instants précis auxquels cette valeur change (instants correspondant à l'injection et à l'éjection d'une impulsion). Suivant le cristal électro-optique équipant la cellule de Pockels, les hautes tensions et les temps de montée typique d'une tension à l'autre sont variables.

Un cristal électro-optique de longueur l'et de coefficient électro-optique r, soumis à une haute tension V présente un déphasage dépendant de ces trois paramètres : c'est l'effet Pockels. La haute tension nécessaire pour que ce déphasage soit égal à  $\pi/2$ , l'équivalent d'une lame quart d'onde, est appelée tension quart d'onde et notée  $V_{\pi/2}$ . Dans la configuration où la tension est appliquée transversalement par rapport à l'axe optique, par deux électrodes séparées d'une distance *d*, la tension quart d'onde s'exprime :

$$V_{\pi/2} = \frac{\lambda d}{4rn_0^3 l}$$

où l'est la longueur du cristal, et  $n_0$  est l'indice ordinaire du cristal.

Ċ	Cristal électro-optique	Coefficient électro-optique	Tension quart d'onde typiques à 1064 nm
	KDP	$r_{63} \approx 10 \text{ pm/V}$	8000 V
	KD*P	$r_{63}\approx 25~\text{pm/V}$	3200 V
	BBO	$r_{22}\approx 2{,}7~\text{pm/V}$	4350 V
	RTP	-	1200 V

Tableau 3-1 - Cristaux électro-optiques utilisés dans des cellules de Pockels

Plusieurs matériaux sont utilisés dans les cellules de Pockels à 1064 nm (tableau 3-1), parmi lesquels le KDP (KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>) est sans doute le plus répandu, car ce cristal est disponible en grandes dimensions, est transparent à 1µm (et dans le visible) et a une bonne tenue mécanique. Le KD\*P (KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>) est une variante du KDP dans lequel l'hydrogène a été remplacé par du deuterium, ce qui améliore ses propriétés physiques (meilleure transmission et plus grand coefficient électro-optique). D'autres cristaux plus onéreux existent sur le marché tels que le BBO ( $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) qui est apprécié pour sa rapidité et sa faible résonance piézoélectrique.<sup>60</sup> Plus récemment, et en dépit de ses problèmes thermiques, le cristal de RTP (RbTiOPO<sub>4</sub>) remporte un franc succès grâce à l'absence d'effet piézoélectrique, à une insensibilité à la température, et au fait qu'il ne s'agit pas d'un matériau hygroscopique (contrairement au KDP ou au BBO), ce qui permet de s'affranchir de hublots de protection, améliorant ainsi la transmission. De plus, les hautes tensions typiques d'alimentation sont plus faibles que celles des cellules basées sur d'autres cristaux. Pour des impulsions de 10 ns, les seuils de dommages typiques de ces cristaux sont supérieurs à 500 MW/cm<sup>2</sup>.

Dans le cas de la figure 3-1, la cellule de Pockels est alignée sur ses axes neutres. Dans ces conditions, elle est équivalente à une lame neutre en l'absence de haute tension, à une lame quart d'onde si V=V<sub> $\pi/2$ </sub>, ou à une lame demi-onde si V=V<sub> $\pi$ </sub>=2V<sub> $\pi/2$ </sub>. L'alimentation qui pilote la cellule de Pockels est programmée pour délivrer une haute tension périodique, en alternant ces trois valeurs successivement. Dans le premier (V=0) et le troisième cas (V=2V<sub> $\pi/2$ </sub>), des pertes importantes sont introduites sur la polarisation de l'onde oscillant dans la cavité, qui est horizontale. En effet, la combinaison de la cellule de Pockels et d'une lame quart d'onde juxtaposée, est dans ces deux cas équivalente à une lame demi-onde par aller-retour : la polarisation horizontale est tournée de 90°. En revanche, dans le cas où V=V<sub> $\pi/2$ </sub>, l'ensemble de ces deux éléments optiques sera équivalent à une lame demi-onde



sur un aller, donc à une lame neutre sur un aller-retour, réduisant alors les pertes totales de la cavité à une valeur avoisinant l'absorption de la cellule de Pockels, soit environ 2% par passage (ou 4% par aller-retour).

Figure 3-2 – Principe de l'éjection dans un amplificateur régénératif : si t<sub>3</sub> a lieu pendant la formation de l'impulsion de « Q-switch », alors la partie de l'impulsion au-delà t<sub>3</sub> sera éjectée de la cavité car polarisée verticalement. Les zones rayées en gris correspondent aux plages temporelles où les pertes sont maximales.

Avant de continuer, notons que la troisième valeur de haute tension évoquée plus haut (V=  $2V_{\pi/2}$ ) n'est d'aucune utilité pour la réalisation d'un régime déclenché. Cette troisième marche de tension intervient dans le cas où l'on souhaite éjecter de l'énergie de la cavité de l'amplificateur régénératif. En effet, si l'instant t<sub>3</sub> auquel on applique la tension V<sub>π</sub> (figure 3-2) se produit pendant la formation de l'impulsion de « Q-switch », la fraction de l'impulsion antérieure à l'instant t<sub>3</sub> sera polarisée horizontalement, et la fraction de l'impulsion postérieure à l'instant t<sub>3</sub> sera polarisée verticalement. Cette dernière sera alors expulsée de la cavité par le polariseur : c'est le principe de l'éjection dans un amplificateur régénératif.

En alternant des pertes de 100% et de 2%, nous obtenons ainsi un régime impulsionnel de type « Q-switch » (figure 3-3), qui peut se décomposer en deux parties temporelles. La première est la *phase de stockage d'énergie* dans le milieu amplificateur : les pertes élevées interdisent l'oscillation laser, mais, pendant ce temps, la pompe excite les atomes du milieu amplificateur jusqu'à l'obtention d'une inversion de population beaucoup plus forte que dans le cas d'un laser continu. La deuxième partie temporelle est la *phase d'extraction d'énergie* : les pertes deviennent subitement faibles, et l'émission spontanée (puis l'émission stimulée) commence à s'amplifier à une vitesse inhabituelle (comparée au cas d'un laser continu) jusqu'à se développer en une impulsion géante. Cette dernière est tellement intense qu'elle sature la transition laser en un temps très bref. Cela conduit l'inversion de population à chuter rapidement jusqu'à une valeur largement inférieure au seuil d'oscillation laser, l'intensité intracavité diminue alors fortement. Le processus de formation de l'impulsion de « Q-switch » est similaire à celui d'une oscillation de relaxation très intense comme décrit dans la simulation numérique §3.4, p. 98.



Figure 3-3 – Simulation de l'allumage d'un laser quasi-trois niveaux déclenché par modulation des pertes (extension de l'algorithme du §3.4, p.98). Le taux d'inversion de population (trait continu épais) atteint une valeur maximale de l'ordre de 30%. L'intensité intracavité (trait continu fin) se présente sous la forme d'une succession de pics (le premier ayant une intensité crête inférieure à celle des suivants). Les pertes introduites (trait pointillé) oscillent entre 10 % et 99%.

# 3.2.2 Régime injecté

Dans le paragraphe précédent, nous avons vu un amplificateur régénératif en régime libre, c'est-à-dire sans injection de signal à amplifier. Au lieu d'amplifier un signal impulsionnel, notre montage amplifiait simplement du bruit (émission spontanée), résultant en l'apparition d'une impulsion géante. Dans le cas du régime injecté (figure 3-4a), cette dernière devient l'enveloppe que va suivre l'intensité crête d'une impulsion picoseconde amplifiée dans la cavité (figure 3-4b). Le but du régime injecté est d'amplifier une impulsion pendant la phase d'extraction d'énergie de l'amplificateur. Durant la phase de stockage d'énergie, l'ensemble {Pockels, $\lambda/4$ } est une lame quart d'onde : cela permet d'introduire des pertes de 100%, mais aussi de refuser systématiquement l'entrée aux impulsions laser du faisceau incident. En effet, chaque impulsion injectée dans la cavité est polarisée verticalement. Or l'ensemble {Pockels, $\lambda/4$ } est équivalent à une lame quart d'onde pour un seul passage : la polarisation de l'impulsion va donc tourner de 90° suite à un aller-retour effectué entre le polariseur et le miroir  $M_3$ . La polarisation de cette impulsion étant alors horizontale, elle est intégralement transmise par le polariseur, effectuant ainsi un aller-retour complet dans la cavité. Mais au terme de cet aller-retour, elle rencontre de nouveau le système {Pockels, $\lambda/4$ }, qui tourne encore sa polarisation de 90°. De nouveau polarisée verticalement, l'impulsion est finalement éjectée de la cavité par réflexion sur le polariseur. Pendant la phase de stockage d'énergie, les impulsions injectées régulièrement dans la cavité de l'amplificateur sont donc directement éjectées après un aller-retour.



Figure 3-4 - (a) Schéma de principe d'un amplificateur régénératif en régime injecté, et (b) représentation graphique du signal électrique mesuré par une photodiode rapide alignée sur les pertes d'un miroir de la cavité. Les pics (trait continu) représentent l'évolution de la fluence crête d'une même impulsion injectée à l'origine des temps. L'enveloppe (trait pointillé) a une allure similaire à l'impulsion de « Q-switch ».

#### Injection

L'injection se produit à la fin de la phase de stockage d'énergie. En effet, à condition que l'alimentation de la cellule de Pockels soit synchronisée électroniquement à l'oscillateur, la dernière impulsion injectée dans la cavité lors de la phase de stockage d'énergie va y être piégée, car la cellule de Pockels bascule de 0 à  $\lambda/4$  au moment de la transition entre les deux phases. Naturellement, la cellule de Pockels doit changer d'état en un temps inférieur à celui nécessaire à un aller-retour de l'impulsion dans la cavité, sinon cette dernière serait éjectée comme les précédentes. Plus précisément, cela impose une contrainte sur le double de la distance entre le miroir  $M_1$  et l'entrée de la cellule de Pockels ( $C_1$  sur le schéma de la cavité), dont le temps de parcours doit être supérieur au temps de montée typique de l'alimentation de la Pockels (environ 3 ns annoncés par le constructeur).

#### Amplification

L'impulsion piégée effectue un grand nombre d'allers-retours dans la cavité jusqu'à ce que sa fluence crête soit maximale. Cet instant est défini comme le *temps de création*  $\tau_c$  de l'amplificateur. En régime injecté,  $\tau_c$  sera plus petit qu'en régime libre car le niveau d'énergie initiale est beaucoup plus élevé : cette fois-ci, c'est le signal et non le bruit qui est amplifié. De manière générale, le temps de création diminue lorsque le gain augmente. Après l'instant t= $\tau_c$ , l'impulsion s'amortira si elle n'est pas éjectée : c'est ce que l'on observe sur la figure 3-4b où  $\tau_c \approx 30$  allers-retours.

# Éjection

L'éjection se programme simplement en réglant la troisième marche de tension exactement entre deux allers-retours de l'impulsion dans la cavité (sur l'oscillogramme présenté en figure 3-4b, cela équivaut à placer l'instant d'éjection exactement entre deux pics). En pratique, l'instant d'éjection est choisi un peu après le temps de création afin de stabiliser le régime. En éjectant exactement au temps de création, le moindre bruit temporel résulterait en un bruit important sur la fluence crête de l'impulsion éjectée.

# 3.3 Modélisation d'un amplificateur régénératif ytterbium

Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, le fonctionnement d'un amplificateur d'impulsions laser peut se décomposer en deux régimes :

- le régime de *stockage d'énergie* dans le milieu à gain, qui correspond à la phase pendant laquelle le pompage optique excite les atomes du milieu amplificateur pour atteindre l'inversion de population : cette phase précède l'arrivée de l'impulsion laser à amplifier ;
- le régime d'*extraction d'énergie* du milieu à gain, qui est la phase pendant laquelle l'énergie stockée antérieurement est cette fois-ci extraite par l'impulsion à amplifier, au cours de passages successifs.

Or, le stockage d'énergie dans le matériau laser ne s'interrompt pas dès le début de la phase d'extraction d'énergie (figure 3-3, p.84). Ces deux phases ne sont donc pas rigoureusement séparées dans le temps, mais illustrent bien la dynamique de l'amplification. La modélisation de la première phase permet d'obtenir le gain petit signal  $G_0$ , et le profil spectral du gain petit signal (via le taux d'inversion de population saturé moyen  $\langle \beta_{sat} \rangle$ ), qui sont les conditions initiales nécessaires à la modélisation respective de l'amplification des impulsions selon les équations de Frantz et Nodvik, et du rétrécissement spectral par le gain que subissent ces impulsions.

Les modèles théoriques exploités dans les paragraphes 3.3.1 et 3.3.2, sont présentés dans de nombreuses publications. Dans chacun de ces deux paragraphes, nous avons choisi d'indiquer les références qui se rapprochent le plus de la forme utilisée ici. En revanche, pour les besoins d'une simulation numérique plus réaliste, j'ai développé au cours de la présente thèse le formalisme traitant du rétrécissement spectral par le gain dans un amplificateur régénératif ytterbium, présenté au paragraphe 3.3.3.

# 3.3.1 Gain et inversion de population saturés

À l'allumage d'un laser, le taux d'inversion de population  $\beta = \Delta N/N$  augmente jusqu'à sa valeur saturée  $\beta_{sat}$ . Cette valeur est atteinte en l'absence d'effet laser, grâce au pompage optique (figure 3-6). Nous allons maintenant présenter les notions théoriques nécessaires au calcul du taux d'inversion saturé.<sup>61</sup>

Dans le cas d'un laser ytterbium, le diagramme des niveaux d'énergie (figure 3-5) ne présente que deux multiplets impliqués dans les processus d'absorption et d'émission. À cause de la faible différence d'énergie séparant les sousniveaux Stark de ces multiplets, les facteurs d'occupation de Boltzmann ont une forte influence sur les populations de ces sous-niveaux (notées  $N_0$ ,  $N_1$ ,  $N_2$  pour les sous-niveaux respectifs 0, 1 et 2).





Figure 3-5 – Diagramme des niveaux d'énergie de l'ytterbium et notations employées dans ce paragraphe

Figure 3-6 – Évolution de  $\beta$  en fonction du temps à l'allumage d'un laser quasi-trois niveaux continu avec effet laser (trait continu), et en l'absence d'effet laser (trait pointillé). Cette figure est également présente au §3.4.2, p.102 auquel nous renvoyons le lecteur pour plus de détails.

Les variations de population mises en jeu durant l'absorption  $\Delta N_a$  et l'émission  $\Delta N_e$  s'écrivent :

$$\begin{cases} \Delta N_a = f_0 N_0 - f_2 N_2 \\ \Delta N_e = f_2 N_2 - f_1 N_1 \end{cases}$$

où  $f_0$ ,  $f_1$  et  $f_2$  sont les facteurs d'occupation de Boltzmann.

Si  $\sigma_e$  et  $\sigma_a$  sont les sections efficaces d'émission et d'absorption,  $\tau$  le temps de fluorescence,  $\phi_p$  le flux de photons de pompe et  $\phi_l$  le flux de photons d'émission stimulée, alors l'évolution temporelle de la population du niveau 2 s'écrit :

$$\frac{dN_2}{dt} = \sigma_a \phi_p \Delta N_a - \frac{N_2}{\tau} - \sigma_e \phi_l \Delta N_e.$$

En l'absence d'effet laser ( $\phi_l \approx 0$ ), le niveau 2 ne se vide quasiment pas et le niveau 1 est donc très peu rempli, l'inversion de population  $\Delta N = N_2 - N_1$  est alors approximativement égale à la population  $N_2$  du niveau haut de la transition laser.

Si l'on introduit la grandeur  $f_p$  définie par  $f_p = f_2/(f_2 + f_0)$ , alors :

$$\Delta N_a = N(f_2 + f_0)(f_p - \beta) \text{ avec } \beta \approx N_2/N,$$

et il vient :

$$\tau \frac{d\beta}{dt} = \tilde{I}_p (f_p - \beta) - \beta \quad \text{où} \quad \tilde{I}_p = \frac{I_p}{I_{psat}} ; I_{psat} = \frac{h \upsilon_p}{(f_2 + f_0) \tau \sigma_a} \text{ et } I_p = h \upsilon_p \phi_p.$$

Le taux d'inversion de population saturé  $\beta_{sat}$  correspond à la valeur maximale de  $\beta(t)$ , soit à  $d\beta/dt = 0$ (figure 3-7), et s'exprime alors de la manière suivante :

$$\beta_{sat} = f_p \frac{\tilde{I}_p}{1 + \tilde{I}_p}.$$

Équation 3-1

La grandeur  $\beta_{sat}$  est locale : elle dépend de la température (via les facteurs d'occupation de Boltzmann  $f_0$  et  $f_2$ ) et de l'intensité de pompe en chaque point du milieu à gain. Afin de modéliser le gain spectral disponible dans le milieu à gain à l'instant t ( $t \rightarrow \infty$ ) où  $\beta(t) = \beta_{sat}$  et où l'énergie stockée atteint sa valeur maximale, une valeur moyenne de cette grandeur peut être évaluée par la relation suivante<sup>62</sup> :

$$\left\langle \beta_{sat} \right\rangle = \frac{\int_{0}^{l_c} \int_{0}^{\infty} \beta_{sat}(r,z) e^{-\frac{2r^2}{\omega(r,z)^2} r dr dz}}{\int_{0}^{l_c} \int_{0}^{\infty} e^{-\frac{2r^2}{\omega(r,z)^2} r dr dz}}$$

Équation 3-2

où  $\omega(r, z)$  est le rayon au col du mode de la cavité laser,  $l_c$  est la longueur du milieu amplificateur, z est la coordonnée suivant l'axe optique, et *r* est la coordonnée radiale (plan perpendiculaire à l'axe optique).



Figure 3-7 – Simulation de la répartition spatiale du taux d'inversion saturé  $\beta_{sat}$  dans un cristal d'Yb: SYS long de 1,5mm (à gauche) et de 5 mm (à droite). L'amortissement du taux d'inversion au fur et à mesure que z augmente est dû à l'absorption de la pompe. La valeur moyenne pondérée du taux d'inversion saturé  $\langle \beta_{sat} \rangle$  est calculée : elle vaut 10,6 % pour le cristal de 1,5 mm, et 6,5 % pour celui de 5 mm.

L'équation 3-2 tient compte du recouvrement entre le faisceau laser à amplifier et le faisceau de pompe (dont le M<sup>2</sup> est pris en compte) par une pondération du taux d'inversion saturé : il s'agit d'une valeur moyenne sur tout le

matériau laser pondérée par le profil spatial du mode propre de la cavité laser grâce au facteur  $\exp[-2r^2/\omega(r,z)^2]$ . Une moyenne sans pondération n'aurait aucune signification physique, car les zones situées aux bords du matériau laser ne doivent pas intervenir dans la moyenne avec le même poids que celles situées au centre (la figure 3-7 en donne une illustration flagrante).

Par un raisonnement analogue, l'énergie stockée dans le cristal à la fin de la phase de stockage peut se calculer de la manière suivante :

$$E_{stock\acute{e}} = 4\pi h \upsilon l_c N \int_{0}^{l_c} \int_{0}^{\infty} \beta_{sat}(r,z) e^{-\frac{2r^2}{\omega(r,z)^2}} r dr dz$$

Équation 3-3

où b est la constante de Planck et v la fréquence des photons à la longueur d'onde du laser. Le gain petit signal  $G_0$  du milieu amplificateur, grandeur sans unité, est défini par :

$$G_0 = \frac{\int_0^\infty J(r, z = l_c) r dr}{\int_0^\infty J(r, z = 0) r dr}$$
 avec  $J(r, z) \ll J_{sat}$  valable sur tout le milieu à gain

où J est la fluence intracavité, et  $J_{sat}$  est la fluence de saturation du matériau laser. Une propriété de  $G_0$  est de s'exprimer en fonction de l'énergie stockée dans le matériau :

$$G_0 = e^{\frac{E_{stockée}}{J_{sat}S}}$$

où S est la section du faisceau laser. À partir de l'équation 3-3, il est donc possible de calculer la valeur que prend le gain petit signal avant le début de la phase d'extraction d'énergie.

# 3.3.2 Formalisme de Frantz-Nodvik appliqué à un laser quasi-trois niveaux

Durant la phase de stockage d'énergie, l'absence d'effet laser permet de calculer un gain global, le gain petit signal. Au début de la phase d'extraction d'énergie, et à condition que le gain soit faible, l'hypothèse de l'indépendance du gain vis-à-vis de la fluence laser reste valable durant les premiers passages de l'impulsion dans le milieu à gain. Cependant, lorsque la fluence de cette dernière n'est plus négligeable devant la fluence de saturation, le gain spectral est fortement affecté par le passage de l'impulsion dans le milieu amplificateur. Pour rendre compte de ce phénomène, nous utilisons le formalisme développé pour la première fois par L.M. Frantz et J.S. Nodvik en 1963 dans le cas d'un laser quatre niveaux,<sup>63</sup> que nous adaptons à un laser quasi-trois niveaux en y incluant la réabsorption à la longueur d'onde laser. La modélisation d'un amplificateur régénératif se présente alors sous la forme d'une relation de récurrence, dont l'itération *i* est associée au *i*<sup>me</sup> passage de l'impulsion laser dans le milieu à gain. Cette relation peut s'exprimer de deux façons équivalentes. La première est associée à un raisonnement sur la fluence de l'impulsion  $J_i$  et le gain logarithmique  $g_i = \ln G_i$ , actualisés à chaque itération, et s'écrit :

$$\begin{cases} g_{i} = -\ln \left[ 1 - e^{-\frac{J_{i-1}}{J_{sat}}} \left( 1 - e^{-g_{i-1}} \right) \right] \\ J_{i} = J_{sat} \ln \left[ 1 + e^{g_{i}} \left( e^{\frac{J_{i-1}}{J_{sat}}} - 1 \right) \right] \end{cases}$$

avec comme conditions initiales :  $g_0 = \ln G_0$  (où  $G_0$  est le gain petit signal calculé au paragraphe précédent), et  $J_0$  la fluence initiale de l'impulsion laser à amplifier.



Figure 3-8 – Fluence de l'impulsion amplifiée (trait continu) et fluence stockée dans le milieu à gain au cours de l'amplification (un aller-retour est équivalent à deux itérations de la relation de récurrence issue du formalisme de Frantz-Nodvik).

La seconde manière d'exprimer le formalisme de Frantz-Nodvik – qui est rigoureusement équivalente à la précédente – est de raisonner sur la fluence stockée, et non sur le gain logarithmique, ce qui a l'avantage d'avoir une signification physique plus intuitive. Ainsi, à chaque itération, l'énergie stockée est diminuée de la quantité d'énergie cédée à l'impulsion à l'itération précédente. La relation de récurrence s'exprime donc de la manière suivante :

$$\begin{cases} J_{i} = J_{sat} \ln \left[ 1 + e^{\frac{J_{sto,i-1}}{J_{sat}}} \left( e^{\frac{J_{i-1}}{J_{sat}}} - 1 \right) \right] \\ J_{sto,i} = J_{sto,i-1} - \left( J_{i} - J_{i-1} \right) \end{cases}$$

Équation 3-4 - Algorithme de Frantz-Nodvik monochromatique

avec comme conditions initiales :  $J_{sto,0} = J_{sat} \ln G_0$  et  $J_0$  égale à la fluence initiale de l'impulsion laser à amplifier.

Dans un cas comme dans l'autre, ce modèle ne tient pas compte d'effets parasites (tels que des transferts d'énergie non radiatifs) qui pourraient consommer de l'énergie stockée aux dépens de l'impulsion à amplifier. De plus, pour clarifier le raisonnement, nous faisons volontairement abstraction des pertes présentes dans la cavité de l'amplificateur régénératif. En effet, à chaque passage, après avoir diminué l'énergie stockée (ou le gain), il faut également diminuer la fluence de l'impulsion d'un facteur *(1-P)* où *P* représente les pertes passives totales. C'est précisément la présence de pertes qui explique sur la figure 3-8 la différence d'amplitude importante entre la chute de la fluence stockée et l'augmentation de la fluence intracavité.



Figure 3-9 – Évolution de l'amplification selon Frantz-Nodvik appliquée à un laser quasi-trois niveaux. Fluence intracavité en fonction du temps (nombre d'allers-retours dans le matériau laser) pour différentes valeurs (*a*) du gain petit signal  $G_{0}$ , (*b*) de l'énergie initiale  $E_0$  (qui est donnée par  $J_0 \sim (1,7.10^{-6} \text{cm}^{-2}) E_0$ ), (*c*) des pertes passives *P*. Temps de création en fonction (*d*) de  $G_0$ , (*e*) de  $E_0$ , (*f*) de *P*.

