

الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية  
République Algérienne Démocratique Et Populaire  
وزارة التعليم العالي والبحث العلمي  
Ministère de L'Enseignement Supérieur et de La Recherche Scientifique  
جامعة فرحات عباس - سطيف 1  
Université Ferhat Abbas - Sétif 1

## THÈSE

Présentée à l'Institut d'Optique et Mécanique de Précision pour l'obtention du  
Diplôme de

### DOCTORAT 3<sup>ème</sup> Cycle LMD

Domaine : Sciences et Techniques  
Filière : Optique et mécanique de Précision  
Spécialité: Optique et Photonique

Par  
**KHEBBACHE Naima**

## THÈME

*Dynamique Non Linéaire Des Lasers et Leurs  
Développements Par Effet Talbot*

**Soutenu : 20 Octobre 2016**

**Devant le jury composé de:**

Président du Jury	BOUAMAMA Larbi	Prof.	UFA Sétif 1
Directeur de these	DJABI Smaïl	Prof.	UFA Sétif 1
Co-directeur de these	BREVET Pierre François	Prof	UCB Lyon 1
Examineur	MEGUELLATI Saïd	MCA	UFA Sétif 1
Examineur	BENCKEIKH A/Halim	MCA	U.BBA

À ma famille  
À la mémoire de tous ceux qui nous ont quittés

## Remerciements

Abû Hurayrah rapporte que le messenger d'Allah Mouhamed dit : « *celui qui ne remercie pas les gens, ne remercie pas Allah* ». Je voudrai à mon tour remercier les gens qui m'ont aidé à réaliser ce travail.

Je tiens à remercier en premier lieu M. Smail Djabi, professeur à l'université Ferhat Abbas Sétif, directeur du laboratoire des systèmes photoniques et optique non linéaire (Isponl) pour avoir dirigé mon travail de thèse pendant ces 5 ans. Je voudrais aussi adresser mes plus vifs remerciements à mon co-directeur de thèse M. Pierre François Brevet, professeur à l'université Claude Bernard Lyon1 pour m'avoir accueilli dans son équipe « Optique Non Linéaire et Interfaces » (ONLI), sa gentillesse et sa disponibilité. Je les remercie très sincèrement de m'avoir permis de mener à bien ce travail de thèse.

Mes remerciements vont également aux membres de jury qui ont accepté d'évaluer mon travail de thèse. Je remercie sincèrement Monsieur Larbi Bouamama, professeur à l'université Ferhat Abbas Sétif 1 qui m'a fait l'honneur de présider le jury. Je suis également très reconnaissante envers Messieurs, M.Saïd Meguellati, Maître de conférences à l'université Ferhat Abbas Sétif 1 et M. Abdelhalim Bencheikh, Maître de conférences à l'université de Bordj Bou Arréridj d'avoir accepté le rôle d'examineur.

J'exprime ma grande gratitude à M. Abdlekrim Benaïche, notre ancien vice-recteur pour son aide précieuse, sans oublier notre ministère de l'enseignement supérieur pour avoir financier mon séjour en France.

Je remercie vivement Hugues Guillet de Chatelus pour son accueil chaleureux et pour m'avoir aidé à maîtriser sans peine les différentes techniques utilisées dans l'expérience de l'effet Talbot spatial et temporel au sein du laboratoire interdisciplinaire de physique (LIPHY) de l'université de Grenoble, ainsi que tous les membres de l'équipe Eric Lacot, Olivier Jaquin et Olivier Hugon.

Je remercie les membres du laboratoire des systèmes photoniques et optique non linéaire avec une pensée particulière pour Sara Marouf, avec qui j'ai partagé tous les moments heureux et difficiles, Redouane Bouchaala pour ses conseils et le soutien moral qu'il m'a apporté. Je remercie également M. Belkacem Bakhouch pour ses conseils et sa sympathie, M. Abdelhak Belkhir pour sa façon agréable de transmettre son savoir.

Je remercie toutes les personnes de l'équipe optique non linéaire et interfaces (ONLI), je commencerai par Anthony Maurice avec qui j'ai appris pleines de choses sur les expériences de la diffusion hyper Rayleigh et pour son bon humour communicatif, Oriane Bonhomme

avec qui j'ai pris beaucoup de plaisir à travailler et de faire des jolies mousses, Aurélie Bruyère pour sa bonne humeur et ses qualités humaines, Guillaume Reviold et Emeric Bergmann qui ont répondu à toutes mes questions au début de mon stage, Jeremy Riporto et la petite thésarde Lucile Sanchez pour le plaisir de discussions que nous avons partagés. Je remercie également Emanuel Benichou pour sa gentillesse ainsi que Cedric Ray, Franck Bertorelle, Isabelle Russier et Christian Jonin, sans oublier les stagiaires avec qui j'ai passé des bons moments de détente Albert, Youcef et Camille. Merci encore à l'équipe ONLI pour l'agréable cadeau qui m'ont offert.

Mes remerciements vont également à Mudasir Dar doctorant à l'université de Hyderabad pour l'aide précieuse qui m'a apporté pour améliorer ma langue anglaise mais aussi pour les discussions scientifiques.

Pour terminer, je souhaite remercier du plus profond de mon cœur ma famille qui m'a toujours soutenu. Cette thèse ne serait pas sans mes Parents qui m'ont toujours accompagné et encouragé dans mes efforts pour accéder à toujours plus de connaissance. Je les en remercie ici.

*Ce n'est pas la profession qui honore l'homme, c'est l'homme qui honore la profession*  
« Louis Pasteur »

## Table des matières

	Introduction générale	1
Chapitre 1	Dynamique non linéaire des lasers classe B	3
1-1	Introduction	4
1-2	Principe de fonctionnement des lasers impulsionnelles	5
1-2-1	Déclenchement actif	5
1-2-2	Déclenchement passif	8
1-3	Génération des impulsions par verrouillage des modes	9
1-3-1	Verrouillage actif	9
1-3-2	Verrouillage passif	10
1-4	Les absorbants saturables	11
1-5	Différentes classes des lasers	11
1-5-1	Laser de classe A	12
1-5-2	Laser classe B	12
1-5-3	Les lasers classe C	12
1-6	Les principales théories pour étudier la dynamique des lasers	13
1-6-1	La théorie des équations des vitesses	13
1-6-2	La théorie semi classique	13
1-6-3	La théorie quantique	13
1-7	Modèle mathématique du laser à absorbant saturable LSA	13
1-7-1	Les équations de vitesse	14
1-7-2	Système du LSA adimensionnel	16
1-7-3	Analyse numérique	17
1-8	Conclusion	20
	Bibliographie	22
Chapitre 2	Développement d'une source laser par effet Talbot	23
2-1	Introduction	
2-2	Effet Talbot spatial	24
2-3	Historique	25
2-4	Aspect théorique de l'effet Talbot spatial en champ proche	25
2-5	Fonction de transmission du réseau	26
2-6	Champ électrique dans l'approximation de Fresnel	27
2-7	Aspect théorique de l'effet Talbot spatial en champ lointain	28

2-8	Mesure de phase de Talbot angulaire	30
2-8-1	Principe	30
2-8-2	Dispositif experimental	31
2-9	Aspect théorique de l'effet Talbot spatial en champ lointain pou un réseau à deux dimensions (2D)	34
2-10	Simulation numérique	35
2-11	Génération de taux de répétition THz par effet Talbot dans un laser Ti-Sa à décalage de fréquence	38
2-12	Les cristaux saphir dopé au titane	39
2-13	Rôle de modulateur acousto-optique dans un laser FSF	40
2-13-1	Diffraction de Bragg	40
2-13-2	Décalage en fréquence	41
2-14	Lasers sans modes	42
2-15	Théorie de l'effet Talbot temporel dans les lasers à décalage de fréquence	43
2-15-1	Somme de Gauss	43
2-15-2	Laser FSF injecté par un laser continu CW	44
2-15-2-a	Cas d'un p pair ou q impair	45
2-15-2-b	Cas de p pair et q impaire	47
2-16	Dispositif experimental	49
2-17	Génération d'un peigne de fréquence avec des phases quadratiques dans un laser FSF	51
2-18	Réponse d'auto-corrélation d'un laser FSF	53
2-19	Conclusion	55
	Bibliographie	57
Chapitre 3	Diffusion Hyper Rayleigh : principe et montage expérimental	59
3-1	Introduction	60
3-2	Génération de la seconde harmonique	61
3-3	Diffusion hyper Rayleigh	63
3-4	Diffusion hyper Rayleigh résolue en polarisation	64
3-5	Dispositif experimental	67
3-6	Spectroscopie UV-visible	68
3-7	Conclusion	69

	Bibliographie	71
Chapitre 4	Diffusion hyper Rayleigh des nanoparticules métalliques dans un milieu de diffusion	72
4-1	Introduction	73
4-2	Propriétés des nanoparticules d'argent	74
4-3	Libre parcours moyen	75
4-4	Régime balistique	76
4-5	Régime de diffusion multiple	76
4-6	Préparation de la solution	77
4-7	Contrôle du signal HRS	78
4-8	Analyse en polarisation	82
4-9	Libre parcours moyen des photons diffusés	88
4-10	Effet de la diffusion sur l'intensité HRS	91
4-11	Conclusion	94
	Bibliographie	95
	Conclusion générale	97

## Liste des figures

<b>Figure 1.1</b>	Schéma d'un laser à rubis déclenché par miroir tournant	5
<b>Figure 1.2</b>	Principe de fonctionnement d'un modulateur acousto-optique	6
<b>Figure 1.3</b>	méthode de déclenchement « demi-onde », (a) en l'absence de tension appliquée au cristal, le plan de polarisation de la lumière issue du barreau n'est pas modifié. (b) quand la tension $V_{\lambda/4}$ est appliquée, le plan de polarisation tourne de $90^\circ$ à la.....	8
<b>Figure 1.4</b>	Verrouillage de la phase des modes par modulation à la fréquence $c/2L$ de leurs amplitudes	10
<b>Figure 1.5</b>	Diminution du temps de montée de l'impulsion par traversée de l'absorbant saturable	11
<b>Figure 1.6</b>	Structure d'un laser à absorbant saturable, $L$ est la longueur de la cavité, $M1$ et $M2$ sont les miroirs de la cavité et $l$ est la longueur du milieu actif et l'absorbant saturable	14
<b>Figure 1.7</b>	Diagrammes énergétiques d'un laser classe B à trois niveaux	14
<b>Figure 1.8</b>	Evolution temporelle de la densité de photons, pompage du milieu actif et absorbant	17
<b>Figure 1.9</b>	Evolution temporelle de la densité de photons pour différentes valeurs du coefficient de saturation	18
<b>Figure1. 10</b>	Evolution temporelle de l'inversion de population du milieu actif (a) et du milieu absorbant (b) normalisées par rapport à ses valeurs de seuil en fonction du pompage du milieu actif	19
<b>Figure1. 11</b>	Evolution temporelle de la densité de photon en fonction de l'inversion de population	20

<b>Figure 2.1</b>	Intensité théorique normalisée (Talbot Carpet). Un réseau optique périodique placé à $x=0$ et illuminé par une onde plane monochromatique tout le long de l'axe $x$ .	26
<b>Figure 2.2</b>	Illustration de la phase observée à l'effet Talbot angulaire utilisant l'interférence de deux ondes sphériques. Un réseau est éclairé par une onde sphérique générée par une source de référence $S1$ située à une distance $d$ . la zone verte décrit l'interférence des ordres diffractés avec l'onde générée par la source $S2$ .	31
<b>Figure 2.3</b>	Schéma du montage expérimental pour mesurer les phases de l'image Talbot (a) sans réseau (b) avec réseau.	32
<b>Figure 2.4</b>	Comparaison entre la mesure de phase théorique et expérimentalement pour différentes valeurs de $d$ . la colonne gauche est l'image de diffraction de la phase de Talbot angulaire, bloquant le bras qui produit l'onde de référence, la colonne au milieu correspond à la phase Talbot angulaire théorique et la colonne droite correspond à la phase Talbot angulaire expérimental. La taille de l'image enregistrée par la caméra CCD dans le plan focale correspond à $\Delta Y$ dans la direction verticale $\Delta X$ dans la direction horizontale.	34
<b>Figure 2.5</b>	Phase de l'image Talbot angulaire pour différentes valeurs de la fraction $p/q$ d'un réseau de diffraction 2-D	36
<b>Figure 2.6</b>	Représentation de phase de l'image Talbot angulaire en 3D pour différentes fractions $p/q$ . la couleur cuivre et noire correspond à la phase de l'image Talbot angulaire d'un réseau unidimensionnel dans la direction $x$ et $y$ respectivement. Le mélange des deux couleurs correspond à la phase de l'image Talbot d'un réseau bidimensionnel	37
<b>Figure 2.7</b>	(a) Spectre d'absorption et (b) spectre d'émission du $Ti^{3+}:Al_2O_3$ , suivant les deux directions de polarisation perpendiculaire $\sigma$ et parallèle $\pi$ .	39
<b>Figure 2.8</b>	Diffraction d'une onde optique par un milieu acousto-optique.	41
<b>Figure 2.9</b>	Représentation d'un oscillateur sans mode	42

<b>Figure 2.10</b>	Intensité laser FSF avec $N= 45$ modes, $p/q=0$ en haut à gauche, $p/q=1/3$ en haut à droite, $p/q=1/5$ en bas à gauche, $p/q=1/9$ en bas à droite	46
<b>Figure 2.11</b>	Intensité laser FSF avec $N= 45$ modes, $p/q=0$ en haut à gauche, $p/q=1/2$ en haut à droite, $p/q=1/4$ en bas à gauche, $p/q=1/8$ en bas à droite.	47
<b>Figure 2.12</b>	Intensité laser FSF avec $N= 200$ modes, $p/q=1/20$ en haut à gauche, $p/q=1/22$ en haut à droite, $p/q=1/23$ en bas à gauche, $p/q=1/25$ en bas à droite	48
<b>Figure 2.13</b>	Représentation du champ électrique du laser FSF dans le plan complexe avec des phases quadratiques pour $N =200$ modes, pour $p=1$ et $q= 7,15,25,27,51,89$ de gauche à droite et de haut au bas	49
<b>Figure 2.14</b>	Génération de peigne de fréquence d'un laser FSF avec des phases quadratiques. TS1, TS2 des platines de translation. Interféromètre de Michelson et BBO pour générer SHG (seconde harmonique) à 780 nm ; PD et PMT sont photodiode et un photomultiplicateur respectivement	51
<b>Figure 2.15</b>	Comparaison entre le spectre de fréquence d'oscillation résultant d'un laser FSF en haut sans injection spectre sans mode à 100 GHz et en bas spectre obtenu avec injection à 400 MHz	52
<b>Figure 2.16</b>	Spectre optique du laser FSF avec et sans injection, la fréquence d'injection correspond au pic pointu bleu	53
<b>Figure 2.17</b>	Représentation expérimentale de la trace d'auto-corrélation moyennée pour un laser FSF injecté au voisinage de minimum fluctuation	55
<b>Figure 3.1</b>	Relation entre le champ électrique et la polarisation ; a- milieu linéaire b- milieu non linéaire	62
<b>Figure 3.2</b>	Représentation schématique de la lumière incidente et diffusée par un montage de diffusion hyper Rayleigh à $90^\circ$ dans le référentiel du laboratoire XYZ	63
<b>Figure 3.3</b>	Principe de génération de la diffusion hyper Rayleigh	64
<b>Figure 3.4</b>	Schéma du montage pour la diffusion hyper Rayleigh	67

<b>Figure3.5</b>	Spectre d'absorption UV-Visible pour une solution de nanoparticules d'argent (80 nm) pure	69
<b>Figure 4.1</b>	Diminution de l'intensité émise due à la diffusion ou l'absorption	74
<b>Figure4.2</b>	Propagation de la lumière dans un milieu balistique	75
<b>Figure4.3</b>	Propagation de la lumière dans un milieu de diffusion multiple	76
<b>Figure 4.4</b>	Monochromaticité du signal HRS de la solution $N_{Ag}-N_{sp}$ pour différentes concentrations des billes de latex. (a) Ag pure, (a) solution $N_{Ag}$ pure, (b) $2.39 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup> , (c) $4.79 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup> , (d) $7.17 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup> , (e) $9.56 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup> , (f) $11.9 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup> , (g) $14.3 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup> , (h) $16.7 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup> , (i) $19.1 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup>	81
<b>Figure 4.5</b>	Courbes en coordonnées polaires l'intensité HRS d'une solution $N_{Ag}-N_{sp}$ en fonction de l'angle de la polarisation de l'onde incidente. (a) solution $N_{Ag}$ pure, (b) $2.39 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup> , (c) $4.79 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup> , (d) $7.17 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup> , (e) $9.56 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup> , (f) $11.9 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup> , (g) $14.3 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup> , (h) $16.7 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup> , (i) $19.1 \times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup>	86
<b>Figure 4.6</b>	Coefficients a, b et c dans une figure en coordonnées polaires	87
<b>Figure 4.7</b>	Evolution des paramètres des coefficients a, b et c en fonction de la concentration des billes de latex	88
<b>Figure 4.8</b>	Extinction en fonction de la concentration de billes de latex, les carrés remplis à la fréquence fondamentale et les carrés vides à la fréquence harmonique	89
<b>Figure 4.9</b>	Evolution de la longueur du libre parcours moyen en fonction de la concentration de billes de latex, les points rouges à la fréquence fondamentale et les points noirs à la fréquence harmonique	90
<b>Figure 4.10</b>	Variation de l'intensité HRS en fonction de la concentration de billes de latex	91
<b>Figure 4.11</b>	Schéma représentant le phénomène de diffusion multiple des photons harmonique (en bleu) et fondamentale (en rouge), les sphères de latex (en bleu) ainsi que le phénomène HRS par les nanoparticules d'argent (en jaune)	92

**Figure 4.12** Paramètre  $\zeta$  en fonction de la concentration de billes de latex 93

**Liste des tableaux**

Tableau 4.1	Concentration des solutions nanoparticules d'argent et bille de latex et leur volume totale	77
Tableau 4.2	Coefficients a, b et c calculés en fonction de la concentration des billes de latex	87
Tableau 4.3	Concentration des billes de latex, extinction à la fréquence harmonique et à la fréquence fondamentale	89
Tableau 4.4	Représentation des valeurs, concentration de billes de latex, libre parcours moyen à la fréquence harmonique et fondamentale	90
Tableau 4.5	Concentration des billes de latex et l'intensité HRS	91
Tableau 4.6	Paramètre zeta $\zeta$ pour chaque concentration de billes de latex	93

## Introduction générale

La première idée de l'émission stimulée a été découverte par Albert Einstein en 1917. Ce phénomène physique se produit lorsqu'un atome à l'état excité reçoit un photon incident. Lors de la désexcitation, un photon identique émis prend strictement les mêmes caractéristiques que le photon incident (même énergie, même fréquence et même longueur d'onde). Il apparaît possible de multiplier les photons, ce qui conduit à une création du LASER, acronyme signifiant « Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation ».

Le premier laser inventé en 1960 par Maiman a été le laser à rubis, pompé par une lampe flash et délivrant donc des impulsions. Les lasers pulsés sont initiés par des impulsions d'abord de l'ordre de la nanoseconde puis de la picoseconde et aujourd'hui de la femtoseconde. Les lasers à impulsions de durée femtoseconde ont longtemps été développés uniquement pour leurs caractéristiques temporelles. Cependant, leurs propriétés spectrales sont aussi extraordinaires, car leur spectre est constitué d'un peigne de fréquences optiques extrêmement régulier, qui peut être exploité pour réaliser des mesures de fréquences de très haute précision. Cette découverte a valu à T. W. Hänsch et J. L. Hall le prix Nobel de physique en 2005.

Ce travail de thèse est dédié à la dynamique non linéaire des lasers et leurs développements par effet Talbot. Le plan du manuscrit est le suivant :

Dans le premier chapitre, on introduit un simple modèle mathématique d'un laser à absorbant saturable de classe B ayant une impulsion de l'ordre de la picoseconde. Le modèle consiste à utiliser trois équations différentielles couplées, traitant l'évolution temporelle de l'impulsion laser en fonction de plusieurs paramètres tels que les pompages du milieu actif et le milieu absorbant

Le deuxième chapitre s'intéresse à la génération du taux de répétition THz par effet Talbot dans un laser Ti-Sa à décalage de fréquences. Dans un premier temps, on étudie l'effet Talbot dans le domaine spatial. En effet, lorsqu'un réseau optique de diffraction est éclairé par un front d'onde cohérent, un flux continu est observable derrière les fentes. Ce flux affiche un motif typique appelé tapis Talbot, avec une périodicité  $d$  le long de la direction parallèle au plan contenant les fentes et deux fois la longueur Talbot le long de la direction de propagation. Ensuite, on propose une étude théorique et expérimentale d'un laser à décalage de fréquences injecté par une onde monochromatique. Le spectre résultant consiste en un ensemble de  $n$  modes équidistants dont les phases varient quadratiquement avec  $n$ . on démontre l'apparition de l'effet Talbot fractionnaire temporel, conduisant à la génération des

impulsions de transformation de Fourier-limitées à un taux de répétition ajustable, les paramètres d'ajustement sont la longueur de la cavité et la largeur spectrale du laser.

La technique de diffusion hyper Rayleigh (acronyme anglais usuel HRS pour hyper Rayleigh Scattering) a été introduite dans le troisième chapitre. Le formalisme de cette technique est bien présenté dans ce chapitre ainsi que le montage expérimental.

Dans le quatrième chapitre, on rapporte l'évolution de l'intensité du second harmonique des nanoparticules métalliques d'argent diffusées dans un milieu de diffusion en comparaison avec un milieu non diffusif. Le milieu de diffusion linéaire et le milieu de diffusion non linéaire sont constitués par une solution aqueuse de nanoparticules d'argent et des particules de latex. Les nanoparticules d'argent agissent en tant que sources optiques non linéaires et des particules de latex utilisés comme sources de diffusion. Lors de l'augmentation du nombre de diffuseurs, on étudie la transition de régime balistique en un régime de diffusion. On présente des mesures de l'intensité de seconde harmonique ainsi que des mesures résolues en polarisation de l'intensité.

## *Chapitre 1 : Dynamique non linéaire des lasers classe B*

## 1.1. Introduction

Le laser est un générateur de rayonnement cohérent par émission stimulée qui met essentiellement en jeu un milieu actif placé dans une cavité optique. Souvent, par suite de multiples raisons, cette émission n'est pas continue mais présente un comportement périodique ou impulsionnel. Le mode de fonctionnement par impulsions des lasers a été depuis longtemps d'un très grand intérêt pour les laséristes, la première source laser était un rubis qui fonctionne en impulsion.

Deux méthodes sont généralement utilisées pour faire fonctionner un laser en régime impulsionnel : déclenchement Q-switching [1] et verrouillage de mode locking.

Les techniques de déclenchement du laser reposent sur la modulation du facteur de qualité Q de la cavité, Ce régime de fonctionnement est obtenu en modulant périodiquement les pertes intra-cavité à l'aide d'un modulateur. Théoriquement les pertes dynamiques devrait être de 100% pour assurer que l'effet laser n'intervient plus jusqu'à la prochaine ouverture du système de déclenchement en plus les pertes d'insertion qui sont les pertes minimales introduites par la présence de déclenchement dans les conditions ouvertes. Théoriquement elles sont nulles mais la plupart des systèmes comportent des surfaces optiques qui induisent des pertes de réflexion et de diffusion. En ce qui concerne les avantages de ces techniques, le temps de déclenchement qui est le temps nécessaire pour que le système de déclenchement soit ouvert. Des temps des déclenchements rapides entraînent la création d'impulsions courtes et de puissance de pic élevée puisque le déclenchement peut devenir complètement ouvert avant que l'émission laser ait un effet significatif sur l'inversion de population et enfin la synchronisation est une indication du bon fonctionnement du signal laser réglé sur des événements extérieurs.

Ce chapitre est consacré à l'élaboration d'un modèle mathématique simple pour décrire l'action des lasers à absorbants saturables, l'approche envisagée ici tient compte d'une manière phénoménologique des processus physiques essentiels qui permet de dégager les principaux paramètres physiques dans les lasers à absorbants saturables et leurs influences sur la dynamique de ces types de lasers. Nous allons étudier théoriquement la dynamique des lasers à absorbants saturables monomodes dans le cas où le milieu actif subisse un élargissement homogène.

A cet effet, nous avons établi un programme permettant d'étudier la dynamique des lasers à absorbants saturables. L'approche des équations des vitesses est la méthode la plus simple utilisée dans la plupart des lasers, ces équations permettent de représenter les densités de

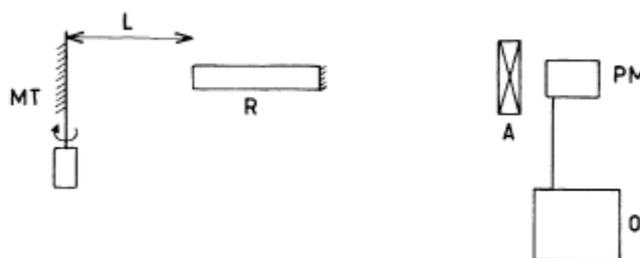
photons en fonction des pompages du milieu actif et du milieu absorbant et d'analyser les effets des deux derniers sur l'évolution temporelle de la densité de photons.

## 1.2. Principe de fonctionnement des lasers impulsionnels

### 1.2.1. Déclenchement actif

L'une des techniques les plus utilisées pour produire des lasers impulsionnels consiste à utiliser un obturateur rapide à l'intérieur de la cavité laser (Q Switch). La commande peut être extérieure pour le cas des lasers déclenchés activement ou intérieure pour les lasers déclenchés passivement. Lorsque l'obturateur est fermé, le pompage permet d'accumuler la population dans le niveau supérieur de la transition laser, et lorsqu'il est ouvert l'énergie ainsi stockée est émise en une seule impulsion, beaucoup plus intense que l'intensité donnée à partir des solutions stationnaires avec le même taux de pompage.

Les dispositifs de déclenchement utilisés sont très variés, une méthode classique utilisée est le déclenchement par un miroir tournant, dont l'axe de rotation du miroir est disposé perpendiculairement à l'axe géométrique du cristal du laser et la vitesse de rotation de miroir contrôlée par un oscillographe [2]. Cette méthode a été presque abandonnée à cause de problèmes liés aux vibrations du dispositif tournant et aux difficultés de synchronisation entre la lampe flash et la rotation du miroir.



**Figure 1-1.** Schéma d'un laser à rubis déclenché par miroir tournant.

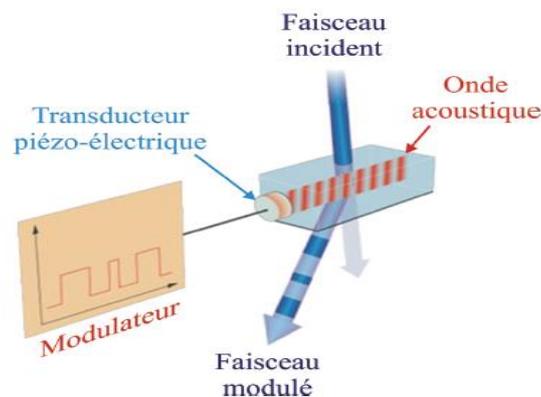
MT : miroir tournant ; R : cristal de rubis ; A : atténuateur ; PM : photomultiplicateur ; O : oscillographe [2].

La méthode de déclenchement avec un miroir tournant est remplacée aujourd'hui par des obturateurs électro-optiques ou acousto-optique

Le régime de fonctionnement déclenché par un modulateur acousto-optique est basé sur la diffraction de la lumière sur le réseau de Bragg. Un modulateur acousto-optique sert à diffracter et changer la fréquence de la lumière par onde sonore. Une cellule piézoélectrique génère des ondes ultrasonores qui se propagent dans le cristal créant une modulation périodique de l'indice de réfraction à travers le cristal qui joue le rôle d'un réseau de

diffraction périodique. Ce dernier ainsi créé est utilisé pour modifier la direction de propagation du faisceau incident, ainsi dévié sur l'ordre 1 de ce réseau.

Si le modulateur est passé sur l'ordre de diffraction 0 c'est-à-dire avec un faisceau non dévié cela signifie que l'onde incidente est transmise uniquement lorsqu'aucun signal radio fréquence n'est pas appliqué. Pour ce type de modulateur, les pertes d'insertion sont faibles. En revanche pour un modulateur qui passe sur l'ordre de diffraction 1, le faisceau laser sera dévié par application d'une onde radio fréquence à la cellule piézoélectrique, les pertes sont alors très importantes [3]. Il est préférable de choisir un modulateur qui passe sur l'ordre 1, cela permet de maximiser le taux d'extinction quand le système est bloquant. La raison aussi pour laquelle nous choisissons souvent un système qui passe sur l'ordre 1 est d'atteindre une inversion de population plus élevée, car l'énergie et la durée de l'impulsion émise dépendant du niveau d'inversion de population atteint à la fin de la période du pompage. Néanmoins, l'utilisation d'un modulateur qui passe sur l'ordre 1 impose un décalage faible entre l'onde incidente et l'onde émergente dépendant de la fréquence RF de pilotage du modulateur. Les modulateurs acousto-optiques offrent donc la possibilité de contrôler les différents paramètres du laser tels que le niveau des pertes et la fréquence de répétition des impulsions émises [4].