De manière générale, une relation de récurrence se prête bien au traitement informatique. Nous avons ainsi recours à la simulation numérique pour étudier l'évolution de la fluence de l'impulsion  $J_i$  et de la fluence stockée  $J_{sto,i}$  à

chaque passage *i* (figure 3-8), ou en fonction des différents paramètres : conditions initiales ( $J_0$  et  $G_0$ ), et pertes passives P (figure 3-9). Ces courbes mettent en évidence plusieurs tendances. Une augmentation du gain petit signal provoque une augmentation de la fluence extraite, mais aussi une diminution du temps de création. En revanche, on s'aperçoit que pour des énergies injectées variant de 0,1 à 10 nJ par impulsion, l'augmentation de la fluence initiale permet de diminuer le temps de création, mais n'a strictement aucune influence sur la fluence extraite. De plus, si l'on se restreint à des valeurs d'énergies injectées plus réalistes (de 0,1 à 0,5 nJ par impulsion), on voit que le temps de création ne diminue que très peu (d'environ 7%). Enfin, l'augmentation des pertes passives entraîne une augmentation du temps de création significative. Dans le cadre de l'interprétation de l'allure d'une courbe expérimentale de « Q-switch », il est intéressant de noter que les pertes ont une très forte influence sur le front descendant de l'impulsion : plus P est grand, plus la fluence intracavité s'amorti rapidement. Autrement dit, plus le profil temporel de l'impulsion de « Q-switch » apparaîtra symétrique, plus les pertes seront importantes. Le front montant de l'impulsion est, quant à lui, dû à la valeur du gain petit signal. Ainsi, le raisonnement suivant est utile pour effectuer un ajustement judicieux de la théorie à l'expérience. Le choix d'un couple de valeurs ( $G_0$ ; P) fixe d'abord la largeur de l'impulsion, et correspond à une position donnée du maximum de cette impulsion. Ensuite, cette impulsion est décalée dans le temps en ajustant la valeur de fluence initiale, de sorte que le maximum corresponde à celui de la courbe expérimentale.

# 3.3.3 Rétrécissement spectral par le gain

Dans le cadre de cette thèse, nous ne considèrerons pas le fait que les impulsions injectées dans l'amplificateur ont été préalablement étirées temporellement. Cette hypothèse est valable dans la mesure où l'extraction d'énergie est ici très progressive en raison du faible gain dont disposent nos matériaux laser.

#### Cas d'école

Au cours de l'amplification, de nombreux passages sont nécessaires pour extraire le maximum de fluence stockée dans le milieu à gain. Supposons que l'impulsion injectée dans l'amplificateur ait un spectre centré sur une longueur d'onde  $\lambda_{entrée}$  dont la largeur à mi-hauteur est notée  $\Delta \lambda_{entrée}$ . Or, l'amplificateur présente un gain qui n'est pas constant avec la longueur d'onde. Ce gain spectral n'est pas infiniment large – notons  $\Delta \lambda_g$  sa largeur à mi-hauteur, et  $\lambda_g$  sa longueur d'onde centrale. Par conséquent, à chaque passage dans le milieu amplificateur, les composantes spectrales de l'impulsion qui sont proches du maximum de ce gain seront plus amplifiées que celles qui en sont éloignées. En supposant pour simplifier que le gain spectral soit symétrique et que  $\lambda_{entrée} = \lambda_g$  l'impulsion extraira plus d'énergie au centre de son spectre qu'en son bord. Ce phénomène est d'autant plus marqué que le rapport  $\Delta \lambda_{entrée} / \Delta \lambda_g$  est petit (rapport typiquement inférieur à un quart). Dans ce cas d'école bien particulier, le résultat

est donc un rétrécissement du spectre d'autant plus important que le nombre de passages est grand : c'est ce que l'on appelle le *rétrécissement spectral par le gain.*\* La conséquence directe est un allongement de la durée des impulsions. C'est pourquoi cet effet joue un rôle capital dans le domaine de l'amplification d'impulsions brèves.

Pour rendre compte de ce phénomène, il est nécessaire de généraliser le formalisme de Frantz-Nodvik, qui est présenté au paragraphe précédent sous une forme monochromatique. En effet, dans le cadre de la réalisation d'une simulation numérique réaliste, j'ai développé un *modèle polychromatique* à partir des notions évoquées dans les paragraphes précédents.

#### Modèle

Dans les lasers ytterbium, l'élargissement du spectre d'émission est globalement homogène (§1.5.3, p.44), ce qui interdit de généraliser les équations en remplaçant simplement les grandeurs monochromatiques par des grandeurs dépendant de la longueur d'onde. En procédant de la sorte, nous modéliserions un élargissement inhomogène : le gain saturerait localement, et le rétrécissement spectral serait sous-évalué. Pour modéliser un élargissement homogène, nous devons traduire mathématiquement le fait que, après chaque passage, le gain spectral est globalement affecté par une diminution de la fluence stockée, même si cette dernière ne se produit qu'à certaines longueurs d'onde.



Figure 3-10 - Schéma de principe de la modélisation du rétrécissement spectral par le gain, dans le cas polychromatique

# Adoptons la notation suivante pour l'intégrale $\int [X]$ d'une grandeur X dépendant de $\lambda : \int [X] \equiv \int_0^\infty X(\lambda) d\lambda$ .

Dans le modèle polychromatique, les conditions initiales sont analogues à celles du modèle précédent (figure 3-10). La fluence stockée initiale  $J_{sto,0}(\lambda)$  est obtenue en deux étapes. La première étape nous donne ses variations spectrales, et la seconde nous permet de « calibrer » la courbe ainsi obtenue. Les variations spectrales s'obtiennent via le gain logarithmique petit signal  $g_0(\lambda)$  (lui-même obtenu à partir de la section efficace de gain  $\sigma_g(\lambda)$ ) à laquelle  $J_{sto,0}(\lambda)$  est directement proportionnelle via l'équation :

$$g_0(\lambda) = \frac{J_{sto,0}(\lambda)}{J_{sat}(\lambda)} \text{ avec } g_0(\lambda) = \ln G_0(\lambda) \propto \sigma_g(\lambda), \text{ d'où : } J_{sto,0}(\lambda) \propto \sigma_g(\lambda) J_{sat}(\lambda).$$

<sup>\*</sup> Notons que dans le cas où  $\lambda_{entrée} \neq \lambda_g$ , le rétrécissement spectral par le gain s'accompagne d'un décalage spectral de l'impulsion amplifiée. Par exemple, la longueur d'onde centrale de l'impulsion se décale vers les courtes longueurs d'onde si  $\lambda_{entrée} < \lambda_g$ .

Plus précisément,  $J_{sto,0}(\lambda)$  a un profil spectral que nous noterons  $K_0(\lambda)$  qui est obtenu à partir de la courbe de section efficace de gain (équation 1-8, p.46), dans laquelle  $\beta$  est remplacé par sa valeur moyenne saturée  $\langle \beta_{sat} \rangle$  (§3.3.1, p.86):

$$K_0(\lambda) = \left[\beta_0\left(\sigma_e(\lambda) + \sigma_a(\lambda)\right) - \sigma_a(\lambda)\right] J_{sat}(\lambda) \text{ avec } \beta_0 = \left<\beta_{sat}\right> \text{ et } J_{sat}(\lambda) = \frac{hc}{\lambda\left(\sigma_e(\lambda) + \sigma_a(\lambda)\right)}$$

La courbe ainsi obtenue est normalisée par rapport à la longueur d'onde centrale des impulsions  $\lambda_{entrée}$ , puis multipliée par la fluence stockée monochromatique à la longueur d'onde d'entrée  $J_{sto,0}(\lambda_{entrée})$ :

$$J_{sto,0}(\lambda) = J_{sto,0}(\lambda_{entrée}) \frac{K_0(\lambda)}{K_0(\lambda_{entrée})} \text{ avec } J_{sto,0}(\lambda_{entrée}) = J_{sat}(\lambda_{entrée}) \ln \left[G_0(\lambda_{entrée})\right],$$

où  $G_0(\lambda_{entrée}) \equiv G_0$  est le gain petit signal à la longueur d'onde d'entrée : il s'agit de la même grandeur que celle évoquée en tant que « gain petit signal » dans le modèle monochromatique (§3.3.2, p.89). Les variations spectrales des grandeurs évoquées ici sont représentées dans la figure 3-11 (ci-dessous).



Figure 3-11 – Illustration de la dépendance en longueur d'onde *(a)* de la fluence de saturation  $J_{sat}$  et *(b)* de la fluence stockée initiale  $J_{sto,0}$ , et *(c)* du gain spectral avant le premier passage de l'impulsion à amplifier (ou gain petit signal)  $G_{0}$ , calculés dans le cas de l'Yb: SYS pour un taux d'inversion de 30%.

En ce qui concerne la fluence initiale, le passage au modèle polychromatique est immédiat : il suffit de remplacer  $J_0$ par le spectre de l'impulsion à amplifier  $J_0(\lambda)$ .

Notation	Désignation			
$J_i(\lambda)$	Fluence de l'impulsion après son i <sup>ème</sup> passage dans le matériau laser			
$J_{\text{sto,i}}(\lambda)$	Fluence stockée dans le matériau laser après le i <sup>ème</sup> passage de l'impulsion			
$V(\lambda)$	Profil spectral de la fluence stockée dans le matériau laser après le ième passage de			
$\mathbf{K}_{i}(\mathbf{\lambda})$	l'impulsion : $\mathrm{K}_{\mathrm{i}}(\lambda) \propto \mathrm{J}_{\mathrm{sto,i}}(\lambda)$			
$\beta_i$	Taux d'inversion de population du matériau laser après le ième passage de l'impulsion			
$J_{sat}(\lambda)$	Fluence de saturation du matériau laser			

Tableau 3-2 - Le modèle de Frantz-Nodvik polychromatique : les notations et leur signification.

La relation de récurrence doit subir un changement similaire à celui des conditions initiales (se reporter au tableau 3-2 pour un bilan sur les nouvelles notations utilisées). Avant le premier passage dans le milieu à gain, l'intégrale de la fluence stockée est calculée – on la note  $\int [J_{sto,0}]$ . Cette grandeur caractérise la *quantité totale de fluence stockée dans le matériau*. Après chaque passage, c'est précisément cette quantité qui sera diminuée de l'intégrale de la fluence cédée à l'impulsion notée  $\int [J_i - J_{i-1}]$ .

De plus, afin de déterminer le profil spectral  $K_i(\lambda)$  du gain (et donc de la fluence stockée) au  $i^{eme}$  passage, nous procédons par un raisonnement analogue à celui utilisé pour les conditions initiales, en remplaçant  $\beta_0$  par  $\beta_i$ . Le taux d'inversion de population  $\beta_i$  est proportionnel à la densité d'ions excités, donc à  $\int [J_{sto,i}]$ . À chaque passage il sera donc diminué d'un facteur  $\chi_i$ . Ce dernier est égal au rapport entre la quantité totale de fluence stockée *après* le passage de l'impulsion  $\int [J_{sto,i}] = \int [J_{sto,i-1}] - \int [J_i - J_{i-1}]$ , et la quantité totale de fluence stockée *avant* le passage de l'impulsion  $\int [J_{sto,i-1}]$ , soit :

$$\beta_{i} = \chi_{i}\beta_{i-1}$$
 avec  $\chi_{i} = \frac{\int [J_{sto,i-1}] - \int [J_{i} - J_{i-1}]}{\int [J_{sto,i-1}]}$ .

De cette façon, la nouvelle fluence stockée est répartie sur le spectre grâce à la nouvelle valeur du taux d'inversion de population. Ainsi, une fois la valeur du taux d'inversion calculée pour le *i*<sup>ome</sup> passage, le profil spectral  $K_i(\lambda)$  de la fluence stockée peut être calculé par l'équation suivante :

$$K_i(\lambda) = \left[\beta_i \left(\sigma_e(\lambda) + \sigma_a(\lambda)\right) - \sigma_a(\lambda)\right] J_{sat}(\lambda).$$

La fluence stockée au  $i^{ime}$  passage se calcule alors en répartissant la quantité totale de fluence stockée après le passage de l'impulsion, soit  $\int [J_{sto,i}] = \int [J_{sto,i-1}] - \int [J_i - J_{i-1}]$ , sur la courbe donnée par  $K_i(\lambda)$ .

Pour calculer  $J_{sto,i}(\lambda)$ , nous avons donc d'un côté son profil spectral donné par  $K_i(\lambda)$ , et de l'autre son intégrale donnée par  $\int [J_{sto,i}]$ . Pour obtenir l'expression de  $J_{sto,i}(\lambda)$ , il suffit alors de diviser  $K_i(\lambda)$  par son intégrale égale à  $\int [K_i]$ , puis de multiplier le tout par l'intégrale  $\int [J_{sto,i}]$ , soit :

$$J_{sto,i}(\lambda) = \left( \int \left[ J_{sto,i-1} \right] - \int \left[ J_i - J_{i-1} \right] \right) \frac{K_i(\lambda)}{\int \left[ K_i \right]}$$

Pour récapituler, ce raisonnement récursif se traduit mathématiquement de la manière suivante ( $K_i$  étant une grandeur intermédiaire) :

$$J_{i}(\lambda) = J_{sat}(\lambda) \ln \left[ 1 + e^{\frac{J_{sto,i-1}(\lambda)}{J_{sat}(\lambda)}} \left( e^{\frac{J_{i-1}(\lambda)}{J_{sat}(\lambda)}} - 1 \right) \right] \qquad \qquad \beta_{i} = \frac{\int \left[ J_{sto,i-1} \right] - \int \left[ J_{i} - J_{i-1} \right]}{\int \left[ J_{sto,i-1} \right]} \beta_{i-1}$$
$$K_{i}(\lambda) = \left[ \beta_{i} \left( \sigma_{e}(\lambda) + \sigma_{a}(\lambda) \right) - \sigma_{a}(\lambda) \right] J_{sat}(\lambda) \qquad \qquad J_{sto,i}(\lambda) = \left( \int \left[ J_{sto,i-1} \right] - \int \left[ J_{i} - J_{i-1} \right] \right) \frac{K_{i}(\lambda)}{\int \left[ K_{i} \right]}.$$

Équation 3-5 - Algorithme de Frantz-Nodvik polychromatique

Ce modèle est beaucoup plus évolué que le précédent et nous permet d'interpréter les résultats expérimentaux de manière satisfaisante (§3.7.3, p.138).

#### Simulation numérique

À partir de l'équation 3-5, un algorithme efficace\* est développé sous *Mathematica*® qui permet de simuler un amplificateur régénératif ytterbium. Ce programme tient compte à la fois des propriétés du matériau laser utilisé, à partir de courbes de sections efficaces en fonction de la longueur d'onde par exemple, et des paramètres d'un hypothétique montage expérimental à travers le gain petit signal et le taux d'inversion de population moyen initial. L'utilisateur peut alors choisir le spectre des impulsions injectées dans cet amplificateur, soit à partir de données expérimentales, soit à partir d'une expression mathématique. Ce premier point permet l'étude de l'amplification en fonction du profil spectral, de l'énergie, ou encore de la longueur d'onde centrale de l'impulsion injectée. Par ailleurs, il est également possible de changer facilement de matériau laser pour comparer les résultats obtenus avec chacun d'entre eux. De nombreuses manipulations sont ainsi possibles, et permettent de mieux comprendre l'influence de chacun des paramètres de l'amplification.

Dans l'algorithme détaillé au paragraphe précédent, nous omettons volontairement une étape essentielle à effectuer à chaque calcul du profil spectral du gain, dont l'origine est purement expérimentale. En effet, il est nécessaire de lisser artificiellement les courbes de section efficace d'émission et d'absorption, de sorte que le bruit caractérisant ces mesures expérimentales n'intervienne pas dans la simulation. La moindre petite modulation du gain a des répercutions dramatiques sur l'amplification après une centaine d'allers-retours. Et ce bruit expérimental figé entraîne donc une amplification à certaines longueurs d'onde préférentielles, dont les valeurs n'ont aucune signification physique particulière. Pour éviter ce phénomène, nous utilisons un algorithme de lissage éliminant ce bruit gênant (figure 3-12).

<sup>\*</sup> Le calcul dure une dizaine de secondes environ, pour la simulation de 300 allers-retours dans le milieu amplificateur (avec une résolution de 0,1nm, et sur une bande spectrale de 60nm), soit 600 passages, ce qui implique le calcul numérique de 1200 intégrales par la méthode des trapèzes (deux intégrales par passage).



Figure 3-12 - Lissage des données expérimentales en vue d'une simulation plus réaliste. (a) Courbe expérimentale brute de la section efficace d'émission de l'Yb: SYS en fonction de la longueur d'onde. (b) Agrandissement d'un intervalle spectral (de 1050 à 1080 nm environ) afin de mettre en évidence le bruit expérimental (trait continu) et la courbe lissée par traitement numérique (trait pointillé).

Naturellement, comme pour toute simulation numérique, l'interprétation des résultats ne peut se faire que dans un cadre bien défini. Il est indispensable de garder à l'esprit les hypothèses de base, et de savoir détecter si un effet observé est de nature numérique (tel qu'un effet de bord dû à la largeur finie du spectre étudié par exemple), ou réellement de nature physique.

Les résultats de ces simulations numériques étant intimement liés aux expérimentations, nous ne les présenterons qu'au §3.7.3, p.138.

# 3.4 Simulation des phénomènes de relaxation dans un laser ytterbium

#### Introduction

Dans les paragraphes précédents du présent chapitre, nous avons présenté le principe et l'essentiel des notions théoriques concernant l'amplification régénérative. Ce tour d'horizon est cependant incomplet, car nous n'avons pas encore évoqué les phénomènes liés au seuil de dommage des optiques de l'amplificateur régénératif. Plus précisément, la compréhension des origines de l'endommagement du traitement de surface du matériau laser (§3.6.2, 112), est indispensable dans la mesure où ces problèmes expérimentaux ont été d'une importance capitale tout au long de la présente thèse. Les phénomènes physiques responsables de ces endommagements sont les oscillations de relaxation : il s'agit de pics brutaux de l'intensité intracavité qui peuvent se manifester dans toute cavité laser oscillante, et donc en particulier dans un amplificateur régénératif.

Avant d'aborder la partie expérimentale de ce dernier chapitre, nous allons donc nous intéresser à une simulation numérique mettant en évidence les oscillations de relaxation dans un laser ytterbium (ce qui est donc valable pour un amplificateur régénératif, qui est un montage basé sur une cavité laser oscillante).

### Oscillations de relaxation dans un laser ytterbium

Que cela soit à l'allumage d'un laser en régime continu, ou lors d'une perturbation subie par un laser dans un régime quelconque, la puissance instantanée du faisceau intracavité peut présenter des oscillations rapides appelées *oscillations de relaxation*. Ces pics très rapprochés, dont l'amplitude décroît exponentiellement dans le temps, soumettent les optiques de la cavité laser à des densités de puissance brutalement élevées et bien supérieures à celles du régime stationnaire. Des endommagements sont donc souvent la conséquence de ces oscillations. Afin de mieux comprendre ces phénomènes très gênants, nous allons étudier l'exemple de l'allumage d'un laser ytterbium en régime continu, à travers une simulation que j'ai développée à partir d'un modèle simple.

#### 3.4.1 Modèle, algorithme et résultats de la simulation

Le dispositif expérimental simulé est le suivant. Le matériau laser, un cristal d'Yb: SYS long de 5 mm et dopé à 5%, est placé au sein d'une cavité présentant 10% de pertes passives par aller-retour. Le faisceau de pompe et le faisceau laser sont de symétrie cylindrique. Le spectre du faisceau de pompe est une gaussienne centrée à 976 nm et d'une largeur à mi-hauteur égale à 3 nm. La simulation ne tient pas compte de l'élargissement des raies d'émission et d'absorption du matériau laser. Cela signifie implicitement que, compte tenu du spectre d'émission de l'Yb: SYS et des pertes peu élevées de la cavité considérée, l'émission laser n'aura lieu qu'à 1082 nm (car de faibles pertes sont associées à une longueur d'onde d'émission haute, voir §1.5.4, p.46).



Figure 3-13 – Algorithme utilisé par la simulation de l'allumage d'un laser ytterbium. Les conditions initiales consistent à placer le nombre total d'ions Yb<sup>3+</sup> N dans le niveau fondamental (le sous-niveau le plus bas du diagramme d'énergie, dont la population est notée  $N_{l}$ ), et à assigner une valeur nulle au temps t et à l'intensité laser  $I_{l}$ . Après une population thermique des sous-niveaux suivant la loi de Bolzmann, la boucle temporelle commence avec un pas égal à  $\Delta t$ , jusqu'à une valeur  $t_{l}$  définie par l'utilisateur. A chaque itération de cette boucle, toutes les transitions possibles entre les sous-niveaux sont envisagées (chaque transition est notée  $2\rightarrow 1$ , avec une population  $N_{l}$  sur le niveau bas et  $N_{2}$  sur le niveau haut), et pour chacune d'entre elles, les probabilités d'émission (stimulée ou spontanée) ou d'absorption conduisent à un déplacement  $\delta N$  de population, et à une augmentation  $\delta I_{l}$  de l'intensité laser (voir texte). Ensuite, après une population thermique des sous-niveaux, et la diminution de l'intensité laser à cause des pertes P totales de la cavité, une image est réalisée pour afficher toutes les données à l'instant t. Lorsque t>t<sub>1</sub>, la boucle se termine, et fichier vidéo est créé en juxtaposant les images sauvegardées dans la boucle temporelle.

Par ailleurs, le programme prend en compte les énergies des différents sous-niveaux impliqués dans les processus radiatifs qui nous intéressent, ainsi que les courbes expérimentales de sections efficaces d'émission et d'absorption entre 1000 et 1100 nm. Un pas temporel  $\Delta t$  (considéré comme infinitésimal) est choisi égal à 1 µs, soit mille fois plus court que le temps de fluorescence moyen de l'Yb: SYS. Le temps est ainsi progressivement incrémenté et à chaque instant les probabilités d'émission spontanée, d'émission stimulée et d'absorption sont calculées pour chaque transition. La proportion correspondante d'ions va ainsi se déplacer d'un niveau d'énergie à l'autre selon les propriétés de chaque transition envisagée. Ainsi, à partir des probabilités des différentes transitions possibles, la simulation reconstitue les premiers instants suivant l'allumage d'un laser ytterbium grâce à l'algorithme présenté en figure 3-13.

À l'instant *t*, pour chaque transition possible entre un niveau haut de population  $N_2$  (sous-niveau de  ${}^2F_{5/2}$ ) et un niveau bas de population  $N_1$  (sous-niveau de  ${}^2F_{7/2}$ ), le déplacement de population  $\delta N$  du niveau haut vers le niveau bas, dû à l'absorption ou à l'émission (spontanée ou stimulée) s'écrit dans l'hypothèse où  $\Delta t <<\tau_{21}$  de la manière suivante :

$$\delta N = \Delta t \left[ \sigma_a(\lambda) I_p N_1 - \sigma_e(\lambda) I_1 N_2 - \frac{N_2}{\tau_{21}} \right] \quad \text{avec} \quad \begin{cases} N_1(t + \Delta t) = N_1(t) + \delta N \\ N_2(t + \Delta t) = N_2(t) - \delta N \end{cases}$$

où  $\sigma_a$  et  $\sigma_e$  sont les sections efficaces d'émission et d'absorption,  $I_p$  l'intensité de pompe,  $I_l$  l'intensité laser,  $\tau_{2l}$  est le temps de vie associé à la transition. Par ailleurs, l'intensité laser  $I_l$  dans la cavité est nulle à t=0 et augmente d'une quantité  $\delta I_l$  à chaque itération dans la boucle temporelle de l'algorithme, avec :

$$\delta I = l_c N_2 \left[ \sigma_e(\lambda) I_l + \frac{\Omega}{2\pi} \frac{1}{\tau_{21}} \right] \zeta$$

où  $\Omega$  l'angle solide sous lequel les photons sont considérés comme oscillant dans la cavité, et  $\zeta$  un coefficient égal à 1 si la transition 2 $\rightarrow$ 1 est radiative, et égal à 0 sinon.

Une fois ces règles établies et l'algorithme contenant la boucle temporelle écrit, le système quasi-trois niveaux « prend vie » et nous pouvons à chaque instant prélever la valeur numérique de l'inversion de population correspondant à la transition laser (1082 nm) et la valeur numérique de l'intensité laser intracavité. Notons que cette dernière est rigoureusement nulle à l'origine des temps : elle est incrémentée uniquement par les photons d'émission spontanée, puis par les photons issus de l'amplification de l'émission spontanée, et enfin par les photons d'émission stimulée.

Les résultats graphiques de cette simulation (tableau 3-3) prennent en compte l'éclatement des niveaux d'énergie par le champ cristallin du matériau étudié, en faisant apparaître les sous-niveaux Stark des deux multiplets (niveaux  ${}^{2}F_{5/2}$  et  ${}^{2}F_{7/2}$ ). Nous voyons alors apparaître clairement le premier inconvénient d'un laser quasi-trois niveaux qui est la population par thermalisation des sous-niveaux supérieurs du multiplet fondamental.

En effet, à l'équilibre thermodynamique, comme le montre la figure à l'instant t=0, les sous-niveaux d'énergie supérieure au niveau fondamental sont peuplés de manière non négligeable, dans des proportions décrites par la loi de Boltzmann. Dans les instants ultérieurs, ce phénomène entraîne une diminution de l'inversion de population à cause du dépeuplement du niveau fondamental, et ne favorise donc pas l'effet laser. L'émission stimulée à la longueur d'onde de pompe est également un phénomène nuisible, qui limite la proportion de population du niveau fondamental susceptible d'être excitée jusqu'au niveau du haut (ici environ un tiers de la population du niveau fondamental parvient à être excitée au maximum à t~1000  $\Delta t$ ; et de manière générale dans le cas des lasers



ytterbium, quel que soit le niveau de l'intensité de pompe, moins de 50% de cette population sera excitée dans le meilleur des cas).

Instant t=2100∆t

Instant t=3500∆t

Tableau 3-3 – Simulation de l'allumage d'un laser quasi-trois niveaux continu et mise en évidence d'oscillations de relaxation. A l'instant t=0 est appliquée une marche d'intensité de pompe (constante pour t>0) : c'est "l'allumage du laser". Au bout d'un certain laps de temps (avoisinant le temps de fluorescence ici égal à 1000 $\Delta$ t, avec  $\Delta$ t=1µs), l'inversion de population dépasse le seuil d'oscillation laser : il en résulte une forte dépopulation du niveau du haut qui entraîne plusieurs oscillations de relaxation (phénomène de "spiking"). Après ces pics de quelques dizaines de microsecondes de durée, le régime se stabilise et rentre dans une phase stationnaire.

#### 3.4.2 Origine des oscillations de relaxation

L'établissement de l'effet laser dans un régime stationnaire est précédé d'une *phase transitoire* qui est l'objet de la simulation présentée dans le tableau 3-3. Cette dernière est le siège d'oscillations de relaxation caractéristiques des lasers solides. Ce phénomène connu sous le nom anglais de « spiking » peut avoir des conséquences désastreuses. En effet, ces pics de relaxation soumettent les optiques de la cavité laser à des puissances crêtes beaucoup plus élevées que celles caractérisant le régime stationnaire, et des dommages occasionnés en surface de ces optiques sont alors fréquents.

Afin d'expliquer l'origine du « spiking », introduisons la notion de *fluence de saturation*, notée  $J_{sat}$ , et définie par la relation suivante :

$$\Delta N = N_2 - N_1 = \frac{\Delta N_0}{1 + \frac{J}{J_{out}}}$$

où  $\Delta N_0$  est l'inversion de population au régime stationnaire, à intensité (ou fluence) nulle. Lorsqu'un milieu à gain pompé optiquement est soumis à un faisceau lumineux en résonance avec sa transition laser, l'inversion de population  $\Delta N$  dépend de la fluence *J* du faisceau. Dans le cas où *J* est négligeable devant *J<sub>sut</sub>*, cette dépendance n'est pas significative. En revanche, dans le cas contraire l'inversion de population diminue lorsque *J* augmente (figure 3-14). Si *J* augmente suffisamment pour que  $\Delta N = \Delta N_{seuil}$ , le milieu est *transparent*, puis *absorbant* si  $\Delta N < \Delta N_{seuil}$ . Notons que la fluence de saturation dépend des spectres d'émission et d'absorption du milieu, et de la longueur d'onde. Plus la fluence de saturation d'un matériau laser est petite, plus l'extraction de l'énergie stockée dans le milieu est rapide, ce qui est une propriété intéressante pour la réalisation d'amplificateurs d'impulsions laser.



Figure 3-14 – L'évolution du taux d'inversion  $\beta$  ( $\beta=\Delta N/N$ , où N est la population totale) en fonction du temps à l'allumage d'un laser quasi-trois niveaux continu (trait continu) est superposée à celle dans le cas de l'absence de cavité oscillante (trait pointillé), ce qui met en évidence la saturation de l'inversion de population.



Figure 3-15 – La saturation de la transition laser est illustrée par un graphe du taux d'inversion  $\beta$  ( $\beta$ = $\Delta$ N/N, où N est la population totale) en fonction du rapport de l'intensité intracavité à l'intensité de saturation du milieu amplificateur.

La cause des oscillations de relaxation est le phénomène de saturation de la transition laser. Tant que l'inversion de population n'est pas assez grande pour que le gain dépasse les pertes, l'intensité intracavité est presque nulle (les photons circulant alors dans la cavité n'étant dus qu'à la fluorescence du milieu amplificateur). Dans ce laps de temps, rien n'empêche l'inversion de population d'augmenter jusqu'à sa valeur maximale,\* appelée inversion de population de saturation, correspondant à l'équilibre entre trois phénomènes : l'émission spontanée, l'absorption et la population thermique des niveaux. L'inversion de population de saturation est notée  $\Delta N_{sat}$  et vérifie  $\Delta N(t) = \Delta N_{sat} \left( 1 - e^{-t/t_0} \right)$  où t<sub>0</sub> est une constante de temps dépendante de l'absorption du milieu à gain et des caractéristiques de la pompe (figure 3-15). En revanche, dès que le seuil d'oscillation laser est franchi, l'intensité intracavité s'amplifie rapidement, et, par conséquent, le taux d'émission stimulée augmente tellement que le pompage optique ne suffit plus à maintenir un nombre constant d'ions excités sur le niveau supérieur de la transition laser. La population de ce dernier va donc chuter, entraînant une baisse de l'inversion de population. Ce déséquilibre est tel que cette dernière n'est bientôt plus suffisante pour continuer à amplifier le flux de photons à 1082 nm. C'est pourquoi l'intensité décroît brusquement et permet ainsi au pompage optique de reprendre le dessus, conduisant à une situation analogue à celle décrite en début de paragraphe. Le résultat est donc une succession de pics d'intensité. Leur amplitude s'amortit au cours du temps car un équilibre s'établit entre quatre phénomènes : l'émission spontanée, l'émission stimulée, l'absorption et la population thermique des niveaux.

#### 3.4.3 Influence du temps de vie du matériau laser

Le cas traité ici – dont les résultats sont présentés au  $\S3.4.1$  (p.98) – est celui du cristal d'Yb: SYS. Comme nous le mentionnons à plusieurs reprises dans ce mémoire, le but de la présente thèse était d'étudier de nouveaux cristaux dopés à l'ytterbium pour la réalisation de lasers femtoseconde. Cette étude nous a conduit à tester plusieurs cristaux dont les propriétés spectroscopiques sont quasiment toutes voisines, tout au moins dans le cadre du résultat donné par cette simulation des oscillations de relaxation. Une des caractéristiques de ces matériaux va néanmoins intervenir fortement dans l'amplitude de ces oscillations de relaxation : c'est le temps de fluorescence  $\tau$ . Dans le cas de l'Yb: SYS, il avoisine la milliseconde, mais pour l'Yb: GdCOB il est environ trois fois plus long. C'est pourquoi nous avons comparé les résultats obtenus en faisant varier le temps de vie du matériau laser simulé, tout en laissant inchangés tous les autres paramètres de la simulation. Autrement dit, nous avons supposé que, à l'exception du temps de fluorescence, tous les paramètres de la simulation – dont, par exemple, la position des niveaux d'énergie (cf. annexe IV, p.159) – interviennent peu dans les dissemblances entre cristaux dopés à l'ytterbium.

<sup>\*</sup> La valeur maximale évoquée ici n'est pas atteinte par l'inversion de population car le milieu amplificateur est placé au sein d'une cavité oscillante. Par conséquent, l'intensité à 1082 nm traversant le milieu à gain conduit à une saturation de la transition avant que cet équilibre ne puisse s'établir.



Figure 3-16 – (a) Oscillations de relaxation (pics d'intensité intracavité) et (b) taux d'inversion en fonction du temps, pour différentes valeurs du temps de fluorescence d'un matériau laser dopé à l'ytterbium (caractéristiques proches du SYS) :  $\tau = 1 \text{ ms}$  (trait continu épais),  $\tau = 2 \text{ ms}$  (trait continu fin) et  $\tau = 3 \text{ ms}$  (trait pointillé fin).

Nous observons alors les deux effets suivants (figure 3-16). D'une part, les oscillations de relaxation ont une amplitude d'autant plus grande que  $\tau$  est grand, et d'autre part, elles surviennent plus tôt pour les grandes valeurs de  $\tau$ . Ces deux constatations étaient naturellement prévisibles grâce aux équations donnant  $\delta N$  et  $\delta I$  (§3.4.1, p.98).

Vu le faible gain des matériaux laser que nous utilisons, nous sommes contraint de travailler avec des intensités proches du seuil de dommage du traitement de surface du matériau laser. Or, plus  $\tau$  est grand, plus l'intensité intracavité est susceptible d'atteindre des valeurs élevées en cas d'apparition d'oscillations de relaxation. Par exemple, l'amplitude du premier pic d'intensité est deux fois plus intense dans le cas où  $\tau = 3$  ms que dans celui où  $\tau = 1$  ms (figure 3-16). C'est pourquoi nous avons rencontré ce type de problème à de nombreuses reprises avec l'Yb: GdCOB ( $\tau \approx 2,4$  ms), et moins souvent avec l'Yb: SYS ( $\tau \approx 0,8$  ms).

Nous aborderons de nouveau ce problème par la suite (§3.6.2, p.112), mais cette fois-ci d'un point de vue expérimental.

# 3.5 Mise en œuvre expérimentale de l'amplification à dérive de fréquence

# 3.5.1 Vue globale de l'amplification à dérive de fréquence



Figure 3-17 – Principe du montage expérimental complet de la chaîne laser femtoseconde basée sur le cristal d'Yb: SYS. La répartition des éléments sur ce schéma s'inspire de leurs positions respectives dans le montage expérimental réel.

Le principe de l'amplification à dérive de fréquence et les différents types de montages compensant ou ajoutant de la dispersion dans une chaîne femtoseconde ont été présentés au §1.4 (p.33). Nous allons maintenant aborder plus en détails les éléments de ce type que comprend notre chaîne laser. L'oscillateur a été présenté dans le chapitre précédent, et l'amplificateur sera décrit dans la suite du présent chapitre. Dans ce paragraphe, nous allons donc simplement les assimiler à des boîtes noires. En revanche, nous allons examiner de plus près l'étireur et le compresseur, et leur intégration au sein de la chaîne.

La totalité de la chaîne laser se présente de la manière suivante (figure 3-17). Les impulsions femtoseconde issues de l'oscillateur (1) sont d'abord recombinées spatialement par un système de deux prismes (2), afin de compenser la dispersion due au système symétrique à prismes situé à l'intérieur de la cavité de l'oscillateur. Ensuite, on a disposé un système afocal de deux lentilles permettant de limiter la divergence du faisceau due à la grande distance (plus de 4 m) séparant l'oscillateur de l'étireur (3) (figure 3-18, p.107). Après ce dernier, les impulsions ont désormais une durée de l'ordre de 300 ps, et sont envoyées dans un isolateur (4) constitué respectivement d'un polariseur traité, d'une lame demi-onde, et d'un rotateur de Faraday (le tout étant optimisé pour 1064 nm). L'ouverture du rotateur de Faraday étant petite ( $\sim 2$  mm), le faisceau laser est spatialement remis en forme avant et après l'isolateur. La polarisation des impulsions était jusqu'alors horizontale (dès la sortie de l'oscillateur, ce qui permettait de profiter de

l'efficacité maximale du réseau de l'étireur), elle est maintenant tournée de 90° pour permettre une injection dans l'amplificateur (5) par réflexion sur le polariseur situé à l'intérieur de la cavité de ce dernier.



Figure 3-18 – Photographie du compresseur (à gauche), du transport du faisceau vers le compresseur (au milieu), et de l'isolateur (à droite). Le point de vue correspond à celui indiqué dans la figure 3-17.

Après amplification, les impulsions éjectées de l'amplificateur sont redirigées vers l'isolateur (4), mais dans le sens inverse. La polarisation des impulsions amplifiées est alors globalement inchangée car la lame demi-onde compense la rotation de 45° introduite par le rotateur de Faraday : elle reste donc verticale. Le polariseur va donc cette fois-ci réfléchir les impulsions en direction du compresseur (6), avant lequel est placée une lame demi-onde, qui est indispensable car les réseaux de diffraction de ce dernier sont optimisés pour une polarisation horizontale (figure 3-18). Enfin, après avoir été compressées, les impulsions amplifiées sont envoyées dans un autocorrélateur pour mesurer leur durée.

# 3.5.2 Étireur d'impulsions

L'étireur d'impulsions a été réalisé en collaboration avec le *Laboratoire d'Optique Appliquée*. Il s'agit d'un étireur de type Öffner<sup>64</sup> (figure 3-19). La transmission de l'ensemble du montage expérimental de l'étireur d'impulsions s'élève à environ 50% dans le meilleur des cas : les pertes sont principalement dues à l'efficacité de diffraction du réseau, mais sont aussi liées à la divergence du faisceau incident (la pupille du système étant relativement petite). Le réseau holographique (revêtement en or, 1740 traits/mm), le miroir primaire concave (de rayon de courbure égal à 1000mm), et le miroir secondaire convexe (de rayon de courbure égal à 500mm) du télescope ont des qualités de surface respectives meilleures que  $\lambda/10$ ,  $\lambda/40$ , et  $\lambda/7$ .



Figure 3-19 –  $\hat{A}$  gauche, photographie du montage expérimental de l'étireur d'impulsions de type Öffner.  $\hat{A}$  droite, vue schématique.

L'injection dans l'étireur s'effectue au moyen de deux miroirs indiqués sur la figure 3-19. Ce réglage est assez critique (car les distances parcourues dans l'étireur sont grandes et accentuent donc le moindre écart angulaire), et permet de « centrer » l'étireur sur une longueur d'onde  $\lambda_{étireur}$  en positionnant cette dernière au centre du miroir primaire. En première approximation (si nous négligeons les dispersions d'ordres supérieurs à deux), la loi de dispersion appliquée aux impulsions injectées est symétrique par rapport à  $\lambda_{étireur}$ . Autrement dit, l'étireur introduit un déphasage des composantes spectrales des impulsions de manière symétrique de part et d'autre de  $\lambda_{étireur}$ . Cet alignement doit satisfaire l'égalité  $\lambda_{étireur} = \lambda_{sortie}$  où  $\lambda_{sortie}$  est la longueur d'onde centrale des impulsions amplifiées. Dans la mesure où tout réglage de l'étireur impose une configuration symétrique au compresseur, il est important que ce réglage soit correctement réalisé. En effet, pour un réglage donné de l'étireur, si le compresseur est optimisé de sorte que les impulsions en sortie aient la plus courte durée possible, sa longueur d'onde centrale coïncidera
forcément avec  $\lambda_{elineur}$ . Dans l'hypothèse où le spectre des impulsions amplifiées est également centré à cette longueur d'onde, le réglage de l'ensemble de l'étage d'amplification à dérive de fréquence sera optimal.

Le réseau de diffraction étant blazé (pour 1060 nm), l'angle d'incidence idéal correspond à une utilisation en montage de Littrow. Le principe de l'étireur nécessite néanmoins que le faisceau diffracté ne soit pas confondu avec le faisceau incident. Pour éviter une perte importante en efficacité de diffraction, l'angle d'incidence est choisi assez proche de l'angle de blaze : i=75°. L'angle de diffraction est donc assez voisin :  $\theta_d \approx 61,46^\circ$ , ce qui correspond à une déviation D $\approx 13,54^\circ$  (figure 3-18). Le facteur d'étirement (§1.4.3, p.37) est  $L = 2(l_e - f) = 200mm$ . Pour une durée d'impulsion en entrée  $\Delta t_{entrée} \approx 100 \, fs$ , cela conduit à une dispersion d'ordre deux  $\varphi'' = 1,1.10^7 \, fs^2$  et une durée en sortie  $\Delta t_{sortie} \approx 300 \, ps$ .

## 3.5.3 Compresseur d'impulsions



Figure 3-20 – Photographie (en haut) et schéma (en bas) du compresseur à deux réseaux utilisé en fin de chaîne laser. Les trajets pendant lesquels les longueurs d'onde sont spatialement séparées s'effectuent à deux hauteurs différentes grâce au dièdre, ce qui n'apparaît pas sur le schéma car il s'agit d'une vue de dessus.

Le compresseur d'impulsions est ici un montage classique à deux réseaux parallèles (figure 3-20). Ces derniers ont des caractéristiques identiques à celles du réseau de l'étireur, et la transmission globale du montage est de 57%. Le montage doit compenser la dispersion du deuxième ordre introduite par l'étireur (et celles du deuxième et du troisième ordre dues à l'amplificateur), par conséquent il est géométriquement symétrique par rapport à ce dernier. L'angle d'incidence sur le premier réseau est donc identique à celui de l'étireur : i=75°. La distance entre les réseaux correspond au facteur d'étirement :  $l_c = 200mm$ .

En réalité, ces valeurs doivent être modifiées pour tenir compte de la dispersion du deuxième ordre due aux différents matériaux traversés par les impulsions au cours de l'amplification. Pour déterminer les ajustements à effectuer, on évalue les dispersions introduites par l'épaisseur de chaque matériau traversé au cours de l'amplification. Le calcul nous montre que les modifications à apporter à l'angle d'incidence et à la séparation des réseaux sont minimes (variation de 0,05° sur l'angle d'incidence et de 0,03 mm sur la distance entre les réseaux). Cela signifie que cette compensation de la dispersion due à l'amplificateur est automatiquement prise en compte lors de l'alignement du compresseur. La principale difficulté du réglage du compresseur réside dans l'orientation des deux réseaux, de sorte qu'à la fois leurs plans respectifs et leurs traits soient parfaitement parallèles. Cette opération est toutefois réalisable au terme de quelques étapes de réglages effectuées soigneusement. Le parallélisme étant réglé, un ajustement sur le train d'impulsions issu de l'amplificateur permettra d'affiner le réglage de l'angle d'incidence sur le premier réseau en tournant simultanément les deux réseaux sur eux-mêmes (en pratique il s'agit de tourner les réseaux de sorte que la courbe d'autocorrélation soit la plus étroite possible).

## 3.5.4 Caractérisation de l'étireur et du compresseur

Avant d'introduire l'amplificateur régénératif entre l'étireur et le compresseur d'impulsions, il est indispensable de vérifier expérimentalement le bon fonctionnement de ces éléments. Pour y parvenir, nous injectons les impulsions issues de l'oscillateur dans l'étireur, dont nous redirigeons la sortie directement vers le compresseur, en plaçant un miroir en autocollimation à l'entrée de l'amplificateur. Ici nous utilisons les impulsions produites par un oscillateur Yb: BOYS réalisé dans le cadre de la présente thèse, dont le développement est antérieur à celui de l'oscillateur Yb: SYS (en cours de développement au moment de ces expérimentations). Idéalement, nous devrions obtenir d'une part, une durée  $\Delta t_{étireur-compresseur}$  des impulsions étirées puis compressées identique à la durée  $\Delta t_{oscillateur}$  des impulsions directement issues de l'oscillateur, et, d'autre part, le spectre des impulsions devrait être inchangé au cours de leur propagation dans ces différents montages. Néanmoins, l'étireur introduit des déformations du front d'onde qui se traduisent dans le cas d'impulsions brèves par des décalages temporels significatifs affectant la phase spectrale. Ces déformations sont dues à des défauts de surface relativement importants concernant le miroir

primaire ( $\lambda/10$ ) et le réseau de diffraction ( $\lambda/7$ ). Autrement dit, nous mesurons une durée légèrement supérieure après le système de dérive de fréquence (figure 3-21) :

$$\Delta t_{\acute{e}tireur-compresseur} = \rho \Delta t_{oscillateur} \text{ avec } \begin{cases} \Delta t_{oscillateur} \approx 130 f \\ \Delta t_{\acute{e}tireur-compresseur} \approx 160 f s \\ \rho \approx 1,23 \end{cases}$$

En revanche, l'amplitude spectrale n'est que très peu affectée par l'ensemble de la chaîne, sans amplificateur (figure 3-22). Ces vérifications expérimentales ont été effectuées à l'aide d'un oscillateur Yb: BOYS dont le spectre était centré à 1063 nm avec une largeur à mi-hauteur de 10 nm.<sup>21</sup>



Figure 3-21 – Autocorrélation des impulsions issues de l'oscillateur Yb: BOYS (trait continu), et des mêmes impulsions étirées puis compressées (trait pointillé).



Figure 3-22 – Spectre des impulsions après l'oscillateur (trait rouge), après l'étireur (trait vert) et après le compresseur (trait bleu).

## 3.6 Résultats expérimentaux de l'amplificateur régénératif Yb: SYS

## 3.6.1 Matériaux laser envisagés pour l'amplificateur régénératif

Afin de valider les objectifs de cette thèse présentés de manière détaillée dans l'introduction générale, nous avons réalisé plusieurs amplificateurs (*un* amplificateur sera associé à *un* cristal). Certains n'ont pas dépassé le stade du régime continu (Yb: YSO, Yb: BOYS et Yb: CaBOYS), d'autres se sont arrêtés au régime libre (Yb: GdCOB), et seulement deux d'entre-eux ont atteint le régime injecté (Yb: SYS et Yb: SYS || YAG, basés sur le même matériau laser). Les matériaux laser utilisés sont des cristaux nouveaux, ce qui signifie que leur comportement au sein d'amplificateurs n'a jamais été étudié, et que leurs propriétés générales sont moins bien connues que celles de cristaux classiques (pour plus de détails sur les cristaux évoqués dans ce paragraphe, nous renvoyons le lecteur au §1.5.2, p.39).

### Borates

Chronologiquement, nous avons commencé par étudier l'Yb: GdCOB, avec lequel nous avons rencontré des problèmes de seuil de dommage (§3.6.2). En parallèle, nous avons testé des échantillons d'Yb: BOYS et d'Yb: CaBOYS (version améliorée du BOYS, présentant de meilleures propriétés thermiques) qui se sont avérés inadaptés aux configurations de pompage dont nous disposions. Leur spectre d'émission particulièrement régulier et large était pourtant très intéressant pour la production et l'amplification d'impulsions brèves. Mais ils présentaient un gain anormalement faible, apparemment dû aux paramètres non encore maîtrisés de leur croissance cristalline, qui est un problème caractéristique des cristaux récemment découverts. Nous n'avons donc pas donné suite au cas de l'Yb: BOYS qui présentait pourtant des propriétés très intéressantes.



Figure 3-23 – Simulation de l'évolution du taux d'inversion saturé moyen dans le cas de cristaux d'Yb: SYS de différentes longueurs.



Figure 3-24 – Gain petit signal (calculé à partir de la section efficace de gain) dans le cas de l'Yb: SYS, pour des valeurs du taux d'inversion saturé moyen de 4 à 12% par pas de 2% (courbes en trait continu). La longueur d'onde correspondant au gain maximal se décale quand le taux d'inversion augmente (trait pointillé).

## Silicates

Quelques tests en régime continu sur l'Yb: YSO ont montré qu'il disposait d'un gain plus important que l'Yb: GdCOB, ce qui était un bon point compte tenu des problèmes de seuil de dommage. Cela aurait permis en effet de mieux séparer le seuil de dommage du seuil d'oscillation laser. Mais son spectre d'émission irrégulier n'en faisait pas un candidat idéal pour l'amplification d'impulsions brèves. C'est alors que nous avons commencé à tester un cristal encore plus récent : l'Yb: SYS, après un essai concluant en tant que matériau laser d'un oscillateur femtoseconde (voir chapitre 2). Ayant un gain plus grand que l'Yb: GdCOB et un spectre beaucoup plus régulier que l'Yb: YSO, nous avons intégré ce cristal dans un amplificateur régénératif avec succès. Cet échantillon était un peu long (5 mm), ce qui a pour conséquence de diminuer la valeur moyenne du taux d'inversion saturé (figure 3-23), et donc de diminuer la largeur spectrale du gain petit signal. En effet, une diminution du taux d'inversion saturé entraîne une augmentation de la longueur d'onde centrale et une diminution de la largeur à mi-hauteur du gain spectral (figure 3-24). Pour finir, nous avons testé un cristal composite d'Yb: SYS || YAG : il s'agit de la soudure par diffusion d'un cristal d'Yb: SYS et d'un cristal de YAG non dopé.<sup>32</sup> Le premier est le matériau laser, et le second a une conductivité thermique plus grande et permet d'évacuer la chaleur plus rapidement que si l'interface était

simplement de l'air, qui est un très mauvais conducteur thermique. Outre ces qualités de gestion de la thermique, cet échantillon présente l'avantage de comporter un matériau laser long de seulement 1,5 mm, ce qui conduit à un taux d'inversion maximal moyen théorique de 10,6%, au lieu de 6,5% pour le cristal d'Yb: SYS de 5 mm (figure 3-23). Nous ne présenterons les résultats concernant l'amplificateur régénératif Yb: SYS ||YAG qu'au §3.7.1, car son fonctionnement en régime continu, libre et injecté est fortement similaire à celui de son homologue basé sur l'Yb: SYS.

## 3.6.2 Seuil de dommage en régime impulsionnel

Le problème expérimental le plus délicat et le plus récurrent de cette thèse est sans doute celui du seuil de dommage, qui est rencontré aussi bien en régime libre qu'en régime injecté. Etant donné que les cristaux utilisés présentent un gain petit signal assez faible, il est naturel de réaliser une cavité dont le mode propre a une petite section. En effet, l'énergie stockée dans le milieu à gain ne sera efficacement extraite que si la fluence du signal est proche de la fluence de saturation du milieu. À énergie fixe, il suffit alors de diminuer la taille du faisceau pour augmenter la fluence. C'est alors que se pose le problème du seuil de dommage du matériau, et plus précisément du traitement de surface du cristal. Si la fluence dépasse ce seuil, des piqûres vont apparaîtrent sur la surface du cristal. Ces dernières se produisent soit lorsque l'on augmente brutalement la fluence intracavité (en diminuant brutalement des pertes), soit lorsqu'on agit sur un réglage (miroir, déplacement du cristal) qui produit une oscillation de relaxation dans le laser : c'est ce pic brutal de fluence qui détériore la surface du cristal en la brûlant localement. Le résultat est une surface localement opaque, donc des pertes importantes pour le faisceau de cavité, ce qui se traduit immédiatement par une perte de l'effet laser. Il est alors nécessaire de déplacer le cristal transversalement pour réussir à obtenir de nouveau l'effet laser.