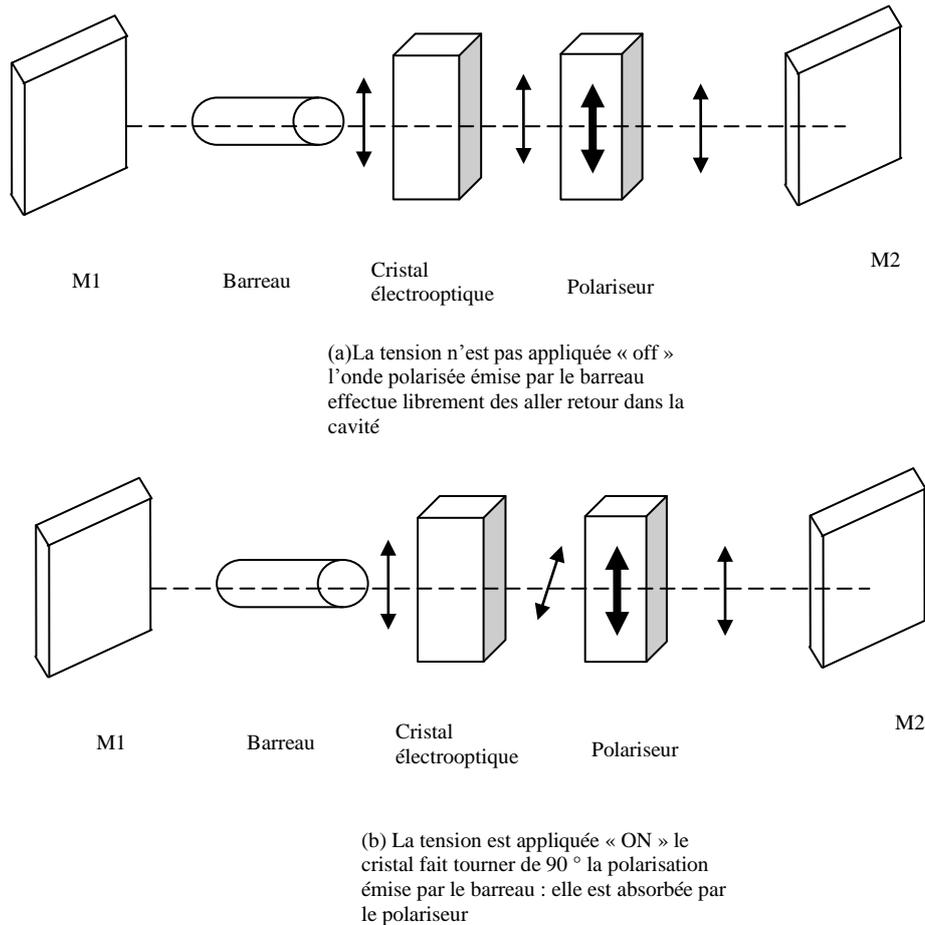
**Figure1-2.** Principe de fonctionnement d'un modulateur acousto optique [3].

Les modulateurs électro-optiques peuvent être utilisés comme interrupteurs ultrarapides pour le déclenchement des lasers. Rappelons les propriétés dans les lames cristallines biréfringentes, la lumière polarisée dans la direction de l'axe rapide du cristal s'y propage avec une vitesse de phase plus grande que celle polarisée selon l'axe lent. Cette propriété permet d'utiliser ces lames pour transformer l'état de polarisation d'un faisceau, par exemple transformer une polarisation linéaire en polarisation circulaire, ou une polarisation linéaire horizontale en linéaire verticale. Les cristaux électro-optiques possèdent la propriété supplémentaire d'avoir leur biréfringence (différence entre les indices de réfraction pour les

polarisations selon les axes lents et rapides) réglable de l'extérieur en appliquant une différence de potentiel à des électrodes au contact du cristal. Cet effet est appelé effet électro-optique linéaire ou effet Pockels. Il est proportionnel au champ électrique appliqué. Selon la tension appliquée, le cristal électro-optique peut servir de lame quart-d'onde (conversion de polarisation linéaire en circulaire), de la lame demi-onde (modification de l'orientation d'une polarisation linéaire), ou de lame d'onde (n'introduisant pas de changement). Ces cristaux, combinés des polariseurs de nature et d'orientation appropriées, permettent de contrôler la quantité de lumière transmise dans un système optique. Deux combinaisons principales sont utilisées pour le déclenchement des lasers. Dans la méthode de la lame quart d'onde la lumière de la cavité traverse un polarisateur linéaire placé près d'un cristal électro-optique ; on applique à ce dernier la tension électrique  $V_{\lambda/4}$  nécessaire pour le transformer en lame quart d'onde. Après réflexion et retour à travers le cristal, la lumière est de nouveau à polarisation linéaire, mais avec une direction de polarisation à  $90^\circ$  de la direction initiale (le passage aller retour dans le quart d'onde équivaut à un passage dans une lame demi onde). Comme le polariseur s'oppose à la transmission de cette direction de polarisation, l'ensemble s'oppose à la transmission de cette direction de polarisation, l'ensemble constitué par le polariseur et la cellule électro-optique agit comme un interrupteur fermant le passage de la lumière lorsqu'on applique la tension  $V_{\lambda/4}$ . Pour ouvrir l'interrupteur, on applique à la cellule une impulsion négative annulant la tension à ses bornes, ce qui supprime la rotation de la polarisation. Cette impulsion est appliquée à l' instant où l'inversion de population du milieu actif est à son maximum pour former l'impulsion géante.

Dans la méthode de la lame demi-onde, la cellule électro-optique fait tourner la polarisation de  $90^\circ$  en un seul passage. Quand la tension convenable est appliquée au cristal, le polariseur qui suit, ferme le passage à la polarisation qui a tourné. Quand la tension est remise à zéro, la polarisation ne tourne plus et le passage est libre et par suite, le facteur Q (facteur de qualité de la cavité associé aux pertes) devient très élevé et l'impulsion géante se construit. Cette configuration est plus simple que celle du quart d'onde, mais présente l'inconvénient d'exiger une tension électrique deux fois plus élevée.

Il existe aussi des cellules électro-optiques basées sur l'effet Kerr : sous l'action d'un champ électrique, certains liquides comme le nitrobenzène acquièrent une biréfringence (proportionnelle au carré du champ : effet quadratique) et permettant les mêmes montages. De façon générale, les cellules électro-optiques permettent de réaliser des interrupteurs rapides et précis mais moins robustes que les dispositifs à prisme tournant [5].



**Figure1-3.** Méthode de déclenchement « demi-onde », (a) en l'absence de tension appliquée au cristal le plan de polarisation de la lumière issue du barreau n'est pas modifié. (b) quand la tension  $V_{\lambda/4}$  est appliquée le plan de polarisation tourne de  $90^\circ$  à la traversée du cristal et la lumière est absorbée par le polariseur. Le déclenchement s'effectue par la remise à zéro de la tension appliquée (cas(a))[5].

### 1.2.2. Déclenchement passif

On peut déclencher un laser sans l'aide de circuits électroniques, en utilisant certains colorants. Ce déclenchement passif peut être obtenu en disposant dans la cavité une substance dont le coefficient d'absorption diminue lorsque la densité du flux de la lumière incidente augmente. La substance choisie sera par exemple un colorant saturable possédant une bande d'absorption à la fréquence de la transition laser. Au début de l'excitation du milieu actif par le flash, l'absorbant saturable est opaque en raison de la présence d'un grand nombre de molécules non excitées qui peuvent absorber la lumière. Comme dans le cas du prisme tournant, la faible valeur du  $Q$  de la cavité empêche l'effet laser de se produire et permet

l'établissement d'une inversion de population beaucoup plus forte qu'elle n'aurait été autrement.

A mesure que l'intensité de la lumière augmente dans la cavité, un nombre de plus en plus grand d'états excités du colorant se peuplent, et finalement tous états qu'il est possible d'exciter sont garnis. Dans ces conditions, le colorant ne peut plus absorber la lumière à la longueur d'onde du laser : on dit que le colorant a été blanchi ou il est devenu transparent. La brusque réduction des pertes de la cavité permet le déclenchement. Le déclenchement passif a le grand avantage d'une mise en œuvre très facile. Le seul équipement nécessaire est une petite cuve transparente à face parallèle contenant le colorant dissous dans un solvant approprié, on place cette cuve dans la cavité près de l'un des miroirs [5].

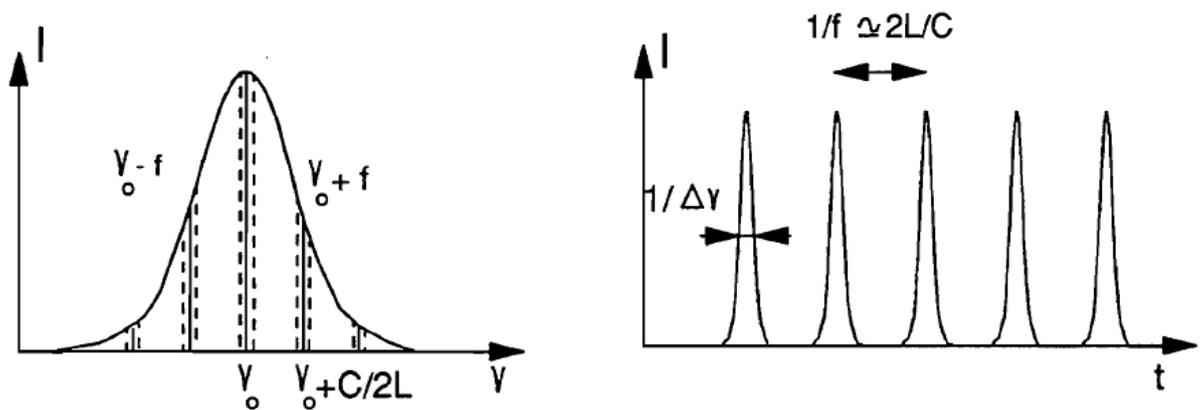
### **1.3. Génération des impulsions par verrouillage des modes**

Une cavité à élargissement inhomogène fait intervenir des oscillations sur plusieurs modes en même temps. Chacune de ces fréquences correspond à un mode de résonance de la cavité laser. Ces modes sont appelés des modes longitudinaux du laser. Plusieurs paramètres régissent les caractéristiques du spectre de fréquences émis par une cavité laser. L'enveloppe de l'intensité du spectre est déterminée par le profil d'émission du milieu amplificateur de la cavité et par les caractéristiques spectrales des différents éléments dans la cavité. Le spectre d'émission du laser est constitué des modes qui ont un gain suffisant pour compenser les pertes de la cavité et ainsi être au-dessus du seuil de l'effet laser. La distribution dans le temps de l'émission laser résulte de la superposition des champs électriques de ces différents modes longitudinaux de fréquence. Elle dépend de leurs amplitudes, de leurs phases et de leurs polarisations

#### **1.3.1. Verrouillage actif**

Le verrouillage des modes se réalise en forçant les modes longitudinaux à avoir la même phase, autrement la différence de phase entre deux modes consécutifs est la même. Ces résultats peuvent être obtenus en modifiant les pertes à la fréquence  $f=c/2L=1/T$  égale à la séparation entre modes. Les pertes peuvent être obtenues par la même méthode que pour les méthodes de déclenchement (interrupteur électro ou acousto-optique). Pour saisir le mécanisme des effets de la modulation des pertes à la fréquence  $c/2L$ , on place devant l'un des miroirs un interrupteur. Ce dernier laisse passer la lumière pendant un temps très court  $\Delta t$  dans chacune des périodes  $T=2L/c$  et se referme le reste du temps dont  $2L/c$  est la durée d'un aller-retour dans la cavité et  $1/T$  l'intervalle de fréquences entre modes. Si une impulsion de même durée  $\Delta t$  que celle de l'ouverture de l'interrupteur se présente devant ce dernier, plus

précisément lorsqu'il commence à s'ouvrir, l'interrupteur sera sans effet sur cette impulsion, et si une portion de l'impulsion arrive lors de la fermeture de l'interrupteur, elle est éliminée. Le résultat final de cette modulation périodique est la formation d'une impulsion unique isolée, effectuant des allers-retours entre les miroirs et dont la durée est approximativement  $2L/Nc$ . Chaque fois cette impulsion frappe le miroir de sortie du laser, une fraction de son énergie est émise ce qui produit un train d'impulsions brèves séparées entre elles de la durée  $2L/c$ .



**Figure 1-4.** Verrouillage de la phase des modes par modulation à la fréquence  $c/2L$  de leurs amplitudes [6].

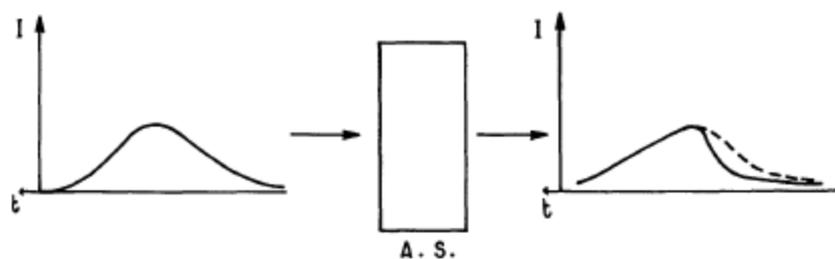
### 1.3.2. Verrouillage passif

Pour un verrouillage efficace des modes laser sans modulation extérieure (cas de verrouillage actif), on insère dans la cavité un absorbant saturable pour introduire des pertes à la fréquence  $c/2L$ . Avant que l'impulsion à mode de verrouillage ne soit formée, le milieu actif émet spontanément de manière aléatoire et la densité d'énergie dans la cavité est le siège des fluctuations incohérentes. Ces fluctuations initiales sont amplifiées de manière cohérente par le milieu laser et leur intensité augmente. Lorsqu'une impulsion intense traverse l'absorbant saturable disposé dans la cavité, la queue à faible puissance de cette impulsion est atténuée par l'absorption due aux molécules du colorant. Au contraire la puissance crête de l'impulsion est transmise par le colorant et qui rend la saturation de l'absorption transparente. Pour que ce processus puisse se produire, l'absorbant saturable doit récupérer c'est-à-dire retrouver son absorption en un temps faible devant la durée de l'impulsion. En raison de ce processus d'absorption non linéaire, les impulsions correspondant aux fluctuations les plus courtes et les intenses se développent au détriment des plus faibles. En plaçant soigneusement la cuve à absorbant saturable dans la cavité ainsi que la concentration du colorant dans le solvant, le

bruit initial donne progressivement naissance à une impulsion étroite allant et venant dans la cavité, créant l'émission d'un train périodique d'impulsions [6].

#### 1.4. Les absorbants saturables

L'élément utilisé dans un laser passivement modlocked que nous allons considérer est l'absorbant saturable. Les absorbants saturables sont des matériaux dont la transmission varie selon l'excitation lumineuse à laquelle ils sont soumis [7], ils introduisent des pertes indépendantes de l'intensité qui sont fortes pour de faibles intensités et faibles pour de fortes intensités. Le centre d'impulsion donc moins de pertes que les ailes, ce qui favorise la synchronisation des modes longitudinaux et ainsi la formation d'impulsions ultracourtes. Le régime peut démarrer des fluctuations d'intensité du laser et l'absorbant saturable raccourcit les impulsions et amplifie ce phénomène. Dans cette partie nous nous consacrons à l'étude de l'évolution des photons dans une cavité laser de type Fabry pérot contenant un absorbant saturable dans le but de produire des impulsions lumineuses. Dans un régime de faible excitation lumineuse, la transmission de l'absorbant saturable est minimale  $T_0$ . Au-delà d'une certaine valeur de l'intensité incidente  $I_{sat}$ , la transmission de l'absorbant saturable augmente jusqu'à ce qu'elle atteigne la valeur de la transmission résiduelle. La différence de transmission entre l'état absorbant et l'état saturé est appelée la transmission différentielle.



**Figure 1-5.** Diminution du temps de montée de l'impulsion par traversée de l'absorbant saturable [7].

#### 1.5. Différentes classes des lasers

La mise en marche du laser est liée directement aux paramètres de pompe et relaxations. En fonction des ces paramètres, le laser atteint son régime stationnaire, en revanche, les solutions stationnaires sont instables. Le comportement du laser devient alors fonction du temps et peut présenter une dynamique extrêmement riche : régime périodique, quasi-périodique et chaotique. La complexité de cette dynamique est évidemment induite par les non linéarités du laser. Elle est relié au nombre de paramètres ou plus précisément aux types des lasers [8].

On distingue en effet trois catégories de lasers, classe A, B et C se caractérisant par des valeurs différentes du taux de relaxation du milieu amplificateur et de la cavité, on note :

$\gamma_{\perp}$  est le taux de relaxation de la polarisation induite dans le milieu amplificateur

$\gamma_r$  est le taux de relaxation de l'inversion de population, il est simplement relié à la durée de vie  $\tau_r$  du niveau supérieur de la transition laser par  $\gamma_r = \frac{1}{\tau_r}$  ;

$\gamma_c$  est le taux de relaxation de la cavité, il est relié au temps de vie  $\tau_c$  des photons dans la cavité et dépend des pertes au sein de celle-ci avec  $\gamma_c = \frac{1}{\tau_c} = \frac{c}{2L} \ln\left(\frac{1}{R_1 R_2}\right)$ .

En général, le régime de fonctionnement du laser est caractérisé par trois paramètres qui sont le champ électrique, l'inversion de population et la polarisation du milieu amplificateur :

### 1.5.1. Laser de classe A

Les lasers classes A (lasers à gaz) où le taux de polarisation et de relaxation de l'inversion de population sont très supérieur au taux de relaxation de la cavité  $\gamma_{\perp} \approx \gamma_r \gg \gamma_c$ . Il en résulte que le temps de réponse du laser à la commutation du gain ou des pertes dans la cavité est extrêmement rapide.

### 1.5.2. Laser de classe B

Les lasers de classe B (laser à solide, laser semi-conducteur). On a  $\gamma_{\perp} \gg \gamma_c \gg \gamma_r$ . La variation de polarisation très rapide par rapport aux autres paramètres (champ électrique E et l'inversion de population N) permet d'éliminer l'équation différentielle relative de cette grandeur et dans ce cas, on considère  $dP/dt=0$ . La dynamique du laser classe B est alors décrite par les deux équations différentielles couplées du champ électrique et de l'inversion de population [9].

Les lasers de classe B sont stables de nature ; cependant, ils se déstabilisent rapidement par une injection extérieure.

### 1.5.3. Laser de classe C

Dans le cas des lasers de classe C (laser infrarouge) les grandeurs  $\gamma_r \approx \gamma_c$ , la dynamique de ce type de laser est généralement instable et complexe à analyser et il présente un comportement chaotique.

## **1.6. Les principales théories pour l'étude de la dynamique des lasers**

La dynamique des lasers peut être traitée dans le cadre de la mécanique quantique par l'approche semi-classique ou bien par un modèle des équations de vitesses.

### **1.6.1. La théorie des équations de vitesse**

La théorie des équations de vitesse ou ce qu'on appelle Rate Equation Approximation 'REA', couramment utilisée pour modéliser l'interaction lumière-matière et décrire la propagation d'un faisceau laser dans un milieu non linéaire. Cette approche est la plus simple pour traiter la dynamique des lasers car il applique même à un système seulement à deux niveaux d'énergie d'un système atomique [10]. Notamment elle permet d'extraire analytiquement le plus d'informations possible. Elle est formulée par la variation de la différence de population dans le milieu actif et dans le milieu absorbant qui provoque un accroissement ou une réduction de la densité de photons dans la variation de la différence de population par rapport au temps.

### **1.6.2. La théorie semi classique**

La théorie semi-classique est basée sur les équations de Maxwell-Bloch, qui font intervenir le comportement temporel de la polarisation. Elle s'est enrichit d'un degré de liberté supplémentaire par rapport aux équations de vitesse, en revanche les équations de Maxwell-Bloch présentent des solutions stationnaires en accord avec celles des équations de vitesse [7].

### **1.6.3. La théorie quantique**

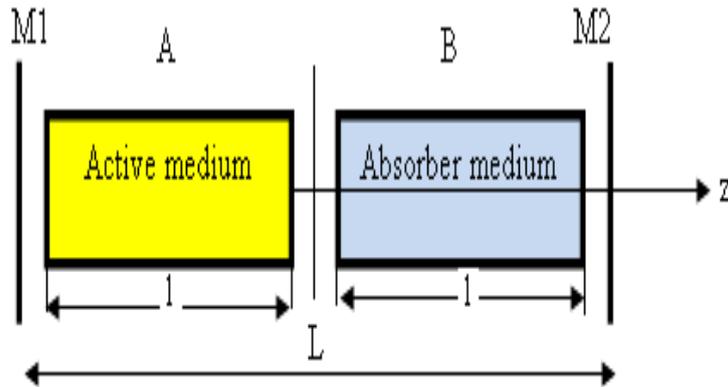
L'usage de la mécanique quantique est limité à des systèmes microscopiques à l'échelle atomique ou moléculaire. Pour étudier la dynamique d'un système quantique on peut appliquer deux formalismes qui sont le formalisme par paquet d'ondes en utilisant les équations de Schrödinger et le formalisme par matrice de densité qui est fondé sur l'équation de Liouville.

## **1.7. Modèle mathématique du laser à absorbant saturable (Laser With Saturable Absorber : LSA )**

La modélisation des lasers peut être réalisée avec différentes méthodes. Rigoureusement, elle nécessite un traitement quantique complet, mais de nombreuses propriétés optiques peuvent aussi être extraites par des approches semi-classiques ou purement classiques. Dans notre étude, nous avons choisi l'approche la plus simple qui est purement classique. En effet, à partir de cette approche, on peut analyser un maximum de paramètres du laser. La structure de base de notre approche est fournie par les équations de vitesse.

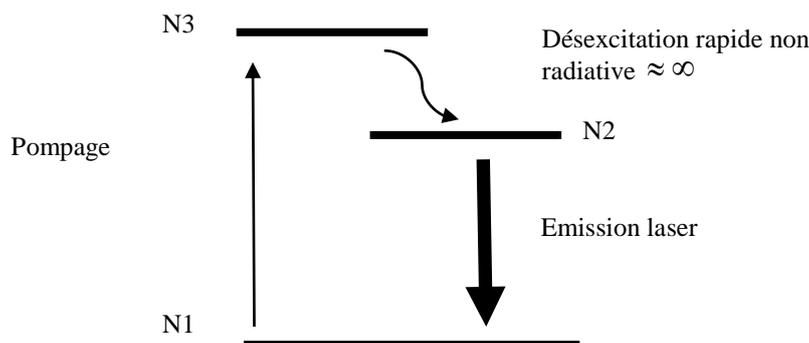
Nous allons utiliser un simple modèle mathématique [11] qui permet d'obtenir les principales grandeurs caractéristiques liées à la dynamique du laser monomode classe B qui contient un absorbant saturable.

La structure d'un laser à absorbant saturable est donnée par



**Figure 1-6.** Structure d'un laser à absorbant saturable  $L$  la longueur de la cavité,  $M1$   $M2$  les miroirs de la cavité et  $l$  la longueur du milieu actif et l'absorbant saturable

Le diagramme énergétique d'un laser classe B à 3 niveaux est représenté par trois niveaux, un niveau fondamental  $N1$ , le niveau émetteur  $N2$  et le niveau excité par le pompage optique  $N3$  [12].



**Figure 1-7.** Diagrammes énergétiques d'un laser de classe B à trois niveaux

### 1.7.1. Les équations de vitesse

Pour étudier la dynamique d'un laser à absorbant saturable, nous avons choisi les équations de vitesse qui décrivent l'évolution temporelle de l'inversion de population du milieu actif et le

milieu absorbant ainsi que l'évolution temporelle de la densité de photons dans la cavité Fabry-Pérot.

Le système d'équation d'un laser à absorbant saturable monomode comprend trois équations : une équation donnant la densité des photons dans la cavité résonnante du mode central, une équation de bilan donnant la variation de la différence de population du milieu actif et une équation de bilan de la variation de la différence de population du milieu absorbant.

Le modèle mathématique s'écrit de la façon suivante [11] :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dS_j}{dt} = -\sigma_j S_j + \frac{B}{L} g(S_j + 1) \times \left[ \int_{z=\frac{l}{2}}^{l+\frac{z}{2}} M_a \sin^2\left(\frac{\pi}{L} qz\right) dz - \int_{z=\frac{l}{2}}^{z+\frac{l}{2}} M_b \sin^2\left(\frac{\pi}{L} qz\right) dz \right] \\ \frac{dM_a}{dt} = \frac{V_a}{L} - M_a (BgS_j + \gamma_a) \\ \frac{dM_b}{dt} = \frac{V_b}{L} - M_b (BgS_j + \gamma_{ab}) \end{array} \right. \quad (1-1)$$

Où  $S_j$  la densité de photons

$\sigma_j$  est le coefficient de perte pour le mode j

$B$  est le coefficient d'Einstein

$L, q$  sont respectivement la longueur de la cavité et le nombre de mode dans la cavité

$l$  est la longueur du milieu actif et le milieu absorbant respectivement

$M_a, M_b$  sont respectivement les densités d'inversion de population du milieu actif A et le milieu absorbant B

$\gamma_a$  et  $\gamma_{ab}$  représentent respectivement le coefficient de relaxation du milieu A et B

$\gamma_{ab} = \gamma_a \xi = \xi \gamma$  avec  $\xi$  est le coefficient de saturation

$M_a, M_b$  sont respectivement les densités d'inversion de population du milieu actif A et le milieu absorbant B

$V_a, V_b$  sont respectivement les pompages du milieu actif A et le milieu absorbant B

Le profil de Lorentz est défini par  $g = \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + \Delta_j^2}$  ;

Où  $\Gamma$  est la largeur de raie homogène ;

$\Delta_j = |\omega_j - \omega_0|$  avec  $\omega_j$  la fréquence d'ordre j et  $\omega_0$  la fréquence centrale

$$\left[ \int_{z-\frac{l}{2}}^{z+\frac{l}{2}} M_a \sin^2\left(\frac{\pi}{L} qz\right) dz - \int_{z-\frac{l}{2}}^{z+\frac{l}{2}} M_b \sin^2\left(\frac{\pi}{L} qz\right) dz \right] : \text{ Ce terme entre crochet désigne l'effet}$$

d'interférence produit dans le résonateur Fabry-Pérot. Il peut prendre différentes valeurs qui dépendent de la position des deux milieux actif et absorbant dans le résonateur optique.

Dans le cas général, les populations  $N_a$  et  $N_b$  sont indépendantes de la position  $z$  et par conséquent ce terme entre crochet peut s'écrire de la façon suivante :

$$(M_a - M_b) \left[ \int_{z-\frac{l}{2}}^{z+\frac{l}{2}} \sin^2\left(\frac{\pi}{L} qz\right) dz \right] = (M_a - M_b) \frac{A_0}{2} \quad (1-2)$$

Pour le cas où les milieux actif et absorbant sont placés au milieu de la cavité,  $A_0$  prend la

$$\text{valeur } A_0 = \left[ 1 - \frac{L}{\pi q} \sin \frac{\pi q l}{L} \right]. \quad (1-3)$$

### 1.7.2. Système adimensionnel du LSA

Dans notre étude, nous nous intéressons à la dynamique du LSA c'est-à-dire les dérivées des variables par rapport aux temps ne sont pas nulles, et pour faciliter les calculs, nous rendons le système sans dimension.

Le temps normalisé s'écrit par la relation suivante :

$$\tau = t\gamma \quad (1-4)$$

La densité de photons normalisée peut s'écrire en fonction de la densité de photons saturés :

$$s_j = \frac{S_j}{S_{jsat}} \text{ avec } S_{jsat} = \frac{1}{\frac{B}{\gamma} g} \text{ et } (B \approx 10^{-3} s^{-1}, \gamma \approx 10^8 s, 0 < g < 1, S_{jsat} \approx 10^{12}) \quad (1-5)$$

Le coefficient de perte est donné par:

$$\xi_0 = \frac{\sigma_j}{\gamma} \quad (1-6)$$

La densité de l'inversion de population du milieu actif et du milieu absorbant peut s'écrire en fonction de la densité de l'inversion de population de seuil du système de la manière suivante :

$$m_a = \frac{M_a}{(M_a - M_b)_{seuil}}, m_b = \frac{M_b}{(M_a - M_b)_{seuil}} \text{ avec } (M_a - M_b)_{seuil} = \frac{\sigma_j}{\frac{A_0}{2L} Bg} \quad (1-7)$$

Notamment le pompage du milieu actif et milieu absorbant peuvent s'écrire en fonction du pompage de seuil du système :

$$v_a = \frac{V_a}{V_{seuil}}, v_b = \frac{V_b}{V_{seuil}} \text{ avec } V_{seuil} = L\gamma(M_a - M_b) \quad (1-8)$$

En remplaçant les paramètres normalisés dans les équations du système (1-9), on obtient finalement un système d'équations différentielles non linéaires en fonction des paramètres  $s_j, m_a, m_b, v_a, v_b$ , il est donné par :

$$\begin{cases} \frac{ds_j}{d\tau} = \xi_0 \left[ -s_j + \left( s_j + \frac{1}{S_{jsat}} \right) (m_a - m_b) \right] \\ \frac{dm_a}{d\tau} = v_a - m_a (s_j + 1) \\ \frac{dm_b}{d\tau} = \xi v_b - m_b (s_j + \xi) \end{cases} \quad (1-9)$$

### 1.7.3. Analyse numérique

Pour la résolution numérique du système d'équations (1-9), nous avons utilisé la méthode numérique de Runge-Kutta d'ordre 4, cette méthode est parfaitement adaptée pour décrire l'évolution temporelle des paramètres liées au laser de classe B.

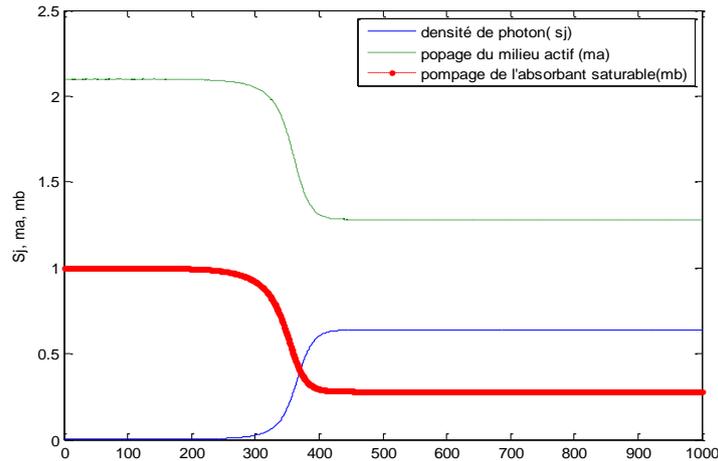
Pour tracer les courbes de l'évolution temporelle de la densité de photons, le pompage du milieu actif et le milieu absorbant, on définit les conditions initiales pour le démarrage du laser comme suit :

à  $t=0$ , la zone active ne contient aucun électron, les conditions initiales s'écrivent alors de la façon suivante :

$$S_{j0} \cong 0, m_{a0} \cong m_{aseuil}, m_{b0} \cong m_{bseuil},$$

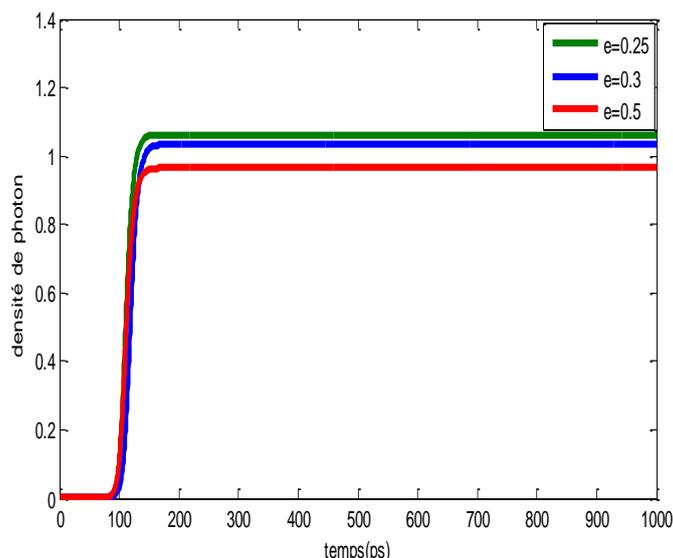
Où  $m_{a0} = v_a$  et  $m_{b0} = v_b$  avec:  $v_a > v_b + 1$ .