Le problème du seuil de dommage est particulièrement gênant dans le cas des lasers ytterbium à cause du long temps de fluorescence  $\tau$  du matériau laser (de l'ordre de la milliseconde). Plus  $\tau$  est grand, plus la fluence stockée dans le milieu amplificateur est grande, et par conséquent plus la fluence des impulsions amplifiées est grande (pour un taux de répétition constant). De plus, les cristaux étudiés ici sont caractérisés par des sections efficaces d'émission et d'absorption relativement faibles, ce qui signifie que leur fluence de saturation est relativement élevée, donc plus difficile à atteindre que pour d'autres matériaux laser, et proche du seuil de dommage. Autrement dit, les fluences intracavités mises en jeu doivent être suffisamment élevées pour permettre d'extraire l'énergie stockée dans le cristal. Le point de fonctionnement d'un amplificateur ytterbium est donc relativement proche de son seuil de dommage. Par ailleurs, puisqu'il s'agit ici de nouveaux cristaux, le traitement anti-reflet n'est pas encore totalement maîtrisé, et l'état de surface n'est pas un paramètre bien connu, ce qui explique pourquoi ils peuvent être endommagés plus facilement que d'autres cristaux.

En pratique, ce problème est difficilement maîtrisable. Pour s'en affranchir, il faut diminuer la fluence intracavité en augmentant la taille des faisceaux. Néanmoins, un tel changement va avoir des répercutions importante sur le gain petit signal. Ce dernier revu à la baisse, c'est le temps de création qui va alors être trop grand, et le rétrécissement spectral par le gain peut devenir rapidement intolérable. Un compromis est donc nécessaire pour trouver une taille de faisceau qui garantisse à la fois une fluence extraite en dessous du seuil de dommage, et un gain raisonnable. Autrement dit, nous devons être le plus proche possible du seuil de dommage. C'est cet état de fait qui a conduit à de nombreux endommagements du cristal d'Yb: GdCOB (figure 3-25), qui a été utilisé en début de thèse pour la réalisation d'un amplificateur régénératif.\* Compte tenu de cette expérience, nous avons pris les précautions nécessaires avec les cristaux étudiés par la suite.



Figure 3-25 – Piqûres sur un échantillon d'Yb: GdCOB observées au microscope, sur la face du cristal côté pompe (a) et côté opposé à la pompe (b). Chaque tache correspond à l'impact d'un faisceau laser intracavité (diamètre compris entre 80 et 150 μm).

Dans les conditions exactes de l'expérience, nous avons estimé les seuils de dommage en régime libre et en régime injecté comme étant respectivement supérieurs à 0,2 J/cm<sup>2</sup> et 0,3 J/cm<sup>2</sup>. En théorie, le seuil de dommage augmente avec la racine carrée de la durée d'impulsion. Ainsi devrait-il être supérieur en régime libre (régime submicroseconde : durée d'impulsion d'environ 200 ns) qu'en régime injecté (régime sub-nanoseconde : durée d'impulsion d'environ 200 ns) qu'en régime injecté (régime sub-nanoseconde : durée d'impulsion d'environ 400 ps). Cette entorse à la théorie s'explique simplement par le fait que ces mesures expérimentales tiennent compte de l'ensemble des effets indésirables impliqués, comme les oscillations de relaxation (dont la durée est inférieure à celle de l'impulsion en régime libre).

## 3.6.3 Cavité de base de l'amplificateur régénératif Yb :SYS en régime continu

Au cours de cette thèse, de nombreux schémas de cavité laser ont été envisagés pour développer un amplificateur régénératif. L'expérience en a validé certains, et en a exclu d'autres. Entre autres exemples, les cavités impliquant un

<sup>\*</sup> Le cristal d'Yb: GdCOB a un temps de fluorescence assez long, ce qui favorise le stockage d'énergie, et entraîne une tendance à produire des oscillations de relaxation d'amplitude plus élevée que celles rencontrées avec d'autres matériaux laser, comme décrit au §3.4.3, p.103.

miroir dichroïque plan positionné très près du matériau laser, ont conduit à l'observation de fluctuations de la puissance intracavité, suivant une courbe régulière de période égale à une quarantaine de secondes. Après identification du problème, qui était ici l'échauffement du traitement du miroir dichroïque sous l'effet de la focalisation d'un faisceau de pompe de 3,5 W, nous avons décidé d'exclure ce type de cavité (une investigation plus détaillée de ce problème original et intéressant est présentée en Annexe II, p.149). Un des autres critères de choix a déjà été évoqué (§3.2.2, p.84) : il s'agit de construire une cavité suffisamment longue pour garantir une bonne injection des impulsions à amplifier. D'autre part, pour que le régime d'oscillation laser soit sans risque d'endommagement pour le matériau laser, nous devons choisir une taille de faisceau particulièrement grande au niveau de ce dernier (environ 250 µm de diamètre), tout en ayant un gain suffisant. Enfin, la cavité doit disposer d'un bras collimaté, dans lequel le faisceau ne doit pas avoir une taille sensiblement inférieure au millimètre (pour ne pas dépasser le seuil de dommage du cristal électro-optique de la cellule de Pockels), et suffisamment long pour que, compte tenu du faible angle le séparant du bras aligné avec le banc de pompe, il y ait une place suffisante pour y introduire polariseur, lame quart d'onde et cellule de Pockels. La combinaison de ces deux dernières contraintes (grande taille de faisceau et bras collimaté très long) réduit considérablement les choix possibles. En effet, il est plus commode de réaliser une cavité longue avec des « petits » faisceaux (d'un diamètre typique de 80 à 100 µm), qu'avec des faisceaux ayant un diamètre de 250 µm au niveau du cristal.



Figure 3-26 – Transitoires de la haute tension délivrée par l'alimentation de la cellule de Pockels. Pour chaque graphique, la haute tension (mesurée grâce à une sonde qui délivre un signal basse tension proportionnel) est tracée en fonction du temps. En haut, nous observons les deux marches de tensions  $U_1$  et  $U_2$ . En bas à gauche, nous mesurons le temps de montée de 10% à 90% de la première marche et, en bas à droite, celui de la seconde marche de tension.

Pour déterminer la longueur minimale de la cavité laser que nous devons réaliser, nous avons mesuré les transitoires des hautes tensions de la cellule de Pockels, grâce au signal électrique issu d'une sonde haute tension placée au niveau de l'anode du cristal électro-optique. L'alimentation de la cellule de Pockels délivre trois tensions différentes alternativement dans le temps : 0 kV,  $U_1$  et  $U_2$ . Les hautes tensions  $U_1$  et  $U_2$  sont respectivement fixées à environ 4kV et 8kV, lorsque la cellule de Pockels est placée dans la cavité de l'amplificateur régénératif. Ici, s'agissant de mesures préliminaires, les hautes tensions ne sont pas réglées à leurs valeurs optimales. Les temps de montée mesurés sont supérieurs à ceux donnés par le constructeur : ils sont de *9,2 ns* pour le transitoire de 0 à  $U_1$ , et de *4,1 ns* pour le transitoire de  $U_1$  à  $U_2$  (figure 3-26). Le temps de montée est meilleur pour la seconde marche de tension que pour la première, ce qui provient clairement du fait que la seconde marche est moins « haute » que la première. Par conséquent, suite à ces mesures préliminaires (effectuées ici avec des hautes tensions non réglées à leurs valeurs définitives qui seront approximativement 4 kV et 8 kV), nous devons nous assurer que la longueur de la cavité tiendra compte du temps de montée de la cellule de Pockels qui est d'environ 4 ns.



Figure 3-27 - Schéma de la cavité de l'amplificateur régénératif Yb: SYS en régime continu.

Afin de satisfaire toutes les conditions énumérées précédemment, nous avons construit une cavité d'une longueur totale de 1,37 m (figure 3-27), soit un temps d'aller-retour d'environ 9,1 ns. Les caractéristiques des éléments de la cavité sont indiquées dans le tableau 3-4. L'aller-retour de  $M_3$  à l'entrée de la cellule de Pockels correspond à une durée de 7,8 ns, ce qui laisse le temps à la cellule de Pockels de basculer d'un état à l'autre. Le bras collimaté s'étend de M<sub>4</sub> à M<sub>5</sub> sur une longueur de 70 cm. Le diamètre du mode propre de la cavité est de 850 µm au niveau de M<sub>5</sub>, et de 270 µm au niveau du cristal d'Yb: SYS (valeurs calculées par un algorithme de calcul de matrices ABCD). De plus, le mode propre de la cavité ne diverge que très peu au niveau de la cellule de Pockels : le diamètre du faisceau ne varie que de 3% entre l'entrée et la sortie de la cellule de Pockels, ce qui est important pour garantir un bon fonctionnement de cette dernière.

Pour caractériser la cavité en régime continu, le miroir  $M_5$  est temporairement remplacé par un coupleur de sortie présentant des pertes de 10%. Les performances obtenues en terme de puissances de sortie sont résumées dans le tableau 3-5, et la courbe d'efficacité du laser lorsque tous les éléments relatifs à la polarisation ont été introduits dans la cavité est représentée sur la figure 3-29.

Notation	Désignation	Caractéristiques
	Diode laser de pompe	4W sur 1µm x 100µm à 979 nm
Yb: SYS	Matériau laser	Yb: SYS dopé à 6% et long de 5 mm
$M_1$	Miroir dichroïque	Plan, HR 1047nm, HT 980nm
$M_2$	Miroir diélectrique	Concave (R <sub>2</sub> =100mm), HR 1064nm
$M_4$	Miroir diélectrique	Concave (R <sub>3</sub> =400mm), HR 1064nm
M <sub>3</sub> et M <sub>5</sub>	Miroir diélectrique	Plan, HR 1064nm
$P_2$	Lame polarisante	Incidence de 71°
Pockels	Cellule de Pockels	KD*P, 20mm de long
$\lambda/4$	Lame quart d'onde	Ordre zéro à 1064 nm

9	Polariseur	λ/4	Pockels	Puissance de sortie
				900 mW
	•			860 mW
	•	•		800  mW
	•	٠	•	620 mW

Tableau 3-5 – Puissance de sortie de l'amplificateur régénératif Yb: SYS en régime continu, mesurée après le miroir  $M_5$  qui est temporairement remplacé par un coupleur de sortie de 10% (un « • » indique la présence de l'élément optique concerné dans la cavité).

Tableau 3-4 – Caractéristiques des éléments optiques de la cavité.

Le spectre de l'amplificateur en régime continu (sans cellule de Pockels) est centré à 1070 nm, et présente une largeur à mi-hauteur égale à 0,5 nm (figure 3-28). Comme l'illustre bien le tableau 3-5, c'est la cellule de Pockels qui introduit le plus de pertes (estimées à environ 2% par passage, soit 4% par aller-retour) lorsque nous souhaitons passer du régime continu au régime libre, en introduisant les éléments nécessaires au déclenchement du laser. Au cours de cet alignement intermédiaire, la cellule de Pockels est alignée sur ses axes neutres et n'est pas alimentée, et un des axes neutres de la lame quart d'onde est parallèle à la polarisation du laser (ce ne sera bien sûr plus le cas en régime libre).



Figure 3-28 – Spectre de l'amplificateur régénératif en régime continu (centré à 1070 nm, et de largeur à mi-hauteur égale à 0,5 nm), sans cellule de Pockels.



Figure 3-29 – Courbe d'efficacité de l'amplificateur régénératif en régime continu avec les différents éléments dans la cavité.

## 3.6.4 Amplificateur régénératif Yb: SYS en régime libre

Pour passer du régime continu au régime libre (figure 3-30), l'alimentation de la cellule de Pockels est mise en marche (et  $M_5$  est définitivement un miroir HR 1064 nm). Pour éviter une surchauffe très gênante pour la stabilité du régime, l'enceinte de la cellule de Pockels est refroidie par une circulation d'eau (qui fait partie du circuit d'eau

refroidissant le cristal et la diode laser de pompe). Il est également nécessaire de tourner de 45° la lame quart d'onde pour faire en sorte que le système {Pockels, $\lambda/4$ } soit alternativement équivalent à une lame quart d'onde et à une lame demi-onde au cours du temps. Un ajustement sur cet angle de rotation et sur l'angle correspondant à la rotation du cristal électro-optique dans le même plan, est nécessaire afin d'optimiser le réglage. Notons que les valeurs de haute tension délivrées par l'alimentation de la cellule de Pockels ont été réglées antérieurement dans un montage spécifique, de sorte que l'application des trois tensions (0, 4kV, 8kV) corresponde bien à un déphasage correct (0,  $\pi/2$ ,  $\pi$ ).



Figure 3-30 – Schéma de la cavité de l'amplificateur régénératif Yb: SYS en régime libre.



Figure 3-31 – Impulsion de « Q-switch » de l'amplificateur régénératif Yb: SYS en régime libre : courbe expérimentale (trait continu) et ajustement théorique (trait pointillé) grâce au modèle de Frantz-Nodvik monochromatique.

Sans injection, ni éjection, l'amplificateur régénératif Yb: SYS produit des impulsions de 380 ns de durée avec un temps de création d'environ 1,6  $\mu$ s (figure 3-31) correspondant à environ 175 allers-retours dans la cavité. L'ajustement des données expérimentales au moyen du modèle de Frantz-Nodvik monochromatique (§3.3.2, p.89) permet de déduire que le gain petit signal est de 1,11±0,01 et que les pertes par passage sont de 4,76±0,01% (soit environ 10% de pertes par aller-retour). En éjectant un peu au-delà du temps de création, on mesure une puissance moyenne de 35 mW, à une cadence de 316 Hz. Cette cadence est imposée par l'alimentation de la cellule de Pockels : elle divise par 310 la fréquence de base, qui résulte de la synchronisation avec un générateur de radiofréquences externe réglé à 98 MHz. Chaque impulsion de « Q-switch » a donc une énergie de 110  $\mu$ J. Le spectre de l'amplificateur en régime libre est centré à 1066,4 nm. La longueur d'onde centrale émise par l'amplificateur en régime libre est centré à 1066,4 nm. La longueur d'onde centrale émise par l'amplificateur en régime libre est centré qu'en régime continu. Cela s'explique par le fait que les pertes intracavité sont plus importantes en régime libre qu'en régime continu (à cause de la présence de la cellule de Pockels à l'intérieur de la cavité de l'amplificateur). La dérive observée de la longueur d'onde d'émission est une conséquence de ces pertes supplémentaires (propriété caractéristique des lasers quasi-trois niveaux, §1.5.4, p.46).

## 3.6.5 Caractérisation de l'amplificateur régénératif Yb: SYS en régime injecté

Nous présentons ici les remarques générales concernant les expériences décrites dans les deux paragraphes qui suivent : l'amplificateur régénératif Yb: SYS injecté par un oscillateur *Yb: BOYS* (§3.6.6, p.120), et l'amplificateur régénératif Yb: SYS injecté par l'oscillateur *Yb: SYS* (§3.6.7, p.122).

En régime injecté, le temps de création de l'amplificateur régénératif est sensiblement amélioré par rapport au régime libre et atteint des valeurs typiques avoisinant la microseconde. L'injection dans l'amplificateur est réalisée grâce à deux miroirs à 45°, et la taille du faisceau injecté est ajustée à celle du mode propre de la cavité de l'amplificateur par un système afocal. Une faible variation de la taille du faisceau injecté n'a visiblement que peu de conséquences sur l'amplification dans le cas de notre montage. Par contre, l'angle d'injection est assez critique, mais un réglage soigné conduit facilement à une optimisation du régime injecté (figure 3-32). À cette étape, peu de paramètres sont modifiables pour améliorer l'amplification. Il subsiste néanmoins la rotation de la cellule de Pockels dans un plan perpendiculaire à l'axe optique, réglage qui permet d'affiner la qualité de l'éjection, et de diminuer le temps de création. Dans notre cas, l'orientation du polariseur n'a pas un grand impact sur le spectre amplifié (largeur ou longueur d'onde centrale).



Figure 3-32 – Optimisation de l'injection dans l'amplificateur régénératif : du régime libre (sans injection) au régime injecté partiellement puis complètement optimisé. Le « régime injecté partiellement optimisé » correspond à une étape de réglage intermédiaire entre le régime non optimisé et le régime optimisé. Les données expérimentales sont relatives à l'amplificateur régénératif Yb: SYS injecté par l'oscillateur Yb: SYS.

Une fois l'injection optimisée, nous mesurons la durée finale (après compression) des impulsions amplifiées par autocorrélation. Le spectre est également mesuré, ce qui permet de déduire finalement une valeur du produit tempsfréquence. Chacune de ces mesures doit être effectuée avec un certain nombre de précautions, que nous allons à présent détailler.

#### Caractérisation spectrale

Tout d'abord, la mesure du spectre doit tenir compte de la nature exacte du faisceau analysé par le spectromètre. En effet, ce dernier est le résultat de la superposition du spectre des impulsions amplifiées, et du spectre des impulsions non amplifiées (celles qui ont été rejetées à l'entrée de l'amplificateur). Selon l'alignement, l'influence du second peut être importante sur le spectre observé. C'est pourquoi le spectre des impulsions amplifiées est obtenu par soustraction entre deux signaux donnés par le spectromètre. Le premier est obtenu sans intervenir sur le montage, et le second est mesuré en masquant le faisceau de pompe de l'amplificateur. Ainsi, la différence correspond vraiment à la partie amplifiée du train d'impulsions. Nous procédons d'ailleurs de la même manière pour mesurer l'énergie contenue par chaque impulsion amplifiée.

#### Caractérisation temporelle

À des cadences relativement élevées (supérieures au kilohertz), l'autocorrélateur multi-coups convient bien à la mesure de durée d'impulsions brèves. Cependant, pour des cadences intermédiaires comme celles auxquelles nous travaillons, c'est-à-dire de 300 Hz à 1kHz, la résolution temporelle de ce type de dispositif devient insuffisante pour des mesures effectuées en temps réel, car le nombre de points par courbe d'autocorrélation est proportionnel à la cadence.\* Cependant, en accumulant des données au cours du temps, nous pouvons reconstituer la courbe d'autocorrélation par traitement numérique. Cette astuce nous permet d'utiliser un seul et même autocorrélateur pour l'oscillateur (qui est à très haute cadence) et pour l'amplificateur (à cadence intermédiaire). Notons que pour de basses cadences (inférieures à la centaine de hertz), le recours à un autocorrélateur mono-coup devient indispensable, et permet alors d'effectuer des mesures en temps réel. Dans notre cas, la mesure de l'autocorrélation nécessite donc un traitement numérique du signal avant d'être interprétée. En effet, le signal d'autocorrélation mesuré est constitué d'un certain nombre de points de mesure, obtenus pendant la durée d'un aller-retour du coin de cube mobile de l'autocorrélateur. À une cadence élevée, comme celle de l'oscillateur (~100MHz), l'autocorrélateur que nous utilisons dispose de nombreux points pour construire la courbe d'autocorrélation, cette dernière est même suréchantillonée. Si nous travaillons à une cadence telle que le temps d'aller-retour du coin de cube soit seulement dix fois plus grand que la période du train d'impulsions, alors nous ne disposons que de dix points sur la courbe d'autocorrélation. Ici nous ne sommes pas très éloignés de ce cas défavorable, car le coin de cube vibre à une fréquence de 30 Hz, et nous obtenons les meilleures performances typiquement à 300 Hz. De plus, étant contraint de ralentir le mouvement du coin de cube de l'autocorrélateur, la mesure est suffisamment lente pour être perturbée par une instabilité de la puissance moyenne de l'amplificateur régénératif si minime soit-

<sup>\*</sup> Plus précisément, le nombre de points de la courbe d'autocorrélation est égal au rapport entre la cadence du train d'impulsions à caractériser, et la fréquence de vibration du coin de cube mobile (environ 30 Hz).

elle. Le résultat observé à l'écran d'un oscilloscope est donc une succession de pics dont l'amplitude correspond à l'enveloppe du signal recherché à laquelle s'ajoute une fluctuation aléatoire de faible amplitude. Une façon de mesurer néanmoins l'autocorrélation est d'effectuer une accumulation de points (et non une moyenne) avec un oscilloscope numérique. Par traitement numérique ultérieur (figure 3-33), nous retrouvons l'enveloppe de ce signal, qui correspond au signal d'autocorrélation réel, ce qui nous permet d'effectuer un ajustement théorique pour en déduire la durée des impulsions. Pour faciliter le traitement numérique, nous effectuerons de préférence une mesure à une cadence la plus élevée possible, même si nous nous écartons quelque peu des performances optimales. En particulier, à une cadence de 1kHz, le temps de création n'augmente que de 10% par rapport à 300Hz (d'après nos mesures), ce qui n'a pas une incidence catastrophique sur le spectre mesuré, mais le nombre de points de la courbe d'autocorrélation est triplé.



Figure 3-33 – Démonstration graphique du traitement numérique du signal d'autocorrélation. L'application de quatre filtres numériques permet de passer de l'acquisition à l'oscilloscope numérique (en haut, à gauche), au signal d'autocorrélation réel (en bas, à droite). Notons que la largeur à mi-hauteur de l'enveloppe du signal n'est pas affectée par le traitement.

## 3.6.6 Amplificateur régénératif Yb: SYS en régime injecté par un oscillateur Yb: BOYS

L'amplificateur régénératif tel qu'il est présenté au §3.6.4 a été réalisé avant la fin de la période de développement de l'oscillateur Yb: SYS. Pour le caractériser, nous avons dû commencer par injecter le train d'impulsions produit par un oscillateur Yb: BOYS développé dans le cadre de la présente thèse, et dont les performances sont résumées dans le tableau 3-6.

1	Grandeur	Mesure
	Cadence	110 MHz
	Energie par impulsion	1 nJ
	Durée des impulsions	110 fs
	Largeur spectrale	10 nm
	Longueur d'onde centrale	1061 nm

Tableau 3-6 - Performances de l'oscillateur Yb: BOYS.

La puissance moyenne de sortie de l'oscillateur est supérieure à 100 mW, et la puissance moyenne en sortie de l'étireur est d'environ 30 mW. En régime injecté, et à une cadence d'environ 350 Hz, le temps de création est optimisé à une valeur de 1,1  $\mu$ s dans un régime sûr, c'est-à-dire suffisamment éloigné du seuil de dommage pour que le matériau laser n'encoure aucun risque. Le temps de création peut descendre exceptionnellement jusqu'à 840 ns, mais le fonctionnement de l'amplificateur est alors très voisin du seuil de dommage. L'énergie des impulsions amplifiée atteint 140  $\mu$ J avant compression, soit 80  $\mu$ J en fin de chaîne. Dans des conditions exceptionnelles, nous avons obtenu 170  $\mu$ J avant compression et 100  $\mu$ J en fin de chaîne. Le spectre des impulsions amplifiées est large d'environ 3 nm et centré à 1066 nm, pour un spectre injecté de 10 nm centré à 1061 nm (figure 3-34). Les impulsions sont compressées jusqu'à une durée finale de 420 fs (figure 3-35). Les difficultés liées à la mesure de l'énergie, de la durée ou encore du spectre des impulsions amplifiées seront détaillées au paragraphe traitant de l'injection par un oscillateur Yb: SYS (§3.6.7).



Figure 3-34 – Spectre injecté (oscillateur Yb: BOYS, en trait pointillé) et spectre amplifié (trait continu).



Figure 3-35 – Autocorrélation (trait continu) et ajustement à une sécante hyperbolique correspondant à une durée de 420 fs (trait pointillé).

L'oscillateur étant basé sur un autre matériau laser que l'amplificateur régénératif, le désaccord en longueur d'onde des deux montages est – dans notre cas particulier – inévitable. Le fait d'accorder en longueur d'onde l'oscillateur Yb: BOYS et l'amplificateur Yb: SYS entraîne une perte de performances trop importante à la fois en énergie et en durée. Or, dans tous les cas, l'étireur doit être centré à la longueur d'onde  $\lambda_{sortie}$  des impulsions amplifiées pour permettre au compresseur de compenser correctement les dispersions d'ordre deux et trois. Par conséquent, ce désaccord entre oscillateur ( $\lambda_{entrie}$ ) et amplificateur ( $\lambda_{sortie}$ ) est problématique, dans la mesure où il implique un centrage de l'étireur à une longueur d'onde différente de celle de l'oscillateur. Ce réglage consiste à centrer la longueur d'onde  $\lambda_{sortie}$  du spectre de l'oscillateur étalé spatialement, sur le miroir primaire de l'étireur. Mais, le spectre de l'étireur étant centré sur  $\lambda_{entrée}$ , nous ne disposons d'aucune référence précise pour situer la longueur d'onde  $\lambda_{sortie}$  sur ce dernier lorsqu'il est étalé spatialement au niveau du miroir primaire, ce qui rend ce réglage imprécis (alors que dans le cas où  $\lambda_{sortie}$  est égale à  $\lambda_{entrée}$ , il suffit de centrer le spectre de l'oscillateur sur le miroir primaire). De plus, la précision du centrage de l'étireur influe de manière critique sur la durée des impulsions en fin de chaîne. C'est également pour cette raison que nous avons décidé d'injecter les impulsions produites par l'oscillateur Yb: SYS. Ces expérimentations ont néanmoins permis de résoudre des problèmes importants, tel que le dimensionnement de l'amplificateur tenant compte du seuil de dommage, et ainsi d'accélérer le développement ultérieur d'amplificateurs régénératifs basés sur l'Yb: SYS.

## 3.6.7 Amplificateur régénératif Yb: SYS en régime injecté par un oscillateur Yb: SYS

Reprenons le montage du §3.6.4, et injectons des impulsions étirées provenant de l'oscillateur Yb: SYS. Pour éviter les problèmes évoqués au §3.5.1, l'oscillateur, l'étireur et l'amplificateur sont centrés à la même longueur d'onde. Plus précisément, l'oscillateur est accordé à la longueur d'onde centrale de l'amplificateur qui est de 1066,4nm, et l'étireur est également centré à cette longueur d'onde. Le faisceau laser injecté dans l'amplificateur a une puissance moyenne d'environ 100mW. Les performances nominales de l'oscillateur femtoseconde Yb: SYS sont résumées dans le tableau 3-7. Les meilleures performances de l'amplificateur correspondent à un temps de création de 900 ns (soit une centaine d'allers-retours dans la cavité). Nous mesurons un spectre amplifié large de 3,4±0,1 nm, centré à 1066,4 nm, l'incertitude étant liée à une moyenne effectuée sur une dizaine d'acquisitions (figure 3-36). Le rétrécissement spectral par le gain est donc dramatiquement important dans notre amplificateur puisque nous perdons quasiment 70% de la largeur du spectre injecté.

9	Grandeur	Mesure
	Cadence	98 MHz
	Energie par impulsion	1 nJ
	Durée des impulsions	120 fs
	Largeur spectrale	10 nm
	Longueur d'onde centrale	1066 nm

Tableau 3-7 - Performances de l'oscillateur Yb: SYS.



Figure 3-36 – Spectre injecté (trait pointillé), et spectre amplifié (trait continu).

Nous obtenons dans le meilleur des cas (assez proche du seuil de dommage) des impulsions de 170  $\mu$ J avant compression, soit environ 100  $\mu$ J en fin de chaîne, à une cadence de 200 Hz, ce qui représente un gain total de 50 dB environ. À une cadence de 350 Hz, dans un régime sûr (c'est-à-dire dans un régime dans lequel la fluence intracavité est suffisamment éloignée du seuil de dommage), nous obtenons environ 80  $\mu$ J par impulsion après compression (et plus de 70  $\mu$ J à une cadence de 1 kHz).



Figure 3-37 - (a) Autocorrélation des impulsions amplifiées (trait continu) et ajustement à une sécante hyperbolique correspondant à une durée de 380 fs. (b) Représentation graphique de l'ajustement théorique du graphe de gauche (différence entre le carré de la courbe expériementale et le carré de la courbe théorique d'ajustement) : le minimum correspond au meilleur ajustement.

Globalement, par rapport à l'injection par un oscillateur Yb: BOYS, les performances en énergie sont équivalentes, mais comme nous l'avions prévu, la largeur spectrale des impulsions amplifiées augmente (d'environ 13%) : les impulsions amplifiées les plus courtes ont un spectre large de 3,4 nm centré à 1066,4 nm. Par ailleurs, la durée des impulsions est également améliorée par rapport au cas du paragraphe précédent : nous obtenons une durée d'environ 380 fs (figure 3-37), ce qui est associé à un produit temps-fréquence de 0,34 (le tableau 3-8 compare les résultats obtenus ici avec ceux du paragraphe précédent). L'autocorrélation de ces impulsions présente des « pieds » plus importants que l'ajustement théorique qui sont dus aux aberrations introduites à la fois par l'étireur et l'amplificateur. Ces bosses, constituées de valeurs supérieures à la courbe théorique situées aux deux extrémités de l'autocorrélation, portent le nom de *piédestaux*. Leur présence est synonyme de dispersion résiduelle.

Grandeur	Injection d'impulsions de l'oscillateur Yb: BOYS	Injection d'impulsions de l'oscillateur Yb: SYS	
Cadence	350 Hz	350 Hz	
Energie par impulsion amplifiée	100 µJ	80 µJ	
Largeur spectrale injectée	10 nm	10 nm	
Largeur spectrale amplifiée	3,0 nm	3,4 nm	
Temps de création	1,1 µs	900 ns	
Durée minimale des impulsions	420 fs	380 fs (à 1 kHz)	

Tableau 3-8 – Comparaison des performances nominales de l'amplificateur régénératif Yb: SYS après compression, suivant l'oscillateur utilisé pour l'injection.

Afin de déterminer le point de fonctionnement optimal du système, il est intéressant d'étudier les performances de l'amplificateur en fonction de la cadence (imposée par l'alimentation de la cellule de Pockels). Ces performances sont caractérisées principalement par deux grandeurs : l'énergie par impulsion en fin de chaîne, et le temps de création (figure 3-38). Ainsi, nous nous apercevons que le temps de création est stationnaire pour des valeurs de cadence situées en dessous de 550 Hz. En revanche, l'énergie ne cesse d'augmenter lorsque l'on diminue la cadence, et ne se stabilise qu'en dessous de 200 Hz. Le temps de fluorescence de l'Yb: SYS est d'environ 0,7 ms, ce qui indiquerait une cadence optimale aux environs de 1,4 kHz, cadence à laquelle nous remarquons un plateau à 75% du maximum dans la courbe de l'énergie en fonction de la fréquence de répétition. La remontée de l'énergie à plus basse fréquence est probablement due à des effets thermiques. Quant à la durée des impulsions, elle augmente d'environ 400 fs à plus de 600 fs lorsque la cadence augmente de 1 kHz à 3 kHz. Pour des cadences inférieures, la mesure de la durée des impulsions nous donne une valeur constante, résultat conforté par le comportement du temps de création dans cette plage de fréquence.



Figure 3-38 – Étude des performances de l'amplificateur régénératif Yb: SYS en fonction de la cadence : temps de création (à gauche) et énergie par impulsion en fin de chaîne (à droite) en fonction de la cadence.

Plus le temps de création est grand, plus le rétrécissement spectral est important, allongeant ainsi la durée des impulsions. De la même façon, si nous décidons d'éjecter l'impulsion amplifiée à un instant choisi volontairement avant le temps de création, nous devrions assister à un élargissement du spectre amplifié. Etant donnée la résolution de notre spectromètre (0,1 nm), les variations de largeur spectrale en fonction de l'instant d'éjection ne sont pas mesurables. En revanche, nous sommes en mesure d'étudier un phénomène similaire, qui est le décalage spectral ayant lieu au cours de l'amplification. Ainsi, en augmentant l'instant d'injection de 30%, nous observons un décalage vers le bleu d'environ 1 nm (figure 3-39).

Le profil spatial du faisceau issu de la chaîne femtoseconde Yb: SYS est très proche de la limite de diffraction (figure 3-40). Pour optimiser l'injection, nous avons adapté la taille du faisceau injecté à celle du mode propre de la cavité de l'amplificateur. Or, le faisceau injecté présentait un léger astigmatisme que nous avons corrigé avec un afocal constitué de lentilles cylindriques. L'apparence allongée du faisceau issu du compresseur ne reflète donc pas le profil spatial du faisceau éjecté par l'amplificateur. Mais avant d'être compressé, ce dernier traverse le système de

remise en forme du faisceau en sens inverse, d'où un astigmatisme résiduel que nous pourrions compenser ultérieurement.



Figure 3-39 – Etude expérimentale du décalage spectral vers le bleu au cours de l'amplification.



Figure 3-40 – Profil spatial du faisceau laser issu de la chaîne femtoseconde Yb: SYS en champ lointain. Le faisceau est quasiment limité par diffraction, et légèrement astigmatique.

## 3.6.8 Conclusion : comparaison avec d'autres amplificateurs régénératifs ytterbium

Les résultats expérimentaux obtenus avec l'amplificateur régénératif Yb: SYS présenté au §3.6 sont encourageants : les durées d'impulsion obtenues (380 fs) sont les plus courtes produites par un amplificateur régénératif ytterbium pompé par diodes (et pour des puissances de pompe du même ordre de grandeur), et l'efficacité globale est meilleure que celle de ses principaux concurrents (dans la même gamme de durée d'impulsion : typiquement de 200 à 500 fs), comme le montre le tableau 3-9.

Matériau laser	Durée	Energie	Cadence	Longueur d'onde de pompe	Puissance totale de pompe	Efficacité optique-optique*	Référence
Yb: verre	200 fs	1 mJ	150 Hz	~ 975 nm	80 W	0,19 %	65
Yb: SYS	380 fs	70 µJ	1 kHz	~ 980 nm	4 W	1,75 %	Raybaut <i>et al.</i>
Yb: KYW	400 fs	40 µJ	1 kHz	~ 940 nm	3,2 W	1,25 %	66
Yb: KGW	420 fs	120 µJ	1 kHz	$\sim 980 \text{ nm}$	15 W	0,80 %	67
Yb: KYW	460 fs	65 µJ	1 kHz	$\sim 980~\rm{nm}$	$20 \mathrm{W}$	0,32 %	66

Tableau 3-9 - Comparaison des performances d'amplificateurs régénératifs ytterbium.

Avec des impulsions en fin de chaîne de durée inférieure à 400 fs, et d'énergie supérieure à 80  $\mu$ J, cet amplificateur régénératif a donc des performances uniques, d'autant que le pompage optique n'est réalisé qu'avec une diode laser d'une puissance de 4 W. Cette puissance de pompe apparaît modeste vis-à-vis d'autres réalisations ayant des performances comparables et nous conduit donc à souligner l'excellent rendement optique-optique de cet amplificateur, le meilleur de sa catégorie (1,75%).

<sup>\*</sup> Rapport entre puissance de pompe totale et puissance moyenne de sortie.

## 3.7 Atténuation et simulation du rétrécissement spectral par le gain

Comme nous l'avons rappelé à plusieurs reprises tout au long de ce mémoire, le point faible de l'amplificateur régénératif Yb: SYS provient du fait que le gain du matériau laser n'est pas très élevé, ce qui nécessite un grand nombre d'allers-retours pour extraire un maximum d'énergie stockée, entraînant ainsi un fort rétrécissement spectral par le gain. Nous pouvons caractériser le rétrécissement spectral par une grandeur appelée *« réduction spectrale »* et notée  $\chi$  que nous définissons arbitrairement de la manière suivante :

$$\chi = \frac{\Delta \lambda_{entrée} - \Delta \lambda_{sortie}}{\Delta \lambda_{entrée}} \quad ; \text{ avec dans notre situation : } 0 < \chi < 1.$$

L'utilisation de cette grandeur permet d'établir aisément des points de repères lors de la discussion des résultats expérimentaux. Ainsi, les deux cas (qui ne sont physiquement pas réalisables) correspondants aux valeurs extrêmes de  $\chi$  sont les suivants :

- un amplificateur régénératif dont le spectre de gain est infiniment large (rétrécissement spectral par le gain nul : Δλ<sub>entrée</sub> = Δλ<sub>sortie</sub>) est associé à une réduction spectrale nulle : χ = 0 %;
- et un amplificateur dont le spectre de gain a une largeur nulle (Δλ<sub>sortie</sub> = 0) est associé à une réduction spectrale maximale : χ = 100 %.

Dans le cas de l'amplificateur régénératif Yb: SYS, nous avons  $\Delta \lambda_{entrée} = 10 nm$  et  $\Delta \lambda_{sortie} = 3,4 nm$ , soit une réduction spectrale de 66 %.

Les expériences et les simulations numériques dont nous allons maintenant présenter les résultats s'inscrivent dans une stratégie visant à diminuer cette valeur de  $\chi$ . Plusieurs idées vont être exploitées. La première consiste à changer l'épaisseur du cristal d'Yb: SYS afin d'augmenter le taux d'inversion saturé moyen. La deuxième utilise un filtre acousto-optique programmable pour « creuser » l'amplitude spectrale des impulsions injectées à la longueur d'onde centrale du spectre de gain de l'amplificateur. Enfin, la troisième piste que nous avons suivie est numérique : les résultats de simulations nous permettent de comparer les matériaux laser entre eux, et de mieux comprendre les mécanismes de l'amplification régénérative dans les conditions de l'expérience. Ces trois idées présentées dans la suite du texte permettraient donc de diminuer la valeur de  $\chi$ .

## 3.7.1 Amplificateur régénératif Yb: SYS YAG en régime injecté

À présent, nous remplaçons le matériau laser de l'amplificateur régénératif par un cristal d'Yb: SYS VAG, dont l'épaisseur d'Yb: SYS est de 1,5 mm. Le but de ces expériences est d'atténuer le rétrécissement spectral par le gain en élargissant le spectre de gain du milieu amplificateur, grâce à une augmentation du taux d'inversion de saturation moyenné dans le cristal.

## Prévisions par simulation numérique

D'après nos calculs (voir figure 3-7, p.88), le taux d'inversion de population moyen augmente de 6,5 % à 10,6 % lorsque la longueur du matériau laser diminue de 5 mm à 1,5 mm. Grâce à la section efficace de gain, nous déduisons une augmentation consécutive de la largeur spectrale de gain de 44 nm à 52 nm environ (figure 3-41). Cet élargissement devrait nous permettre de diminuer sensiblement la réduction spectrale de l'amplificateur régénératif.



Figure 3-41 – (*a*) Section efficace de gain dans l'Yb: SYS en fonction de la longueur d'onde, pour différentes valeurs du taux d'inversion de population  $\beta$  (de 6 à 10% par pas de 1%). (*b*) Largeur à mi-hauteur du spectre de gain de l'Yb: SYS en fonction du taux d'inversion de population  $\beta$ .

### Expérimentations

Pour retrouver un niveau de gain équivalent à celui de l'amplificateur régénératif Yb: SYS avec un cristal plus court, nous devons modifier la structure de la cavité de manière à augmenter le gain petit signal. Ainsi, le temps de création sera assez proche de la microseconde, et nous éviterons un rétrécissement spectral trop important qui pourrait masquer l'amélioration due à la plus forte saturation du gain. Dans la cavité de l'amplificateur, nous remplaçons le miroir  $M_4$  par un miroir concave de rayon de courbure égal à 250 mm. Le diamètre du mode propre de la cavité devient égal à 100 µm. Suite à ce changement, la longueur de la cavité diminue jusqu'à 1,23 m, ce qui équivaut à un temps d'aller-retour de 8,2 ns.

Le fonctionnement en régime continu de cette nouvelle cavité est similaire à celui de l'amplificateur Yb: SYS, mis à part que le gain est de toute évidence plus faible (à cause d'une plus faible absorption de la pompe). Nous

n'obtenons en effet en continu que 230 mW de puissance de sortie au travers d'un coupleur de 10%, lorsque tous les éléments de polarisation ont été introduit dans le bras collimaté (tableau 3-10).

9	Polariseur	Lame quart- d'onde	Cellule de Pockels	Puissance de sortie (M5=coupleur de 10%)
				610 mW
	•			550 mW
	•	•		420 mW
	•	•	•	230 mW

Tableau 3-10 - Performance de l'amplificateur Yb: SYS YAG en régime continu

En régime libre, le temps de création est de 1,90 µs (environ 230 allers-retours), et nous mesurons un gain petit signal de 1,08±0,01 et des pertes de 2,15±0,05%. La différence des pertes entre les deux amplificateurs est spectaculaire, et se remarque si l'on compare finement la forme de l'impulsion de l'un avec celle de l'autre (figure 3-31, p.117, et figure 3-42). Dans le cas des pertes importantes, elle est légèrement plus symétrique, reflétant ainsi une chute assez rapide de l'intensité intracavité. Dans le cas des pertes faibles comme ici, l'impulsion de « Q-switch » est au contraire un peu plus dissymétrique. Le seul changement justifiant une telle différence de pertes provient du remplacement du cristal : le cristal long de 5 mm absorbait significativement à la longueur d'onde laser. Si nous disposions d'échantillons supplémentaires, nous aurions pu trouver un compromis entre une longueur de 1,5 mm (qui conduit à un gain très faible) et une longueur de 5 mm (qui présente trop d'absorption).



Figure 3-42 – Impulsion de « Q-switch » de l'amplificateur régénératif Yb: SYS || YAG en régime libre : courbe expérimentale (trait continu) et ajustement théorique (trait pointillé) grâce au modèle de Frantz-Nodvik monochromatique.



Figure 3-43 – Spectre des impulsions amplifiées par l'amplificateur régénératif Yb: SYS || YAG.

En régime injecté, nous avons obtenu un temps de création de 1,30  $\mu$ s (environ 160 allers-retours) un spectre amplifié large de 3,9 nm, et centré à 1066 nm (figure 3-43). Cet amplificateur présente une réduction spectrale plus petite que le précédent (61%, au lieu de 66% pour l'amplificateur Yb: SYS), mais nous ne sommes pas parvenu à mettre en évidence une réduction mesurable de la durée des impulsions compressées. D'autre part, les performances énergétiques sont médiocres (10  $\mu$ J en fin de chaîne, dans la situation la plus favorable), mais le but de cette expérience était avant tout d'atténuer le rétrécissement spectral par le gain. Devant cette modeste amélioration, il est nécessaire de nous interroger sur les facteurs limitant le spectre des impulsions amplifiées. Les miroirs diélectriques (ou même le miroir dichroïque), et la cellule de Pockels sont hors de cause. Par simulation numérique, on est amené à exclure également la lame quart d'onde qui, pourvu qu'elle soit « ordre zéro » (son épaisseur est directement égale au quart de la longueur d'onde) introduit une modulation spectrale dont l'influence sur l'amplification est négligeable. Le seul élément de la cavité dont la transmission spectrale est mal connue est le polariseur. Or, nous savons que des variations de transmission inférieure au pourcent peuvent avoir des conséquences dramatiques après plusieurs centaines d'allers-retours. C'est pourquoi nous avons testé successivement tous les polariseurs dont nous disposions au cours de cette thèse, et nous avons sélectionné celui qui nous semblait être le meilleur. Cependant, nous avons tardivement eu la possibilité de tester un polariseur ayant des spécifications différentes (figure 3-44). Contrairement à ceux dont nous disposions, il est optimisé pour une incidence de 56,5°. En remplaçant l'ancien polariseur par le nouveau, le temps de création de l'amplificateur régénératif augmente de 1,30 µs à 1,38 µs. Mais nous remarquons immédiatement que son comportement spectral est intéressant. En effet, le réglage de l'injection par l'angle d'incidence sur le polariseur n'est plus critique seulement au niveau du temps de création, mais également au niveau du profil spectral des impulsions éjectées (figure 3-45).



Figure 3-44 – Spécifications du nouveau polariseur : facteur de transmission Tp (trait continu) et facteur de réflexion  $R_s$  (trait pointillé) en fonction de la longueur d'onde.



Figure 3-45 – Spectre éjecté par l'amplificateur régénératif Yb: SYS YAG doté du nouveau polariseur pour différents angles d'injection. L'angle d'incidence optimal conduit au spectre le plus large (trait continu épais), et un écart à cet angle a un impact important sur le spectre éjecté (trait continu et pointillé fins).

Un changement infime (vis-à-vis des réglages mécaniques d'orientation des miroirs dont nous disposons) de cet angle d'incidence perturbe considérablement le spectre amplifié, au point que sa largeur à mi-hauteur peut varier de 3 à 4 nm. Ainsi, nous parvenons à optimiser l'injection pour obtenir un spectre amplifié centré à 1065 nm et de largeur à mi-hauteur égale à 4,1 nm, ce qui correspond à une réduction spectrale de 59% (au lieu de 61% avec l'ancien polariseur). La durée que nous pourrions obtenir serait d'environ 320 fs si nous raisonnons par analogie avec les résultats obtenus avec l'amplificateur régénératif Yb: SYS, c'est-à-dire dans l'hypothèse où le produit tempsfréquence serait le même, traduisant la même « qualité » de compression. Cependant, par manque de temps nous n'avons pu mettre en évidence une telle durée d'impulsion compressée.

## 3.7.2 Modulation de l'amplitude spectrale injectée avec un filtre acousto-optique programmable

Dans notre chaîne femtoseconde, la largeur spectrale des impulsions amplifiées est limitée par le rétrécissement spectral par le gain. De plus, les aberrations rencontrées par ces impulsions au cours de l'étirement et de l'amplification sont des facteurs limitant supplémentaires pour l'efficacité de leur compression. Ainsi, l'amplitude et la phase spectrale sont détériorées de sorte que la durée minimale des impulsions est environ égale à 400 fs. Au lieu d'apporter des modifications supplémentaires à l'amplificateur, nous allons à présent nous intéresser à une technique très récente qui permet de modifier l'amplitude spectrale des impulsions injectées dans l'amplificateur, de sorte que ce dernier induise un rétrécissement spectral plus limité. Cette technique utilise un filtre acousto-optique programmable, avec lequel nous allons « creuser » le spectre injecté dans l'amplificateur à la longueur d'onde centrale du spectre de gain de ce dernier.



Figure 3-46 - Photographie du boîtier du Dazzler® (Source : Fastlite).

Au début des années 1990, l'apparition des premiers systèmes de remise en forme d'impulsions répond au besoin de contrôler la dispersion des impulsions brèves. Les dispositifs les plus répandus sont alors basés sur l'utilisation de modulateurs de lumière à cristaux liquides, placés dans le plan de Fourier d'une ligne à dispersion nulle.<sup>68</sup> Les principaux inconvénients de ces systèmes sont une dynamique limitée, et un couplage des aberrations spatiales et temporelles du faisceau laser. Plus récemment, l'emploi d'un filtre acousto-optique accordable intégré a été proposé,<sup>69</sup> mais ne permet pas un réel contrôle de la phase spectrale optique. Depuis 1999, certaines chaînes laser femtoseconde intègrent un système basé sur un concept original de Pierre Tournois,<sup>70</sup> permettant de modeler à la fois l'amplitude et la phase spectrale d'impulsions brèves, en utilisant une interaction acousto-optique colinéaire dans un matériau massif (en général du dioxyde de tellure, Te0<sub>2</sub>). Ce dispositif porte le nom de filtre acousto-optique programmable (abrégé par « AOPDF », de l'anglais « Acousto-Optic Programmable Dispersion Filter »), commercialisé par la société *FastLite*\* sous le nom de *Dazzler*® (figure 3-46). L'intérêt d'utiliser une interaction

<sup>\*</sup> FastLite, Xtec., Bâtiment 404, Ecole Polytechnique, 91128 Palaiseau Cedex (http://www.fastlite.com).

acousto-optique colinéaire est de maximiser la longueur d'interaction, d'éliminer les couplages spatiaux temporels, et de permettre une compensation de dispersion avec une grande dynamique.<sup>71</sup>



Figure 3-47 - Schéma de principe du filtre acousto-optique programmable

### Principe du Dazzler®

Le principe du contrôle de la dispersion par le  $Dazzler^{\circledast}$  est le suivant (figure 3-47). Sous l'action d'un transducteur excité par un signal électrique temporel radiofréquence (RF), une onde acoustique se propage dans un cristal de Te0<sub>2</sub> suivant l'axe z, en reproduisant spatialement le profil temporel du signal RF. Etant donné que sa vitesse de propagation est généralement très faible devant celle d'ondes optiques, et que les impulsions laser traitées sont en régime femtoseconde ou picoseconde, les impulsions incidentes « verront » un réseau diélectrique fixe à l'intérieur du cristal. Si nous supposons que le signal RF est à dérive de fréquence (c'est-à-dire ayant une fréquence variant continûment en fonction du temps), alors le profil spatial du réseau aura une fréquence spatiale variable de la même manière. Or, l'interaction acousto-optique nécessite un accord de phase entre l'onde acoustique et les deux ondes optiques. Par conséquent, puisque chaque fréquence spatiale n'apparaît qu'une seule fois dans le réseau acoustique, chaque fréquence optique  $\omega$  est diffractée à une position unique  $\underline{z}(\omega)$ .

Dans le cas de la figure 3-47, la partie bleue de l'impulsion est diffractée avant la partie rouge. Selon l'axe ordinaire (indice de réfraction  $n_0$ ), les ondes optiques se propagent plus rapidement que selon l'axe extraordinaire (indice  $n_e < n_0$ ). La partie bleue parcourant donc une plus grande distance selon l'axe lent que selon l'axe rapide, elle se retrouve finalement en retard par rapport à la partie rouge de l'impulsion. Ainsi, en choisissant judicieusement le profil temporel du signal RF, une dispersion quasi-arbitraire peut être introduite. Par ailleurs, l'amplitude spectrale de l'impulsion optique diffractée (ou l'efficacité de diffraction) est imposée par l'intensité du signal acoustique à la position  $\chi(\omega)$ . Le champ électrique en sortie du filtre  $E_{sortie}(t)$  est une fonction du champ électrique en entrée  $E_{entré}(t)$  et du signal RF noté S(t). Plus précisément, il a été montré<sup>72</sup> que :

$$E_{sortie}(t) \propto E_{entrée}(t) \otimes S(t/\alpha)$$
 avec  $\alpha = \Delta n \frac{v}{c}$ 

où  $\Delta n$  est la différence d'indice entre axe ordinaire et axe extraordinaire, v la vitesse de son, et c la vitesse de la lumière. La constante a est le rapport entre la fréquence acoustique et la fréquence optique, et l'équation ci-dessus peut s'écrire dans le domaine fréquentiel de la façon suivante :

$$\widetilde{E}_{sortie}(\omega) \propto \widetilde{E}_{entrée}(\omega) \cdot \widetilde{S}(\alpha \omega)$$

Dans le cas du *Dazzler*<sup>®</sup>, l'alimentation délivrant le signal RF est reliée à un micro-ordinateur permettant de programmer la forme temporelle du signal RF. Plus précisément, l'utilisateur programme directement la forme de l'amplitude et de la phase spectrale qu'il désire imposer aux impulsions brèves. Notons que l'étirement qui est appliquée aux impulsions brèves lors de leur remise en forme spectrale (qui est essentiel au principe de fonctionnement du *Dazzler*<sup>®</sup> mais qui n'est pas l'effet recherché ici) est parfaitement compensable par le compresseur en fin de chaîne vu qu'il s'agit d'une dérive de fréquence linéaire.