La figure (1-8) montre l'évolution temporelle de la densité de photons, des pompages des milieux actif et absorbant.



**Figure1-8.** Evolution temporelle de la densité de photons, du pompage du milieu actif et du pompage du milieu absorbant.

La figure (1-8) montre le fonctionnement du laser à absorbant saturable classe B à élargissement homogène. Le laser impulsif déclenché par un absorbant saturable est composé de trois éléments essentiels : le milieu actif, une cavité laser Fabry-pérot et le milieu absorbant. Un modulateur passif comme l'absorbant saturable ne nécessite pas un signal externe pour moduler les pertes, il induit des pertes importantes intra-cavité lorsque le flux de photon est faible. Lorsque le milieu amplificateur est pompé, la cavité va accumuler de l'énergie jusqu'à ce que le gain égale les pertes. Ensuite l'irradiation lumineuse du filtre (absorbant saturable) à la fréquence d'oscillation donne lieu à des processus d'absorption par résonance et l'émission spontanée. L'effet laser commence ce qui induit une augmentation rapide de la densité de photons donnant une saturation maximale de l'absorbant saturable, l'état du laser est donc instable car le gain est supérieur aux pertes intra-cavité. Lorsque le gain est très fort, l'émission stimulée devient très importante ce qui induit l'apparition d'une impulsion qui sature le gain. Le gain devient ensuite supérieur aux pertes et l'absorbant saturable redevient non saturé ou opaque. Les impulsions se produisent périodiquement tant que le milieu amplificateur est pompé.

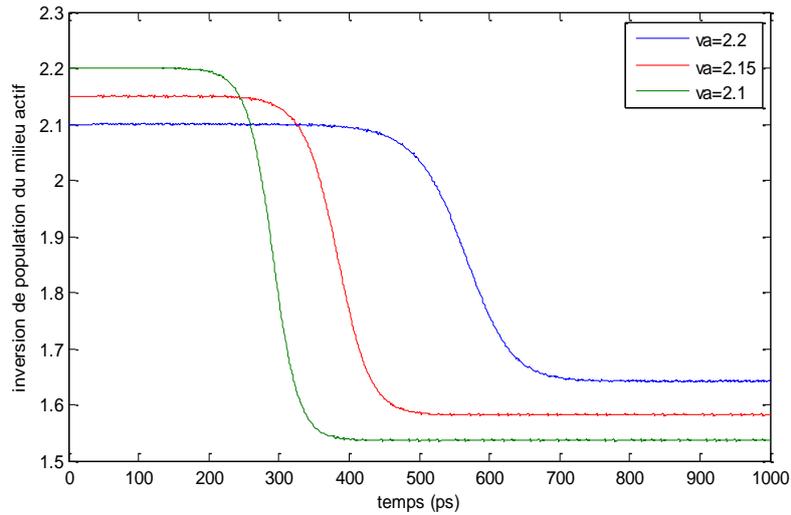


**Figure 1-9.** Evolution temporelle de la densité de photons pour différentes valeurs du coefficient de saturation

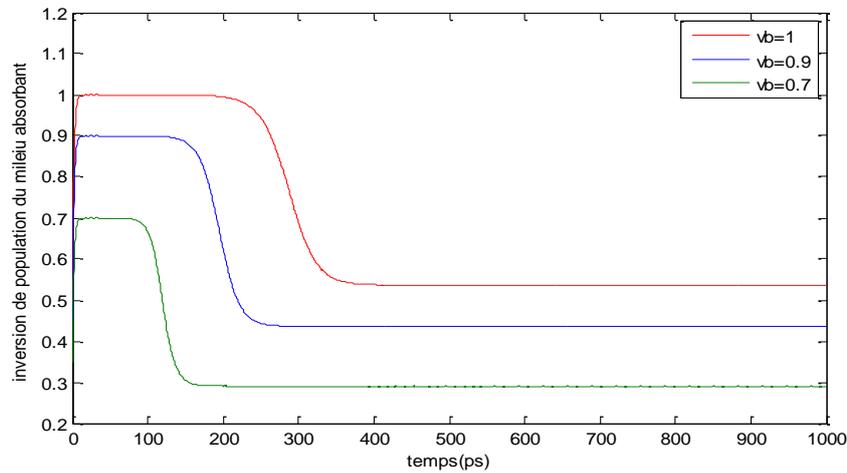
La figure (1-9) reproduit l'évolution temporelle de la densité de photons dans la cavité laser pour plusieurs valeurs du coefficient de saturation. Au démarrage de la pompe, l'absorbant saturable est à l'état absorbant et la densité de photons est négligeable dans la cavité. Quand le gain égalise les pertes, l'émission stimulée démarre, pendant ce temps, la saturation de l'absorbant saturable augmente avec l'augmentation de la densité de photons dans la cavité, cette augmentation varie avec la variation du coefficient de pertes. Ce coefficient joue un rôle très important pour obtenir un signal laser fort, ce dernier se produit si le coefficient de saturation est minimal car lorsqu'il se rapproche de l'unité, nous avons la plus forte absorption possible et cela est dû ou due à une diminution de la densité de photons.

Lorsqu'on augmente le pompage du milieu actif, les pertes intra-cavité augmentent ou ce qu'on appelle le coefficient de pertes comme l'indique la figure (1-9).

La densité de photons sature le gain qui passe d'un temps initial  $t_0$  à un temps final  $t_f$  et devient plus faible que les pertes intra-cavité, ce qui induit un arrêt de l'émission stimulée. A ce moment, l'absorbant saturable revient à son état initial et le processus peut se produire d'une façon périodique.



(a)



(b)

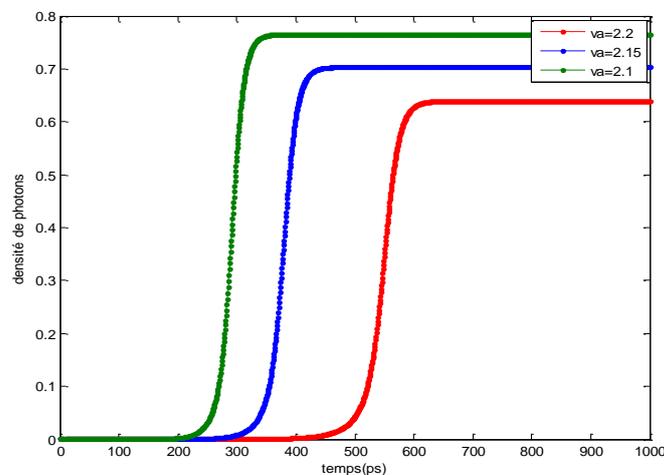
**Figure 1-10.** Evolution temporelle de l'inversion de population du milieu actif (a) et du milieu absorbant (b) normalisées par rapport à leurs valeurs de seuil en fonction du pompage du milieu actif

La figure (1-10) montre que l'augmentation de l'inversion de population du milieu actif et le milieu absorbant est liée directement à l'augmentation du pompage du milieu actif et du milieu absorbant en respectant la condition  $v_a > v_b + 1$ .

Tant que l'inversion de population est faible, la densité de photons n'est pas suffisante pour compenser les pertes intra-cavité. En revanche, lorsque l'inversion de population est maximale, le démarrage de l'oscillation laser s'accompagne d'une forte décroissance des pertes et l'impulsion est alors émise. Dans ce cas, l'amorçage spontané du laser provoque l'ouverture de l'obturateur constitué par l'absorbant saturable.

Dans notre cas, on utilise un laser composé de deux niveaux, un niveau haut que l'on note 2 et un niveau bas noté 1. Lors de la mise en marche du laser, les atomes sont pompés au niveau 2, puis se désexcitent vers le niveau 1 par émission stimulée pendant un temps relativement long. Lorsque l'inversion de population atteint sa valeur de seuil, le laser commence à émettre des rayonnements. Pour obtenir une nouvelle impulsion, il faut arrêter le pompage pour laisser le niveau 1 se vider ensuite, remettre la pompe en marche.

La figure (1-11) montre l'évolution temporelle de la densité de photons par rapport au temps pour différentes valeurs de l'inversion de population du milieu actif. On constate que la dynamique est plus rapide lorsque la valeur normalisée du pompage du milieu actif augmente.



**Figure 1-11.** Evolution temporelle de la densité de photons en fonction de l'inversion de population

## 1.8. Conclusion

Les régimes d'oscillations laser réalisés en pratique sont en règle générale des régimes impulsifs. Leur description est en principe impossible à donner sans examiner la dynamique des processus. Mais les équations de la dynamique jouent un rôle important aussi dans l'étude des lasers fonctionnant en régime continu. En toute rigueur, l'oscillation stationnaire n'est en fait qu'une idéalisation applicable à la description, avec une certaine approximation, de quelques situations réelles.

Dans ce chapitre, nous avons étudié théoriquement le comportement dynamique d'un laser monomode de classe B à deux niveaux à élargissement homogène à l'aide des équations dites du bilan. Après avoir calculé en régime stationnaire les expressions de l'inversion de population du milieu actif, du milieu absorbant et le nombre de photons dans la cavité, nous

avons tracé l'évolution temporelle des différentes variables laser où nous avons trouvé que le pompage joue un rôle très important dans les lasers de classe B.

Un autre paramètre qui joue un rôle dans la dynamique du laser est le coefficient de saturation. En effet, dans le cas où le coefficient de saturation  $\xi$  est égal à l'unité, la génération de l'impulsion laser n'apparaît pas que ce soit en absence ou en présence de l'émission spontanée. En revanche, si le coefficient de saturation est différent de l'unité, l'impulsion laser apparaît sous certaines conditions.

## **Bibliographie**

- [1] G Boulon. Génération des impulsions ultracourtes jusqu'à femto seconde. Technique de l'ingénieur (2006).
- [2] Y Le Duff, P Perreti et R Dupeyrat. Réalisation d'une impulsion géante unique dans un laser à rubis. Revue de Physique Appliquée 1 (2), pp.117-119, (1996).
- [3] H Djellout. Modélisation et simulation d'un laser entièrement fibré passivement Q-déclenché  $\text{Nd}^{+3}:\text{Cr}^{+4}$ . Thèse de doctorat : université de Tizi Ouzou. Algérie, (2013).
- [4] A Tarrasov. Physique des processus dans les générateurs de rayonnement optique cohérent. Edition Mir.Mosco, ( 1981).
- [5] D C O'shea, W R Callen, W T Rhodes. Introduction aux lasers et leurs applications. Edition Eyrolles. Paris France,( 1980).
- [6] B Couillaud et A Ducasse. Production d'impulsions picoseconde et subpicoseconde par laser à colorant continu à mode bloqués. Revue de Physique Appliquée, 14 (2), pp.331-345, (1979).
- [7] J B Lecourt. Etude et réalisation de lasers à fibre auto-impulsionnels à base absorbants saturables. Université de Rouen. France, (2006).
- [8] D Daiongoisse. Les lasers. Édition Dunod. France,( 2004).
- [9] J M Lui, L S Tsimring. Digital communications using chaos and nonlinear dynamics. Springer science + business media, (2006).
- [10] T Erneux et P Glorieux. Laser dynamics. Cambrigde University Press. New York,( 2010).
- [11] S Djabi et M Djabi. Study of the optical Bistability in a laser containing a saturable absorber. Journal of Engineering and Applied Science 2(9) :1383-1386, (2007).
- [12] L Karvevan Etudes théorique et expérimentale de la rétroinjection optique sur lasers à solide.thèse. Université Caen Basse Normandie,(2007).

## *Chapitre 2 : Développement d'une source laser par effet Talbot*

## **2.1.Introduction**

Après avoir présenté dans le chapitre précédent les propriétés temporelles d'un laser impulsif de classe B, il est indispensable d'avoir des informations sur les propriétés spectrales des lasers impulsifs.

Ce chapitre comprend deux parties principales. La première partie, est consacrée à une étude numérique et expérimentale de l'effet Talbot spatial, la deuxième partie est basée sur le développement d'une source laser de classe B (Titane-Saphir) par effet Talbot temporel et l'étude de leurs propriétés spectrales.

Nous allons ici développer un montage expérimental permettant la mesure de la phase de Talbot dans l'approximation de Fraunhofer. Ensuite, nous allons développer une méthode numérique et un montage expérimental permettant la génération de taux de répétition THz très élevé par effet Talbot temporel dans un laser Ti-Sa à décalage de fréquence.

## **2.2. Effet Talbot spatial**

L'effet de Talbot est un effet de diffraction en champ proche qui a été observé à la fois avec une onde plane monochromatique et une onde sphérique. Les origines de cet effet, les conditions nécessaires pour sa production, et quelques applications possibles sont l'objet qu'on va présenter dans ce chapitre. Quand une onde plane est transmise par une structure périodique tel que un réseau de diffraction, le front d'onde résultant se propage de telle sorte qu'il reproduit la structure initiale à une certaine distance bien définie. Cette distance est connue sous le nom de la distance Talbot. Toutefois, les détails de l'effet de Talbot font ressortir les applications les plus intéressantes possibles. Exactement à mi-chemin de la distance Talbot, l'effet Talbot reproduit les structures avec la moitié de la période spatiale de la structure originale. L'effet Talbot produit de plus petites renaissances fractionnaires dans des conditions parfaites. Il n'est donc pas surprenant que le motif d'intensité en fonction de la distance de propagation à une distance à partir d'une structure périodique est souvent désigné comme un tapis de Talbot.

Dans la première partie de ce chapitre, nous proposons la description de l'effet Talbot spatial dans laquelle nous donnons la théorie et les fondements nécessaires de cet effet qui a ouvert la porte vers beaucoup d'applications tels que le développement d'une source laser [1], les télécommunications optiques [2], l'interaction lumière-matière [3], la plasmonique [4], la mécanique quantique[5] et l'imagerie[6], etc. Nous présentons, tout d'abord, l'intensité donnée par l'effet Talbot dans l'approximation de Fresnel ou en champ proche et comme il est très connu que les phénomènes de Talbot sont intrinsèquement des effets de diffraction en champ proche c'est-à-dire qu'ils sont le résultat d'interférences d'ondes dans le champ proche

de la région de diffraction. Ainsi, il est généralement admis que ces phénomènes ne peuvent être produits ou observés en champ lointain ou dans des conditions de diffraction de Fraunhofer. Dans cette partie, nous montrons que le self-imaging peut être induit sur le spectre angulaire de réseaux périodiques, à savoir, sur leurs spectres de diffraction en champ lointain. La clé est d'illuminer le réseau par une onde sphérique (source ponctuelle), cette nouvelle classe de l'effet Talbot est nommée effet Talbot angulaire [7].

## 2.2. Historique

L'effet Talbot a été découvert pour la première fois en 1832 par le physicien britannique Henry Fox Talbot (né en 1800). En 1835, Talbot a réussi à obtenir des négatifs photographiques à partir desquels il a tiré des épreuves positives. Ensuite, il a travaillé pour produire des images fixes sur un morceau de papier. Pendant ses études, il a constaté l'effet remarquable qui porte désormais son nom. En effet, avec une simple loupe, il a observé la formation des traits lumineux derrière un réseau de diffraction, et quand il a mis au point la loupe, il se produit un phénomène d'auto-imagerie « effet Talbot ». Autrement dit, à certaines distances derrière le réseau, apparaissent régulièrement des traits lumineux de différentes couleurs.

Talbot a publié quelques résultats de ses expériences en 1836, mais comme il a investi son temps et son argent dans la photographie, il n'a pas approfondi cette étude [8].

En 1881, Lord Rayleigh a prouvé que l'effet Talbot est basé sur la théorie scalaire de la diffraction, ce phénomène est le résultat de l'interférence de l'onde diffractée par une structure périodique comme le réseau qui est illuminé par une onde plane [9]. Il a trouvé l'image reconstruite exacte du réseau à une distance dite distance Talbot:

$$Z_t = \frac{\Lambda^2}{\lambda} \quad (2.1)$$

Où :

$\Lambda$  est le pas de réseau et  $\lambda$  est la longueur d'onde de l'onde incidente.

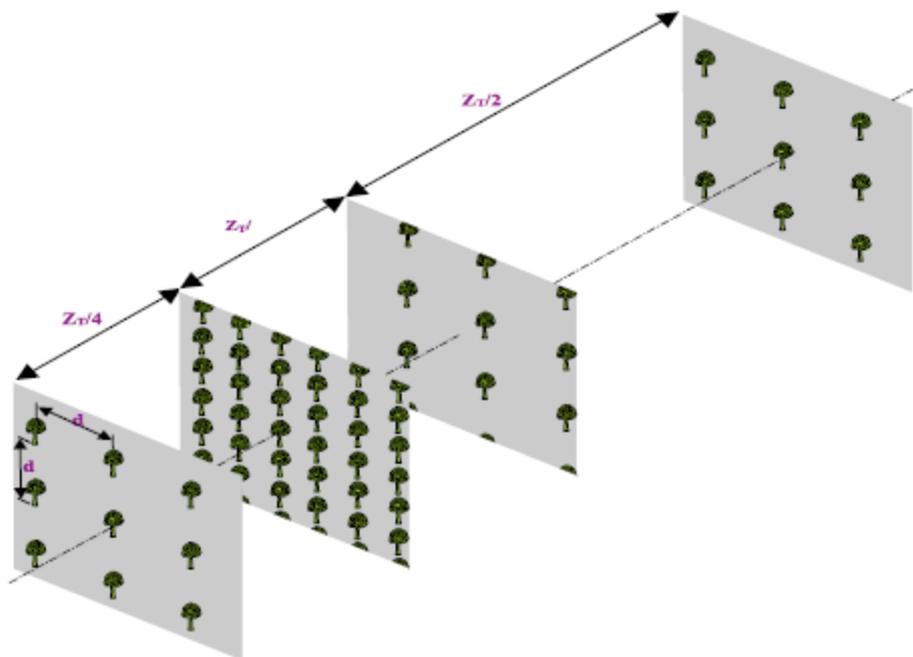
Durant ces dernières années, l'effet a été étudié non seulement pour les sources d'ondes planes, mais aussi une influence de l'éclairage par un faisceau gaussien où l'onde sphérique a été examinée.

## 2.4. Aspect théorique de l'effet Talbot spatial en champ proche

Le phénomène de diffraction impose que la valeur en un point  $(x_0, y_0, z)$  quelconque du champ diffracté à une distance  $z$  soit la somme des contributions de tous les points  $(x, y, 0)$  du champ initial. Certes le caractère périodique dans le champ initial implique que les points

particuliers  $(x,y,z)$  séparés l'un par rapport aux autres par un multiple de la période  $\Lambda$  le long de l'axe  $x$  ou  $y$  auront à part un déplacement latéral, des contributions identiques. Ceci fait que l'on observe le champ initial se produire intégralement à des distances particulières  $(p/q)*Z_t$  avec  $Z_t=\Lambda^2/\lambda$  (la distance de Talbot comme le montre la figure 2.1). Le paramètre  $\lambda$  désigne la longueur d'onde avec laquelle l'objet a été éclairé pour créer le champ initial qui se diffracte par la suite lorsque la lumière se propage. La fraction  $p/q$  résulte du fait que si le champ initial se produit à la distance  $Z_t$  alors logiquement il doit se produire également au bout de la double distance  $2 Z_t$  et ainsi de suite.

La figure 2.1 représente l'effet Talbot spatial observé par une onde plane



**Figure 2.1-** Effet de la diffraction au niveau des plans Talbot fractionnaire,  $Z_t/4$ ,  $Z_t/2$  et  $Z_t$ [9].

La théorie de l'effet Talbot spatial classique peut être résolue par les équations de la diffraction de Fresnel. On suppose qu'une onde plane monochromatique de longueur d'onde  $\lambda$  traverse un réseau de diffraction d'un grand nombre de fente  $N$  et un pas  $\Lambda$  le long de la direction  $x$ . pour cela, on utilise le traitement théorique donné par Berry et all [10], en tenant compte de la fonction de transmission de l'enveloppe  $t_{env}(x)$  qui a pour rôle de collecter tous les ordres de diffraction [11]. On définit par  $g(x)$  la fonction de transmission du réseau sur chaque fente élémentaire à savoir  $(-\Lambda/2 < x < \Lambda/2)$  ; le réseau est localisé dans le plan  $z=0$ .

$\otimes$  désigne le produit de convolution, FT (Fourier Transform) est la transformée de Fourier,  $\delta$  est la fonction de Dirac

## 2.5. Fonction de transmission du réseau

La fonction de transmission est donnée par :

$$t(x) = g(x) \otimes \left[ t_{env}(x) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta(x - n\Lambda) \right] \quad (2.2)$$

Et par équivalence, elle s'écrit:

$$t(x) = \int g(x') \sum_n t_{env}(n\Lambda) \delta(x - x' - n\Lambda) dx' \quad (2.3)$$

$$\text{La transformée de Fourier FT de } t(x) \text{ est : } T(k_x) = \int t(x) e^{ik_x x} dx \quad (2.4)$$

$$T(k_x) = G(k_x) \sum_n t_{env}(n\Lambda) e^{ink_x \Lambda} \quad (2.5)$$

Dont  $G(k_x)$  et  $T(k_x)$  sont respectivement les transformées de Fourier de  $g(x)$  et  $t_{env}(x)$ . On définit  $K_0 = 2\pi/\Lambda$ ,  $n$  est un nombre entier,  $k_x$  désigne la coordonnée fréquentielle.

La somme de poisson s'écrit :

$$\sum_n t_{env}(n\Lambda) e^{ink_x \Lambda} = \sum_m t_{env}(k_x + mK_0) \quad (2.6)$$

Finalement  $T(k_x)$  peut s'écrire de la manière suivante :

$$T(k_x) = G(k_x) \sum_m t_{env}(k_x + mK_0) \quad (2.7)$$

## 2.6. Champ électrique dans l'approximation de Fresnel

On suppose que l'onde plane se propage dans la direction  $z$ , le champ diffracté par le réseau de diffraction à la position  $(x,z)$  est proportionnel au produit de convolution de la fonction de transmission du réseau par la fonction de la réponse impulsionnelle dans l'espace libre, cette dernière est donnée par la formule suivante :

$$h(x) = h_0 e^{-ik \frac{x^2}{2z}} \quad (2.8)$$

Sachant que  $h_0 = i / \lambda z e^{ikz}$  et  $k = 2\pi/\lambda$

Dans le domaine des fréquences spatiales, la fonction de transfert est donnée par:

$$H_z(k_x) = H_0 e^{i\lambda z k_x^2 \frac{x^2}{4\pi}} \quad (2.9)$$

où  $H_0 = e^{-ikz}$

le champ électrique s'écrit de la façon suivante:

$$E(x, z) \propto t(x) \times h_z(x) = FT^{-1}(T(k_x)H(k_x)) \quad (2.10)$$

Par suite, il s'écrit :

$$E(x, z) \propto H_0 \int G(k_x) \sum_m T_{env}(k_x + mK_0) e^{\frac{i\lambda z k_x^2}{4\pi}} e^{ik_x x} dk_x \quad (2.11)$$

Comme  $t_{env}(x)$  est une fonction avec une légère variation sur les fentes du réseau, l'extension de  $T(k_x)$  le long de la direction des fréquences spatiales est environ  $2\pi/N\Lambda$ , en revanche  $G(k_x)$  est relativement constante sur l'échelle de cette fréquence. En outre, le terme de la phase quadratique  $e^{\frac{i\lambda z k_x^2}{4\pi}}$  approximativement égal à  $e^{-i\lambda\pi z \frac{m^2}{\Lambda^2}}$  quand  $(m-1/N)K_0 < k_x < (m+1/N)K_0$  avec  $m$  est un entier.

Le champ électrique s'écrit comme suit :

$$E(x, z) \propto t_{env}(x) e^{ikz} \sum_m G(mK_0) e^{\frac{i\pi\lambda z m^2}{\Lambda^2}} e^{-imK_0 x} \quad (2.12)$$

Pour observer l'effet Talbot, on définit la distance Talbot  $Z_t = \Lambda^2/\lambda$  et on considère que la valeur de l'intensité à la distance  $z$  de réseau égale à la fraction  $p/q$  de la distance Talbot (avec  $p$  et  $q$  des nombres entiers)

$$E(x, \frac{p}{q} Z_t) \propto t_{env}(x) e^{-ik\frac{p}{q} Z_t} \sum_m G(mK_0) e^{\frac{i\pi p m^2}{q}} e^{-imK_0 x} \quad (2.13)$$

Berry et al [10] définissent la phase de Talbot comme suit :

$$\varphi(m) = \pi \frac{p}{q} m^2 \quad (2.14)$$

Lorsque le produit  $pq$  est pair  $\varphi(m+q) = \varphi(m)$ , et si le produit  $pq$  est impair, alors  $\varphi(m+q) = \varphi(m) + \pi$ ,

On regroupe les termes qui ont la même phase de la façon suivante :

$$E(x, \frac{p}{q} Z_t) \propto t_{env}(x) e^{-ik\frac{p}{q} Z_t} \sum_{n=0}^{q-1} e^{\frac{i\pi p n^2}{q}} e^{-inK_0 x} \sum_l G((n+ql)K_0) e^{ilpq\pi} e^{-ilqK_0 x} \quad (2.15)$$

On remplace  $G$  par sa valeur, l'équation de champ devient :

$$E(x, \frac{p}{q} Z_t) \propto t_{env}(x) \sum_{n=0}^{q-1} e^{\frac{i\pi p n^2}{q}} e^{-inK_0 x} \int e^{inK_0 x'} \sum_l e^{ilqK_0(x-x')} e^{-ilpq\pi} dx' \quad (2.16)$$

En utilisant la somme de poisson qui est donnée par :

$$\sum_l e^{ilqK_0(x-x')} e^{-ilpq\pi} dx' = \sum_l \delta(x' - x + \frac{\pi}{K_0} (\frac{2l}{q} - p)) \quad (2.17)$$

Le champ électrique s'écrit de la façon suivante:

$$E(x, \frac{p}{q} Z_t) \propto t_{env}(x) \sum_t g(x - \Lambda(\frac{l}{q} - \frac{p}{2})) \sum_{n=0}^{q-1} e^{i\frac{\pi}{q}[pn^2 - 2nl + npq]} \quad (2.18)$$

La littérature montre que l'effet Talbot classique a été utilisé pour la mesure de l'intensité mais la mesure de la phase n'a été jamais fournie. Pour cela, on propose la première mesure de la phase dans une nouvelle classe de l'effet Talbot qui a été introduit par Azana et all [7] (effet Talbot angulaire). L'analyse théorique de cet effet est comme suit :

### 2.7. Aspect théorique de l'effet Talbot spatial en champ lointain

En champ proche, lorsqu'on éloigne le réseau de diffraction d'une distance supérieure à sa taille, on finit par être sensible à ses dimensions finies. Plus précisément, pour que l'effet Talbot reste observable, il faut que la valeur approximative du déphasage reste inférieur à 1 pour toutes les valeurs de n contribuant à la série de Fourier. En dépit des propriétés attrayantes du champ proche, aucune mesure expérimentale de la phase de l'image Talbot n'a été encore fournie.

Ici, nous proposons de mesurer les phases de l'image Talbot à l'aide d'une nouvelle configuration, appelée « effet Talbot angulaire ». L'avantage de cet effet par rapport à l'effet Talbot classique est qu'il se manifeste dans le champ lointain, ce qui rend l'investigation des phases Talbot dans le champ lointain (ou l'approximation de Fraunhofer) plus pratique et flexible par la technique de l'holographie.

Dans l'effet Talbot angulaire, le réseau de diffraction est illuminé avec une source de lumière ponctuelle située à une distance d déterminée à partir du réseau. Dans l'approximation paraxiale, le profil de la phase de l'onde qui se propage à partir de la source par rapport au plan du réseau de diffraction a une forme parabolique (quadratique). L'intensité diffractée dans le champ lointain (approximation de Fraunhofer) par le réseau de diffraction présente un déphasage quadratique. Le champ diffracté dans le champ lointain est donné par la formule suivante :

$$E(k_x, k_y) \propto FT(t(x)h_d(x))e^{i\frac{\lambda d}{4\pi}k_y^2} \quad (2.19)$$

La variation du champ diffracté est relativement simple et comme les espaces variables x et y sont séparés,  $E(k_x)$  peut être évalué dans le plan  $y=0$ .

Le champ au point (x, 0, 0) du réseau est proportionnel à :

$$E(x,0,0) \propto t(x)h_d(x) \quad (2.20)$$

Ce qui conduit à:

$$E(x,0,0) \propto t_{env}(x) \int g(x') \sum_n \delta(x-x'-n\Lambda) e^{-i\frac{\pi n^2 \Lambda^2}{\lambda d}} dx' \quad (2.21)$$

Et par suite :

$$E(x,0,0) \propto \sum_n g(x') \delta(x-x'-n\Lambda) t_{env}(n\Lambda) e^{-i\frac{\pi n^2 \Lambda^2}{\lambda d}} dx' \quad (2.22)$$

dont on suppose que la phase de l'onde incidente sur le réseau est considérée constante sur chaque fente du réseau de diffraction. On note que cette phase est différente de zéro au point  $x=0$ . La transformée de Fourier du champ électrique dans le plan du réseau est donnée par la formule suivante :

$$E(k_x) \propto G(k_x) \int \sum_n \delta(x-n\Lambda) t_{env}(n\Lambda) e^{-i\frac{\pi n^2 \Lambda^2}{\lambda d}} e^{ik_x x} dx \quad (2.23)$$

Et finalement, on a:

$$E(k_x) \propto G(k_x) \sum_n t_{env}(n\Lambda) e^{ink_x \Lambda} e^{-i\frac{\pi n^2 \Lambda^2}{\lambda d}} \quad (2.24)$$

Ce résultat est mathématiquement équivalent à l'équation (2.12), ce qui implique une proportionnalité entre l'effet Talbot classique et l'effet Talbot angulaire.

On remplace  $d$  par sa valeur  $d=(m/s)Z_t$ , le champ diffracté est donc proportionnel à :

$$E(k_x) \propto G(k_x) \sum_n t_{env} \left( k_x - K_0 \left( \frac{l}{m} - \frac{s}{2} \right) \right) \sum_{n=0}^{m-1} e^{-i\frac{\pi}{m} [sn^2 - 2nl + nms]} \quad (2.25)$$

L'équation (2.25) est proportionnelle à l'équation (2.18) dans le cas de l'effet Talbot classique.

## 2.8. Mesure de phase de Talbot angulaire

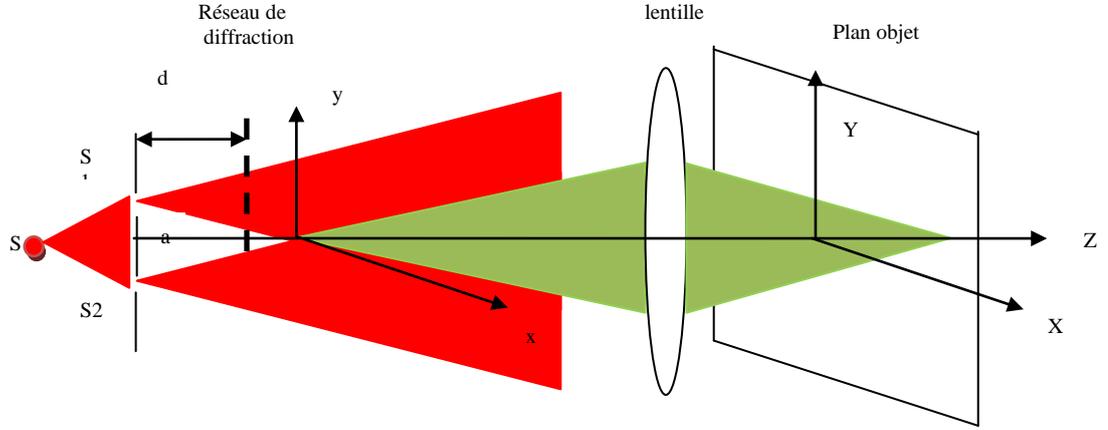
### 2.8.1. Principe

La possibilité d'observer l'effet Talbot dans le champ lointain permet de mesurer les phases de l'image Talbot d'une manière simple car dans ce cas, il est relativement facile de comparer les ondes diffractées au cours de l'analyse avec l'onde de référence sphérique, en utilisant une stratégie similaire à celle de l'holographie en champ lointain. Nous considérons un réseau de  $N$  fentes localisé à une distance  $d$  d'une source ponctuelle cohérente  $S$ .

Des sources virtuels  $S1, S2$  situées dans le plan vertical sont illuminées par la source cohérente primaire  $S$ , on note  $S1S2=a$ .

le champ électrique émis par  $S2$  dans la direction  $(k_x, k_y)$  au plan objet est donné par :

$$\tilde{E}_{ref}(k_x, k_y) \propto e^{i[ak_y + \frac{\lambda d}{4\pi}(k_x^2 + k_y^2)]} \quad (2.26)$$



**Figure 2.2-** Illustration de la phase observée sous l'effet Talbot angulaire utilisant l'interférence de deux ondes sphériques. Un réseau est éclairé par une onde sphérique générée par une source de référence S1 située à une distance  $d$ . La zone verte décrit l'interférence des ordres diffractés avec l'onde générée par la source S2.

Lorsque la condition du Talbot angulaire est satisfaite ;  $d=(m/s)Z_t$  et  $Z_t=\Lambda^2/\lambda$ , donc le champ électrique dans la direction  $(k_x, k_y)$  correspondant à (2.19) et (2.25) est donné par :

$$E(k_x) \propto G(k_x) \left( \sum_l t_{env} \left( k_x - K_0 \left( \frac{l}{m} - \frac{s}{2} \right) \right) e^{-i\varphi(l,m,s)} \right) e^{i\frac{\lambda d}{4\pi} k_y^2} \quad (2.27)$$

Lorsque l'amplitude de l'onde de référence interfère avec l'amplitude de l'onde diffractée

dans la direction  $\left( k_x = K_0 \left( \frac{l}{m} - \frac{s}{2} \right), k_y \right)$ , l'intensité résultante  $\tilde{E}_{ref}(k_x, k_y) + \tilde{E}(k_x, k_y)$  est proportionnelle à :

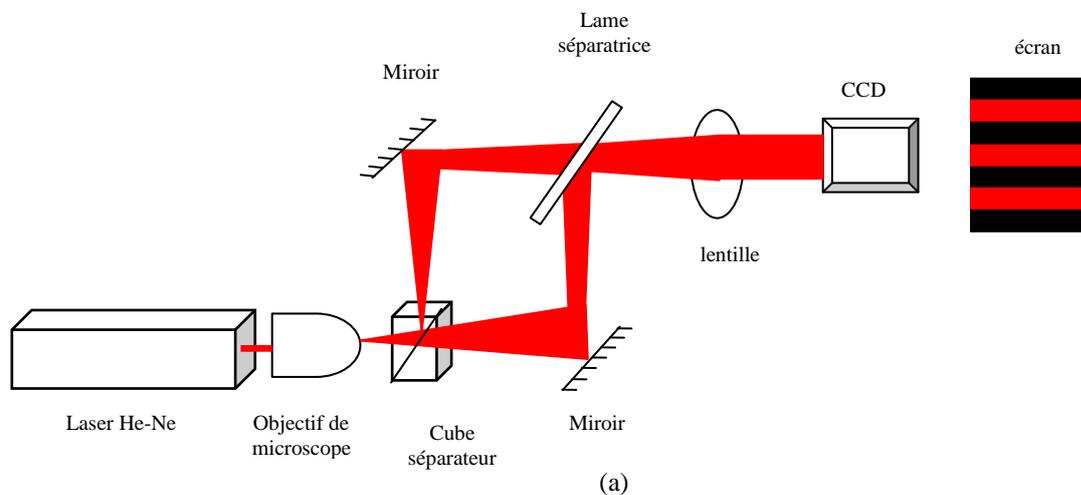
$$1 + \cos \left( \varphi(l, m, s) + ak_y + \frac{1}{4\pi} \lambda dk_x^2 + \varphi_0 \right) \quad (2.28)$$

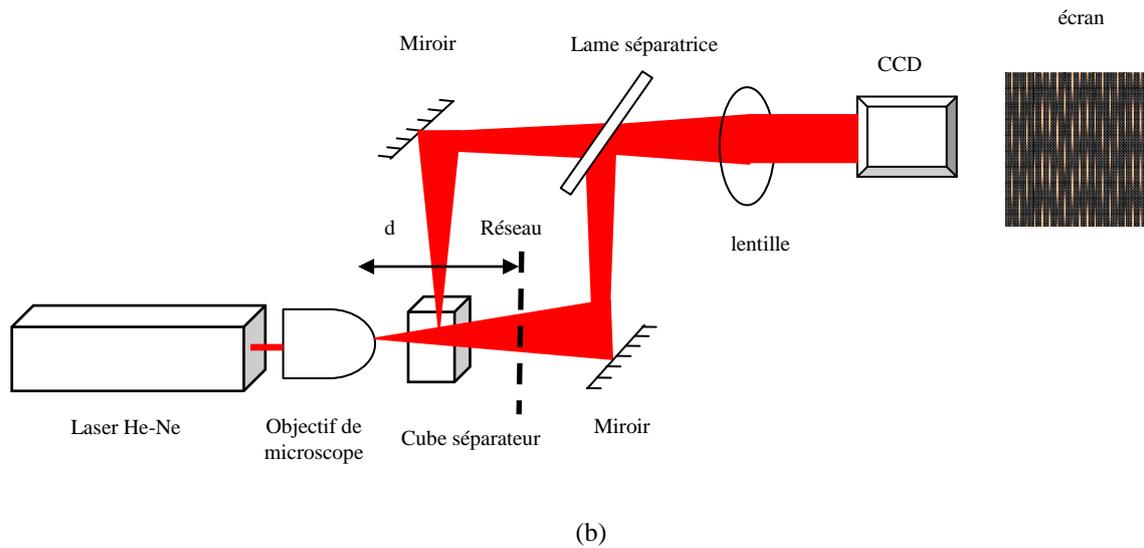
### 2.8.2. Dispositif expérimental de l'effet Talbot angulaire

La possibilité d'observer l'effet Talbot dans le champ lointain rend la mesure des phases des images Talbot par la méthode d'interférence plus pratique et flexible. Le dispositif expérimental est un interféromètre classique de Mach-Zehnder. Un laser He-Ne de longueur d'onde 632.8 nm est envoyé dans un objectif de microscope monté sur une platine de translation. Rappelons que l'interféromètre de Mach-Zehnder est constitué de deux miroirs

plans réfléchissants et de deux miroirs semi-réfléchissants ; dans notre cas, on a utilisé un cube séparateur à l'entrée et une lame séparatrice à la sortie. Comme le montre la figure 2.3, l'onde sphérique qui sort à travers un objectif de microscope est divisée en deux avec le cube séparateur, puis ces deux faisceaux sont alors recombinaés à l'aide de la lame séparatrice. Un miroir à l'un des bras est légèrement incliné vers l'axe horizontal. Ensuite, la figure d'interférence obtenue à la sortie de l'interféromètre est observée au niveau du plan focal d'une lentille convergente de distance focale  $f$ . Elle consiste en une succession de franges horizontales avec un pas égal à  $\lambda f/a$  où «  $a$  » est la distance entre les deux sources secondaires similaire à la distance entre les deux trous de Young (dans l'expérience des fentes de Young). La figure (2-3 a) montre des franges qui sont produites par l'interféromètre de Mach-Zehnder. En effet, pour observer l'effet Talbot angulaire, on insère dans l'un des bras de l'interféromètre un réseau optique de diffraction comme le montre la figure (2-3b)

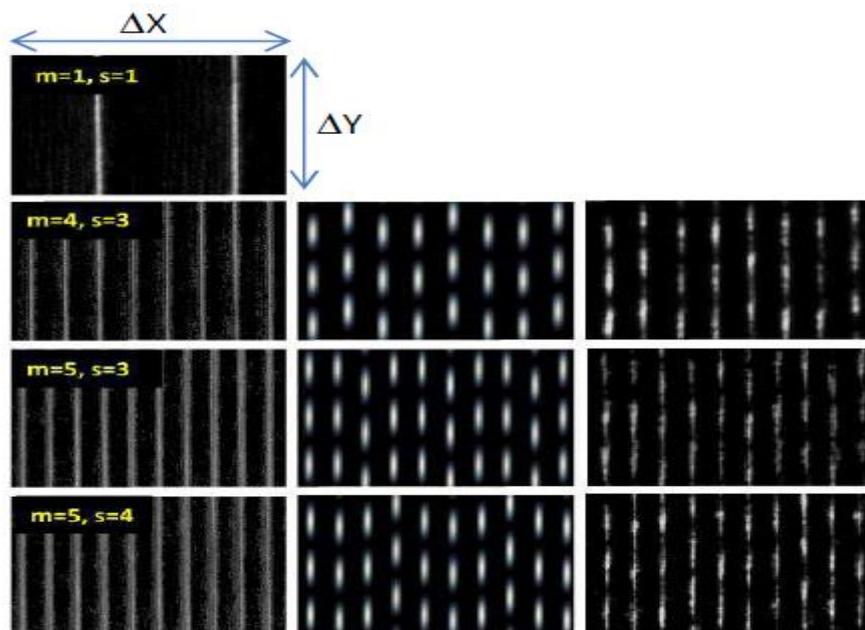
La figure 2.3 représente le montage expérimental :

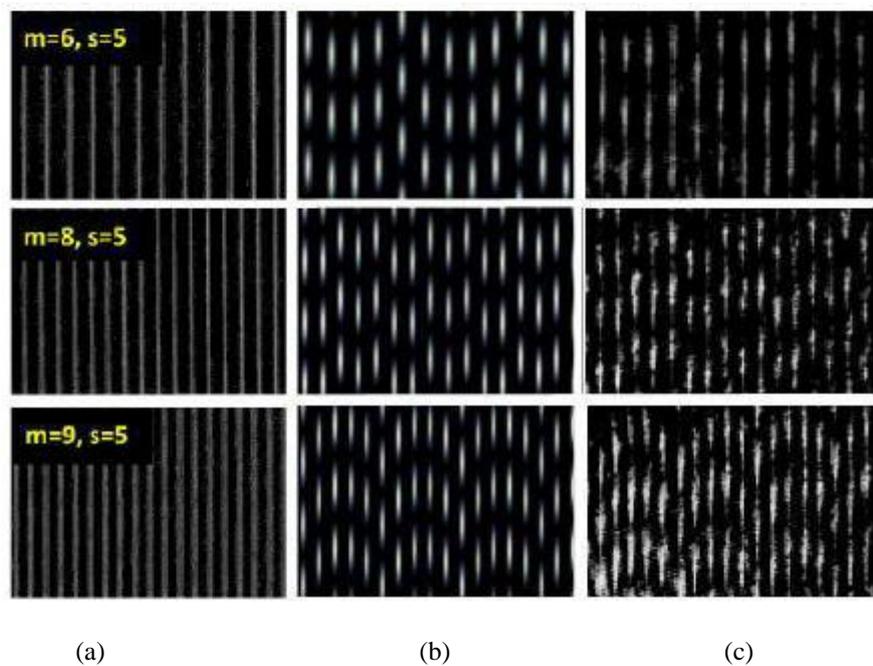




**Figure 2.3-** Schéma du montage expérimental pour mesurer les phases de l'image Talbot : (a) sans réseau et (b) avec réseau

Le réseau optique comprend 50 fentes avec une largeur de  $7 \mu\text{m}$  et une période spatiale qui est égale à  $\Lambda=70\mu\text{m}$ . La distance  $d$  entre la source et le réseau peut être ajustée par translation du réseau optique. L'intensité de l'image Talbot est enregistrée sur une caméra CCD placée à la distance focale  $d'$  d'une lentille de  $f=20 \text{ cm}$ . La distance  $d$  aussi correspond à la fraction de la distance Talbot  $d=mZ_t/s$  avec  $Z_t= 7.8 \text{ mm}$ . Les résultats représentés sur la figure 2.4, montrent un excellent accord avec les résultats théoriques obtenus par simulation numérique.





**Figure 2.4-** Comparaison entre la mesure de phase obtenue théoriquement et expérimentalement pour différentes valeurs de  $d$ . (a) est l'image de diffraction de la phase de Talbot angulaire obtenu en bloquant le bras qui produit l'onde de référence. (b) correspond à la phase Talbot angulaire théorique et (c) correspond à la phase Talbot angulaire expérimentale. La taille de l'image enregistrée par la caméra CCD dans le plan focal correspond à  $\Delta Y$  dans la direction verticale et  $\Delta X$  dans la direction horizontale.

Comme montrée par la description théorique de l'effet Talbot angulaire (équation (2.27)), la séparation angulaire de l'onde diffractée dans la direction  $x$  est inversement proportionnelle à  $m$ . le terme  $e^{\frac{i\lambda d}{4\pi}k_y^2}$  est responsable à la forme parabolique obtenue par la figure (2-4). les valeurs de  $m$  et  $s$  peuvent être déduites directement à partir des deux images enregistrées par la caméra CCD (à partir du facteur multiplicatif dans l'image de diffraction et à partir de la périodicité de l'image d'interférence). Partant de cette observation, cette configuration peut être interprétée comme une « règle fractionnaire », ces fractions à l'unité de  $Z_t$  sont les distances entre la source et le réseau. Les résultats obtenus dans la figure (2-4) montre que la périodicité est proportionnelle au nombre entier  $s$ .

### 2.9. Aspect théorique de l'effet Talbot spatial en champ lointain pour un réseau à deux dimensions (2D)

Pour décrire le champ électrique diffracté par un réseau à deux dimensions, on suit les étapes que dans le cas d'un réseau unidimensionnel. Cependant, on doit tenir compte des coordonnées spatiales  $y$  et fréquentielles  $k_y$

La fonction de transmission d'un réseau 2-D s'écrit comme suit :

$$t(x, y) = g(x, y) \otimes \left[ t_{env}(x, y) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \delta(x - n\Lambda, y - m\Lambda) \right] \quad (2.29)$$

Dont  $\otimes$  désigne le produit de convolution,  $g(x, y)$  est la transmission du réseau sur chaque fente élémentaire;  $t_{env}(x, y)$  est la fonction de transmission du réseau;  $\delta(x - n\Lambda, y - m\Lambda)$  est le train d'impulsion Dirac espacé à l'intervalle  $\Lambda$  et localisé à  $m\Lambda$   $n\Lambda$  dans la direction  $x$  et  $y$  respectivement.

La transformée de Fourier est:

$$\tilde{t}(k_x, k_y) = \tilde{g}(k_x, k_y) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \sum_{m=-\infty}^{+\infty} t_{env}(n\Lambda, m\Lambda) e^{[i\Lambda(nk_x + mk_y)]} \quad (2.30)$$

Le champ électrique pour une onde parabolique est donné par la formule suivante :

$$E(x, y) \propto \exp\left(i \frac{\pi}{\lambda d} (x^2 + y^2)\right) g(x, y) \otimes \left( t_{env}(x, y) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \delta(x - n\Lambda, y - m\Lambda) \right) \quad (2.31)$$

Sa transformée de Fourier s'écrit comme suit :

$$\tilde{E}(x, y) \propto G(k_x, k_y) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \sum_{m=-\infty}^{+\infty} t_{env}(n\Lambda, m\Lambda) e^{i(nk_x + mk_y)\Lambda} \times e^{\left(-i \frac{\pi (n^2 + m^2)\Lambda^2}{\lambda d}\right)} \quad (2.32)$$

Après avoir remplacé le terme  $\frac{\Lambda^2}{\lambda}$  par sa valeur l'équation (2.32) devient :

$$\tilde{E}(x, y) \propto G(k_x, k_y) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \sum_{m=-\infty}^{+\infty} t_{env}(n\Lambda, m\Lambda) e^{i(nk_x + mk_y)\Lambda} \times e^{\left(-i \pi \frac{(n^2 + m^2)Zl}{d}\right)} \quad (2.33)$$

$$\tilde{E}(x, y) \propto G(k_x, k_y) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \sum_{m=-\infty}^{+\infty} t_{env}(n\Lambda, m\Lambda) e^{i(nk_x + mk_y)\Lambda} \times e^{\left(-i \pi \frac{(n^2 + m^2)q}{p}\right)} \quad (2.34)$$

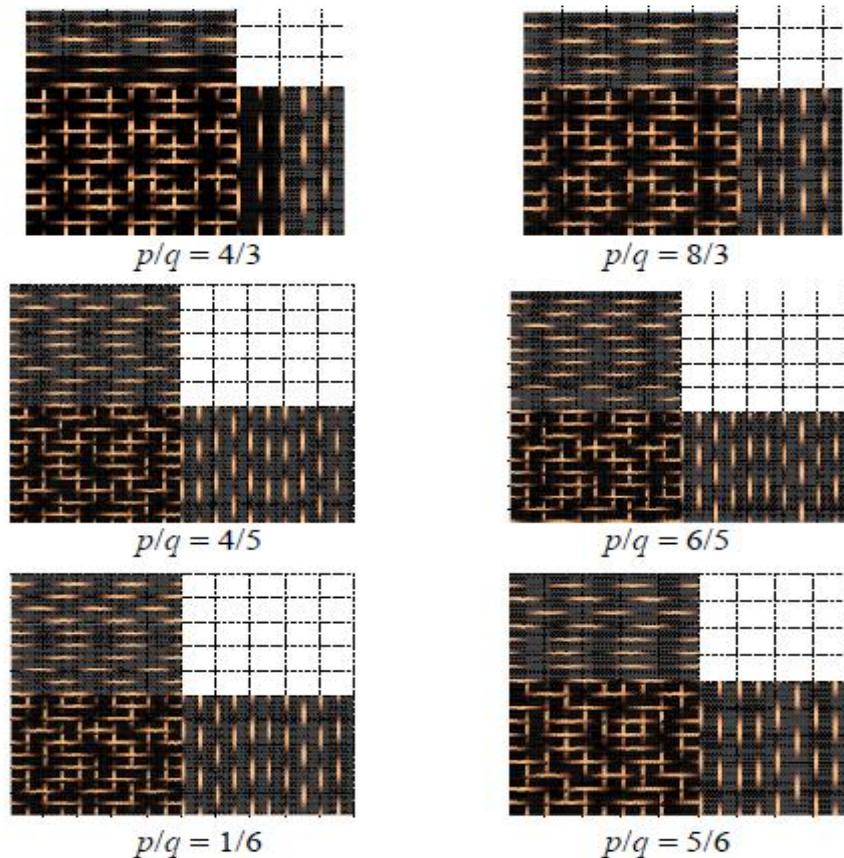
Le second terme exponentiel dans l'équation (2.34) indique la phase quadratique [12] qui dépend des nombres entiers  $p$  et  $q$ .

## 2.10. Simulation numérique

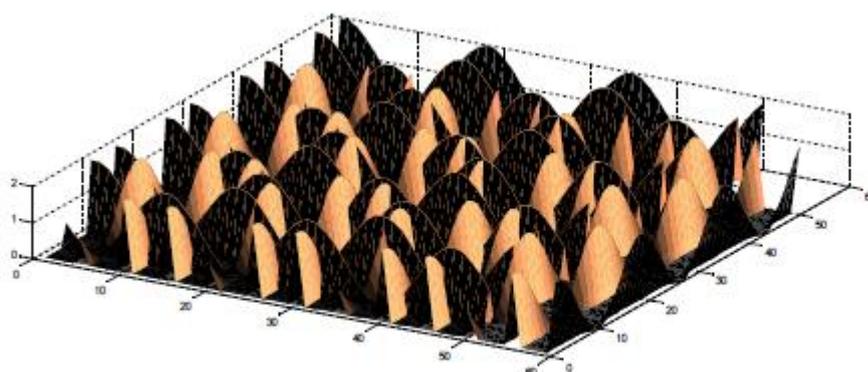
Comme déjà mentionné, l'effet Talbot apparaît quand les ordres de diffraction interfèrent entre eux et disparaît quand ils sont séparés les uns des autres. Plus précisément, l'effet Talbot dépend de la phase des ordres diffractés. En effet, si les ordres de diffraction sont en phase, on observe l'image du réseau sinon, on observe l'image du Talbot angulaire.

On suppose un réseau de diffraction de  $N \times N$  fentes. Les résultats théoriques sont obtenus par simulation numérique avec un simple programme sous Matlab. La figure 2.5 présente l'image de la phase du Talbot angulaire pour différentes valeurs de  $d$  où  $p$  et  $q$  sont des entiers.

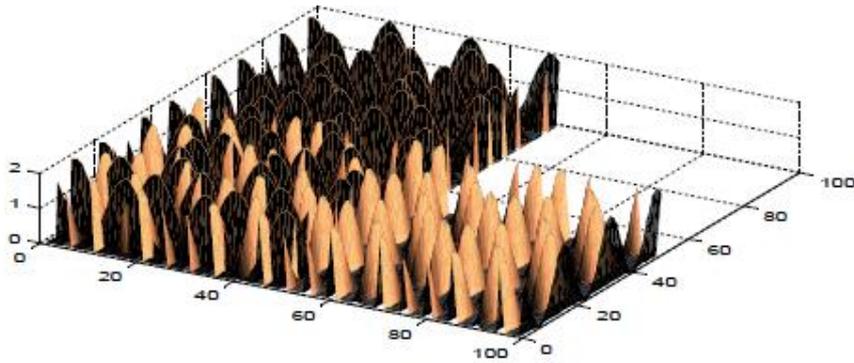
Le terme  $e^{\left(\frac{-i\pi(n^2+m^2)q}{p}\right)}$  dans l'équation est dû à la forme parabolique de la phase de l'image Talbot (voir figure 2.5). En outre, pour différentes valeurs de  $p/q$ , on remarque que lorsque nous changeons l'entier  $p$  et garder  $q$  constant, l'image Talbot a la même périodicité contrairement dans le cas où on a maintenu  $p$  constant et  $q$  variable, ce qui conduit à un changement de la périodicité de l'image. A partir de cette observation, nous rappelons que la variation de la phase de Talbot angulaire observée dépend du nombre entier  $q$ .



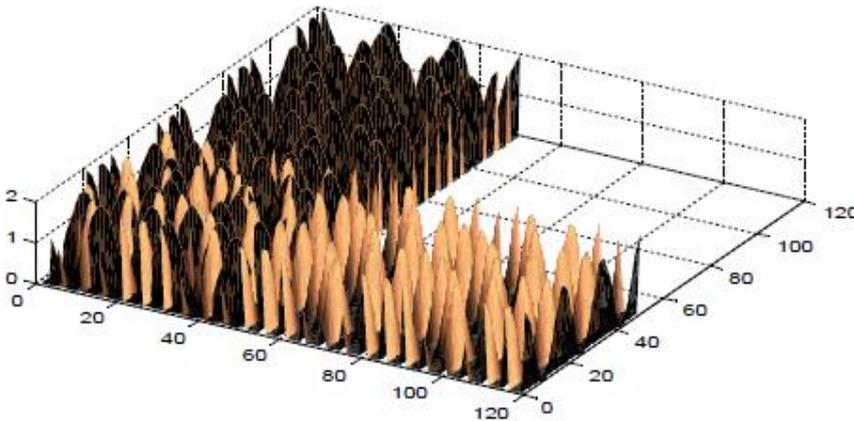
**Figure 2.5-** Phase de l'image Talbot angulaire pour différentes valeurs de la fraction  $p/q$  d'un réseau de diffraction 2-D



$p/q = 4/3$



$$p/q = 4/5$$



$$p/q = 5/6$$

**Figure 2.6-** Représentation de la phase de l'image Talbot angulaire en 3D pour différentes fractions  $p/q$ . la couleur cuivre et noire correspondent à la phase de l'image Talbot angulaire d'un réseau unidimensionnel dans la direction  $x$  et  $y$  respectivement. Le mélange des deux couleurs correspond à la phase de l'image Talbot d'un réseau bidimensionnel.

Le terme  $e^{\left(-i\pi \frac{(n^2+m^2)q}{p}\right)}$  représenté dans l'équation (2.34) prouve que la forme parabolique peut être aussi observée dans le cas d'un réseau 2-D. L'idée est de considérer un réseau 2-D comme étant la superposition de deux réseaux 1-D de même taille et de même nombre de fentes perpendiculairement. La figure (2-5) représente une image des phases d'un réseau 2-D ayant une forme qui rapproche de la parabole. Une manifestation plus claire de la forme parabolique pour un réseau à 2-D vient des simulations effectuées dans l'espace en 3D (voir Figure 2.6).

En plus, une forme parabolique clairement expliquée par le terme  $e^{[i\pi (x^2 + y^2) / \lambda d]}$  dans la figure (2.6) montre également que le nombre des répliques est lié à la distance  $d$  entre la source laser et le réseau de diffraction. Le nombre des répliques croît lorsque la distance diminue. Par conséquent, la distance  $d$  est évidemment inversement proportionnelle au nombre entier  $q$  l'équation (2.34) montre simplement que le second terme exponentiel  $e^{i\pi (n^2 + m^2) q / p}$  est

proportionnel à  $q$ , ce qui conduit à un nombre de répliques dépendant directement de l'augmentation du paramètre  $q$  [13].

### **2.11. Génération de taux de répétition THz par effet Talbot dans un laser Ti-Sa à décalage de fréquence**

Les lasers à décalage de fréquence (sans mode) ont attiré une grande attention dans les 25 années dernières en raison de leurs propriétés physiques contre-intuitives qui ont provoqué une grande quantité d'études de fondamentaux de la dynamique de laser [14]. Ils ont été étudiés pour la première fois en 1970 par Streifer, l'idée est d'utiliser un laser à colorant accordable en insérant un dispositif acousto-acoustique dans une cavité où le milieu à gain était un jet de Rhodamine 6G pompé par un laser en impulsions ; leur théorie était que les modes étaient chirpés par le décalage en fréquence à chaque aller-retour de façon continue dans la bande de gain [15].

Un laser à décalage de fréquence intracavité (Frequency Shifted Feedback "FSF") est une cavité laser dans laquelle a été inséré un décaleur de fréquence. A chaque fois qu'un photon effectue un aller-retour dans la cavité, sa fréquence est augmentée (ou diminuée) d'une certaine quantité [14]. Quand on injecte cette cavité par un laser monochromatique, on génère ainsi un peigne de fréquences. Mais contrairement aux peignes de fréquences des lasers à modes bloqués pour lesquels les phases des modes du peigne sont toutes identiques, elles ont dans notre cas, une dépendance quadratique. Ce comportement donne lieu à l'effet Talbot temporel, c'est-à-dire à la possibilité de générer des impulsions laser à des taux de répétition ajustables et potentiellement très élevés.

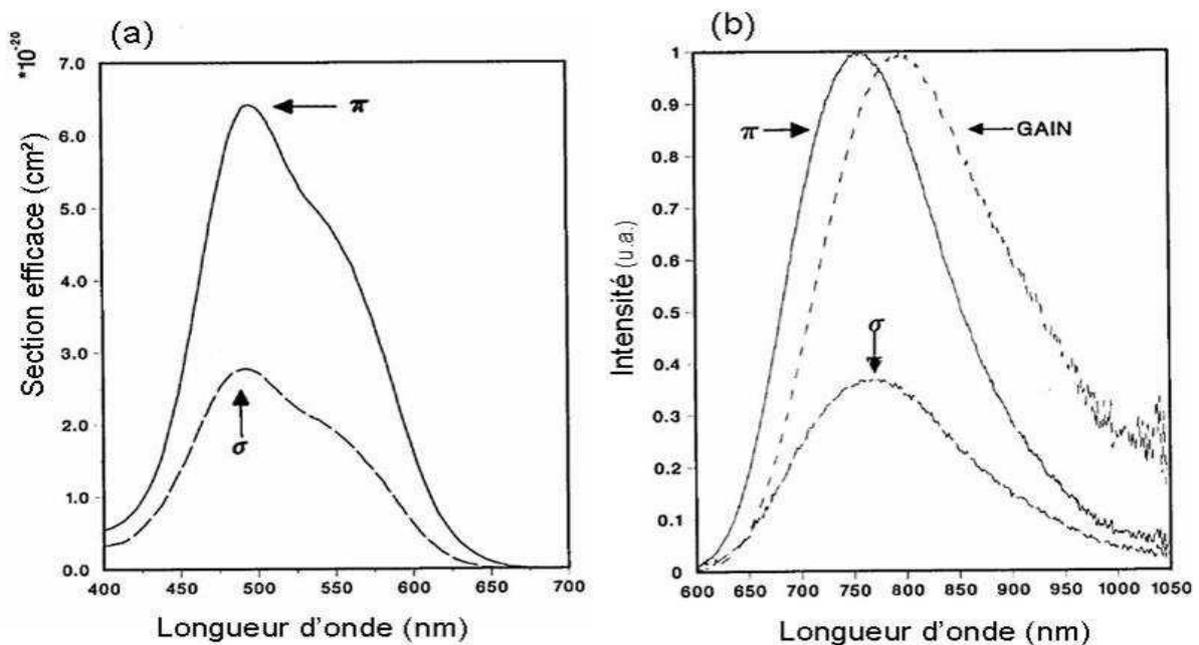
Dans ce chapitre, nous proposons de démontrer l'effet Talbot dans un laser Ti : Sa injecté par une diode à cavité étendue à 780 nm dans le but de développer une source laser. Cet effet est produit lorsqu'un signal d'impulsions lumineuses courtes et périodiques, se propage dans un milieu dispersif. On note qu'un milieu dispersif est un milieu dans lequel, les différentes harmoniques, qui composent l'impulsion se propagent avec des vitesses différentes, entraînant ainsi l'élargissement de l'impulsion au cours de sa propagation. La largeur temporelle et la forme de l'impulsion correspondent à la largeur et à la forme du réseau traité dans le chapitre précédent dans la figure (2-4). Le temps de répétition joue le rôle de la période spatiale.