## Application du Dazzler<sup>®</sup> à notre chaîne laser femtoseconde

L'application du *Dazzler®* à notre chaîne laser femtoseconde Yb: SYS nous permet d'atténuer le rétrécissement spectral par le gain en modulant le spectre injecté. Si le spectre est volontairement atténué à la longueur d'onde centrale du gain spectral de l'amplificateur, alors, au bout d'une centaine de passages, le centre du spectre étant plus amplifié que les bords, le trou est comblé et la largeur à mi-hauteur du spectre est potentiellement augmentée (voir la démonstration expérimentale présentée sur la figure 3-50, p.135). Cette idée peut être exploitée en ajoutant une lame étalon à l'intérieur de la cavité de l'amplificateur régénératif. En effet, une lame étalon introduit des pertes modulées en longueur d'onde, de sorte que le gain total de la cavité soit atténué à la longueur d'onde centrale du gain du matériau laser. Cette méthode nécessite néanmoins un gain petit signal suffisamment grand pour que les pertes introduites ne compromettent pas l'amplification (d'autant que le principe de cette technique revient à appliquer des pertes là où le gain est le plus fort). Ici, nous disposons d'un gain petit signal trop faible pour envisager d'ajouter des pertes supplémentaires. En revanche, si ces pertes sont appliquées au spectre de l'impulsion injectée, alors le temps de création sera nettement moins affecté dans notre cas. C'est pourquoi nous avons testé un *Dazzler®*, pour améliorer les performances de notre amplificateur régénératif Yb: SYS

### Mise en œuvre expérimentale du Dazzler®

En pratique, nous avons placé le *Dazzler*<sup>®</sup> entre l'oscillateur Yb: SYS et l'étireur. Nous l'avons synchronisé avec l'alimentation de la cellule de Pockels de l'amplificateur. Les impulsions produites par l'oscillateur sont plus longues que celles utilisées auparavant (environ 160 fs, pour une largeur spectrale de 8 nm), ce qui permet de modeler l'amplitude spectrale avec le *Dazzler*<sup>®</sup> avec une meilleure résolution (car le nombre de points dont on peut modifier

l'amplitude est fixé, comme nous l'expliquons plus loin). De plus, nous avons vérifié par simulation numérique que cela n'avait pas une conséquence importante sur les performances de l'amplificateur (figure 3-48).



Figure 3-48 – Simulation numérique de l'influence de la largeur à mi-hauteur  $\Delta \lambda_{entrée}$  du spectre injecté, sur la largeur à mi-hauteur  $\Delta \lambda_{sortie}$  (a) et la longueur d'onde centrale  $\lambda_{sortie}$  (b) du spectre amplifié.

Avec le *Dazzler*<sup>®</sup> prévu pour 1,05µm dont nous disposions, la remise en forme d'impulsion d'une telle durée s'effectue sur 25 points indépendants (le cristal acousto-optique, du TeO<sub>2</sub>, étant long de 45 mm, ce qui correspond à un retard de 4 ps), avec une efficacité de diffraction supérieure à 80%.

### Expérimentations

En appliquant un trou sur le spectre des impulsions injectées dans l'amplificateur, nous sommes parvenus à mettre en évidence un effet important sur le profil spectral des impulsions amplifiées (figure 3-50, p.135). En modifiant les paramètres du trou (profondeur, largeur et position),\* nous avons trouvé des configurations dans lesquelles la largeur à mi-hauteur du spectre amplifié augmente de 4 à 6 nm environ (figure 3-51, p.137).

#### Transformée de Fourier des spectres expérimentaux

L'information contenue dans le spectre est incomplète, et ne suffit donc pas à déterminer la durée des impulsions associées. La donnée manquante est la phase spectrale. Cependant, nous pouvons évaluer une valeur minimale pour la durée des impulsions, en calculant la transformée de Fourier de ces spectres. Pour effectuer une calibration de notre calcul (c'est-à-dire déterminer le facteur constant existant entre largeur à mi-hauteur de la transformée de Fourier et durée expérimentale), nous effectuons la transformée de Fourier du spectre injecté qui est large de 8 nm : le résultat est adapté à la mesure expérimentale en modifiant l'échelle des abscisses d'un facteur adéquat (figure 3-49). Ainsi, dans le cas où les impulsions sont limitées par transformée de Fourier (comme à la sortie de

<sup>\*</sup> Etant donné qu'il s'agit ici d'expériences préliminaires, les modifications de l'amplitude spectrale des impulsions injectées sont réalisées ici en observant le spectre amplifié, et en adaptant les paramètres pour que ce dernier soit le plus large possible. Cependant, d'autres techniques expérimentales plus évoluées permettent d'effectuer cette remise en forme spectrale des impulsions par le biais d'une contre-réaction. Cette dernière est réalisée grâce à un mesureur de phase spectrale placé en fin de chaîne.

l'oscillateur), la largeur à mi-hauteur des transformées de Fourier présentées dans la suite de ce texte correspondra à une valeur proche de la durée expérimentale déterminée par autocorrélation. Dans le cas où il ne s'agit pas d'impulsions limitées par transformée de Fourier, il nous suffira de multiplier par le facteur  $\rho$  déterminé plus haut (§3.5.4, p.109), afin de tenir compte des imperfections du système d'amplification à dérive de fréquence et ainsi d'obtenir une durée proche de la durée expérimentale.



Figure 3-49 – Profil temporel des impulsions produites par l'oscillateur Yb: SYS, calculé par transformée de Fourier du spectre injecté expérimental.

## Démonstration expérimentale de la méthode du trou spectral : figure 3-50

La méthode consistant à injecter un spectre troué dans l'amplificateur régénératif pour atténuer le rétrécissement spectral par le gain semble efficace. En effet, pour mettre en évidence l'effet du trou sur la largeur spectrale des impulsions amplifiées, nous faisons varier la profondeur du trou de sa valeur minimale (profondeur presque nulle) à sa valeur maximale (figure 3-50). Nous obtenons alors un élargissement du spectre amplifié de sorte que les durées par transformée de Fourier diminuent de 340 fs à 260 fs (soit de 410 fs à 310 fs en tenant compte du facteur  $\rho$ ).



Figure 3-50 – Démonstration expérimentale de la méthode du trou spectral, grâce au *Dazzler®*. À gauche, les résultats expérimentaux montrent un élargissement du spectre lorsque la profondeur du trou spectral  $H_{trou}$  augmente (de bas en haut). À droite, les transformées de Fourier (calculées à partir des spectres mesurés en sortie d'amplificateur) montrent l'influence de la profondeur du trou sur la durée potentielle des impulsions. Notons que la profondeur du trou  $H_{trou}$  est le paramètre fixé dans le logiciel de contrôle du Dazzler, et ne correspond pas au trou qui est réellement « creusé » dans l'amplitude spectrale, à cause de phénomènes physiques complexes ayant lieu dans le cristal acousto-optique. C'est pourquoi les valeurs indiquées ne semblent pas correspondre au spectre mesuré.

## Optimisation du trou spectral pour atténuer le rétrécissement spectral par le gain

Maintenant que cette méthode est expérimentalement validée, nous faisons varier les différents paramètres du trou pour obtenir le meilleur résultat possible en terme de largeur de spectre amplifié (figure 3-51, p.137). Nous obtenons des résultats présentés dans le tableau 3-11 (ci-dessous) et la figure 3-52 (p.138), qui se divisent en cinq cas différents notés (1), (2), ..., (5). L'incertitude sur la durée calculée est liée au principe même de la transformée de Fourier discrète, qui sera d'autant plus précis que le nombre de points d'échantillonnage sera grand. Ainsi, en prenant un spectre expérimental échantillonné entre 1040 et 1090 nm (intervalle fixé par la fenêtre du spectromètre), et en étendant artificiellement l'intervalle de 200 nm de part et d'autre, nous obtenons un spectre échantillonné entre 840 et 1290 nm. Grâce à cet artefact numérique, nous avons un spectre très étroit relativement à l'intervalle spectral, et nous obtenons donc un profil temporel par transformée de Fourier discrète très large, donc avec une très bonne résolution temporelle. Ce raisonnement nous conduit à une valeur d'incertitude environ égale à 4 fs. Cependant, nous avons présenté les valeurs obtenues sans incertitude, afin de rappeler que cette indétermination est illusoire, car expérimentalement, c'est la combinaison du spectre et de la dispersion résiduelle des impulsions qui va déterminer la durée réelle des impulsions. Sans connaître cette dispersion, on ne peut prétendre évaluer cette durée avec précision.

~/	$\lambda_{trou}\left(nm\right)$	$\Delta\lambda_{trou}$ (nm)	$\mathrm{H}_{\mathrm{trou}}$	$\Delta\lambda_{sortie} (nm)$	$\Delta t_{\mathrm{TF}}$ (fs)	$ ho\Delta t_{TF}$ (fs)
(1)	-	-	0	4,0	320	390
(2)	1065,0	5,3	1	-	210	260
(3)	1064,0	4,3	0,86	4,5	290	350
(4)	1064,8	5,3	0,88	6,4	220	270
(5)	1064,3	8,3	0,94	5,7	240	290

Tableau 3-11 – Résultats obtenus avec le  $Dazzler^{@}$ . Le spectre en entrée est troué à  $\lambda_{trous}$  sur une largeur de  $\Delta \lambda_{trous}$  et une profondeur de  $H_{trous}$ . Le spectre en sortie a une largeur à mi-hauteur  $\Delta \lambda_{sortie}$ , une largeur à mi-hauteur du profil temporel  $\Delta t_{TT}$  calculé par transformée de Fourier, et une largeur à mi-hauteur estimée après compression de  $\rho \Delta t_{TT}$  (le facteur  $\rho$  est introduit dans le §3.5.4, p.109 et représente les imperfections totales du système « étireur-compresseur »).

D'après les résultats obtenus, c'est le cas (4) qui conduirait à la production d'impulsions les plus courtes après compression. Il s'agit en effet de la durée théorique la plus courte, mais les piédestaux demeurent présents. Au contraire, dans le cas (3), ces derniers sont très petits (plus petits que dans le cas (1)), l'impulsion est dite plus *contrastée*, et la durée est inférieure à celle obtenue sans *Dazzler*<sup>®</sup>. En conclusion, l'utilisation d'un filtre acousto-optique programmable nous a permis de diminuer la durée potentielle des impulsions tout en améliorant leur contraste. Nous diminuons ainsi la valeur de la réduction spectrale de l'amplificateur de 59% à 36% dans le cas (4) (ou nous élargissons le spectre amplifié de 4,1 nm à 6,4 nm).



Figure 3-51 – Modulation de l'amplitude spectrale des impulsions injectées (trait continu épais), répercussions sur le spectre des impulsions amplifiées expérimental (trait continu fin) et simulé numériquement selon l'algorithme de Frantz-Nodvik polychromatique (trait pointillé fin). Chaque graphique correspond à un cas de *(1)* à *(5)*, dont les résultats correspondants sont résumés dans le tableau 3-11.



Figure 3-52 - Profils temporels des impulsions calculés par transformée de Fourier discrète de chacun des cas de (1) à (5) présentés dans le tableau 3-11 et sur la figure 3-51.

## 3.7.3 Résultats de simulations numériques de l'amplificateur Yb: SYS YAG : perspectives

Grâce au *Dazzler*<sup>®</sup> (§3.7.2), nous avons la liberté de modifier le spectre injecté dans l'amplificateur, et d'observer l'influence de chacune de ces modifications directement sur le spectre amplifié. Supposons que l'amplificateur régénératif soit une boîte noire dont l'entrée est le spectre injecté (noté  $S_{entrée}(\lambda)$ ), et la sortie est le spectre amplifié (noté  $S_{sortie}(\lambda)$ ). Dans chacun des cas (1) à (5) présentés dans le tableau 3-11 (p.136), nous connaissons l'entrée et la

sortie expérimentales. À partir de chaque entrée expérimentale, nous pouvons appliquer l'algorithme de Frantz-Nodvik polychromatique (§3.3.3, p.92) pour calculer la sortie théorique. Le résultat est un outil expérimental simple de vérification de notre outil de simulation numérique, grâce à un ajustement des courbes expérimentales par les courbes calculées. Les ajustements présentés figure 3-51 étant concluants, nous présentons les données calculées par notre simulation numérique au cours de l'amplification sur la figure 3-54 (p.140), et la figure 3-55 (p.141). Dans ces résultats, nous retrouvons les phénomènes de rétrécissement spectral par le gain, et de décalage spectral vers le bleu, qui sont particulièrement visibles dans le cas (1). Ces deux phénomènes sont étudiés quantitativement figure 3-53. Les conditions initiales de cette simulation sont basées sur la mesure du gain petit signal et des pertes effectuée au §3.7.1, p.127, combinée avec la valeur numérique du taux d'inversion saturé initial donnée par la simulation présentée sur la figure 3-24, p.111.



Figure 3-53 – Simulation numérique de l'évolution de la largeur à mi-hauteur (rétrécissement spectral par le gain) (a) et de la longueur d'onde centrale (décalage spectral vers le bleu) (b) de l'impulsion au cours de l'amplification dans le cas (1). Les symboles « x » indiquent les points expérimentaux.

D'autres études théoriques sont réalisables grâce à cet outil de simulation numérique. Notamment, nous pouvons nous intéresser à l'influence de la longueur d'onde centrale du spectre injecté (Annexe III, p.153). L'expérience nous a appris qu'à la fois la largeur à mi-hauteur et la longueur d'onde centrale du spectre amplifié en dépendait. Enfin, l'algorithme utilisé est réversible : en appliquant les changements nécessaires à sa structure (non réalisé ici par manque de temps), il peut réaliser la fonction inverse, c'est-à-dire nous fournir  $S_{entrie}(\lambda)$  en fonction de  $S_{sortie}(\lambda)$ . Si nous spécifions en argument de ce programme le spectre amplifié idéal  $S^{ideal}_{sortie}(\lambda)$  que nous souhaiterions avoir en fin de chaîne (par exemple, une sécante hyperbolique de 6 nm de large), il serait alors capable de calculer le spectre à injecter dans l'amplificateur. Ce résultat serait stocké sous la forme d'un fichier de points théoriques que le logiciel du *Dazzler*® serait en mesure de charger en mémoire. Ce dernier imposerait alors au spectre issu de l'oscillateur Yb: SYS les modifications contenues dans le fichier de points théoriques. En principe, sous réserve que les modifications en question soient physiquement réalisables (et ne nécessitent pas, par exemple, un spectre initial plus large que celui des impulsions produites par l'oscillateur Yb: SYS), alors nous devrions observer en fin de chaîne un spectre amplifié très proche de  $S^{ideal}_{sortie}(\lambda)$ .



Figure 3-54 – Simulation numérique de l'évolution du spectre d'une impulsion au cours de son amplification. Dans les cas (1) à (5), la fluence normalisée  $J_{norm}$  est tracée en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$ , et du nombre d'allers-retours  $N_{AR}$ . Ces représentations graphiques illustrent bien le décalage spectral vers le bleu et le rétrécissement spectral lors de l'amplification. Par ailleurs, lorsque la forme du spectre injecté devient complexe, les transformations du spectre au cours de l'amplification sont très intéressantes, et traduisent bien la forme du gain spectral.



Figure 3-55 – Simulation numérique de l'évolution du spectre d'une impulsion au cours de son amplification. Dans les cas (1) à (5), la fluence J est tracée en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$ , et du nombre d'allers-retours  $N_{AR}$ . L'avantage de cette représentation graphique par rapport à celle de la figure précédente, est de mettre en évidence la forme du spectre au cours de l'amplification de manière plus réaliste, en incluant la notion de fluence extraite optimale, c'est-à-dire l'instant auquel la fluence de l'impulsion est maximale.

## 3.8 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons vu que le nouveau cristal de SYS dopé à l'ion ytterbium peut conduire à la réalisation d'une chaîne laser femtoseconde complète basée sur l'amplification à dérive de fréquence. Nous avons rencontré un certain nombre de difficultés expérimentales, parmi lesquelles le problème du seuil de dommage s'est avéré le plus gênant, surtout dans une situation où le matériau laser présente un faible gain. En dépit de ces problèmes que nous avons progressivement résolus pour continuer nos recherches, nous avons développé plusieurs amplificateurs régénératifs aux performances intéressantes (tableau 3-12), dont les cadences sont comprises typiquement entre 100 Hz et 1 kHz.

	Amplificateur rég	énératif Yb: SYS	Amplificateur régénératif Yb: SYS    YAG		
	Injection d'impulsions de l'oscillateur Yb: BOYS	Injection d'impulsions de l'oscillateur Yb: SYS		Avec le Dazzler®	
Largeur spectrale amplifiée	<b>3,</b> 0 nm	3,4 nm	4,1 nm	6,4 nm	
Durée mesurée des impulsions (*) valeur déduite du spectre	420 fs	380 fs	370 fs*	290 fs*	
Réduction spectrale $\chi$ 70 %		66 %	59 %	36%	

Tableau 3-12 - Comparaison des performances nominales des amplificateurs régénératifs développés.

Le premier, basé sur un échantillon d'Yb: SYS long de 5 mm, nous a permis de produire des impulsions ayant une durée de 380 fs et une énergie de 80  $\mu$ J, et un spectre large de 3,4 nm. Le second, basé sur un échantillon d'Yb: SYS long de 1,5 mm (échantillon d'Yb: SYS ||YAG), a conduit à la production d'impulsion ayant un spectre large de 4,1 nm, soit à une réduction spectrale plus petite que le premier amplificateur régénératif (59% au lieu de 66%). L'utilisation d'un filtre acousto-optique programmable (le *Dazzler*®) nous a permis de diminuer encore la réduction spectrale jusqu'à moins de 40%. Enfin, le développement en parallèle d'une simulation numérique réaliste en étroite liaison avec les données expérimentales ouvre de nouvelles perspectives d'expérimentations. Ces calculs numériques pourraient en effet être utilisés soit pour modifier le spectre des impulsions injectées dans l'amplificateur avec le *Dazzler*®, suivant une loi qui permettrait d'exploiter toute la bande spectrale de l'Yb: SYS, soit pour comparer les performances d'amplificateurs régénératifs basés sur des matériaux laser différents sans réaliser d'expérimentations poussées.

# **CONCLUSION GÉNÉRALE**

Le but de la présente thèse était d'exploiter de nouveaux cristaux dopés à l'ytterbium pour le développement de sources laser à impulsions brèves. Le comportement de ces matériaux laser était connu en régime continu, mais seulement supposé intéressant en régime femtoseconde. Au terme d'une étude expérimentale de deux cristaux, l'Yb3+: BOYS et l'Yb3+: SYS (dont les longueurs d'onde d'émission sont proches de 1,06 µm), nous sommes en mesure d'affirmer que leurs performances au sein d'un oscillateur femtoseconde ou d'un amplificateur régénératif (pour l'Yb3+: SYS seulement) sont à la mesure de ce que nous pouvions prévoir grâce à leurs propriétés spectroscopiques. En effet, l'Yb3+: BOYS a permis de réaliser un oscillateur femtoseconde produisant les impulsions les plus courtes obtenues à ce jour à partir d'un laser utilisant un cristal dopé à l'ytterbium, soit 69 fs. L'Yb<sup>3+</sup>: SYS a quant à lui conduit à la production d'impulsions de durée un peu plus longue (94 fs) mais d'énergie presque deux fois supérieure (4,2 n]), à une cadence approximativement égale (une centaine de mégahertz). En dépit des problèmes d'instabilité du verrouillage des modes en phase, qui sont particulièrement importants dans le cas des lasers ytterbium à cause de longs temps de fluorescence, nous avons obtenu des régimes impulsionnels très stables en choisissant judicieusement les paramètres des cavités laser. Par ailleurs, afin de produire des impulsions plus énergétiques à partir de ces nouveaux cristaux, nous avons développé plusieurs amplificateurs régénératifs ytterbium. En particulier, nous avons réalisé une chaîne laser femtoseconde complète basée sur l'amplification à dérive de fréquence à partir du cristal d'Yb3+: SYS. Cette source laser amplifiée a produit des impulsions d'une durée de 380 fs, et d'une énergie supérieure à 70 µJ à une cadence de 1 kHz, qui sont des impulsions parmi les plus courtes obtenues avec un amplificateur régénératif pompé par diodes. De plus, l'amplificateur régénératif d'Yb<sup>3+</sup>: SYS est – à notre connaissance – l'amplificateur régénératif pompé par diodes le plus efficace à 1 kHz (avec une efficacité optique-optique de 1,75 %).

Nous avons ainsi montré que les *lasers femtoseconde Yb<sup>3+</sup>: BOYS et Yb<sup>3+</sup>: SYS pompés par diodes* présentent des performances remarquables aussi bien en terme de durée d'impulsions que d'efficacité globale. Les cristaux d'Yb<sup>3+</sup>: BOYS et d'Yb<sup>3+</sup>: SYS ont de larges spectres d'émission mais de faibles gains, ce qui représente finalement un équilibre intéressant, que nous pouvons comparer à d'autres compromis de ce type que sont les matériaux laser d'Yb<sup>3+</sup>: KGW ou d'Yb<sup>3+</sup>: verre.
Afin de mieux exploiter la bande spectrale d'émission de nos cristaux, nous avons effectué des expérimentations supplémentaires. La première nous a conduit à observer un élargissement du spectre des impulsions issues de l'amplificateur régénératif, par l'emploi d'un matériau laser d'Yb<sup>3+</sup>: SYS moins long que celui utilisé précédemment. Dans la deuxième, nous avons utilisé un filtre acousto-optique programmable (*Dazzler®*) pour modeler l'amplitude spectrale des impulsions injectées dans l'amplificateur régénératif, et nous avons réussi à augmenter encore la largeur spectrale des impulsions amplifiées. En tenant compte de ces améliorations, en fin de chaîne, la durée de ces impulsions devrait ainsi être inférieure à 300 fs.

Le *Dazzler*<sup>®</sup> nous a permis non seulement d'améliorer les performances de notre chaîne laser femtoseconde, mais aussi de tester et de valider notre modèle théorique décrivant l'amplificateur régénératif. En effet, si nous considérons l'amplificateur régénératif comme une boîte noire qui à partir d'une *entrée* (spectre injecté) fournit une *sortie* (spectre amplifié), le *Dazzler*<sup>®</sup> permet de faire varier à volonté l'entrée de cette boîte noire. Pour chaque entrée, nous pouvons alors comparer la sortie donnée par le montage réel (en mesurant le spectre amplifié à l'aide d'un spectrographe) et celle résultant du calcul par simulation numérique. Nous avons donc diposé d'un outil intéressant pour améliorer les performances de notre chaîne laser femtoseconde, et pour comparer les résultats de l'expérience avec ceux de notre simulation numérique.

### **ANNEXE I**

### Propagation, extension spatiale, et qualité d'un faisceau laser

Un faisceau gaussien décrit parfaitement la propagation d'une onde électromagnétique limitée par les phénomènes de diffraction.\* Si l'onde gaussienne se propage le long de l'axe Oz, l'amplitude complexe de la composante spatiale du champ électromagnétique  $E_s(r,z)$  en fonction de la distance r à l'axe Oz est donnée par :

$$E_{s}(r,z) = E_{0} \frac{W_{0}}{W(z)} e^{-\frac{r^{2}}{W(z)^{2}}} e^{-ikz - ik\frac{r^{2}}{2R(z)} + i\xi(z)}$$

où *w*<sub>0</sub> est le rayon au col (ou « waist ») du faisceau laser et les différents paramètres sont :

- le rayon de courbure :  $R(z) = z \left[ 1 + \left( \frac{z_R}{z} \right)^2 \right];$
- l'extension spatiale (rayon du faisceau à 1/e) :  $w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2}$ ;
- la longueur de Rayleigh :  $z_R = \frac{\pi \cdot w_0^2 \cdot n}{\lambda}$ ;
- la phase de Guoy :  $\xi(z) = \arctan \frac{z}{z_0}$ ;
- la divergence :  $\theta = \frac{1}{\pi} \frac{\lambda}{n \cdot w_0}$ .

Dans une cavité stable, comme celles réalisées par la suite, le mode transverse oscillant est gaussien, c'est-à-dire que dans un plan parallèle à l'axe optique le faisceau ne présente qu'un seul lobe de révolution autour de cet axe : c'est le mode  $TEM_{00}$  (figure I-1).

<sup>\*</sup> L'expression « onde électromagnétique limitée par les phénomènes de diffraction » est très ambiguë. En effet, n'importe quel faisceau lumineux ne peut être focalisé en une tache d'un diamètre plus petit que celui imposé par les lois de la diffraction. Dans un certain sens, tout faisceau lumineux serait donc « limité par diffraction » et l'expression employée ici serait un pléonasme. Cependant, cette dernière fait partie intégrante du langage spécialisé pour qualifier un faisceau que l'on peut focaliser dans des dimensions très proches de la limite de diffraction, ce qui justifie son emploi dans le présent texte.



Figure I-1 – Profil tracé du champ électrique transverse d'un faisceau gaussien (TEM<sub>00</sub>) dans un plan d'incidence (faisceau à symétrie cylindrique) : vue oblique (gauche) et vue de dessus (droite). Le rayon du faisceau à 1/e est tracé en rouge, tandis que le profil spatial du faisceau est tracé en bleu au niveau du « waist » (z=0) et sur en bordure de la zone tracée (z=-10).

Dans d'autres conditions non développées ici, la structure spatiale d'un faisceau laser peut être multimode, auquel cas le diamètre de la tache au foyer ne sera plus limité par la diffraction. Ces modes d'ordres supérieurs peuvent être décrits par une onde hermitienne-gaussienne et présentent plusieurs lobes parallèlement à l'axe optique : ce sont les modes  $\text{TEM}_{ii}$  où *i*+1 et *j*+1 correspondent au nombre de lobes dans deux directions perpendiculaires transverses (dans un plan perpendiculaire à l'axe optique) correspondant à des directions privilégiées dans la cavité (astigmatisme). Au lieu de manipuler des polynômes d'Hermite pour caractériser ces modes transverses, qui ne sont pas des modes « souhaitables » parce que « non limités par la diffraction », on introduit la notion de qualité de faisceau<sup>73</sup> par l'intermédiaire de la grandeur noté M<sup>2</sup>. Cette dernière va permettre d'établir un lien entre un mode transverse purement gaussien (M<sup>2</sup>=1) et un mode d'ordre supérieur (M<sup>2</sup>>1) en introduisant le paramètre  $M^2$  dans les équations vues précédemment. Le M<sup>2</sup> d'un faisceau (raisonnablement aberrant) de divergence totale  $\Theta=2\theta$  et de « waist » mesuré W<sub>0</sub> est par définition\* :

$$M^{2} = \frac{\pi \cdot W_{0} \cdot \Theta \cdot n}{2\lambda}$$

Ainsi de manière générale, l'extension spatiale, la longueur de Rayleigh et la divergence d'un faisceau laser caractérisé par un M<sup>2</sup> donné s'expriment de la manière suivante<sup>74</sup> :

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{M^2 \cdot \lambda \cdot z}{n \cdot \pi \cdot w_0^2}\right)^2} \quad ; \quad z_R = \frac{\pi \cdot W_0^2 \cdot n}{\lambda \cdot M^2} \quad ; \quad \theta = \frac{1}{\pi} \frac{\lambda \cdot M^2}{n \cdot W_0}$$

<sup>\*</sup> Les valeurs de  $\Theta$  et de W<sub>0</sub> sont issues de mesures expérimentales effectuées sur le faisceau laser dont on souhaite déterminer le M<sup>2</sup>.

Plus le  $M^2$  d'une source laser sera petit, plus cette dernière produira un faisceau de bonne qualité spatiale, le cas idéal étant celui du faisceau gaussien pour lequel le  $M^2$  est égal à l'unité. Dans certains cas particuliers, un lien peut facilement être établi entre le  $M^2$  et la *brillance* d'une source laser (expression de la luminance d'une source laser) : plus une source est brillante, plus son  $M^2$  est faible. Enfin, l'intérêt d'utiliser le  $M^2$  pour caractériser un faisceau laser vient aussi du fait que cette grandeur se conserve au cours de la propagation du faisceau.

### **ANNEXE II**

Fluctuations lentes de l'intensité laser dues à l'échauffement d'un miroir dichroïque

Lors du développement de l'amplificateur régénératif ytterbium, nous avons testé de nombreuses cavités laser en régime continu (§3.6.3, p.113). En expérimentant une nouvelle cavité constituée de deux miroirs plans et d'un miroir concave (figure II-1), nous avons constaté des oscillations lentes très gênantes de la puissance de sortie du laser. Cette annexe présente les résultats et nos conclusions à ce sujet.



Figure II-1 – Schéma de la cavité laser présentant des fluctuations lentes de la puissance de sortie

Le matériau laser est un cristal d'Yb: YSO, pompé optiquement par une diode laser de 4W (monoruban de 1 $\mu$ m x 100 $\mu$ m) remise en forme spatialement par un système anamorphoseur identique à celui présenté sur la figure 1-9, p.22 (afocal de grandissement égal à 8 suivant l'axe lent et à 4 suivant l'axe rapide). Le faisceau de pompe est ainsi focalisé sur une tache de diamètre de 100  $\mu$ m au niveau du matériau laser, placé contre le miroir M<sub>1</sub>. La cavité laser est constituée des miroirs suivants :

- le miroir M<sub>1</sub>, dichroïque plan (haute transmission à 1047 nm longueur d'onde laser, et haute réflexion à 980 nm longueur d'onde de pompe);
- le miroir M<sub>2</sub>, concave (rayon de courbure égal à 300 mm) ;
- le miroir M<sub>3</sub>, plan (haute réflexion à 1064 nm)
- le miroir  $M_4$ , plan (coupleur de sortie de 10%).

La puissance de sortie présente alors des fluctuations très importantes (entre 700 et 900 mW) qui nous conduisent à étudier l'origine de ce problème (figure II-2a). Ces oscillations sont caractérisées par une période  $T_0$  d'environ 40s, et par une amplitude  $\Delta P_0$  d'environ 40%, ce qui est très important.



Figure II-2 – Résultats des mesures de fluctuations de puissance due à l'échauf-fement d'un miroir de la cavité (voir le texte pour plus de détails).

Pour mieux comprendre le phénomène, nous introduisons des pertes importantes dans la cavité grâce à une lame de verre pour se rapprocher du seuil d'oscillation laser (figure II-2c). Nous remarquons alors que les fluctuations de

la puissance de sortie sont toujours présentes, et vu le niveau des pertes, entraînent cette fois-ci la perte de l'effet laser. De plus, nous constatons que l'effet laser revient sans aucune perturbation extérieure, ce qui signifie qu'il ne peut s'agir que de pertes modulées dans le temps. La lenteur du phénomène indique de plus qu'il pourrait s'agir d'un effet thermique.

### Avec effet laser

Pour déterminer si ce problème est lié au choix du matériau laser, nous remplaçons l'Yb: YSO par un cristal d'Yb: GdCOB : les oscillations sont toujours présentes et avec la même périodicité (figure II-2b). Par contre, l'amplitude change mais nous ne pouvons en tirer aucune conclusion, car la cavité n'a volontairement pas été optimisée pour ce nouveau cristal pour éviter de changer trop de paramètres à la fois, et pouvoir observer uniquement l'influence de la substitution du matériau laser. Par ailleurs, nous décidons de modifier la longueur de la cavité afin d'observer les conséquences sur ces fluctuations de puissances. Nous comparons une cavité de 60 cm de long (figure II-2g) avec une cavité de 95 cm de long (figure II-2h), et nous obtenons dans les deux cas des oscillations à la même période  $T_0$  mais un profil de modulation différent.

#### Sans effet laser

Pour approfondir notre étude expérimentale, nous mesurons la puissance absorbée par le cristal d'Yb: YSO sans effet laser, et nous remarquons une légère modulation toujours à la même période  $T_0$  (figure II-2d). En revanche, la puissance moyenne du faisceau de pompe, mesurée entre le miroir M<sub>1</sub> et le doublet de focalisation, est parfaitement constante. La modulation observée provient donc soit du cristal, soit du miroir dichroïque M<sub>1</sub>. Après avoir mesurer l'absorption du miroir dichroïque plan M<sub>1</sub>, qui est fortement modulée à une période proche de  $T_0$  (figure II-2e), nous en déduisons que la modulation de l'absorption du cristal d'Yb: YSO n'en était qu'une conséquence. L'origine du problème est donc enfin identifiée : il s'agit de l'absorption de M<sub>1</sub>. Plus précisément, et ce sera confirmé par la suite, c'est le faisceau de pompe particulièrement brillant et intense à quelques millimètres de son point de focalisation, qui chauffe les couches diélectriques du miroir dichroïque M<sub>1</sub>.

Plusieurs vérifications nous ont donc permis de déduire que la présence de ces oscillations était indépendante :

- de la présence ou non d'un effet laser ;
- de la présence du système de prismes dans le banc de pompe ;
- des caractéristiques spectrales et de la stabilité de la puissance du faisceau issu de la diode laser de pompe.

Par contre, nous avons établi un lien entre ces fluctuations et la focalisation du faisceau de pompe. En effet, en changeant le grandissement du système afocal suivant l'axe rapide de la diode laser de x8 à x4, nous parvenons à une puissance de sortie maximale de 850 mW (contre 900 mW auparavant), et nous mesurons des oscillations toujours avec une période  $T_0$ , mais avec une amplitude d'environ 50 mW, soit  $\Delta P_0 \approx 6\%$ . Cette amélioration montre qu'il s'agit bien d'un échauffement dû au moins en partie au faisceau de pompe.



Figure II-3 - Cavité laser exempte de fluctuations de la puissance de sortie.

Enfin, si nous remplaçons le miroir dichroïque plan  $M_1$  par un miroir dichroïque concave de rayon de courbure égal à 50 mm, et espacé d'environ 40 mm du cristal (donc du point de focalisation du faisceau de pompe), le phénomène de fluctuation de puissance de sortie disparaît complètement (figure II-3).

### **ANNEXE III**

## Comparaison entre Yb: SYS et Yb: YSO par simulation numérique

L'outil numérique dont nous disposons nous permet de tester d'autres cristaux sans réaliser des expérimentations. Pour ce type d'utilisation, nous devons disposer de données expérimentales très fiables concernant les sections efficaces d'émission et d'absorption, car la moindre erreur aurait des répercutions importantes sur le résultat. En outre, les simulations doivent s'adapter à chaque cas : nous devons choisir les différents paramètres en tenant compte des caractéristiques de chaque matériau laser, car un choix aberrant de la valeur d'un paramètre ne conduit pas forcément à un résultat visiblement aberrant.



Figure III-1 – Gain petit signal en fonction de la longueur d'onde pour différentes valeurs du taux d'inversion (trait continu), et évolution du maximum de ces courbes (trait pointillé), dans le cas de l'Yb: SYS (à gauche) et de l'Yb: YSO (à droite).

Ainsi, nous avons voulu tester l'Yb: YSO que nous présentions au §1.5.2 (p.39) comme un matériau laser probablement inadapté à la génération d'impulsions brèves. Cette conclusion était basée sur l'effet désastreux de la forte modulation de la section efficace d'émission de ce cristal, aux alentours de la longueur d'onde d'émission optimale. Cette modulation de la section efficace d'émission entraînerait une fluctuation du gain petit signal très gênante lors de l'amplification, car seules certaines longueurs d'onde seraient amplifiées. Une autre hypothèse, qui amène à un résultat contraire, est fondée sur l'affirmation suivante. Si la longueur d'onde centrale de l'impulsion injectée est choisie entre deux maxima successifs du spectre d'émission, c'est-à-dire environ à 1050 nm ou à 1070 nm, alors le gain vu par cette impulsion au cours de son amplification devrait être plus petit au centre qu'au bord de son spectre. Nous devrions donc atténuer le rétrécissement spectral dans l'amplificateur régénératif par un

processus analogue à celui présenté au §3.7.2 (principe de l'étalon placé à l'intérieur de la cavité). Or les simulations numériques confirment la première hypothèse : les pics d'émission sont si prononcés qu'ils provoquent l'apparition de spectres à deux pics nettement séparés en longueur d'onde (comme nous le verrons dans la figure III-4, p.149). Ceci est d'autant plus marqué que la longueur d'onde d'injection se rapproche de 1050 nm ou 1070 nm, ce qui signifie que ces modulations de la section efficace d'émission sont profondes au point que seules les extrémités du spectre sont amplifiées.



Figure III-2 – Variation de la largeur spectrale amplifiée en fonction de la longueur d'onde centrale du spectre injecté, dans le cas (a) de l'Yb: SYS et (b) de l'Yb: YSO. Le symbole «  $\times$  » indique le point expérimental.

La simulation numérique de l'Yb: YSO a été effectuée en gardant les mêmes paramètres de gain et de taux d'inversion initial que l'Yb: SYS (figure III-1). Par contre, la longueur d'onde naturelle d'émission de l'Yb: YSO étant située un peu moins de 10 nm plus bas que celle de l'Yb: SYS, nous avons adapté la plage de longueurs d'onde injectées en conséquence. Contrairement à l'Yb: SYS pour lequel la largeur spectrale amplifiée varie de 3 à 5 nm suivant longueur d'onde injectée (figure III-2a), cette dernière ne dépasse pas 3 nm dans le cas de l'Yb: YSO (figure III-2b).

En ce qui concerne la variation de la longueur d'onde centrale du spectre amplifié en fonction de la longueur d'onde centrale du spectre injecté (figure III-3), nous remarquons que pour l'Yb: SYS, nous ne sommes pas très éloignés de la première bissectrice dans le cadre de nos expériences. Dans le cas de l'Yb: YSO, nous remarquons un saut de longueur d'onde de 1055 à 1070 nm pour une longueur d'onde injectée d'approximativement 1062 nm. Ce saut est dû au fait que le gain présente un creux entre 1055 et 1070 nm entraînant une amplification préférentielle à ces deux longueurs d'onde, et une amplification nettement moins importante entre les deux. Un saut similaire est également observé pour une longueur d'onde injectée avoisinant 1070 nm, pour les mêmes raisons.

Une façon de mieux comprendre ce phénomène est de représenter graphiquement les spectres amplifiés pour différentes longueur d'onde centrale du spectre injecté (figure III-4, p.156). On s'aperçoit alors que le spectre amplifié est formé de pics relativement étroits (< 2 nm), à des longueurs d'onde fixes (1040 nm, 1055 nm, et 1070 nm) quelle que soit la longueur d'onde centrale injectée. En effet, le seul changement que nous remarquons lorsque la longueur d'onde injectée  $\lambda_{entrée}$  varie est qu'un des pics est favorisé par rapport aux autres. Ainsi, pour

1051nm< $\lambda_{entrée}$ <1056nm, on voit que c'est le pic à 1055 nm qui est favorisé (pour  $\lambda_{entrée}$ <1051nm, c'est le pic à 1040 nm, pour 1060nm< $\lambda_{entrée}$ <1070nm, c'est le pic à 1070, et enfin pour  $\lambda_{entrée}$ <1070nm, c'est le pic à 1080 nm). En revanche, si nous faisons la même étude pour un amplificateur régénératif basé sur l'Yb: SYS (figure III-5, p.157), nous voyons que le spectre des impulsions amplifiées reste relativement large (environ 4 nm à mi-hauteur) lorsque la longueur d'onde centrale du spectre injecté varie de 1060 à 1070 nm.



Figure III-3 – Variation de la longueur d'onde centrale du spectre amplifié en fonction de la longueur d'onde centrale du spectre injecté, dans le cas (*a*) de l'Yb: SYS et dans le cas (*b*) de l'Yb: YSO (à droite). Le symbole «  $\times$  » indique le point expérimental.

En conclusion, le cristal d'Yb: YSO n'est pas adapté à la production d'impulsions brèves à cause des fluctuations importantes de son spectre d'émission autour de la longueur d'onde d'émission optimale. L'idée d'exploiter les creux de son spectre d'émission comme l'équivalent d'un étalon intracavité n'est pas réalisable d'après nos simulations numériques.



Figure III-4 – Etude d'un amplificateur régénératif basé sur le cristal d'Yb: YSO en fonction de la longueur d'onde centrale d'injection  $\lambda_{entrée}$ . Le spectre des impulsions amplifiées se présente sous la forme de pics étroits à 1040 nm, 1055 nm, 1070 nm, ou encore 1080 nm.



Figure III-5 – Etude d'un amplificateur régénératif basé sur le cristal d'Yb: SYS en fonction de la longueur d'onde centrale d'injection  $\lambda_{entrée}$ . Contrairement au cas de l'Yb: YSO, le spectre des impulsions amplifiées est relativement large (largeur à mi-hauteur avoisinant 4 nm) quel que soit  $\lambda_{entrée}$ .

# ANNEXE IV

# Propriétés de cristaux dopés à l'ytterbium

Acronyme	SYS	BOYS	GdCOB	YSO	KGW	KYW	YAG
Nom complet	SrY4(SiO4)3O	Sr <sub>3</sub> Y(BO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	Ca4YO(BO3)3	Y <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub>	KGd(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	KY(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	Y <sub>3</sub> Al <sub>5</sub> O <sub>12</sub>
Température de fusion (K)	2070	1350	1480	2000	1075	1075	1970
Conductivité thermique (du matériau non dopé) (W/m/K)	1,9	1,5	2,0	4,4	3,8	3,8	10,7
Masse molaire (g/mol)	735,5	528,2	510,0	285,9	692,8	623,7	593,6
Volume de maille (Å <sup>3</sup> )	522,6	1251	449,7	885,3	637,8	631,4	1729
Énergies des sous- niveaux de $^2\mathrm{F}_{5/2}\left(\mathrm{cm}^{-1} ight)$	10884 10711 10211	10908 10405 10229	11089 10706 10246	10878 10420 10194	10682 10471 10188	10695 10476 10187	10902 10624 10327
Énergies des sous- niveaux de <sup>2</sup> F <sub>7/2</sub> (cm <sup>-1</sup> )	810 580 380 0	734 469 179 0	1003 668 423 0	715 494 113 0	535 385 163 0	568 407 169 0	785 612 565 0
Temps de vie radiatif (ms)	0,82	1,24	2,44	0,67	0,60	0,60	0,95
Section efficace d'émission stimulée (pm²)	0,50	0,30	0,50	0,65	2,8	3,0	2,1
Longueur d'onde d'émission (nm)	1024	1025	1032	1042	1023	1025	1031
Section efficace d'absorption (pm <sup>2</sup> )	1,20	0,94	1,12	3,1	1,2	1,33	0,75
Longueur d'onde d'absorption (nm)	979	975	976	979	981	981,2	942

Source : référence 32.

## **PUBLICATIONS ET CONFÉRENCES DE L'AUTEUR**

Articles publiés dans des revues internationales avec comité de lecture

F. Druon, S. Chénais, <u>P. Raybaut</u>, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, G. Aka, B. Viana, S. Mohr and D. Kopf, "Diode-pumped YbSr<sub>3</sub>Y(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> femtosecond laser", *Opt. Lett.* **27**, 197 (2002).

F. Druon, S. Chénais, <u>P. Raybaut</u>, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, P. H. Haumesser, B. Viana, D. Vivien, S. Dhellemmes, V. Ortiz and C. Larat, "Apatite-structure crystal, Yb<sup>3+</sup>SrY<sub>4</sub>(SiO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>O, for the development of diodepumped femtosecond lasers", *Opt. Lett.* **27**, 1914 (2002).

F. Druon, S. Chénais, <u>P. Raybaut</u>, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, G. Aka, B. Viana, D. Vivien, J.P. Chambaret, S. Mohr and D. Kopf, "Largely tunable diode-pumped sub-100-fs Yb: BOYS laser", *Applied Physics B* **74** (suppl.), S201-S203 (2002).

F. Druon, G.J. Valentine, S. Chénais, <u>P. Raybaut</u>, F. Balembois, P. Georges, A. Brun, A.J. Kemp, W. Sibbett, S. Mohr, D. Kopf, D.J.L. Birkin, D. Burns, A. Courjaud, C. Hönninger, F. Salin, R. Gaumé, A. Aron, G. Aka, B. Viana, C. Clerc and H. Bernas, "Diode-pumped femtosecond oscillator using ultra-broad Yb-doped crystals and modelocked using low-temperature grown or ion implanted saturable-absorber mirrors", *European Physical Journal* 20, 177-182 (2003).

<u>P. Raybaut</u>, F. Druon, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, B. Viana and D. Vivien, "Directly diode-pumped Yb<sup>3+</sup>:SrY<sub>4</sub>(SiO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>O regenerative amplifier", *Opt. Lett.* **28** (22), p. ? (15 novembre 2003).

### Conférences avec publication d'actes dans des congrès internationaux

F. Druon, S. Chénais, <u>P. Raybaut</u>, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, G. Aka, B. Viana, D. Vivien, J.P. Chambaret, S. Mohr and D. Kopf, "Largely-tunable diode-pumped sub-100-fs Yb: BOYS laser", Post-deadline paper in *Ultrafast Optics*, Québec, Canada (juillet 2001).

F. Druon, S. Chénais, <u>P. Raybaut</u>, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, G. Aka, B. Viana, D. Vivien, S. Mohr and D. Kopf, "CW and femtosecond regime of a new very broadband Yb-doped BOYS crystal", *OSA Trends in Optics and Photonics* **68**, Advanced Solid-State Lasers, 164-167 (2002).

F. Druon, S. Chénais, <u>P. Raybaut</u>, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, A. Aron, G. Aka, B. Viana, D. Vivien, A. Courjaud, C. Hönninger and F. Salin, "Oscillateurs laser femtoseconde à base de cristaux de borates inédits dopés aux ions ytterbium", *J. Phys. IV France* **12**, 5-351 à 5-353 (2002).

<u>P. Raybaut</u>, F. Druon, S. Chénais, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, B. Viana, D. Vivien, C. Larat, V. Ortiz and S. Dhellemmes, "Diode-pumped 100-fs lasers based on a new apatite-structure crystal : Yb<sup>3+</sup>:SrY<sub>4</sub>(SiO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>O", *OSA Trends in Optics and Photonics* **83**, Advanced Solid-State Photonics, 170-174, San Antonio, Etats-Unis (février 2003).

### Conférences dans des congrès internationaux

<u>P. Raybaut</u>, F. Druon, S. Chénais, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, B. Viana, D. Vivien, C. Larat, V. Ortiz and S. Dhellemmes, "Directly diode-pumped Yb<sup>3+</sup>:SrY<sub>4</sub>(SiO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>O 100-fs lasers", in *Conference on Laser and Electro-Optics*, Baltimore, Etats-Unis (juin 2003).

<u>P. Raybaut</u>, F. Druon, S. Chénais, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, B. Viana, D. Vivien, C. Larat, V. Ortiz and S. Dhellemmes, "Diode-pumped 100-fs lasers based on a new apatite-structure crystal : Yb<sup>3+</sup>:SrY<sub>4</sub>(SiO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>O", in *Conference on Laser and Electro-Optics Europe*, Munich, Allemagne (juin 2003).

## Conférences invitées dans des congrès internationaux

F. Druon, <u>P. Raybaut</u>, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, G. Aka, B. Viana and D. Vivien, "Development of diode-pumped femtosecond lasers based on new ytterbium doped crystals", 12th Internationnal Laser Physics Workshop (LPHYS'03), Hambourg, Allemagne (août 2003).

F. Druon, <u>P. Raybaut</u>, F. Balembois, P. Georges, A. Brun, R. Gaumé, G. Aka, B. Viana and D. Vivien, "Diodepumped femtosecond lasers based on new ytterbium doped crystals", *third Russian-French Laser Symposium (RFLS)*, Moscou, Russie (octobre 2003).

### Poster dans un congrès international

M. Jacquemet, <u>P. Raybaut</u>, S. Chénais, F. Druon, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, B. Viana, D. Vivien and B. Ferrand, "CW diode pumped Yb: YSO laser for the development of a stable standard of optical frequencies", in *Conference on Laser and Electro-Optics*, Baltimore, Etats-Unis (juin 2003).

### **R**ÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- G. D. Reid and K. Wynne, "Ultrafast Laser Technology and Spectroscopy", in *Encyclopedia of Analytical Chemistry*, R.A. Meyers (Ed.), pp. 13644-13670, John Wiley & Sons Ltd, Chichester (2000).
- 2. S. Chénais, "Nouveaux matériaux laser dopés à l'ytterbium : performances en pompage par diode et étude des effets thermiques", *Thèse de Doctorat en Sciences* de l'Université Paris-Sud (2002).
- 3. B. Cagnac et J.-C. Pebay-Peyroula, "Physique atomique", Dunod (1975).
- 4. W. Koechner, "Solid-State Laser Engineering" (Fifth Revised and Updated Edition), Springer-Verlag (1999).
- 5. C. Rullière (Ed.), "Femtosecond Laser Pulses", Springer-Verlag (1998).
- 6. C. Iaconis and I. A. Walmsley, "Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses", *Opt. Lett.* **23**, 792-5 (1998).

C. Dorrer, S. Ranc, J. -P. Rousseau, C. Le Blanc and J. -P. Chambaret, "Single-shot real-time characterization using spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction", in Conference on Lasers and Electro-Optics, OSA Technical Digest, 533-4 (1999).