### **2.12. Les cristaux saphir dopés au titane**

Le saphir est un cristal ionique isolant dont la formule chimique est  $Al_2O_3$ , il est transparent à partir de l'ultraviolet à l'infrarouge, aussi il est très dur et cette propriété est nécessaire pour produire des surfaces optiques de bonnes qualités. Le dopage par les ions titane  $Ti^{+3}$  est réalisé par le dioxyde de titane  $Ti_2O_3$  au mélange de fondu d' $Al_2O_3$  lors de la croissance du cristal.

Le Saphir dopé au titane a des propriétés intéressantes qui le rendent idéal pour un laser à certaines caractéristiques souhaitables. Le cristal de saphir dopé au titane a la composition chimique de trioxyde d'aluminium, ou  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , qui est un cristal hexagonal. Le titane est présent dans de très faibles densités, de l'ordre de 0,1% en poids de  $\text{Ti}_2\text{O}_3$ ; l'ensemble du cristal est le  $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ . C'est un système à quatre niveaux qui est caractérisé par une très large bande spectrale de fluorescence centrée à 800nm, d'environ 180nm de largeur à mi hauteur, et par une large bande d'absorption autour de 490nm facilement accessible par des lasers Argon, ou Nd:YAG doublés en fréquence [16].

La figure (2-7) présente le spectre d'absorption et d'émission du cristal Ti-Sa suivant les deux directions parallèle et perpendiculaire.



**Figure 2.7-** (a) Spectre d'absorption et (b) spectre d'émission du  $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ , suivant les deux directions de polarisation perpendiculaire  $\sigma$  et parallèle  $\pi$ . D'après P.F. [17].

### 2.13. Rôle de modulateur acousto-optique dans un laser FSF

Un modulateur acousto-optique est une cellule de Bragg qui sert à modifier la fréquence du faisceau incident ; un signal électrique met la cellule piézo-électrique en mouvement ce qui crée une onde sonore dans le matériau composant la cellule, ce mouvement cause une compression et une dilatation et vient changer l'indice de réfraction. L'indice du milieu devient périodique et forme un réseau. Le réseau de diffraction étant mobile, quand on ferme la cavité sur l'ordre -1, à chaque aller-retour dans la cavité, la fréquence des photons est

augmentée ou diminuée du double de la fréquence acoustique [14]. Pour mieux comprendre le phénomène, on définit la diffraction de Bragg :

### 2.13.1. Diffraction de Bragg

Dans un milieu où l'indice de réfraction est une structure périodique, l'onde optique qui se propage dans ce milieu est soumise à un phénomène de diffraction, l'onde incidente est caractérisée par un angle d'incidence  $\theta$  qui va être partiellement réfléchi par chaque strate. Entre l'onde réfléchi par la strate de cote  $x$  et l'onde réfléchi par la strate de cote  $x=0$ , il y a une différence de marche caractérisée par:

$\phi(x) = 2k_i \sin(\theta)$  dont  $k_i$  est le nombre d'onde de l'onde incidente.

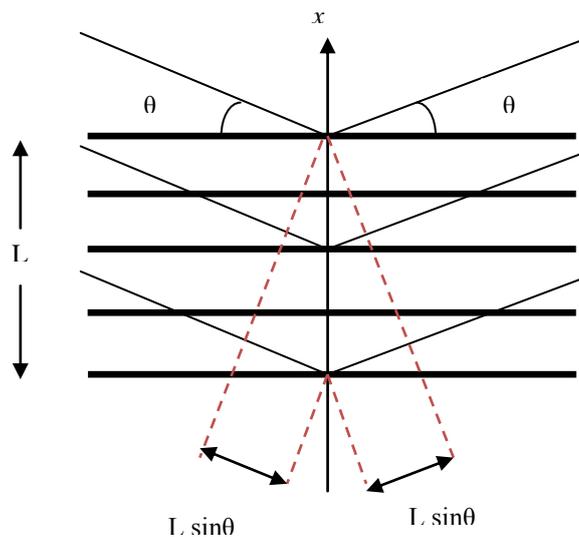
Le coefficient de réflexion en amplitude est décrit comme suit :

$$r = \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} \frac{\delta r}{\delta x} e^{i2k_i x \sin \theta} dx \quad (2.35)$$

Il a été montré que ce coefficient peut s'écrire sous la forme :

$$r = -iqL \frac{\Delta n}{8n \sin^2 \theta} e^{i\Omega t} \left[ \frac{\sin(\phi + 2k_0 \sin \theta) \frac{L}{2}}{(\phi + 2k_0 \sin \theta) \frac{L}{2}} - \frac{\sin(\phi - 2k_0 \sin \theta) \frac{L}{2}}{(\phi - 2k_0 \sin \theta) \frac{L}{2}} \right] \quad (2.36)$$

Lorsque l'un des deux termes en sinus cardinal est maximal l'autre devient négligeable, ceci permet de mettre en évidence deux régimes de fonctionnement le premier appelé décalage positif correspondant à la condition  $\phi = 2k_0 \sin \theta$  et le deuxième appelé décalage négatif, correspond à la condition  $\phi = -2k_0 \sin \theta$  [18].



**Figure 2.8-** Diffraction d'une onde optique par un milieu acousto-optique [18].

Le coefficient de réflexion atteint sa valeur maximale pour l'angle d'incidence  $\theta_B$  défini par

$$\phi = 2 k_0 \sin \theta_B \quad (2.37)$$

$$\text{d'où : } \sin \theta_B = \frac{\lambda}{2\Lambda} \quad (2.38)$$

L'angle  $\theta_B$  est l'angle de Bragg, qui permet une interférence constructive entre les réflexions d'une onde lumineuse sur les différents plans du réseau acousto-optique.

### 2.13.2. Décalage en fréquence

La réflectivité  $r$  calculée dans l'équation (2.36), pour le cas d'un décalage positif, on remarque que l'onde réfléchi à l'angle de Bragg va avoir une fréquence  $\omega_B$  plus grande que l'onde incidente. La différence est la valeur de la fréquence angulaire de l'onde acousto-optique. L'onde réfléchi à l'angle de Bragg a donc une fréquence  $\omega_B$  qui se trouve décalée par rapport à celle de l'onde incidente. Elle est donnée par :

$$\omega_B = \omega + \Omega \quad (2.39)$$

Avec de telles caractéristiques, les modulateurs acousto-optique ont pu être utilisés dans de nombreuses configurations. On peut notamment mentionner les deux applications majeures qui sont la réalisation de sources accordables par la sélection de la longueur d'onde en faisant varier la fréquence acoustique  $f : \lambda = \frac{2v}{f} \sin \theta_B$  et la conception des lasers impulsionsnels

émettant en régime de mode déclenchés actifs. Dans ce cas, la cavité est fermée sur un ordre ; les pertes sont alors minimales. Il est à noter que deux configurations sont possibles :

La cavité est fermée sur l'ordre 0 et on sort sur l'ordre 1 ; ou on sort sur l'ordre 0 et on ferme sur l'ordre 1.

### 2.14. Lasers sans modes

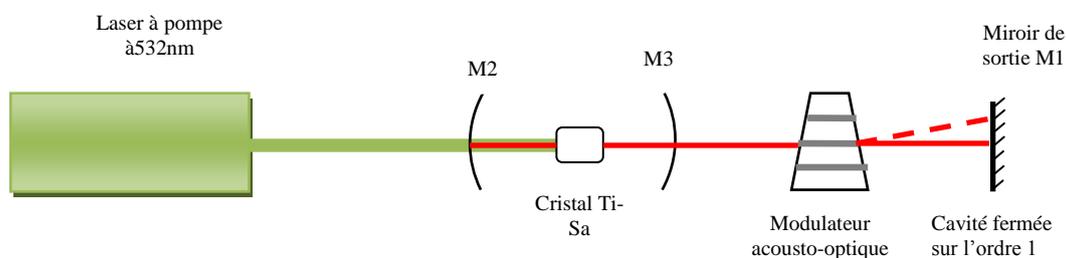
Le laser à décalage de fréquence présente une propriété différente que celle d'un système laser classique, il oscille avec un spectre quasi continu. Ceci est provoqué par le rôle d'un dispositif à décalage de fréquence à l'intérieur de la cavité laser (modulateur acousto-optique (AOM)), ce dernier a été utilisé pour les méthodes de verrouillage de mode ou Q-switching pour obtenir des impulsions courtes.

La différence importante entre ces méthodes et le laser à décalage de fréquence FSF est que dans les lasers FSF, la lumière est réinjectée dans un milieu à gain sur l'ordre  $\pm 1$ .

Une interférence constructive au sein d'une cavité laser conduit à la formation à la sortie d'un spectre large qui compose des trous des fréquences discrètes avec largeurs étroites. En

insérant un modulateur acousto-optique qui fournit un décalage de fréquence du rayonnement dans la cavité de chaque aller-retour, il est possible d'empêcher l'interférence constructive et éliminer les caractéristiques de fréquence à sélectivité plus précisément le décalage de fréquence élimine l'interférence constructive à longueur d'onde particulière qui est les modes longitudinaux, le spectre à la sortie oscille donc sans mode [19,20].

Dans notre expérience, nous avons utilisé une cavité laser qui comporte trois miroirs, le milieu amplificateur est un cristal titane saphir, il est pompé par un laser continu délivrant 5W à 532 nm. La cavité du laser sans mode comporte un modulateur acousto-optique fonctionnant à 40MHz qui effectue le décalage en fréquence (80MHz). Il joue aussi le rôle de réseau de diffraction et réalise un premier affinement spectral.



**Figure 2.9-** Représentation d'un oscillateur sans mode

### 2-15 Théorie de l'effet Talbot temporel dans les lasers à décalage de fréquence

Dans la première partie de ce chapitre, on a montré la théorie du Talbot fractionnaire, il est intéressant d'étudier l'équivalent du Talbot fractionnaire dans le domaine du temps (Talbot temporel). Un peigne de fréquence à mode bloqué est l'équivalent temporel d'un réseau optique dans le champ lointain. Plus précisément, les interférences constructives produisent périodiquement avec le temps, générant des impulsions à une fréquence de répétition égale à la distance entre deux modes successifs. Ensuite, l'effet Talbot fractionnaire correspond à un train d'impulsions espacé à  $n$  modes.

De façon générale, l'effet Talbot est défini comme étant l'interférence des paquets d'ondes dans l'approximation paraxiale. Ces paquets d'ondes ont une dépendance quadratique avec  $n$ , ce système présente une réplique de paquet d'onde et à la fois une réplique fractionnaire c'est-à-dire l'apparition des mini multiple paquets d'ondes. Ce phénomène (effet Talbot) est une illustration particulière d'une somme avec une phase quadratique qui est lié aux propriétés mathématiques des sommes de Gauss. L'intérêt de ce système pour les systèmes physiques montrant un déphasage quadratique est la factorisation des grands nombres [21].

### 2.15.1. Somme de Gauss

La somme de Gauss se manifeste dans de nombreux phénomènes physiques et vient dans une grande variété. Les valeurs réelles des gaussiennes connaissent bien de la physique statistique. Lorsque l'intégration n'est pas sur l'axe réel mais le long d'une diagonale d'un espace complexe. On arrive à une intégrale qui donne la spirale de Cornu. Cet objet géométrique détermine la répartition de l'intensité lumineuse dans le champ lointain sur l'écran.

Une application moderne de l'intégrale sur des phases quadratiques dans la physique est le laser pulsé. La fréquence de la lumière qui croît linéairement en fonction du temps donne lieu à l'apparition d'une phase quadratique. Lorsqu'on remplace l'intégration sur la variable continue par une somme de paramètres discrets, dans ce cas, la spirale de Cornu se transforme en une somme de Gauss.

Les sommes ont des propriétés qui sont différentes radicalement de ces intégrales. Cette propriété est liée aux phénomènes des répliques et répliques fractionnaire. Dans le contexte de la spirale de Cornu, la transition de l'intégrale à la somme de Gauss conduit à ce qu'on appelle « curlicues » c'est-à-dire une spirale de Cornu dans une spirale de Cornu. [22].

La compréhension des mécanismes de l'effet Talbot fait intervenir des sommes de Gauss, qui décrit la distribution de l'intensité à proximité du réseau de diffraction. Elles sont utilisées pour une série de femtoseconde conçue de manière appropriée des impulsions lasers. L'intensité de ce laser à une composante de fréquence est obtenue par l'interférence de cette composante des impulsions individuelles donne lieu à une somme de fréquence [23]. Les sommes de Gauss sont notamment l'outil le plus idéal pour le phénomène de factorisation. Les expériences sont basées sur des interféromètres classiques tel que l'interféromètre de Michelson [24] ou l'interféromètre de Mach-Zehnder [25]. Le déphasage créé par les deux bras est augmenté quadratiquement avec la longueur de l'un des bras de l'interféromètre. En plus, les calculs de troncature de la somme de Gauss sont présentés non seulement dans les facteurs entiers mais aussi dans les facteurs rationnels.

### 2.15.2. Laser FSF injecté par un laser continu CW

On considère la cavité laser FSF caractérisée par un temps  $\tau_c = \frac{1}{f_c} = \frac{2\pi}{\omega_c}$  et la fréquence décalée  $f_s = \frac{\omega_s}{2\pi}$ . La cavité est injectée par un champ électrique  $E_0 e^{-i\omega_0(t+\tau_c)}$  à chaque aller

retour dans la cavité, la fréquence angulaire est décalée par  $\omega_s$ . Une fuite du dispositif de décalage de fréquence acousto-optique AOFS (Acousto Optics Frequency Shifter) à l'ordre

zéro permet d'extraire une fraction du champ intra-cavité. Le spectre à la sortie consiste en un peigne de modes optiques séparés par une fréquence  $f_s$ . La fréquence angulaire du mode  $n$  est égal à  $\omega_0 + n \omega_s$ .

On note  $\eta$  le rendement de diffraction de l'amplitude d'AOFS et on néglige la dépendance de  $\eta$  avec la fréquence d'AOFS. On considère que la dépendance du gain du milieu dans la cavité avec la fréquence en définissant  $h(n)$  le gain d'un passage unique du milieu laser d'un mode optique à la fréquence  $\omega_0 + n \omega_s$ . Le champ résultant à la sortie d'AOFS est:

$$\begin{aligned}
E(t) = & E_0(1-\eta)^2 h(0)e^{-i\omega_0 t} \\
& + E_0\eta(1-\eta)^2 h(0)h(1)e^{-i(\omega_0+\omega_s)t} e^{i\phi_1} \\
& + E_0\eta^2(1-\eta)^2 h(0)h(1)h(2)e^{-i(\omega_0+2\omega_s)t} e^{i\phi_2} \\
& + E_0\eta^3(1-\eta)^2 h(0)h(1)h(2)h(3)e^{-i(\omega_0+3\omega_s)t} e^{i\phi_3} \\
& + \dots\dots\dots
\end{aligned} \tag{2.40}$$

Avec  $\phi_1 = (\omega_0 + \omega_s)\tau_c$ ,  $\phi_2 = \phi_1 + (\omega_0 + 2\omega_s)\tau_c$ ,  $\phi_3 = \phi_2 + (\omega_0 + 3\omega_s)\tau_c$  jusqu'à

$$\phi_n = n\omega_0\tau_c + n(n+1)\omega_s\tau_c / 2 \tag{2.41}$$

On définit la fonction  $g(n) = \eta^n (1-\eta)^2 \prod_{k=0}^n h(k)$  qui est considérée comme l'enveloppe du spectre optique du laser résultant du gain et des pertes de la cavité du laser FSF. Nous avons mis  $g(n) = 0$  lorsque  $n < 0$  et  $n > N$ .

L'expression du champ électrique à la sortie du laser FSF pompé par une onde monochromatique s'écrit donc comme suit :

$$E(t) = E_0 e^{-i\omega_0 t} \sum_n g(n) e^{-in\omega_s t} e^{in\omega_0\tau_c} e^{i\frac{n(n+1)\phi}{2}} \tag{2.42}$$

$$\text{Où } \phi = \omega_s \tau_c = 2\pi f_s / f_c \tag{2.43}$$

$E(t)$  apparait comme une série de Fourier avec des termes d'amplitudes égales et des phases quadratiques. Etant donné que l'ordre de grandeur de  $\omega_0$  est plus grand que  $\omega_s$ , on considère le référentiel de rotation à  $\omega_0$  où l'on étudie l'enveloppe du champ électrique.

On note  $\theta = \omega_s t + \omega_0 \tau_c$ , le champ électrique du laser FSF est décrit par une fonction périodique avec une période  $2\pi$ :

$$F(\theta) = \sum_{n=0}^{N-1} e^{-in\theta} e^{i\frac{n(n+1)\phi}{2}} \tag{2.44}$$

Le champ électrique peut être tracé dans le plan complexe avec une chaîne de  $N$  phases quadratiques. L'image résultante consiste en une répétition d'une spirale de Cornu qui

s'appelle « curlicues » spirale de Cornu dans une spirale de Cornu avec l'évolution temporelle.

$\phi = \omega_s \tau_c = 2\pi f_s / f_c = p/q$  [21] avec p et q sont des nombres entiers, la phase pour n modes

$$\phi_n = \pi n(n+1)p/q$$

on étudie F( $\theta$ ) qui dépend des nombres entiers p et q.

### 2.15.2.a) Cas d'un p pair ou q impair

Dans ce cas, on a :

$$\begin{aligned} \phi_{n+q} &= \pi(n^2 + 2nq + q^2 + n + q)p/q \\ &= \phi_n + 2\pi np + \pi p(q+1) = \phi_n \end{aligned} \quad (2.45)$$

$\phi_n$  est périodique avec une période égale à q.

$$\begin{aligned} F(\theta) &= \sum_{n=0}^{Kq} e^{-in\theta} e^{i\phi_n} + \sum_{n=Kq+1}^{N-1} e^{-in\theta} e^{i\phi_n} \\ &= \sum_{n=0}^{q-1} e^{-in\theta} e^{i\phi_n} + \sum_{k=0}^{K-1} e^{-ikq\theta} + \sum_{n=Kq+1}^{N-1} e^{-in\theta} e^{i\phi_n} \end{aligned} \quad (2.46)$$

Et finalement, on obtient :

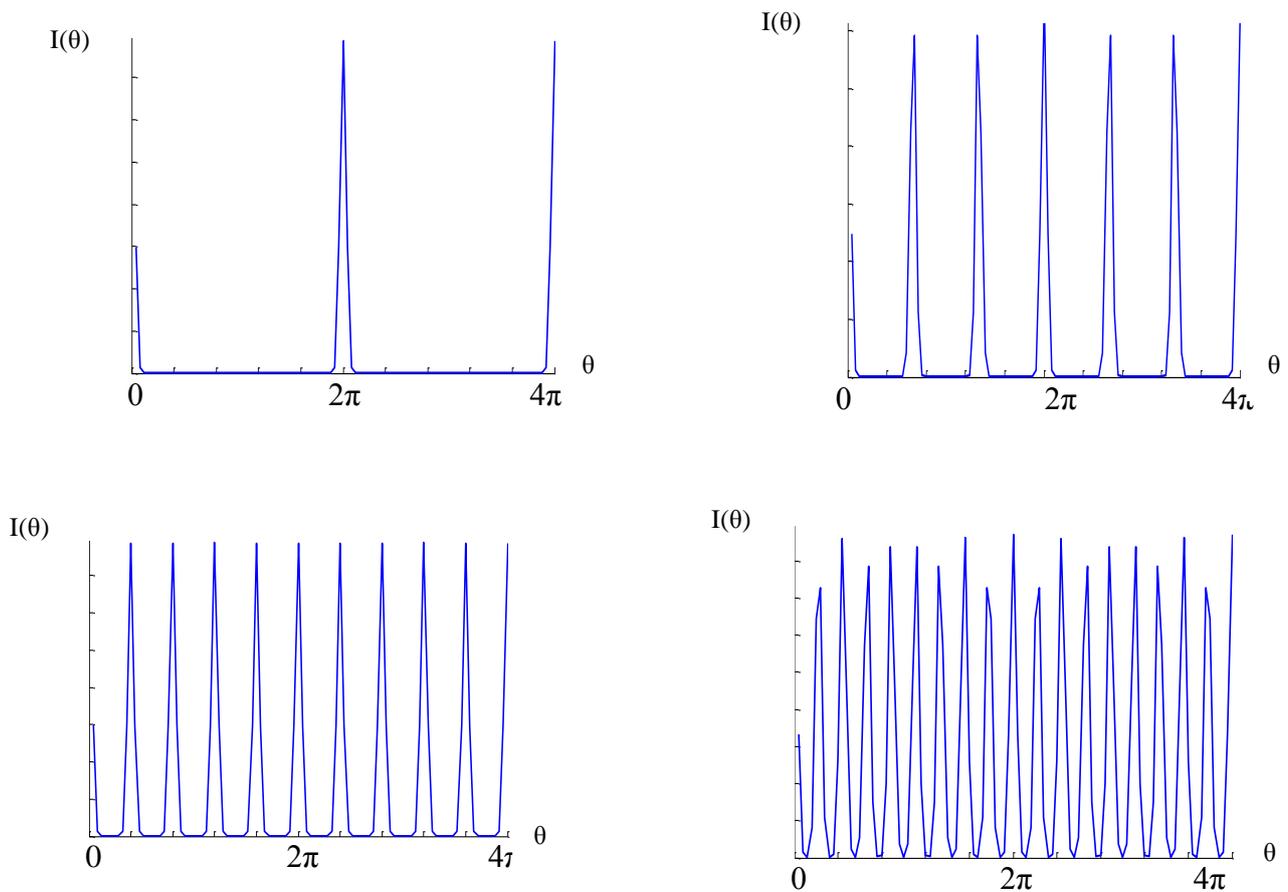
$$F(\theta) = \frac{1 - e^{-iKq\theta}}{1 - e^{-iq\theta}} \sum_{n=0}^{q-1} e^{-in\theta} e^{i\phi_n} + \sum_{n=Kq+1}^{N-1} e^{-in\theta} e^{i\phi_n} \quad (2.47)$$

Lorsque q est un multiple de N (N=kq), le deuxième terme exponentiel de l'équation disparaît. Par conséquent, le champ électrique s'écrit comme suit :

$$F(\theta) = \frac{1 - e^{-iKq\theta}}{1 - e^{-iq\theta}} \sum_{n=0}^{q-1} e^{-in\theta} e^{i\phi_n} \quad (2.48)$$

L'intensité du laser est donnée par :

$$I(\theta) = |F(\theta)|^2 = \frac{\sin^2(N\theta/2)}{\sin^2(q\theta/2)} \left| \sum_{n=0}^{q-1} e^{-in\theta} e^{i\phi_n} \right|^2 \quad (2.49)$$



**Figure 2.10-** intensité laser FSF avec  $N=45$  modes,  $p/q=0$  en haut à gauche,  $p/q=1/3$  en haut à droite,  $p/q=1/5$  en bas à gauche,  $p/q=1/9$  en bas à droite

L'intensité est donnée par l'équation (2.49), le premier terme définit la diffraction du réseau optique. La largeur de l'impulsion est égale à  $2n/Kq=2\pi/N$ . le deuxième terme est une fonction de série de Fourier dont la fréquence de seuil est  $(q-1)$  ce qui signifie que la valeur minimale est égale  $2\pi/q-1$ . Par conséquent, cette fonction peut être considérée comme constante et égale à  $q$  pendant la génération d'une impulsion et la largeur de l'impulsion est donc  $2\pi/N$  ce qui implique que la largeur de l'impulsion est limitée seulement par le nombre des modes.

### 2.15.2.b) Cas de $p$ pair et $q$ impair

Une conclusion similaire peut être obtenue dans le cas de  $p$  pair et  $q$  impair, ce qui donne :

$$\phi_{n+q} = \pi(n^2 + 2nq + q^2 + n + q)p/q = \phi_n + \pi \quad (2.50)$$

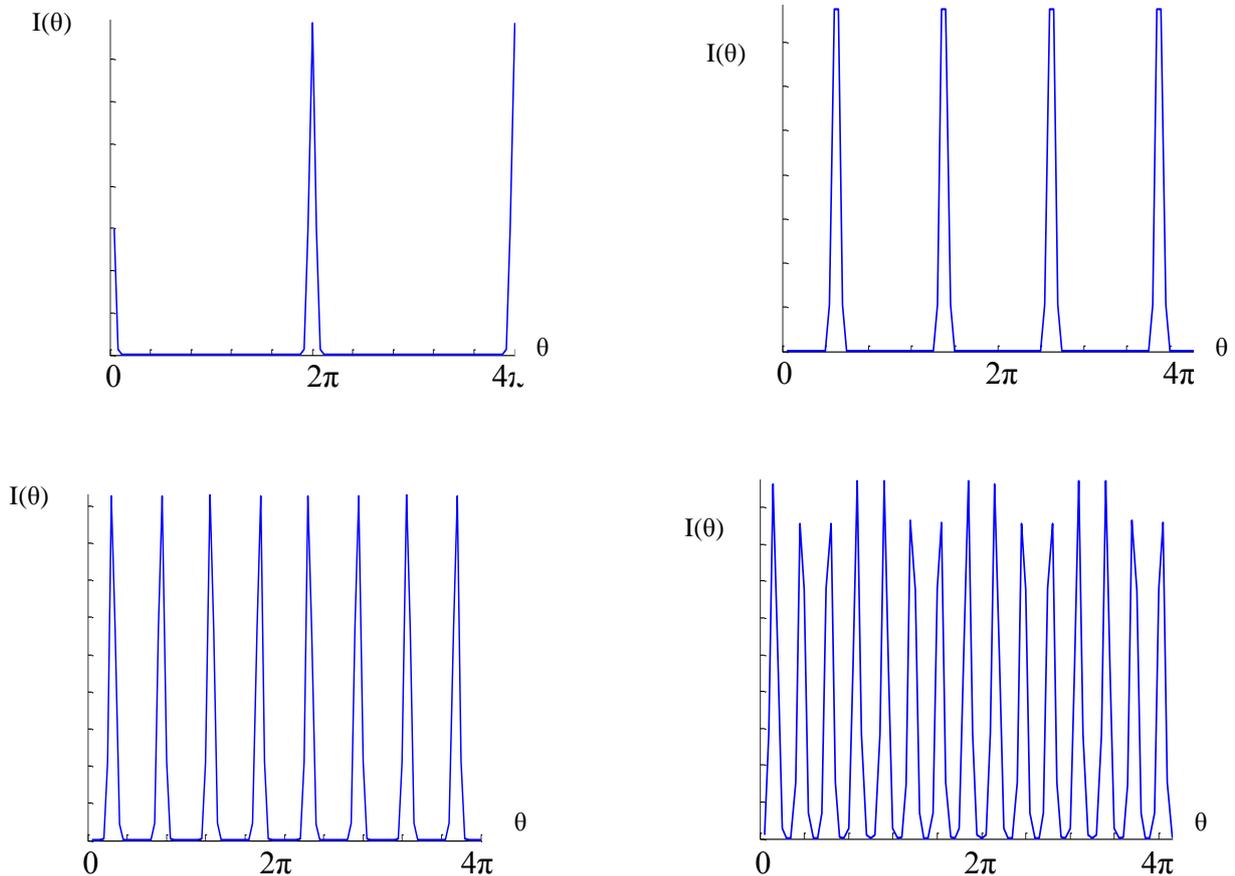
On suppose notamment lorsque q est un multiple de N , N=kq, la fonction.....

$$F(\theta) = \sum_{n=0}^{q-1} e^{-in\theta} e^{i\phi_n} + \sum_{k=0}^{K-1} (-1)^k e^{ikq\theta} \quad (2.51)$$

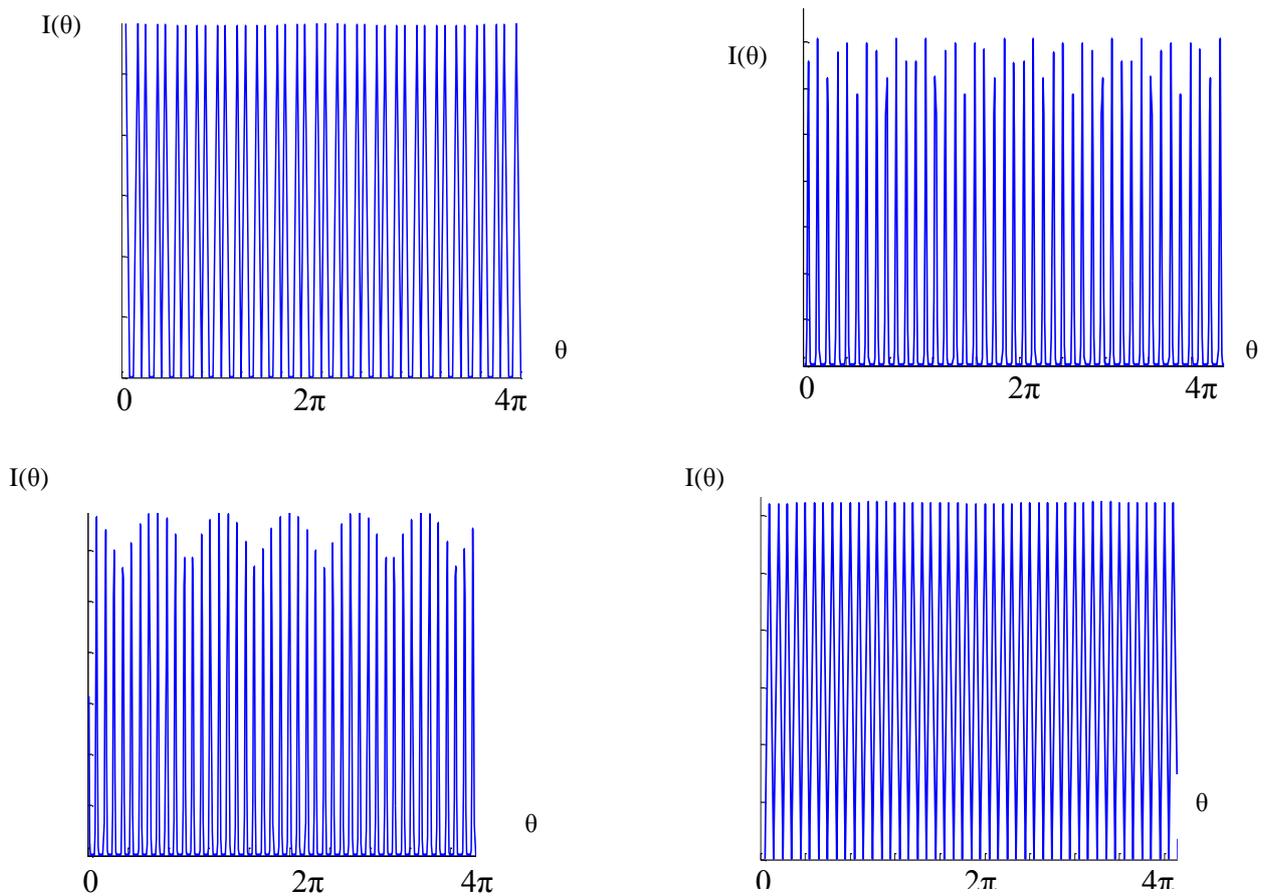
$$F(\theta) = \frac{1 - e^{-iK(q\theta + \pi)}}{1 - e^{-i(q\theta + \pi)}} \sum_{n=0}^{q-1} e^{-in\theta} e^{i\phi_n} \quad (2.52)$$

L'intensité laser est s'écrit comme suit :

$$I(\theta) = |F(\theta)|^2 = \frac{\sin^2[N(q\theta + \pi)/2]}{\sin^2[(q\theta + \pi)/2]} \left| \sum_{n=0}^{q-1} e^{-in\theta} e^{i\phi_n} \right|^2 \quad (2.53)$$



**Figure 2.11-** Intensité laser FSF avec N= 45 modes, p/q=0 en haut à gauche, p/q=1/2 en haut à droite, p/q=1/4 en bas à gauche, p/q=1/8 en bas à droite

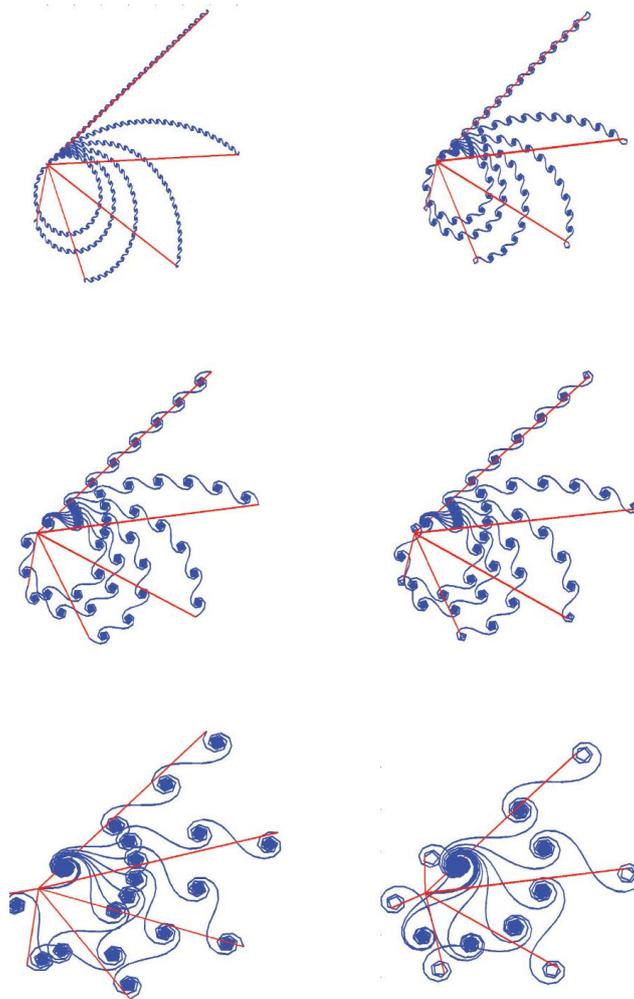


**Figure 2.12-** Intensité laser FSF avec  $N= 200$  modes,  $p/q=1/20$  en haut à gauche,  $p/q=1/22$  en haut à droite,  $p/q=1/23$  en bas à gauche,  $p/q=1/25$  en bas à droite

La figure (2.12) montre des schémas où les impulsions ont une amplitude constante et d'autres où l'amplitude de l'intensité variable, si on compare les trois figure (2.10) (2.11) et (2.12), on peut conclure que le cas de  $p$  pair et  $q$  impair est similaire au cas  $p$  pair ou  $q$  impair. Dans le cas où  $q$  n'est pas un multiple de  $N$ , comme dans le cas où  $p/q=1/22$ , nous avons  $N=200 \equiv 2 \pmod{22}$  ce qui conduit que deux termes qui ne sont pas pris en compte dans l'équation (2.47) ce qui résulte un signal moins fluctuant (figure(2.12 en haut à droite)) par rapport au cas  $N=200 \equiv 7 \pmod{23}$  où les 7 termes ne sont pas pris en compte ce qui montre plus de fluctuation dans le spectre d'intensité comme le montre la figure(2.12 en bas à gauche)

Dans le plan complexe, on peut tracer la fonction  $F(\theta)$  de  $N$  phases quadratiques, pour chaque valeur de  $\Phi$  on trace  $F(\theta_k)$ . On note  $\theta_k=2k\pi/1000$  et  $0 \leq k \leq 5$

La figure 2.13 représente le champ électrique d'un laser FSF dans le plan complexe avec des phases quadratiques.



**Figure 2.13-** Représentation du champ électrique du laser FSF dans le plan complexe avec des phases quadratiques pour  $N = 200$  modes,  $p=1$  et  $q= 7,15,25,27,51,89$  de gauche à droite et de haut au bas.

### 2.16. Dispositif expérimental

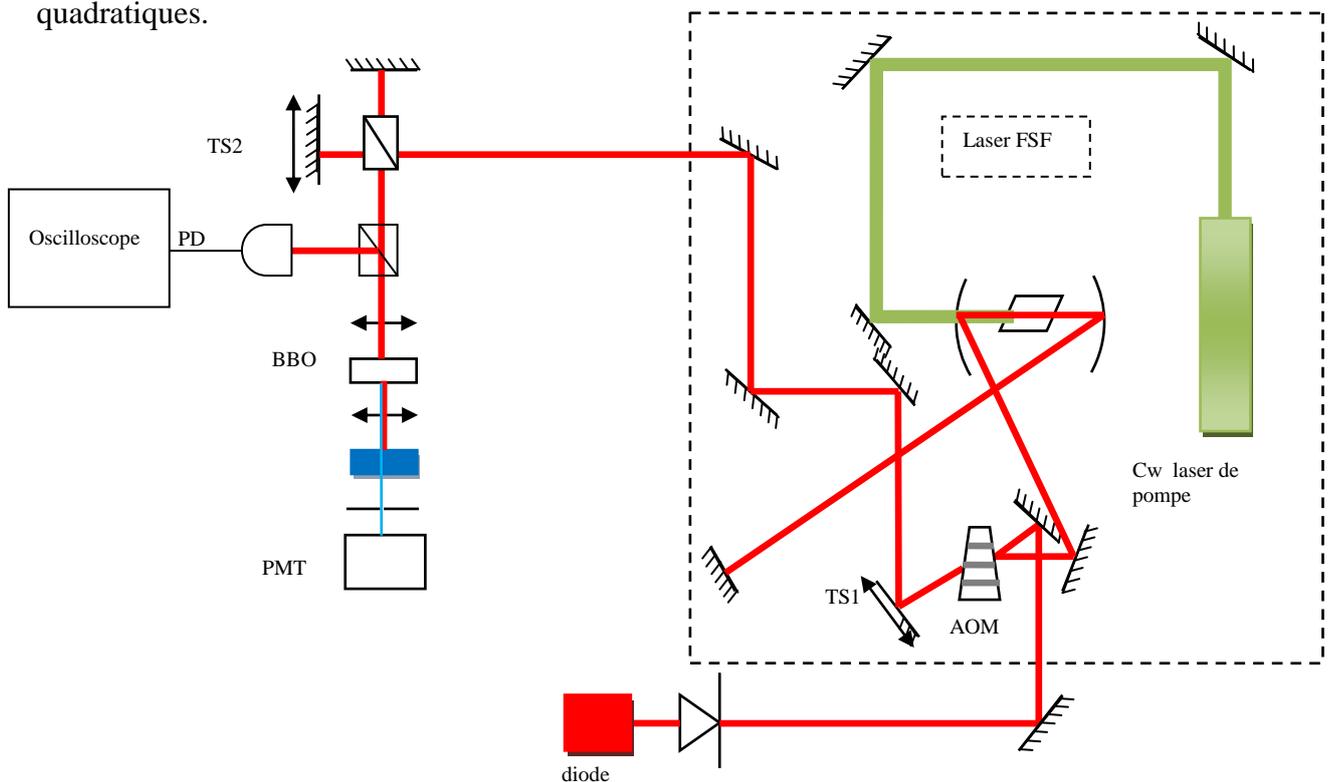
Nous avons démontré la possibilité de générer un taux de répétition très élevé dans un laser Ti-Sa à décalage de fréquence injecté par une diode à cavité étendue 780 nm. Le laser FSF est une cavité laser dans laquelle la fréquence d'un photon est augmentée d'une certaine quantité à chaque aller-retour dans la cavité. Quand on injecte la cavité par un champ monochromatique, le laser FSF génère un peigne de fréquence, dont la phase des modes est quadratique. Cette propriété permet de mettre en évidence l'effet Talbot temporel, c'est-à-dire générer des impulsions avec un taux de répétition ajustable via la courbure de la parabole.

Le laser Ti-Sa est pompé par un laser CW de la pompe à 532 nm avec une puissance 4.3 W. La diode délivre environ (25 mw, 10KHz de largeur spectrale) à 780 nm et injecte le laser Ti-Sa via l'ordre de diffraction des AOFS (décalage de fréquence acousto- optique). Les pertes d'insertion sont d'environ 90%. Le laser consiste en une cavité fermée de l'ordre 1 de

diffraction des AOFS. Celui-ci est entraîné à la fréquence 40 MHz ce qui conduit à un décalage de fréquence  $f_s$  par aller-retour égal à 80 MHz. Le coupleur de sortie du laser FSF est monté sur une platine de translation de sortie du laser FSF permettant de balayer la longueur de la cavité sur plus de 1cm et par conséquent la largeur spectrale libre de la cavité  $f_c$  est égale à 100 MHz. Une fraction du faisceau de sortie est dirigée sur une photodiode rapide (100ps) et le signal est acquis par un oscilloscope numérique rapide, l'autre partie du faisceau est envoyée dans un interféromètre de Michelson dont le miroir mobile est monté sur un deuxième étage de translation ; la sortie de l'interféromètre est focalisée dans un cristal BBO ( Beta Borate de Bryum) de génération de seconde harmonique à 580 nm. Le signal UV est filtré par un prisme et un filtre spatial et spectral, et détecté par un tube photomultiplicateur.

Lorsque la largeur spectrale libre de la cavité  $f_c$  est accordée exactement à 100 GHz, le rapport  $f_c/f_s$  est égal à 4/5 et le laser émet une impulsion avec un taux de répétition de 400 MHz.

La figure 2.14 présente la génération de peigne de fréquence d'un laser FSF avec des phases quadratiques.



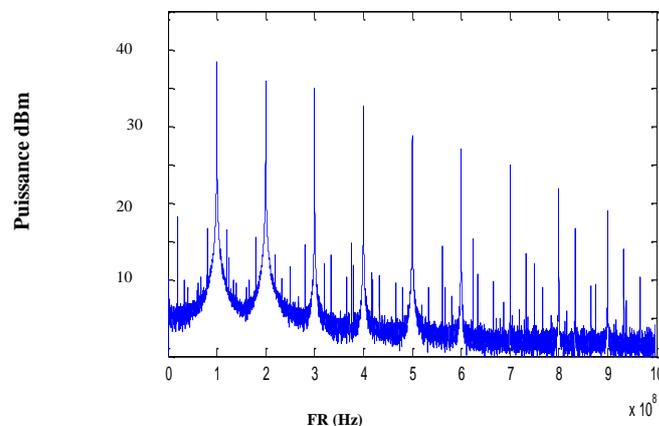
**Figure 2.14-** Génération de peigne de fréquence d'un laser FSF avec des phases quadratiques. TS1, TS2 des platines de translation. Interféromètre de Michelson et BBO pour générer SHG (seconde harmonique) à 780 nm ; PD et PMT sont photodiode et un photomultiplicateur respectivement.

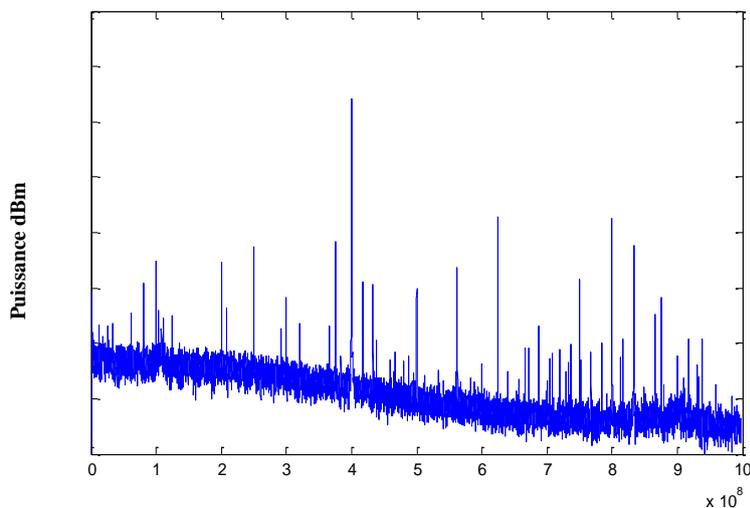
## 2.17. Génération d'un peigne de fréquence avec des phases quadratiques dans un laser FSF

En optique, la génération des peignes de fréquences optiques avec des phases identiques (ou linéaires) est régulièrement réalisée dans les lasers à modes bloqués. Cependant, un peigne de fréquences avec une phase quadratique est plus difficile à réaliser car il nécessite une dispersion entre les modes adjacents croissants linéairement avec  $n$  ce qui implique une vitesse de groupe de dispersion très grande. Il est prouvé que l'injection du laser à décalage de fréquence par un laser CW continu est la solution la plus flexible. On rappelle que la cavité laser FSF est fermée sur l'ordre  $+1$  ou  $-1$  du modulateur acousto-optique. Si on fait le traitement sans injection par un laser CW, le spectre résultant est un spectre sans mode [26]. Lorsqu'on injecte le laser FSF avec un laser monomode (diode laser), le spectre résultant est un peigne de fréquences avec un espacement de fréquence égal à  $f_s$ . On peut montrer que les phases des modes évoluent quadratiquement avec  $n$  et la formule de la phase s'écrit comme suit :  $\phi_n = \pi n(n+1)p/q$

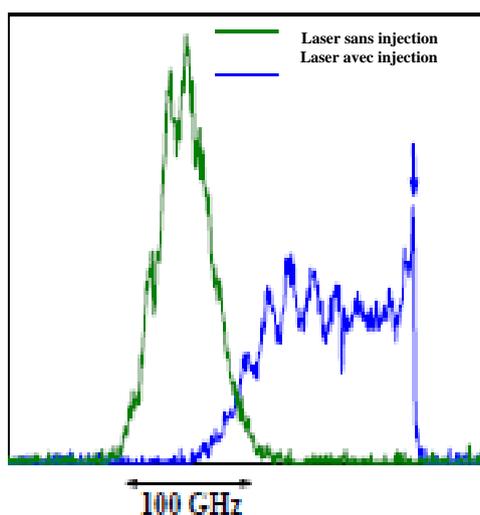
On a montré expérimentalement que lorsqu'on traite le laser FSF sans injection, on génère un spectre large sans mode à 100MHz. Dans le cas d'un laser FSF injecté par laser de pompe, le spectre résultant consiste en un peigne de fréquences d'environ  $N=2500$  modes séparés avec 80 MHz. Lorsque l'intervalle spectral libre est ajusté à 99.990 MHz, la phase est égale à  $\phi = 2\pi(4/5 + 1/12500)$  et le spectre d'intensité, dans ce cas, est moins bruité par rapport au spectre sans mode.

La figure (2.15) et (2.16) illustre le spectre de fréquence et le spectre optique d'un laser FSF sans et avec injection respectivement.





**Figure 2.15-** Comparaison entre le spectre de fréquence d'oscillation résultant d'un laser FSF (en haut sans mode à 100 GHz et en bas spectre obtenu avec injection à 400 MHz)



**Figure 2.16-** Spectre optique du laser FSF avec et sans injection, la fréquence d'injection correspond au pic pointu bleu.

### 2.18. Réponse d'auto-corrélation d'un laser FSF

Un auto-corrélateur comme son nom l'indique, permet de caractériser l'auto-corrélation d'une impulsion dans une échelle de temps lent, surmontant ainsi les difficultés associées à l'électronique à grande vitesse [27].

La trace d'auto-corrélation enregistrée est obtenue en mesurant la quantité de la lumière produite par doublage de fréquence dans un cristal non linéaire BBO en fonction du retard entre les deux impulsions incidentes sur le cristal. La fonction du champ électrique s'écrit de la façon suivante :

$$E_j(t) = A_j(t)\exp(i\omega t) \quad (2.54)$$

Où  $A_j$  désigne l'amplitude du champ  $j = 1,2$

Les champs des impulsions sont identiques, on peut montrer que l'intensité du signal de la seconde harmonique est proportionnelle à :

$$F(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} [A(t)\exp(i\omega t) + A(t-\tau)\exp(i\omega(t-\omega))]^2 dt \quad (2.55)$$

$\tau$  est le temps de retard entre deux impulsions

Si les termes variant rapidement sont moyennés, on obtient la fonction d'auto-corrélation d'ordre 2 qui est donnée par:

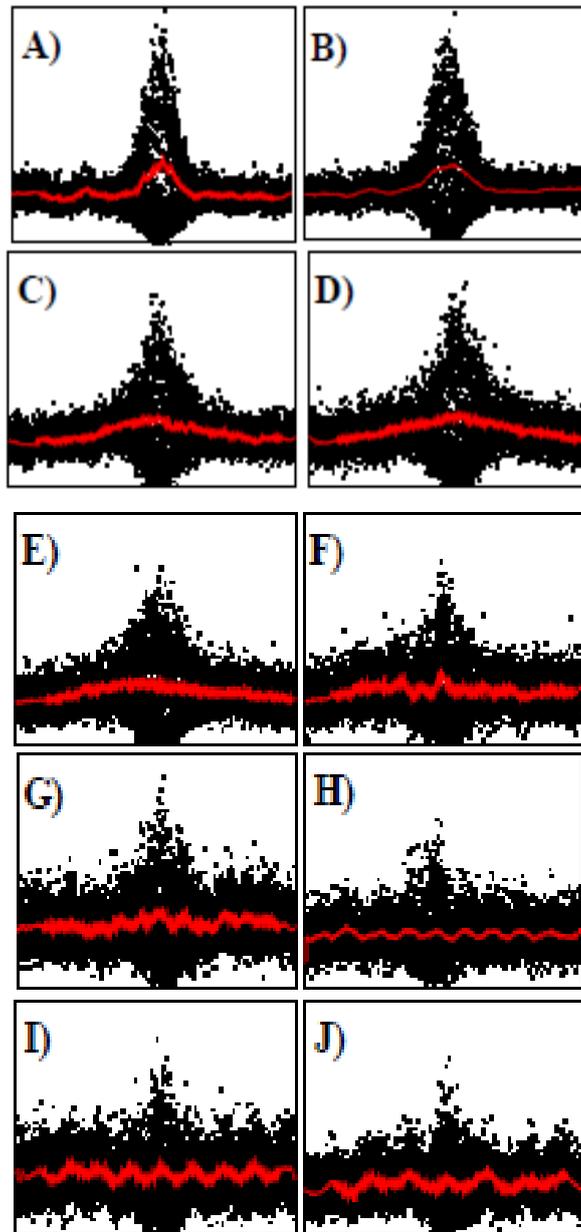
$$G_2(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t-\tau)dt \quad (2.56)$$

Avec  $I(t) = E(t)E^*(t)$

Lorsqu'on mesure  $F(\tau)$  avec une précision interférométrique (c'est-à-dire, sans moyennner les termes variant en  $\omega\tau$  oscillant rapidement), on obtient la fonction d'auto-corrélation qui permet d'avoir d'avantage d'information sur le profil de l'impulsion.

Dans notre expérience, nous avons enregistré la trace d'auto-corrélation interférométrique du laser FSF avec injection. Avant l'enregistrement de la trace d'auto-corrélation, il faut s'assurer qu'on détecte le signal de la seconde harmonique dans les deux cas du laser sans mode et celle injectée. Pour cela, nous avons bloqué le bras mobile de l'interféromètre de Michelson et en modifiant l'intensité de pompe, on peut détecter le signal de la seconde harmonique à chaque fois. Ensuite, on débloque le bras de l'interféromètre de Michelson et on fait un scan sur la longueur de la cavité jusqu'à ce que l'on rapproche de la zone où la phase est égale à  $\phi' = 2\pi(4/5)$  ; dans cette zone, on observe la transition d'un maximum de fluctuation au minimum de fluctuation comme le montre la figure (entre A et H). Lorsque la valeur de  $\phi'$  dépasse  $\phi$ , la trace d'auto-corrélation moyennée montre une autre quantité rationnelle  $p'/q'$

La figure (2-17) représente la trace d'auto-corrélation moyennée pour un laser FSF injecté au voisinage de minimum de fluctuation.



**Figure 2.17-** Représentation expérimentale de la trace d’auto-corrélation moyennée pour un laser FSF injecté au voisinage du minimum de fluctuation

### 2.19. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons fourni une analyse détaillée de l’analogie entre l’effet Talbot classique où le réseau de diffraction est illuminé avec une onde plane et qui se trouve dans le champ proche, et l’effet Talbot angulaire qui est démontré récemment, ce dernier peut s’observer en illuminant le réseau de diffraction avec un front d’onde sphérique qui se trouve dans le champ lointain.

Cette analogie nous a permis de faire les premières mesures de la phase de l'effet Talbot ainsi que les images du Talbot fractionnaire. En outre, nous avons montré que l'effet Talbot angulaire offre un moyen pratique pour mener à bien cette mesure par la méthode de l'holographie en champ lointain. Nos résultats suggèrent que la possibilité d'utiliser le montage de l'interférométrie capable de fournir un lien direct entre l'expression fractionnaire de la distance entre la source ponctuelle et le réseau de diffraction. De plus, nos résultats numériques présentent un excellent accord avec les résultats expérimentaux dans le cas d'un réseau de diffraction unidimensionnel. Nous avons présenté également le traitement théorique donné par l'effet Talbot angulaire pour un réseau unidimensionnel en utilisant un réseau bidimensionnel. De la même manière, nous avons prouvé la possibilité de voir la forme parabolique dans un réseau croisé dans les images en 3 dimensions.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous avons donné une description théorique complète de l'effet Talbot du laser FSF injecté. Ce modèle théorique consiste en une série des modes optiques espacés par une fréquence constante  $f_s$  et présentant des phases quadratiques. Les propriétés résultantes ont été liées à l'effet Talbot fractionnaire et au nombre théorique qui apparaît dans la somme de Gauss.

Cette approche théorique est suffisante pour traiter les résultats expérimentaux. Nous avons démontré la possibilité de générer un taux de répétition très élevé (400MHz) dans un laser Ti-Sa à décalage de fréquence injecté par une diode à cavité étendue à 780 nm. Notamment, à la condition où  $\phi_n = 2\pi p/q = 2\pi(4/5)$ ; nous avons démontré que le laser FSF injecté est moins fluctué que le laser FSF sans mode. La trace d'auto-corrélation rassure que les fluctuations sont diminuées lorsqu'on se rapproche à la condition  $\phi_n = 2\pi p/q = 2\pi(4/5)$ .

## **Bibliographie**

- [1] H Guillet de Chatellus, E Lacot, W Glastre, O Jacquin, O Hugon and J Marklof. Generation of ultrahigh and tunable repetition rates in CW injection-seeded frequency-shifted feedback lasers. *Opt. Expr.* 21: 15065–15074, (2013).
- [2] A Jeremy. Bolger, Hu Peifang, T Joe, J L Mok, L Justin. Blows and Benjamin Eggleton . Talbot self-imaging and cross-phase modulation for generation of tunable high repetition rate pulse trains. *Opt. Commun.* 249: 431–439,(2005).
- [3] Y Yiting, C Delphine, S Torsten, L Benjamin and Z Hans. The focusing and Talbot effect of periodic arrays of metallic nanoapertures in high-index medium. *Plasmonics*, 8: 723–732, (2013).
- [4] Z Weiwei, Z Chenlong, W Jiayuan and Z Jiasen. An experimental study of the plasmonic Talbot effect. *Opt. Expr.* 17: 19757–19762, (2009).
- [5] M Berry, I Marzoli and W Schleich. Quantum carpets. *Phys. World.* 14: 1439–1444, (2001).
- [6] A Wang, P Gill and A Molnar. Light field image sensors based on the Talbot effect. *Appl. Opt.* 48: 5897–5905, (2009).
- [7] J Azaña and H Guillet de Chatellus. Angular Talbot effect. *Phys. Rev. Lett.* 112: 213902, (2014).
- [8] R. Leggat, “Talbot, William Henry Fox,”<http://www.rleggat.com/photohistory/history/talbot.htm>, (2000)
- [9] Rayleigh L *Philosophical magazine.* 11, 196,(1881).
- [10] Berry M V and Klein S. Integer, fractional and fractal Talbot effects. *J. Mod. Opt.* 43: 2139–2164, (1996)
- [11] M Del Mar Sánchez-López, I Moreno and A Martínez-García. Teaching diffraction gratings by means of a phasor analysis. *Proc. of ETOP Conference*, 1–12, (2009).
- [12] J E Goodman *Introduction to Fourier Optics*, 2nd Edition (New York, McGraw-Hill), (1996).
- [13] N Khebbache, S Djabi et K Ferria. Numerical studies of phase for the angular Talbot effect. *Ukr. J. Phys. Opt.*, Volume 16, Issue 4,(2015).
- [14] H. Guillet de Chatellus, O. Jacquin, O. Hugon, W. Glastre, E.Lacot,1 et J. Marklof. Generation of ultrahigh and tunable repetition rates in CW injection-seeded frequency-shifted feedback lasers. *Opt. Express* 21, 15065,(2013).

- [15] V. Fesquet. Etude d'un Laser Sans Mode de puissance pour la production d'Etoiles Laser. Thèse de doctorat, université Joseph Fourier. France,(2007).
- [16] K.F. Wall and A. Sanchez. Titanium Sapphire Lasers. the Lincoln laboratory Journal 3:447-462,( 1990).
- [17] P. F. Moulton. Spectroscopic and laser characteristics of  $Ti:A1_2O_3$  . J. Opt. Soc. Am.3-125 :133,(1986).
- [18] C.M.Ioana. Etude photometrique de l'atome de sodium application aux étoiles lasers (LGS et PLGS). Université Grenoble 1. France, (2008).
- [19] Ian C. M. Littler and Jurgen H. Eschner. The CW modeless laser: model calculations of an active frequency shifted feedback cavity. Optics-communications 87:44-52, (1991).
- [20] K. Nakamura, K. Kashara, M. Sato and H. Ito. Interferometric studies on a diode-pumped Nd:YVO4 laser with frequency-shifted feedback. Optics-communications 121:137-140, (1995)
- [21] H. Guillet de Chatellus, E. Lacot, W. Glastre, O. Jacquin, and O. Hugon. Theory of Talbot lasers. Phy. RevA 88, 033828,(2013).
- [22] S. Wölk , W. Merkel, W. P .Schleich, I .Sh .Averbukh and B. Girard. Factorization of numbers with Gauss sums. New Journal of Physics 13 : 1367-2630, (2011).
- [23] S. Weber, B. Chatel and B. Girard. Factoring numbers with interfering random waves.epl Journal. 83 :34008- 34012,(2008).
- [24] Vincenzo Tamma, Heyi Zhang, Xuehua He, Augusto Garuccio, Wolfgang P. Schleich, and Yanhua Shih. Factoring numbers with a single interferogram. PHYSICAL REVIEW A 83 : 20304- 20308,(2011).
- [25] A A Rangelov. Factorizing numbers with classical interference: several implementations in optics. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 42 : 21002- 21006,(2009).
- [26] H. Guillet de Chatellus, E. Lacot, O. Jacquin, and O. Hugon. Quiet broadband light. PHYSICAL REVIEW A 90.033810,(2015).
- [27] Nicholas G. Usechak. Mode locking of fiber lasers at high repetition rates. University of Rochester Rochester, New York, (2006).

*Chapitre3 : Diffusion Hyper Rayleigh principe et montage  
expérimental*

### 3.1. Introduction

L'optique non linéaire se réfère à tout effet induit par la lumière lors de la propagation ou dans les propriétés optiques d'un matériau et qui ne serait pas proportionnel à l'intensité incidente. Ceci n'est donc possible que pour des ondes lumineuses ayant une forte intensité. Les effets optiques non linéaires les plus utilisés sont du second ordre en raison de leur simplicité et la génération de la seconde harmonique (second harmonic generation, SHG, en particulier). Le processus SHG incohérent est aussi appelé diffusion hyper Rayleigh (hyper Rayleigh scattering HRS). Les deux phénomènes sont basés sur la conversion de deux photons à la fréquence fondamentale en un seul photon à la fréquence harmonique. Ils sont notamment interdits dans les milieux centro-symétriques dans l'approximation dipolaire électrique comme les gaz ou les liquides.