 Akturk, S., M. Kimmel, P. O'Shea and R. Trebino, "Measuring spatial chirp in Ultrashort Pulses using single-shot FROG", Optics Express 11(1), 68-78 (2003)

Gu, X., L. Xu, M. Kimmel, E. Zeek, P. O'Shea, A. P. Shreenath and R. Trebino, "Frequency-resolved optical gating and single-shot spectral measurements reveal fine structure in microstructure-fiber continuum", *Optics Letters* **27**(13), 1174-6 (2002).

R. Trebino, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, J. N. Sweetser, M. A. Krumbugel and B. A. Richmand, "Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating", *Rev. Sci. Instr.* **68**, 3277-95 (1997).

D. Strickland and G. Mourou, "Compression of amplified chirped optical pulses", *Opt. Comm.* 56, 219-221 (1985).

P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot and G. Mourou, "Generation of ultrahigh peak power pulses by chirped pulse amplification", *IEEE J. Quantum Electron.* **24**, 398-403 (1988).

- 9. S. Backus, C.G. Durfee, M.M. Murnane and H.C. Kapteyn, "High Power Ultrafast Lasers", Rev. Sci. Instrum. 69(3), 1207-1223 (1998).
- E.B. Treacy, "Optical Pulse Compression with Diffraction Gratings", *IEEE J. Quantum Electron.* 5(9), 454-458 (1969).
- 11. R.L. Fork, O.E. Martinez and J.P. Gordon, "Prism Compression", Opt. Lett. 9, 150-152 (1984).
- 12. R.L. Fork, C. Brito, C.H.P.C. Becker and C.V. Shank, "Compression of Optical Pulses to Six Femtoseconds by Using Cubic Phase Compensation", *Opt. Lett.* **12**, 483-485 (1987).
- 13. A. Öffner, "Unit power imaging catoptric anastigmat", U.S. patent 3,748,015 (1971).
- 14. A. Suzuki, "Complete analysis of a two-mirror unit magnification system", Appl. Opt. 22, 3943-3950 (1983).
- 15. P.F. Moulton, "Spectroscopic and Laser Characteristics of TiAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>", J. Opt. Soc. Am. B **3**(1), 125-133 (1986).
- D.J. Harter, O. Montoya, J. Squier, J. Nees, P. Bado and G. Mourou, "Short pulse generation from Ti:doped materials", *Conference on Lasers and Electro-Optics*, technical digest serie Optical Society of America paper PD 6 (1988).

F. Estable, F. Salin, P. Georges, J. F. Roch and A. Brun, "Theoritical and Experimental Study of High Gain Multipass Amplifier for CW and Femtosecond Lasers", *Proceedings of Advanced Solid State Lasers*, Salt Lake City (1988).

J. M. Eggleston, L. G. Deshazer and K. W. Kangas, "Characteristics and kinetics of laser-pumped Ti:sapphire oscillators", *IEEE J. Quantum Electron.* 24, 1009-1015 (1988).

S. Basu, P. May and J.M. Halbout, "64-dB amplification of 19-psec laser-diode pulsed in Ti-sapphire laser", *Opt. lett.* **14**, 1272-1274 (1989).

P. Georges, F. Estable, F. Salin, J.P. Poizat, P. Grangier and A. Brun, "High-efficiency multipass Ti:sapphire amplifiers for a continous-wave single-mode laser", *Opt. Lett.* **16**, 144-146 (1991).

J. Squier, F. Salin, G. Mourou and D. Harter, "100-fs pulse generation and amplification in Ti:Al<sub>2</sub>0<sub>3</sub>", *Opt. Lett.* **16**, 324-326 (1991).

J. Squier and G. Mourou, "Tunable solid-state lasers create ultrashort pulses", Laser Focus World, 51 (1992).

F. Estable, "Amplification régénérative et multipassage d'impulsions lumineuses dans des milieux solides (YAG dope néodyme, alexandrite, Saphir dopé Titane) ", *Thèse de doctorat en sciences*, Université Paris-Sud centre d'Orsay (1992).

F. Estable, E. Mottay and F. Salin, "High-energy gain-guided Ti:Al<sub>2</sub>0<sub>3</sub> oscillator", *Opt. Lett.* **18**, 711-713 (1993).

M.D. Perry and G. Mourou, "Terrawatt to petawatt subpicosecond lasers", Science 264, 917 (1994).

C.P.J. Barty, C.L. Gordon III and B.E. Lemoff, "Multiterawatt 30-fs Ti:sapphire laser system", *Opt. Lett.* **19**, 1443-1445 (1994).

C. P. J. Barty, T. Guo, C. Le Blanc, F. Raksi, C. Rose-Petruck, J. Squier, K. R. Wilson, V.V. Yakovlev and K. Yamakawa, "Generation of 18-fs, multiterawatt pulses by regenerative pulse shaping and chirped-pulse amplification", *Opt. Lett.* **21**, 668-670 (1996).

C. Rouyer, N. Blanchot, I. Allais, E. Mazataud, J. L. Miquel, M. Nail, A. Pierre and C. Sauteret, "Production and characterisation of intensifies above 2x10<sup>19</sup> W/cm<sup>2</sup>, obtained with 30-TW 300-fs pulses generated in a Ti:sapphire/Nd-doped mixed-glass chain", *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 55-58 (1996).

F. Falcoz, F. Kerboull, F. Druon, F. Balembois, P. Georges and A. Brun, "Small signal gain investigations for a continuous-wave diode-pumped Q-switched Cr:LiSAF laser", *Opt. Lett.* **21**, 1253-1255 (1996).

J. Itatani, Y. Nabekawa, K. Kondo and S. Watanabe, "Generation of 13-TW, 26-fs pulses in a Ti:sapphire laser", *Opt. Comm.* **134**, 134-138 (1997).

S. Backus, C. G. Durfee III, G. Mourou, H. C. Kapteyn and M. M. Murnane, "0.2 TW laser system at 1 kHz", *Opt. Lett.* **22**, 1256-1258 (1997).

S. Sartania, Z. Cheng, M. Lenzner, G. Tempea, Ch. Spielrmann and F. Krausz, "Generation of 0.1 TW 5-fs optical pulses at a 1-kHz repetition rate", Opt. Lett. **22**, 1562-1564 (1997).

B. C. Stuart M. D. Perry, J. Miller, G. Tietbohl, S. Herman, J. A. Britten, C. Brown, D. Pennington, V. Yanovsky and K. Wharton, "125-TW Ti:sapphire/Nd: glass laser system", *Opt. Lett.* **22**, 242-244 (1997).

K. Yamakawa, M. Aoyama, S. Matsuoka, T. Kase, Y. Akahane and H. Takuma, "100-TW sub-20-fs Ti:sapphire laser system operating at a 10-Hz repetition rate", *Opt. Lett.* **23**, 1468-1470 (1998).

 A. Baltuska, Z. Wei, M. S. Pshenichnikov, D. A. Wiersma and R. Szipocs, "All-solid-state cavity-dumped sub-5-fs laser", *Appl. Phys. B.* 65, pp. 175-188 (1997).

- P. C. Wagenblast, U. Morgner, F. Grawert, T. R. Schibli, F. X. Kartner, V. Scheuer, G. Angelow and M. J. Lederer, "Generation of sub-10-fs pulses from a Kerr-lens mode-locked Cr 3+ :LiCAF laser oscillator by use of third-order dispersion-compensating double-chirped mirrors", *Opt. Lett.* 27 1726 (2002).
- F. Balembois, F. Falcoz, F. Kerboull, F. Druon, P. Georges, A. Brun, "Theoretical and Experimental Investigations of Small-Signal Gain for a Diode-Pumped Q-Switched Cr:LiSAF Laser", *IEEE J. Quantum Electron.* 33, 269-278 (1997).
- 20. A. Courjaud, "Sources lasers femtoseconde pompées par diodes basées sur l'ion ytterbium", *Thèse de Doctorat en Sciences* de l'Université Bordeaux I, (2001).
- F. Druon, S. Chénais, P. Raybaut, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, G. Aka, B. Viana, S. Mohr and D. Kopf, "Diode-pumped Yb<sup>3+</sup>:Sr<sub>3</sub>Y(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> femtosecond laser", *Opt. Lett.* 27, 197-199 (2002).
- G. Aka, A. Kahn-Harari, F. Mougel, D. Vivien, F. Salin, P. Coquelin, P. Colin, D. Pelenc and J.P. Damelet, "Linear- and nonlinear- optical properties of a new gadolinium calcium oxoborate crystal, Ca4GdO(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>", J. Opt. Soc. Am. B 14, 2238-2247 (1997).
- F. Druon, F. Balembois, P. Georges, A. Brun, A. Courjaud, C. Hönninger, F. Salin, A. Aron, F. Mougel, G. Aka and D. Vivien, "Generation of 90-fs pulses from a mode-locked diode-pumped Yb<sup>3+</sup>:Ca<sub>4</sub>GdO(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> laser" Opt. Lett. 25, 423-425 (2000).
- 24. P.-H. Haumesser, R. Gaumé, J.-M. Benitez, B. Viana, B. Ferrand, G. Aka and D. Vivien, "Czochralski growth of six Yb-doped double borate and silicate laser materials", *J. Cryst. Growth* **233**, 233 (2001).

P.-H. Haumesser, R. Gaumé, B. Viana, G. Aka and D. Vivien, "Yb<sup>3+</sup> lasers based on Yb doped M<sub>3</sub>RE(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> where M=Ba,Sr and RE=Lu,Y,Sc", US Patent n<sup>o</sup>09/782,787, 14 feb. 2001.

- 25. R. Beach, M. Shinn, L. Davis, R. Solarz and W. Krupke, "Optical absorption and stimulated emission of neodymium in yttrium orthosilicate", *IEEE J. Quant. Elec.* **26**, 8, 1405 (1990).
- C. Deka, B. Chai, Y. Shimony, X. Zhang, E. Munin and M. Bass, "Laser performance of Cr<sup>3+</sup>:Y<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>", *Appl. Phys. Lett.* 61, 2141-2143 (1992).

Y.-K. Kuo, H.-M. Chen and J.-Y. Chang, "Numerical study of the Cr:YSO Q-switched ruby laser", *Opt. Eng.* **40** (9), 2031-2035 (2001).

C. Li, R. Moncorgé, J.C. Souriau and C. Wyon, "Efficient 2.05μm room temperature Y<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>:Tm<sup>3+</sup> cw laser", *Opt. Comm.* **101**, 356 (1993).

 C. Li, C. Wyon and R. Moncorgé, "Spectroscopic properties and fluorescence dynamics of Er<sup>3+</sup> and Yb<sup>3+</sup> in Y<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>", *IEEE J. Quant. Elec.* 28, 1209-1221 (1992).

C. Li, R. Moncorgé, J.C. Souriau, C. Borel and C. Wyon, "Room temperature cw laser action of Y<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>:Yb<sup>3+</sup>, Er<sup>3+</sup> at 1.57µm", *Opt. Comm.* **107**, 61-64 (1994).

T. Schweizer, T. Jensen, E. Heumann and G. Huber, "Spectroscopic properties and diode-pumped 1.6 μm laser performances in Yb-codoped Er:Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> and Er:Y<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>", *Opt. Comm.* **118**, 557 (1995).

- 29. P.H. Haumesser, "Elaboration par croissance de Czochralski, caractérisation spectroscopique et propriétés laser de monocristaux dopés par l'ytterbium", *Thèse de doctorat en sciences des matériaux*, Université Pierre et Marie Curie Paris VI (2000).
- K.B. Steinbruegge, T. Henningsen, R.H. Hopkins, R. Mazelsky, N.T. Melamed, E.P. Riedel and G.W. Roland, "Laser properties of Nd"<sup>=</sup> and Ho<sup>3+</sup> doped crystals with the apatite structure", *Applied Optics* 11 (5), 999 (1972).

K.B. Steinbruegge and G.D. Baldwin, "Evaluation of CaLaSOAP:Nd for high-power flash-pumped Q-switched lasers", *Applied Physics Letters* **25** (4), 220 (1974).

- F. Druon, S. Chénais, P. Raybaut, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, P. H. Haumesser, B. Viana, D. Vivien, S. Dhellemmes, V. Ortiz and C. Larat, "Apatite-structure crystal, Yb<sup>3+</sup>:SrY<sub>4</sub>(SiO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>O, for the development of diode-pumped femtosecond lasers" *Opt. Lett.* 27, 1914-1916 (2002).
- 32. R. Gaumé, "Relations structures-propriétés dans les lasers solides de puissance à l'ytterbium. Élaboration et caractérisation de nouveaux matériaux et de cristaux composites soudés par diffusion", *Thèse de Doctorat* de l'Université Pierre et Marie Curie Paris VI (2002).
- 33. H.A. Haus, J.G. Fujimoto and E.P. Ippen, "Structures for additive pulse mode-locking", J. Opt. Soc. Am. B
  8, No. 10 (1991).
- 34. D.E. Spence and P.N. Kean, and W. Sibett, "60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser", *Opt. Lett.* **16** (1), 42 (1991).
- 35. U. Keller, G.W. t'Hooft, W.H. Knox and J.E. Cunningham, "Femtosecond pulses from a continuously self-starting passively mode-locked Ti:sapphire laser", *Opt. Lett.* **16** (13), 1022 (1991).
- 36. F.X. Kärtner, J.Aus der Au and U. Keller, "Mode-locking with slow and fast saturable absorbers what's the difference ?", *IEEE J. Quantum Electron.* **4**, No. 2 (1998).

- 37. U. Keller, K.J. Weingarten, F.X. Kärtner, D. Kopf, B. Braun, I.D. Jung, R. Fluck, C. Hönninger, N. Matuschek and J. Aus der Au, "Semiconductor Saturable Absorber Mirrors (SESAM's) for Femtosecond to Nanosecond Pulse Generation in Solid-State Lasers", *IEEE J. Quantum Electron.* 2, No. 3 (1996).
- I.D. Jung, F.X. Kärtner, N. Matuschek, D.H. Sutter, F. Morier-Genoud, G. Zhang, U. Keller, V. Scheuer, M. Tilsch and T. Tschudi, "Self-Starting 6.5 Pulses fs from a Ti:Saphire Laser", *Opt. Lett.* 22, 1009-1011 (1997).
- 39. D.J. Jung, F.X. Kärtner, L.R. Brovelli, M. Kamp and U. Keller, "Experimental verification of soliton modelocking using only a slow saturable absorber", *Opt. Lett.* **20**, 1892-1894 (1995).
- F.X. Kärtner, I.D. Jung and U. Keller, "Soliton Mode-Locking with Saturable Absorber", IEEE J. Quantum Electron. 2(3) (1996).
- 41. R. Fluck, I.D. Jung, F.X. Kärtner, G. Zhang and U. Keller, "Broadband saturable absorber for 10 fs pulse generation", *Opt. Lett.* **21**, 743-745 (1996).
- 42. D.K. Negus, L. Spinelli, N. Goldblatt and G. Feugnet, "Sub-100 femtosecond pulse generation by Kerr lens mode-locking in Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>", in *Advanced Solide-State Lasers* **10**, 120-124 (1991).

F. Salin, J. Squier and M. Piché, "Mode locking of Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> lasers and self-focusing: a Gaussian approximation", *Opt. Lett.* **16** (21), 1674 (1991).

- 43. F. Salin and J. Squier, "Gain Guiding in Solid-State Lasers", *Opt. Lett.* 17, 1352-1354 (1992).
  M. Piché and F. Salin, "Self-mode locking of solid-state lasers without apertures", *Opt. Lett.*, 18, 1041-1043 (1993).
- 44. T. Brabec, C. Spielmann, P.F. Curley and F. Krausz, "Kerr lens modelocking", *Opt. Lett.* **17**, pp. 1292-1294 (1992).
- G. Cerullo, S. De Silvestri, V. Magni and L. Pallaro, "Resonators for Kerr-lens mode-locked femtosecond Ti:Saphire lasers", *Opt. Lett.* 19, 807-809 (1994).

G. Cerullo, S. De Silvestri and V. Magni, "Self-starting Kerr-lens modelocking of a Ti:Saphire lasers", *Opt. Lett.* **19**, 1040-1042 (1994).

46. A. Kasper and K.J. White, "10-fs pulse generation from a unidirectional Kerr-lens mode-locked Ti:Saphire laser", *Opt. Lett.* **21**, 360-362 (1996).

 T.B. Norris, W. Sha, W.J. Schaff, X.J. Song, Z. Liliental-Weber and E.R. Weber, "Transient absorption of low-temperature molecular-beam epitaxy grown GaAs", in Picosecond Electronics and Optoelectronics, T.C.L. Sollner and J. Shah, Eds Washington, DC: Opt. Soc. Amer., 9, 244-247 (1991).

U. Siegner, R. Fluck, G. Zhang and U. Keller, "Ultrafast high-intensity nonlinear absorption dynamics in low-temperature grown gallium arsenide", *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2566-2568 (1996).

- J. Aus der Au, D. Kopf, F. Morier-Genoud, M. Moser and U. Keller, "60 fs pulses from a diode-pumped Nd :glass laser", *Opt. Lett.* 22, 307-309 (1997).
- 49. F.X. Kärtner and U. Keller, "Stabilization of soliton-like pulses with a slow saturable absorber", *Opt. Lett.*20, 16-18 (1995).
- 50. H.A. Haus, "Theory of modelocking with a fast saturable absorber", J. Appl. Phys. 46, 3049 (1975).
- H.W. Mocker and R.J. Collins, "Mode competition and self-locking effects in a Q-switched ruby laser", *Appl. Phys. Lett.* 7, 270-273 (1965).

A.J. DeMaria, D.A. Stetser and H. Heynau, "Self mode-locking of lasers with saturable absorbers", *Appl. Phys. Lett.* 8, 174-176 (1966).

- 52. U. Keller, D.A.B. Miller, G.D. Boyd, T.H. Chiu, J.F. Ferguson and M.T. Asom, "Solid-state low-loss intracavity saturable absorber for Nd:YLF lasers : an antiresonant semiconductor Fabry-Perot saturable absorber", *Opt. Lett.* **17**, 505-507 (1992).
- 53. H.A. Haus, "Parameter ranges for cw passive modelocking", IEEE J. Quantum Electron. 12, 169-176 (1976).
- 54. F.X. Kärtner, L.R. Brovelli, D. Kopf, M. Kamp, I. Calasso and U. Keller, "Control of solid-state laser dynamics by semiconductor devices", *Opt. Eng.* **34**, 2024-2036 (1995).
- 55. C. Hönninger, R. Paschotta, F. Morier-Genoud, M. Moser and U. Keller, "Q-switching stability limits of continuous-wave passive mode locking", *J. Opt. Soc. Am. B* **16** (1), 46-56 (1999).
- 56. C. Hönninger, F. Morier-Genoud, M. Moser, U. Keller , L. R. Brovelli and C. Harder, "Efficient and tunable diode-pumped femtosecond Yb:glass lasers", *Opt. Lett.* 23, 126-128 (1998).
- H. Liu, J. Nees, G. Mourou, "Diode-pumped Kerr-lens mode-locked Yb<sup>3+</sup>:KY(WO<sub>4</sub>)<sup>2</sup> laser", Opt. Lett. 26, 1723 (2001).
- 58. F. Brunner, G. J. Sphler, J. Aus der Au, L. Krainer, F. Morier-Genoud, R. Paschotta, N. Lichtenstein, S. Weiss, C. Harder, A. A. Lagatsky, A. Abdolvand, N. V. Kuleshov and U. Keller, "Diode-pumped femtosecond Yb:KGW laser with 1.1-W average power", *Opt. Lett.* 25, 1119 (2000).

- C. Honninger, R. Paschotta, M. Graf, F. Morier-Genoud, G. Zhang, M. Moser, S. Biswal, J. Nees, A. Braun, G. Mourou, I. Johannsen, A. Giesen, W. Seeber and U. Keller, "Ultrafast ytterbium-doped bulk laser amplifiers", *Appl. Phys. B* 69, 3 (1999).
- G.D.Goodno, Z.Guo, R.J.D.Miller, I.J.Miller, J.W.Montgomery, S.R.Adhav and R.S.Adhav, "Investigation of β-BaB2O4 as a Q switch for high power applications", *Appl. Phys.Lett.* 66(13), 1575 (1995).

E.Cheung, S.Palese, H.Injeyan, C.Hoefer, J.Ho, R.Hilyard, H.Komine, J.Berg and W.Bosenberg, "High Power Conversion to Mid-IR Using KTP and ZGP OPOs", *OSA Trends in Optics and Photonics* **26**, 514, Advanced Solid State Lasers (1999).

S.J.Hamlin, R.Wu, L.A.Bosworth, J.A.Hutchinson, L.T.Marshal and T.Caughey, "BBO Electro-optical Q-switch @ 1.54 µm", *OSA Trends in Optics and Photonics* **19**, 171, Advanced Solid State Lasers (1998).

H.Nakatani, W.Bosenberg, L.K.Cheng and C.L.Tang, "Linear electro-optic effect in barium metaborate", *Appl. Phys.Lett.* **52**(16), 1288 (1988).

61. W.K. Krupke and L.L. Chase, "Ground-state depleted solid-state lasers: principles, characteristics and scaling", *Opt. Quantum Electron.* **22**, s1 (1989).

C.D. Nabor, "Q-switched operation of quasi-three-level lasers", *IEEE J. Quantum Electron.* **30** (12), 2896-2901 (1994).

R.J. Beach, "Optimization of quasi-three level end-pumped Q-switched lasers", *IEEE J. Quantum Electron.* **31** (9), 1606-1613 (1995).

G.L. Bourdet, "Comparison of pulse amplification performances in longitudinally pumped Ytterbium doped materials", *Optics comm.* **200**, 331-342 (2001).

- 62. F. Druon, "Nouvelles sources laser d'impulsions brèves pompées par diode", *Thèse de Doctorat en Sciences* de l'Université Paris Sud (2000).
- 63. L.M. Frantz and J.S. Nodvik, "Theory of pulse propagation in a laser amplifier", J. Appl. Phys. 34, 2346-2348 (1963).
- 64. G. Cheriaux, P. Rousseau, F. Salin, J.P. Chambaret, B. Walker and L.F. Dimauro, "Aberration-free stretcher design for ultra-short pulse amplification", *Opt. Lett.* **21**, 414-416 (1996).
- H. Liu, S. Biswal, J. Paye, J. Nees, G. Mourou, C. Hönninger and U. Keller, "Directly diode-pumped millijoule subpicosecond Yb:glass regenerative amplifier", *Opt. Lett.* 24, 917-919 (1999).

- 66. H. Liu, J. Nees and G. Mourou, "Directly diode-pumped Yb:KY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> regenerative amplifiers", *Opt. Lett.* 27, 722-724 (2002).
- 67. A. Courjaud, R. Maleck-Rassoul, N. Deguil, C. Hönninger and F. Salin, "Diode pumped multikilohertz femtosecond amplifier", *OSA Trends in Optics and Photonics* **68**, Advanced Solid-State Lasers, 121-123 (2002).
- A. M. Weiner, D. E. Leaird, J. S. Patel and J. R. Wullert II, "Programmable shaping of femtosecond optical pulses by use of 128-element liquid-crystal phase modulator", *IEEE J. Quantum Electron.* 28, 908–919 (1992).

M. A. Wefers and K. A. Nelson, "Programmable phase and amplitude femtosecond pulse shaping", *Opt. Lett.* **18**, 2032–2034 (1993).

M. A. Wefers and K. A. Nelson, "Analysis of programmable ultrashort waveform generation using liquidcrystal spatial light modulators," J. Opt. Soc. Am. B 12, 1343–1362 (1995).

K. M. Mahoney and A. M. Weiner, "A femtosecond pulseshaping apparatus containing microlens arrays for use with pixellated spatial light modulators", *IEEE J. Quantum Electron.* **32**, 2071–2077 (1996).

C. Dorrer, F. Salin, F. Verluise and J.-P. Huignard, "Programmable phase control of femtosecond pulses by use of a nonpixelated spatial light modulator", *Opt. Lett.* **23**, 709–711 (1998).

A. Efimov, M. D. Moores, N. M. Beach, J. L. Krause and D. H. Reitze, "Adaptive control of pulse phase in a chirpedpulse amplifier", *Opt. Lett.* 23, 1915–1917 (1998).

- M. E. Fermann, V. da Silva, D. A. Smith, Y. Silberberg and A. M. Weiner, "Shaping of ultrashort optical pulses by using an integrated acousto-optic tunable filter", *Opt. Lett.* 18, 1505–1507 (1993).
- 70. P. Tournois, "Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptative compensation of group delay time dispersion in laser systems", *Opt. Commun.* **140**, 245-249 (1997).
- 71. F. Verluise, V. Laude, J.-P. Huignard, P. Tournois and A. Migus, "Arbitrary dispersion control of ultrashort optical pulses with acoustic waves", *J. Opt. Soc. Am. B* **17**, No.1, January 2000.
- 72. P. Tournois, "Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptative compensation of group delay time dispersion in laser systems", *Opt. Comm.* **140**, 245 (1997).
- 73. T.F. Johnston, "M<sup>2</sup> concept characterized beam quality", *Laser Focus World* 173 (1990).
  G.N. Lawrence, "Propose International standard for laser-beam quality falls short", *Laser Focus World* 109 (1994).

74. A.E. Siegman, "Defining the Effective Radius of Curvature for a Nonideal Optical Beam", *IEEE J. Quantum Electron.* **27**, 1146-1148 (1991).