En effet, les composantes du champ électrique  $\vec{E}$  et la polarisation du milieu  $\vec{P}$  changent de signe sous une symétrie centrale alors que la susceptibilité pour un milieu centro-symétrique reste invariante. Or, le terme du second ordre de la composante  $i$  de  $\vec{P}$  est la somme de termes de la forme  $\chi_{ijk} E_j E_k$ . Ce terme doit changer de signe sous la symétrie centrale en tant que composante de  $\vec{P}$ . Mais si les composantes de  $\vec{E}$  changent de signe, le produit de deux d'entre elles est invariant. Ainsi, le terme du second ordre doit à la fois changer de signe et être invariant. La seule possibilité est qu'il soit nul. L'effet du second ordre n'existe donc pas dans les milieux centro-symétriques [1, 2]. Pour lever toute confusion entre les deux processus SHG et HRS, la génération de la seconde harmonique est associée au processus cohérent pour lequel les ondes élémentaires associées au processus sont en phase, contrairement à la diffusion hyper Rayleigh pour laquelle les phases de chacune des ondes élémentaires est aléatoires ce qui rend le processus incohérent. L'intensité résultante de ce processus est la superposition incohérente des intensités SHG diffusées par chacune des sources non linéaires présentes dans l'échantillon.

Le but essentiel de ce chapitre est de rappeler les bases nécessaires à la compréhension du phénomène de la diffusion hyper Rayleigh en caractérisant une solution de nanoparticules métalliques d'argent. Les nanoparticules utilisées sont de forme sphérique qui possèdent un centre d'inversion, dans ce cas la susceptibilité de second ordre est nulle ce qui conduit aussi à une polarisation du second ordre nulle. Cependant, la symétrie interdisant la SHG dans les milieux centro-symétriques est brisée à la surface du matériau, entraînant l'apparition d'un signal de fréquence doublée.

### 3.2. Génération de la seconde harmonique

En optique linéaire, la polarisation dans les matériaux diélectriques est linéairement proportionnelle au champ électrique appliqué. Toutefois depuis 1960, lorsque les sources de lumière de haute cohérence sont devenues disponibles, les physiciens ont réalisé que la linéarité est seulement une approximation. Au contraire, la polarisation peut être développée en termes de puissance du champ électrique appliqué.

Pour un matériau linéaire la polarisation est donnée par la relation suivante :

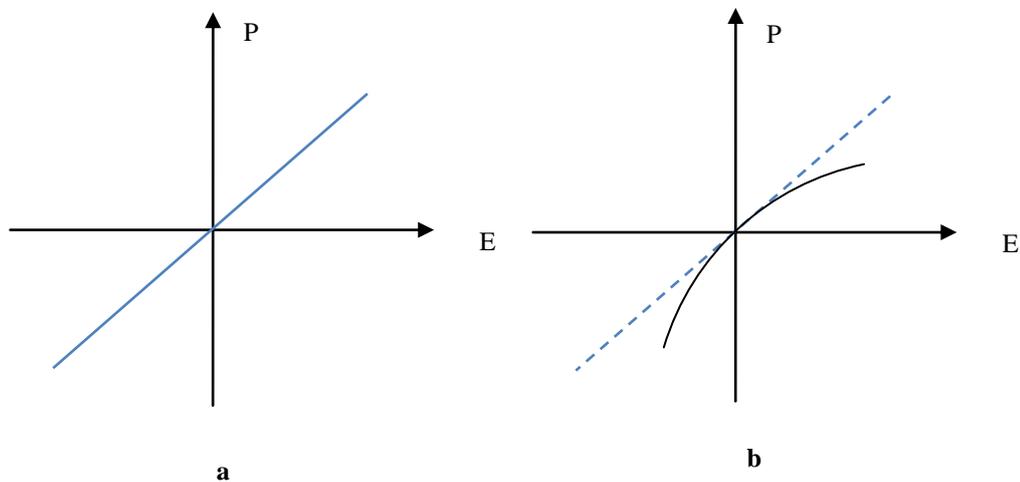
$$P = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E} \quad (3.1)$$

Dont  $\chi^{(1)}$  est la susceptibilité linéaire,  $\varepsilon_0$  la permittivité diélectrique du vide.

La seconde harmonique d'une onde lumineuse de fréquence  $\omega$  est produite par un cristal si la polarisation électrique induite présente une composante d'oscillation à  $2\omega$ . Cette condition est réalisée lorsque la polarisation est une fonction non linéaire du champ électrique comme écrit dans la formule suivante [3] :

$$P = \varepsilon_0 \left( \vec{\chi}^{(1)} E + \vec{\chi}^{(2)} : EE + \vec{\chi}^{(3)} : EEE \right) \quad (3.2)$$

avec  $\vec{\chi}^{(n)}$  le tenseur qui décrit les processus optiques non linéaires du n-ième ordre.



**Figure 3.1-** Relation entre le champ électrique et la polarisation ; a- milieu linéaire b- milieu non linéaire

Le tenseur de susceptibilité linéaire  $\chi^{(1)}$  est directement relié à l'indice de réfraction du milieu, le seul tenseur non négligeable lorsque l'on travaille à faible puissance. Pour les matériaux

dont la structure présente un centre de symétrie où le terme d'ordre pair  $\vec{\chi}^{(2)}$  est nul tels que les gaz et les liquides notamment. Or les études expérimentales décrites dans la littérature montrent que les nanoparticules métalliques d'or ou d'argent sphériques ont une symétrie sphérique parfaite [4] ce qui devrait conduire à ce que tous les éléments du tenseur  $\vec{\chi}^{(2)}$  soient ainsi nuls. Plus précisément dans un milieu centro-symétrique, le tenseur est globalement invariant par symétrie d'inversion par rapport à un point. Si on applique la transformation de symétrie centrale du vecteur  $\vec{r}$  en son opposé  $(-\vec{r})$ , le champ électrique et la polarisation changent de signe. Notons que cette propriété n'est valable que dans l'approximation dipolaire. Dans le cadre de cette approximation, les susceptibilités de second ordre sont toutes nulles. L'expression de la polarisation non linéaire s'écrit comme suit :

$$P_{NL} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} : \vec{E}\vec{E} = -P_{NL} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} : (-\vec{E})(-\vec{E}) \quad (3.3)$$

Il n'y a qu'une solution possible de l'équation (3.3) qui est  $\vec{\chi}^{(2)} = 0$ . Cependant, la rupture de la centro-symétrie localement, par exemple à la surface du milieu centro-symétrique permet la génération de la seconde harmonique à nouveau. Ainsi, la génération de la seconde harmonique est un outil efficace pour étudier les interfaces entre de tels milieux.

De manière générale, le champ électromagnétique à la position  $\vec{r}'$  s'écrit sous la forme d'une onde plane harmonique monochromatique de fréquence fondamentale  $\omega$  :

$$\vec{E}(\vec{r}', \omega) = E_\omega (\hat{X} \cos \gamma + \hat{Y} \sin \gamma e^{i\delta}) e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r}' - \omega t)} \quad (3.4)$$

Où  $\gamma$  est l'angle de polarisation d'incidence.

$\delta$  est la phase relative entre l'axe  $(\hat{X}, \hat{Y})$

L'onde incidente montrée dans la Figure (3.2) induit dans tout composé moléculaire présent dans l'échantillon un dipôle induit donné par l'expression suivante [5] :

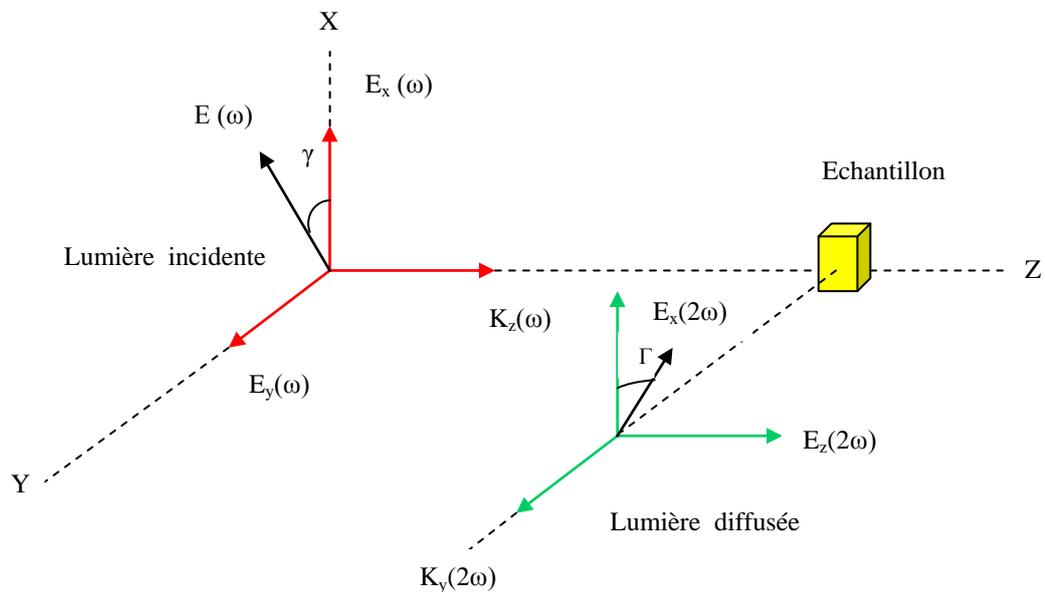
$$\vec{p}(\vec{r}') = \vec{\mu}_0 + \alpha \vec{E} + \vec{\beta} : \vec{E}\vec{E} \quad (3.5)$$

où  $\vec{\mu}_0$  est le dipôle permanent,  $\alpha$  et  $\beta$  sont la polarisabilité linéaire et l'hyperpolarisabilité non linéaire du premier ordre. Pour obtenir l'expression du dipôle à la fréquence harmonique, on remplace le champ électromagnétique donné par l'équation (3.4) dans l'équation (3.5), ce qui permet d'obtenir :

$$\vec{p}(\vec{r}', 2\omega) = E_\omega^2 \vec{\beta}_L (\hat{X}\hat{X} \cos^2 \gamma + (\hat{X}\hat{Y} + \hat{Y}\hat{X}) e^{i\delta} \sin \gamma \cos \gamma + \hat{Y}\hat{Y} \sin^2 \gamma e^{2i\delta}) e^{2i(\vec{k} \cdot \vec{r}' - \omega t)} \quad (3.6)$$

où  $\vec{\beta}_L$  est le tenseur d'hyperpolarisabilité dans le référentiel du laboratoire comme l'indique l'indice L. Le tenseur d'hyperpolarisabilité est un tenseur d'ordre 3 qui caractérise la réponse

non linéaire du second ordre de la molécule. Cette réponse va forcément dépendre de la symétrie moléculaire puisque les valeurs relatives des 27 composantes du tenseur  $\beta$  sont fixées par la géométrie de la molécule considérée : dipolaire, octupolaire, etc.

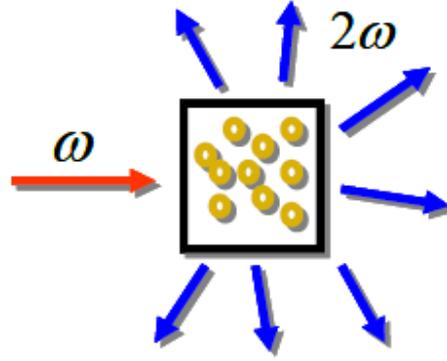


**Figure 3.2-** Représentation schématique de la lumière incidente et diffusée par un montage de diffusion hyper Rayleigh à  $90^\circ$  dans le référentiel du laboratoire XYZ.

### 3.3. Diffusion hyper Rayleigh

La diffusion hyper Rayleigh (Hyper Rayleigh Scattering) HRS est un processus de génération de la seconde harmonique incohérente. L'émission de la lumière à la fréquence doublée qui résulte de ce mécanisme n'est pas analogue au laser (où la direction est bien définie et usuellement vers l'avant). Ici, elle est dirigée dans toutes les directions. En conséquence, les sources non linéaires participant au processus de conversion forment ensemble une source incohérente d'une fréquence harmonique. La dépendance entre les phases de chacune des sources est aléatoire ce qui implique que seules les intensités peuvent être sommées.

La diffusion hyper Rayleigh est réalisée généralement en milieu liquide, permet d'obtenir une valeur relative de l'hyperpolarisabilité moléculaire et donne des informations sur la structure moléculaire du diffuseur.



**Figure 3.3-** Principe de génération de la diffusion hyper Rayleigh

Dans l'expérience HRS classique, la lumière diffusée est analysée à un angle de  $90^\circ$ . Cet angle permet d'éviter la transmission du champ incident très intense. Lorsque l'onde incidente est propagée dans la direction Z (verticalement polarisée selon l'axe X), l'intensité diffusée est collectée dans la direction Y. Deux configurations peuvent être utilisées HV et VV, HV pour une incidence polarisée horizontalement et une onde diffusée polarisée verticalement et VV pour une onde incidente et une onde diffusée qui sont polarisées verticalement. (Voir la figure 3.2)

Lorsque la lumière incidente polarisée horizontalement HV, l'intensité diffusée  $I_{2\omega}^{HV}$  est proportionnelle à  $\langle \beta_{XY}^2 \rangle$  alors que dans le cas de la lumière incidente polarisée VV, l'intensité diffusée  $I_{2\omega}^{VV}$  est proportionnelle à  $\langle \beta_{XX}^2 \rangle$ . Les coordonnées du laboratoire sont représentées ici par les symboles X, Y et Z tandis que les coordonnées du système moléculaire sont représentées par les symboles x,y et z.

### 3.4. Diffusion hyper Rayleigh résolue en polarisation

L'intensité HRS résolue en polarisation permet d'extraire des informations sur la symétrie de la molécule ou de la nanoparticule ainsi que la nature de la réponse HRS. Ainsi, dans le cas général :

$$I_{HRS}^V \propto N \langle P_X P_X^* \rangle \quad (3.7)$$

$$I_{HRS}^H \propto N \langle P_Z P_Z^* \rangle \quad (3.8)$$

sachant que :

$$\vec{P} = \begin{bmatrix} \beta_{XXX} \cos^2 \gamma + \beta_{XXY} 2e^{i\delta} \cos \gamma \sin \gamma + \beta_{XYX} e^{i\delta} \sin^2 \gamma \\ \beta_{YXX} \cos^2 \gamma + \beta_{YXY} 2e^{i\delta} \cos \gamma \sin \gamma + \beta_{YYX} e^{i\delta} \sin^2 \gamma \\ \beta_{ZXX} \cos^2 \gamma + \beta_{ZXY} 2e^{i\delta} \cos \gamma \sin \gamma + \beta_{ZYX} e^{i\delta} \sin^2 \gamma \end{bmatrix} \quad (3.9)$$

L'angle  $\delta$  est le second angle définissant l'état de polarisation de l'onde incidente. On rappelle que lorsque

$\delta = 0$  la polarisation est linéaire

$\delta = \pm \frac{\pi}{2}$  la polarisation est circulaire

$-\frac{\pi}{2} < \delta < \frac{\pi}{2}$  la polarisation est elliptique

Nous décrivons l'intensité HRS en fonction de la polarisation incidente, pour la composante verticale puis horizontale successivement :

$$I_{HRS}^V = GNI_{\omega}^2 \left( \langle \beta_{L,XXX} \beta_{L,XXX}^* \rangle \cos^4 \gamma + \langle 4\beta_{L,XXY} \beta_{L,XXY}^* + 2\beta_{L,XXX} \beta_{L,XXY}^* \cos 2\delta \rangle \cos^2 \gamma \sin^2 \gamma + \langle \beta_{L,XYX} \beta_{L,XYX}^* \rangle \sin^4 \gamma \right) \quad (3.10)$$

$$I_{HRS}^V = GNI_{\omega}^2 \left( \langle \beta_{L,XXX} \beta_{L,XXX}^* \rangle \cos^4 \gamma + \langle 4\beta_{L,XXY} \beta_{L,XXY}^* + 2\beta_{L,XXX} \beta_{L,XXY}^* \cos 2\delta \rangle \cos^2 \gamma \sin^2 \gamma + \langle \beta_{L,XYX} \beta_{L,XYX}^* \rangle \sin^4 \gamma \right) \quad (3.11)$$

Dans tout ce qui suit, nous considérons de plus que l'onde incidente est polarisée linéairement. L'intensité HRS s'écrit donc comme suit :

$$(I_{HRS})^{\Gamma} = a^{\Gamma} \cos^4 \gamma + b^{\Gamma} \cos^2 \gamma \sin^2 \gamma + c^{\Gamma} \sin^4 \gamma \quad (3.12)$$

où  $\Gamma$  est l'angle de polarisation du champ diffusé à la fréquence harmonique. Lorsque l'angle  $\Gamma$  est nul, l'intensité HRS est polarisée verticalement selon l'axe X et si l'angle  $\Gamma = 90^\circ$ , l'intensité HRS est polarisée horizontalement selon l'axe Z. Les paramètres  $a^{\Gamma}$ ,  $b^{\Gamma}$  et  $c^{\Gamma}$  sont des coefficients réels qui décrivent le comportement de l'intensité HRS résolue en polarisation et la structure du composé moléculaire.

En comparant l'équation (3.10) avec l'équation (3.12) et l'équation (3.11) avec l'équation (3.12), les coefficients  $a^{\Gamma}$ ,  $b^{\Gamma}$  et  $c^{\Gamma}$  peuvent s'écrire dans le cas d'une polarisation verticale et horizontale comme suit :

$$a^V = GNI^2 \langle \beta_{L,XXX} \beta_{L,XXX}^* \rangle \quad (3.13)$$

$$b^V = GNI^2 \langle 4\beta_{L,XXY} \beta_{L,XXY}^* + 2(\beta_{L,XXX} \beta_{L,XXY}^*) \rangle \quad (3.14)$$

$$c^V = GNI^2 \langle \beta_{L,XYX} \beta_{L,XYX}^* \rangle \quad (3.15)$$

$$a^H = GNI^2 \langle \beta_{L,ZXX} \beta_{L,ZXX}^* \rangle \quad (3.16)$$

$$b^H = GNI^2 \langle 4\beta_{L,ZXY} \beta_{L,ZXY}^* + 2(\beta_{L,ZXX} \beta_{L,ZY}^*) \rangle \quad (3.17)$$

$$c^V = GNI^2 \langle \beta_{L,ZY} \beta_{L,ZY}^* \rangle \quad (3.18)$$

Ces coefficients peuvent être calculés à partir des figures expérimentales en remplaçant l'angle  $\gamma$  par  $0^\circ$ ,  $45^\circ$  et  $90^\circ$  dans l'équation (3.12).

Pour une polarisation verticale V, on a :

$$(I_{HRS}^{0^\circ})^V = a^V \quad (3.19)$$

$$(I_{HRS}^{45^\circ})^V = \frac{1}{4}(a^V + b^V + c^V) \quad (3.20)$$

$$(I_{HRS}^{90^\circ})^V = c^V \quad (3.21)$$

De plus, on a la relation suivante

$$a^V + b^V = \frac{1}{2}(a^V + b^V + c^V) \quad (3.22)$$

ce qui implique que :

$$a^V + b^V = c^V \quad (3.23)$$

Dans le plan horizontal quelle que soit l'orientation du champ, les intensités suivant les angles  $0^\circ$ ,  $45^\circ$  et  $90^\circ$  sont égales ainsi :

$$(I_{HRS}^{0^\circ})^H = (I_{HRS}^{90^\circ})^H = (I_{HRS}^{45^\circ})^H \quad (3.24)$$

Nous obtenons finalement :

$$2a^H = 2c^H = b^H \quad (3.25)$$

Suivant l'axe Y à  $0^\circ$ , la composante verticale du champ électrique est égale à la composante horizontale, l'intensité s'écrit donc comme suit :

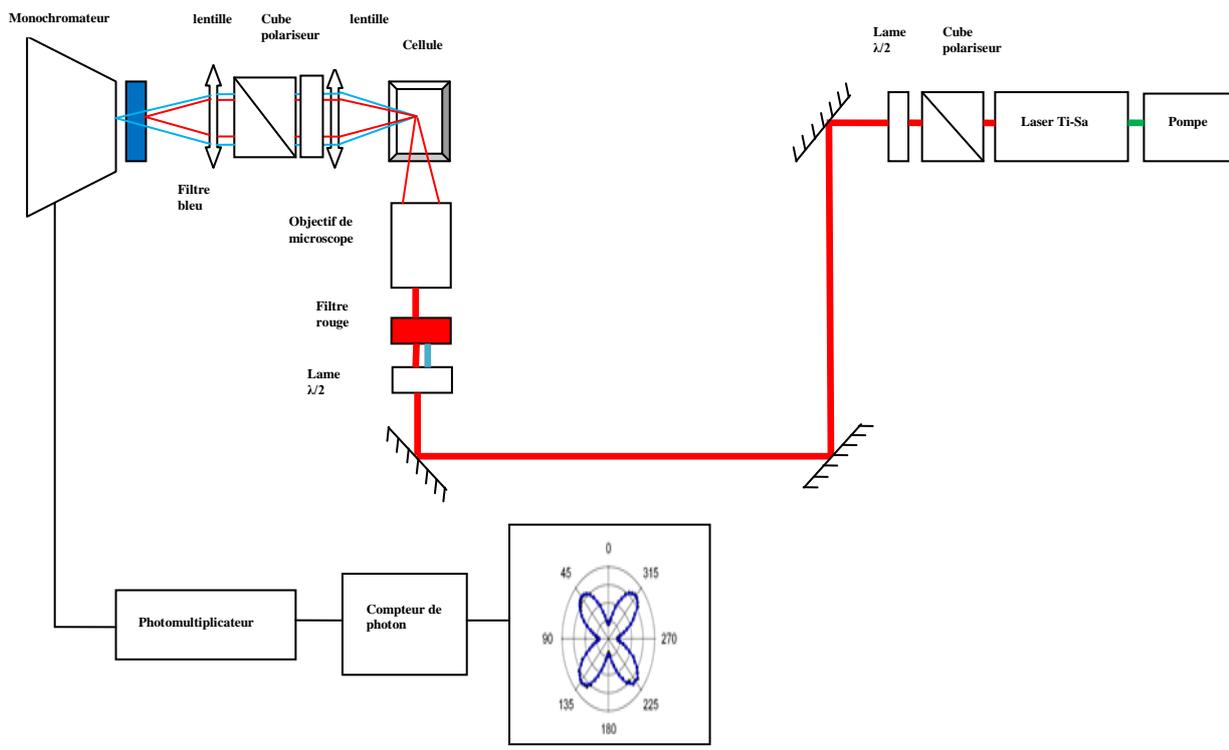
$$(I_{HRS}^{0^\circ})^H = (I_{HRS}^{0^\circ})^V \quad (3.26)$$

Ce qui donne aussi :

$$c^H = c^V \quad (3.27)$$

### 3.5. Dispositif expérimental

La Figure (3.4) représente le montage expérimental de la diffusion hyper Rayleigh. Nous avons utilisé un laser femtoseconde Titane-Saphir qui délivre des impulsions d'une durée 140 fs centrées à une longueur d'onde optimale de 800 nm avec un taux répétition de 80MHz. Il est pompé par un laser continu d'une puissance de 10W à 532 nm. Le faisceau laser est focalisé au centre d'une cellule de quartz transparente de dimension 5mm×5mm à l'aide d'un objectif de microscope à faible ouverture numérique (NA=0.25, X10)



**Figure 3.4-** Schéma du montage pour la diffusion hyper Rayleigh

Le laser passe par une lame demi-onde et un cube polariseur qui ont pour but de contrôler la puissance du laser et sa polarisation (notons que le laser est polarisé linéairement). L'angle de polarisation d'entrée défini comme l'angle entre la direction du champ électrique et l'axe  $x$ , est sélectionné par une lame demi-onde tournante (rappelant que  $z$  est l'axe de propagation de l'onde fondamentale et le champ électrique est polarisé dans le plan  $(x, y)$ ). L'onde ensuite traverse le filtre rouge qui supprime toute onde générée à la fréquence harmonique partiellement générée par la lame demi-onde et les résidus du faisceau de pompe. L'intensité émise à  $90^\circ$  est collectée par une lentille convergente située à la distance focale pour générer un faisceau parallèle. Un analyseur en sortie composé d'un cube séparateur et une lame demi-onde permet de sélectionner la polarisation du champ électrique émis à la fréquence harmonique. Ensuite, le faisceau laser est filtré par un filtre bleu pour supprimer le résiduel du faisceau à l'onde fondamentale. Ensuite, il est injecté dans un monochromateur qui permet le filtrage des photons à la fréquence harmonique avant la détection par le photomultiplicateur. Le rôle de ce dernier est de transformer les photons en impulsions de courant et les amplifier. Ces impulsions sont détectées par un compteur de photons. Il permet, comme son nom l'indique, de compter les photons. Chaque photon génère une impulsion qui va durer le temps

de traverser le photomultiplicateur. Pour éliminer le bruit de signal à la sortie, le photomultiplicateur est composé de deux voies, la première pour compter le bruit et la deuxième pour compter le signal total. Enfin, on soustrait la première voie de la deuxième et on obtient le signal sans bruit.

### 3.6. Spectroscopie UV-visible

Lorsqu'un rayonnement interagit avec la matière, un certain nombre de processus peut se produire, y compris la diffusion, l'absorption et la fluorescence. En général, lorsque l'on mesure les spectres UV-visible, nous voulons seulement l'absorbance. L'absorption UV-visible correspond à l'excitation résonnante des atomes ou des molécules qui passe de niveau de basse énergie à un niveau de plus haute énergie. Les niveaux d'énergie sont quantifiés, seule la lumière avec énergie peut ainsi provoquer les transitions d'un niveau à un autre. Pour les nanoparticules métalliques, lorsque la taille des nanoparticules est petite devant la longueur d'onde, les électrons de conduction oscillent collectivement sous l'effet du champ électrique du rayonnement incident : c'est la résonance plasmonique de surface, excitation collective des électrons de conduction.

Nous avons utilisé un spectrophotomètre (Ocean Optics, SD 2000). Son principe consiste en une source constituée de deux lampes qui permettent un continuum d'émission sur toute la gamme des longueurs d'onde UV-visible. Une lampe au deutérium émet des longueurs d'onde de 190 à 400 nm (UV) et une deuxième lampe au tungstène émet des longueurs de 400 à 800 nm (visible) et au-delà. Le faisceau lumineux est transmis jusqu'à la cellule par une fibre large bande et traverse la cellule de mesure. La lumière transmise est récoltée par une seconde fibre identique à la première et la lumière est analysée par un spectromètre à barrettes CCD (Ocean Optics USB 2000). Pour chaque longueur d'onde, l'intensité de lumière  $I$  passant à travers à la fois une cellule de référence ( $I_0$ ) et l'échantillon cellulaire est mesurée. Si  $I_0$  est plus forte que  $I$ , l'échantillon a absorbé une partie de la lumière. La grandeur directement mesurée est l'absorbance  $A$ , définie par la loi Beer Lambert :

$$A = -\log \frac{I}{I_0} = \varepsilon l C \quad (3.28)$$

On a :

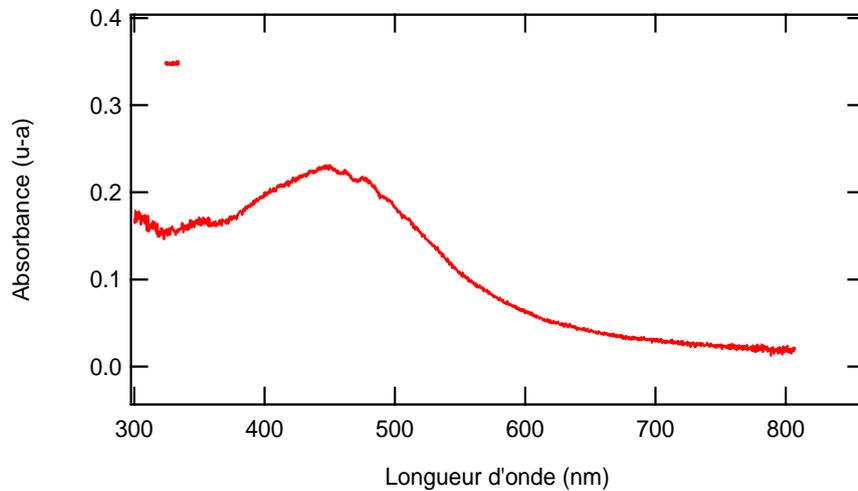
$I/I_0$  est la transmittance de la solution (sans unité) ;

$l$  désigne la longueur du trajet optique, c'est-à-dire épaisseur de la cellule (cm) ;

$\varepsilon$  est le coefficient d'extinction molaire ( $L \cdot mol^{-1} \cdot cm^{-1}$ ) ;

$C$  est la concentration molaire de la solution ( $mol \cdot l^{-1}$ ) ;

Le coefficient d'extinction molaire dépend de la longueur du faisceau incident, du solvant utilisé et de la température. Cette loi permet de mesurer l'absorbance de la solution de nanoparticules d'argent, par exemple.



**Figure3.5-** Spectre d'absorption UV-Visible pour une solution de nanoparticules d'argent (80 nm) pure

### 3.7. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté une description théorique et expérimentale de la génération de la seconde harmonique (SHG). Nous avons d'abord discuté la réponse non linéaire du phénomène de génération de la seconde harmonique puis discuté la résolution en polarisation de la réponse. Nous avons ici essentiellement limité cette analyse à l'approximation dipolaire électrique, adaptée aux composés moléculaires. Pour les nanoparticules métalliques, une analyse plus poussée serait nécessaire, au-delà de l'approximation dipolaire.

La technique de la diffusion hyper Rayleigh permet de mesurer l'intensité générée par des composés moléculaires en suspension et résoudre la réponse en polarisation. Pour ce faire, un montage expérimental a été utilisé pour ces mesures est décrit. Toutes les techniques présentées dans ce chapitre seront utilisées dans l'analyse des résultats obtenus dans le chapitre suivant.

## **Bibliographie**

- [1] Guillaume Revillod. Diffusion hyper Rayleigh des assemblages moléculaires. Thèse de doctorat. Université Lyon1. France, (2006)
- [2] D B. Hollis. Review of hyper-Rayleigh and second-harmonics scattering in minerals and other inorganic solids. *American Mineralogist*, Volume 73, pages 701-706,( 1988).
- [3] I S Ruddock. Nonlinear optical second harmonic generation. *Eur. J. Phys.* 15, 53-58,( 1993).
- [4] J. Nappa, G. Revillod, I. Russier-Antoine, E. Benichou, C. Jonin, et P. F. Brevet. Electric dipole origin of the second harmonic generation of small metallic particles. *Physical Review B* 71, 165407,( 2005).
- [5] R W. Boyd. *Nonlinear Optics*, Academic Press, New York,( 1992).
- [6] Julien Duboisset. Génération de second harmonique de biomolécules des acides aminées aux protéines. Thèse de doctorat. Université de Lyon1. France, (2009).

*Chapitre 4: Diffusion hyper Rayleigh dans un milieu désordonné*

## 4.1. Introduction

La diffusion de la lumière est un phénomène que l'on rencontre chaque jour dans la nature, dans des milieux aussi variés, la poussière, le brouillard, la mer, le ciel, la peinture et bien d'autres. Pour la compréhension de ces différents phénomènes, beaucoup de questions ont été posées, de la couleur bleue du ciel à l'invisibilité du soleil dans une journée nuageuse ou la transparence de l'eau, etc. Toutes ces questions peuvent être résolues si l'on comprend parfaitement comment la lumière se propage à travers la matière. La compréhension des problèmes dans un milieu désordonné où la taille des particules est beaucoup plus petite que la longueur d'onde fait intervenir la diffusion Rayleigh. Quand on regarde le ciel, une majorité des rayons lumineux bleus atteignent nos yeux. Ce sont justement les plus courtes longueurs d'onde qui sont les plus diffusées par les molécules de l'atmosphère ce qui explique pourquoi le ciel est bleu [1]. De même, lorsqu'un nuage passe devant le soleil, la lumière est diffusée et devient plus faible pour l'observateur. Lorsque le nuage devient assez épais, le soleil paraît invisible : cet effet se produit lorsque l'épaisseur du nuage est de l'ordre du libre parcours moyen du photon [2].

Les phénomènes optiques dans des milieux désordonnés ont attiré l'attention dans ces dernières années en raison de leur utilisation potentielle dans une large gamme d'applications tels que les lasers aléatoires. La diffusion multiple permet ainsi de piéger la lumière dans le milieu actif en l'absence de miroirs permettant à l'effet laser de s'établir. Ce fonctionnement sans miroir s'oppose à celui des lasers conventionnels où la cavité optique fournit les modes qui stimulent l'émission et produit un faisceau cohérent [3]. Ce dispositif potentiel a été proposé avec plusieurs avantages particulièrement en microscopie pour réduire l'image de speckle [4,5] ou en pompage des lasers aléatoires par processus multi-photoniques aussi utilisés comme moyen de conversion de fréquence [4,5]. De plus, les théories et concepts de la diffusion multiple ont déjà été développés pour la compréhension des signaux sismiques [6]. En médecine, la méthode de spectroscopie par diffusion sert à fournir des informations sur la forme, la taille et l'indice de réfraction et pour diagnostiquer et détecter les cellules précancéreuses [7].

Parmi les phénomènes optiques non linéaires simples, la génération de seconde harmonique (second harmonic generation :SHG) est un processus par lequel deux photons de même fréquence fondamentale s'annihilent et sont convertis en un photon de fréquence harmonique. Il est bien connu que le processus SHG nécessite l'accord de phase entre les ondes qui interagissent pour obtenir un maximum d'intensité. Dans un milieu désordonné, le processus

peut bénéficier de l'apparition d'un résonateur aléatoire créé lorsque la lumière est piégée pendant un temps assez long dans le milieu. La condition de localisation n'est cependant pas atteinte. Un milieu désordonné peut être un gel formé par des particules dispersées dans une solution aqueuse [8], un film formé par des particules déposées sur un substrat [9] ou une simple suspension liquide des particules sphériques. Dans le cas d'une suspension, les propriétés de diffusion et de génération de seconde harmonique sont contrôlées par la concentration des particules dans la solution. Deux régimes de diffusion peuvent ainsi être identifiés, un régime de la diffusion simple et un régime diffusif [10]. Dans le cas du régime de diffusion simple, de nombreuses expériences et la théorie correspondante ont été réalisées pour des nanoparticules métalliques [11,12]. En régime diffusif, le comportement de la suspension est celui d'une poudre dans la quelle une forte diffusion apparaît [13,14].

Dans ce chapitre, nous présentons une simple expérience de SHG dans une suspension dont la diffusion linéaire est contrôlée par la concentration en billes de latex alors que le processus SHG est contrôlé par la concentration en nanoparticules d'argent. Dans ce cas, l'influence des deux degrés de liberté peut être étudiée indépendamment.

#### **4.2. Propriétés des nanoparticules d'argent**

Avant les années 1980, l'intérêt scientifique et pratique pour les nanoparticules d'argent est exclusivement dû à la possibilité de leur utilisation comme support hautement dispersé pour améliorer les signaux de molécules organiques en spectroscopie Raman [15]. Les nanoparticules d'argent constituent en effet des nanomatériaux des plus attractifs et ont été largement utilisées dans une large gamme d'applications biomédicales, y compris le diagnostic, le traitement, l'administration de médicaments, le revêtement de dispositifs médicaux ou pour les soins de santé [16].

Comparées aux nanoparticules d'or, les nanoparticules d'argent ont d'excellentes propriétés optiques et une capacité unique pour amplifier les signaux de fluorescence et de spectroscopie Raman. En revanche, les nanoparticules d'argent non stabilisées de manière appropriée subissent une oxydation rapide et produisent rapidement des agrégats en solution ce qui complique leur utilisation dans le développement de capteurs ou d'instruments optiques car l'argent est plus réactif que l'or.

### 4.3. Libre parcours moyen

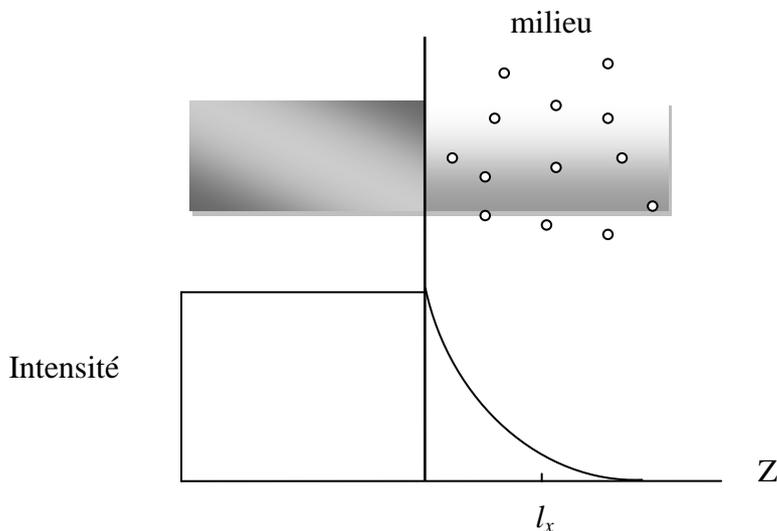
Selon la densité volumique de diffuseurs présents dans le milieu où l'onde électromagnétique se propage, nous pouvons distinguer plusieurs régimes. Ces régimes dépendent du nombre de diffuseurs dans le milieu, nous introduisons le libre parcours moyen, noté  $l_x$ , qui traduit la distance moyenne parcourue entre deux événements successifs de diffusion ou d'absorption. Il est défini par :

$$l_x = \frac{1}{n\sigma_x} \quad (4.1)$$

où  $n$  est le nombre de diffuseurs

$\sigma$  est la section efficace de diffusion ou d'absorption comme l'indique l'indice  $x$ . On peut poser  $x=a$  dans le cas d'absorption et  $x=s$  dans le cas de la diffusion. On note

$$k_x = n\sigma_x \quad (4.2)$$



**Figure 4-1** Diminution de l'intensité émise due à la diffusion ou l'absorption

Comme l'indique la Figure 4-1, l'intensité diminue selon une forme exponentielle décroissante. Son expression est donnée par la formule de la loi de Beer-Lambert :

$$I(z) = I_0 e^{-k_x z} \quad (4.3)$$

où  $I_0$  est l'intensité incidente.

Nous avons utilisée une solution de nanoparticules d'argent de concentration  $7 \times 10^{10}$  particule/cm<sup>3</sup> et de nano-sphères de latex de concentration variable. A la fréquence harmonique, la section efficace d'absorption  $\sigma_a$  d'une nanoparticule d'argent est égale

$6.33 \times 10^{-16} \text{ m}^2$  alors que la section efficace de diffusion  $\sigma_s$  de la nanoparticule a une valeur de  $2.64 \times 10^{-13} \text{ m}^2$ .

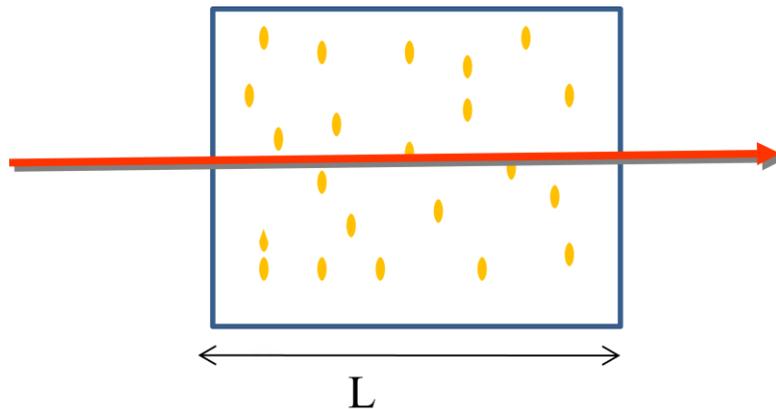
Dans le même milieu les deux effets d'absorption et de diffusion sont existants mais le phénomène de diffusion est plus important compte tenu de la taille des nanoparticules d'argent. L'intensité à la fréquence harmonique diminue donc plus rapidement par diffusion que par absorption. La combinaison des deux effets s'appelle l'extinction et elle est définie comme suit :

$$k_x = k_a + k_s \quad (4.4)$$

D'autres paramètres jouent un rôle important pour déterminer le régime de transport dans le milieu désordonné : l'épaisseur de l'échantillon  $L$  et la longueur d'onde  $\lambda$ , ces deux paramètres étant liés au libre parcours moyen. On suppose en effet que  $\lambda \leq l_x \leq L$ . Avec  $L \leq l_x$  le milieu est optiquement transparent ce qui conduit à une interaction avec la lumière faible. L'intensité est réduite d'une fraction de l'ordre de  $\frac{l_x}{L}$  et le système est donc considéré comme transparent.

#### 4.4. Régime balistique

Le régime balistique se produit lorsque la taille du milieu  $L$  est de l'ordre du libre parcours moyen de diffusion  $L \approx l_s$ . Pratiquement, l'onde ne subit pas de diffusion et sa direction de propagation n'est pas déviée. C'est un régime que nous cherchons à éviter car la diffusion y est négligeable. On peut éviter ce régime en ajoutant dans le milieu des diffuseurs.

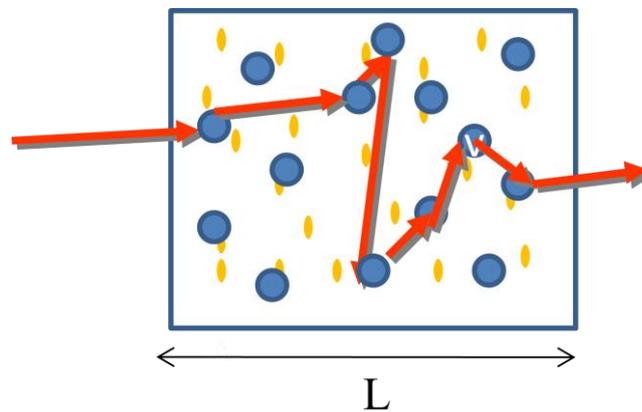


**Figure4.2-** Propagation de la lumière dans milieu balistique

#### 4.5. Régime de diffusion multiple

En régime de diffusion multiple, la condition suivante  $l_s \leq L$  est vérifiée. Dans ce régime, le nombre de diffuseurs devient plus important et fait perdre à terme l'information sur la trajectoire initiale de l'onde incidente. Le libre parcours moyen de diffusion est ici considéré supérieur à la longueur d'onde  $l_s > \lambda$

La diffusion multiple rend le milieu turbide ou opaque, la direction de propagation changeant dans le milieu par diffusion contrairement au milieu transparent dans lequel l'onde incidente se propage de manière rectiligne. Un milieu de plus absorbant supprime certaines longueurs d'onde mais la direction de propagation n'est pas affectée. Le milieu reste donc transparent sur quelques longueurs d'onde.



**Figure4.3-** Propagation de la lumière dans un milieu de diffusion multiple.

La lumière se propage ainsi dans le milieu aléatoire avec un libre parcours moyen de diffusion. Lorsque le nombre de diffuseurs augmente, le libre parcours moyen de transport diminue et la lumière perd sa direction initiale plus rapidement. On a :

$$l_t = \frac{l_s}{1 - \langle \cos \theta \rangle} \quad (4.5)$$

$\langle \cos \theta \rangle$  étant la moyenne prise par le cosinus de l'angle de diffusion. Dans un milieu isotrope, la moyenne de ce cosinus est nulle ce qui implique que  $l_t = l_s$

#### 4.6. Préparation de la solution

Sept échantillons ont été préparés pour cette expérience. Les échantillons sont constitués par addition de solutions aqueuses contenant des nanoparticules d'argent de 80 nm de diamètre et de solutions aqueuses contenant 1% en volume de sphère de latex de 200 nm de diamètre (British Biocell Inc., United Kingdom).

La concentration de la solution de nanoparticules d'argent est ajustée pour donner une intensité maximale SHG avec un minimum d'extinction. La concentration choisie est égale à  $7 \times 10^{10}$  particules/cm<sup>3</sup> avec une extinction égale 0.2 et 0.02 respectivement à 400 nm et à 800 nm, la fréquence harmonique et fondamentale utilisée ici. La concentration des billes de latex varie entre 0 et  $16.7 \times 10^7$  particules/cm<sup>3</sup> par ajout d'un volume de 10 µl à la solution de nanoparticules d'argent ayant un volume de 1 ml. Dans cette procédure, la concentration de la solution des nanoparticules d'argent diminue ainsi légèrement jusqu'à  $6.51 \times 10^{10}$  particules/cm<sup>3</sup>. Le processus de diffusion SHG, ou hyper Rayleigh, étant incohérent il est assez simple de corriger ce dernier effet.

Pour calculer le nombre des particules dans la solution des billes de latex, on considère que pour une particule le volume est égal à  $\frac{4}{3}\pi R^3$  et n particules correspond à un volume V connu. Le nombre de particules n est donc déterminé de la manière suivante :

$$C = \frac{1}{\frac{4}{3}\pi R^3} = \frac{n}{V}$$

donc

$$n = \frac{V}{\frac{4}{3}\pi R^3}$$

Où R est le rayon d'une sphère de latex (R=100 nm) et C la concentration de la solution des billes de latex.

La solution de sphères de latex contient 1% en volume de sphère de latex ce qui implique que le nombre n de sphère calculé doit être multiplié par 1%. Le tableau 4.1 représente les valeurs de concentration de la solution de sphères de latex et de nanoparticules d'argent pour plusieurs fractions volumiques. On note V<sub>s</sub> la solution mélange des deux solutions de nanoparticules d'argent pure (non diluée) et de sphères de latex et N<sub>sp</sub> le nombre de sphères de latex ainsi que N<sub>p</sub> le nombre de nanoparticules d'argent.

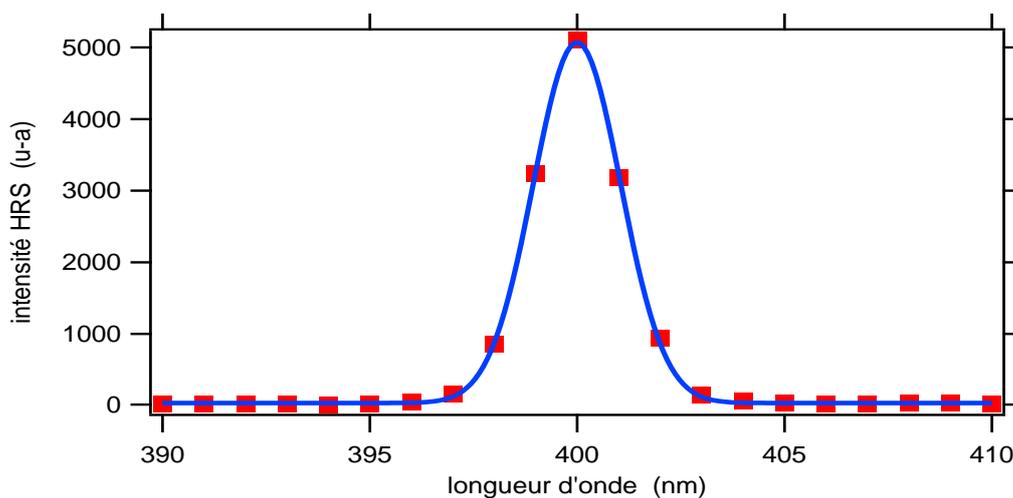
V <sub>s</sub> (cm <sup>3</sup> )	1000	1010	1020	1030	1040	1050	1060	1070
N <sub>sp</sub> ( $\times 10^7$ part/cm <sup>3</sup> )	0	2.39	4.79	7.17	9.56	11.9	14.3	16.7
N <sub>Ag</sub> ( $\times 10^{10}$ part/cm <sup>3</sup> )	7	6.93	6.86	6.79	6.72	6.65	6.58	6.51

**Tableau 4.1-** Concentration des solutions nanoparticules d'argent et billes de latex et leur volume total.

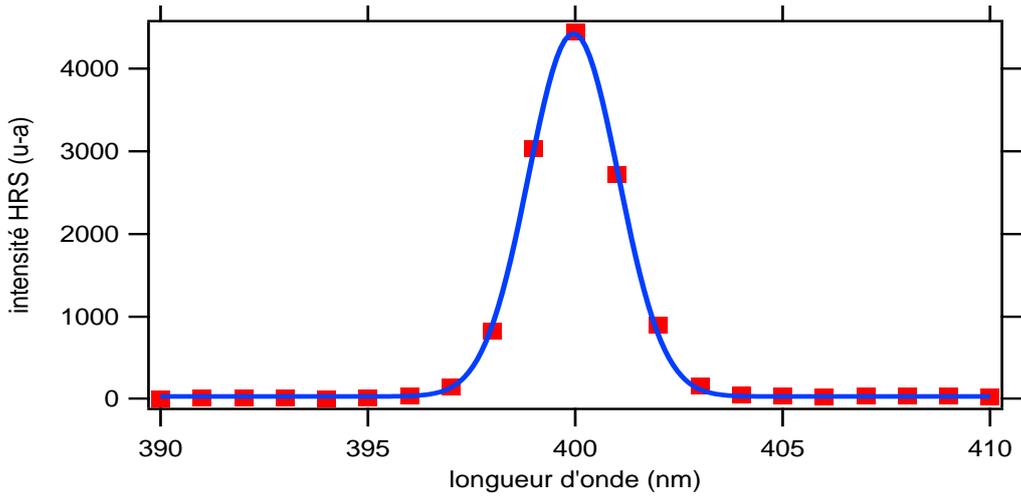
#### 4.7. Contrôle du signal HRS

Utilisant le montage expérimental décrit dans le chapitre précédent, on mesure la réponse non linéaire des particules métalliques d'argent autour de la longueur d'onde harmonique. Cette mesure vise à s'assurer de l'origine du signal HRS mesuré pour une longueur d'onde fondamentale fixée à 800 nm. Ainsi, on s'assure de la monochromaticité du signal harmonique, indication que le signal enregistré à cette longueur d'onde harmonique de 400 nm résulte bien de la conversion de deux photons à la fréquence fondamentale en un photon à la fréquence harmonique. La monochromaticité du signal harmonique issue de la solution de nanoparticules d'argent et des billes de latex pour une longueur d'onde fondamentale de 800 nm est présentée sur la Figure 4.5. L'intensité HRS est enregistrée dans une gamme restreinte en longueur d'onde autour de la longueur d'onde harmonique attendue à 400 nm. On observe ainsi une raie de forme gaussienne, centrée à une longueur d'onde égale à la moitié de celle de l'onde fondamentale. Cette raie correspond à la raie HRS.

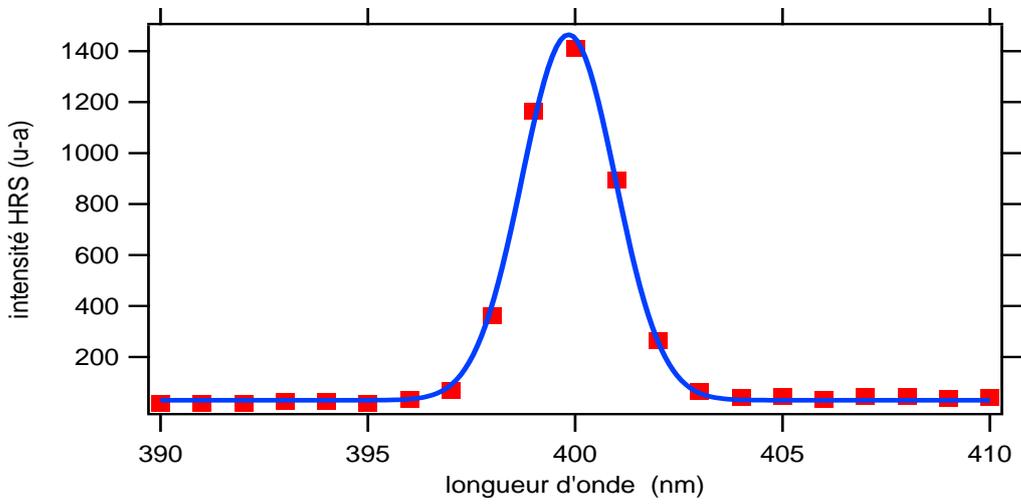
On enregistre dans un premier temps un signal HRS pour une solution de nanoparticules d'argent pure d'un volume de 1000  $\mu\text{l}$  dans une cellule de section  $0.5 \times 0.5 \text{ cm}^2$ . Ensuite, des mesures d'HRS sont effectuées pour des solutions de nanoparticules d'argent de 1000  $\mu\text{l}$  pour différentes concentrations de sphères de latex par ajout de 10  $\mu\text{l}$ .



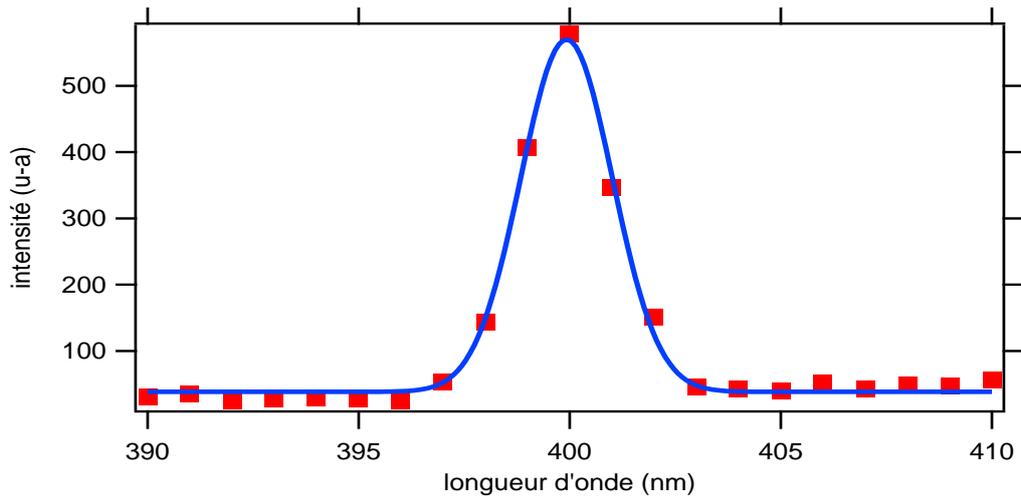
(a)



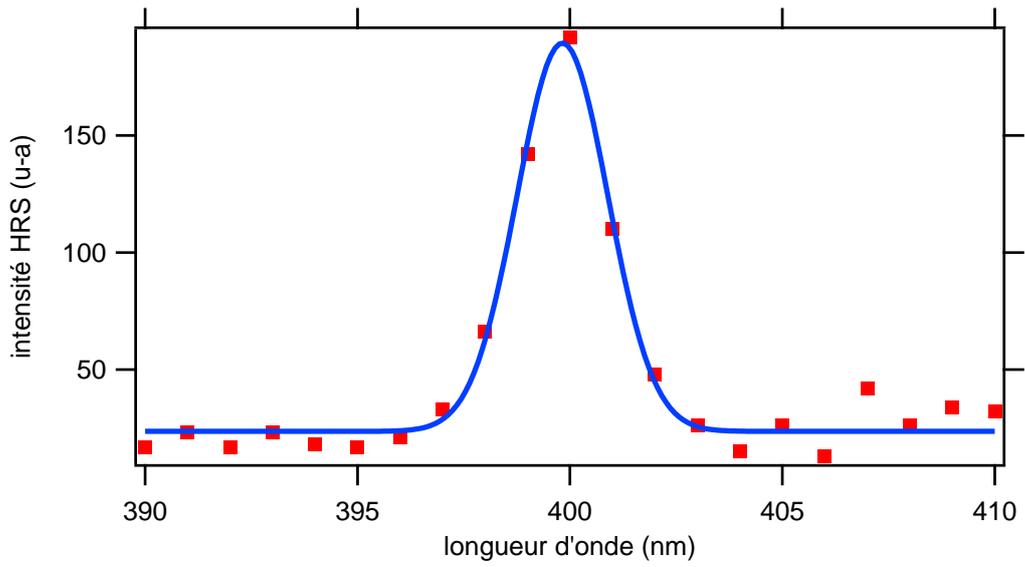
(b)



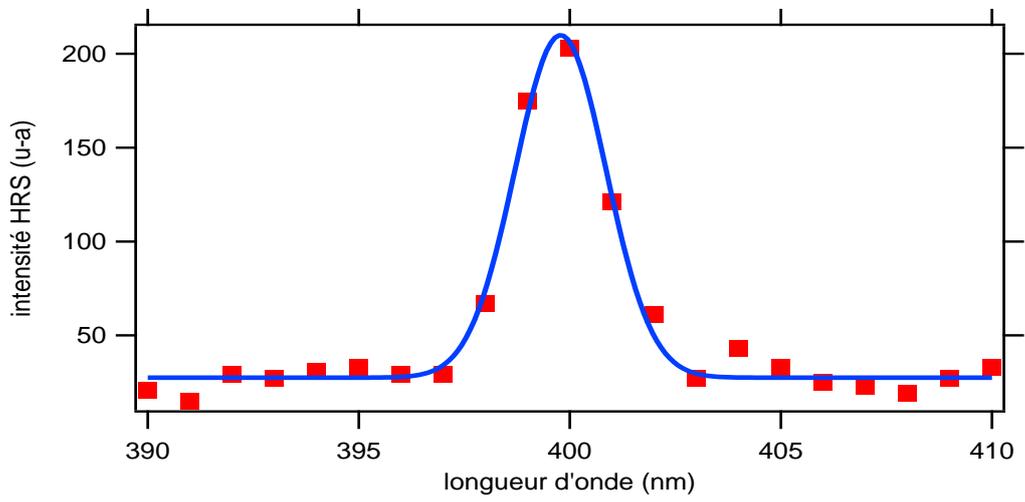
(c)



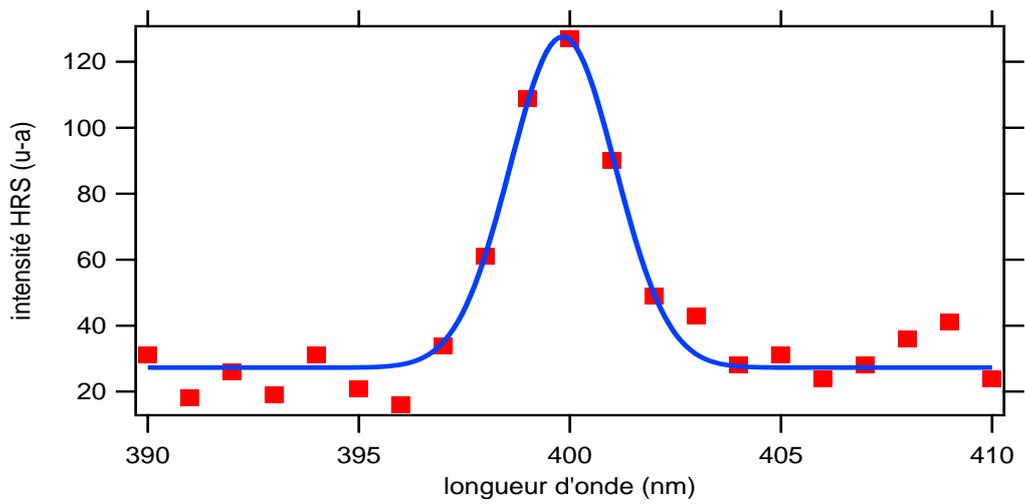
(d)



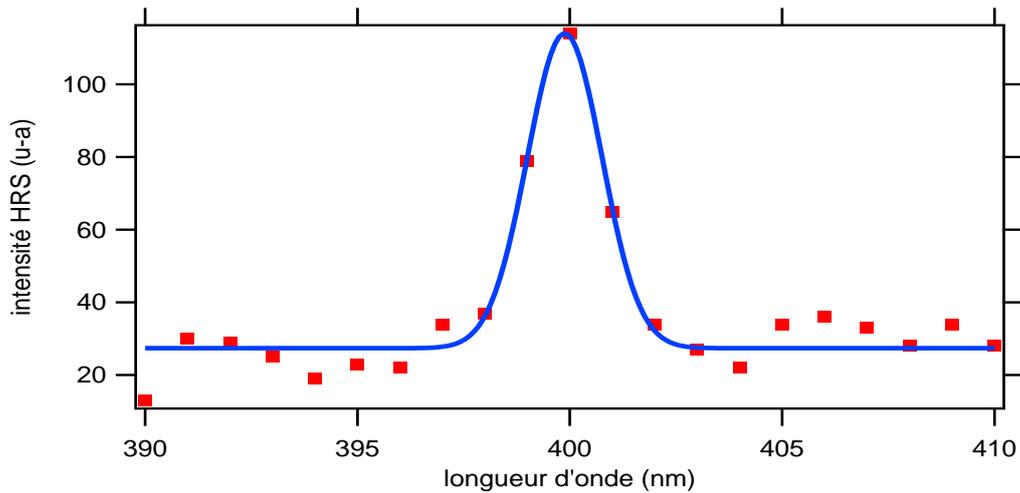
(e)



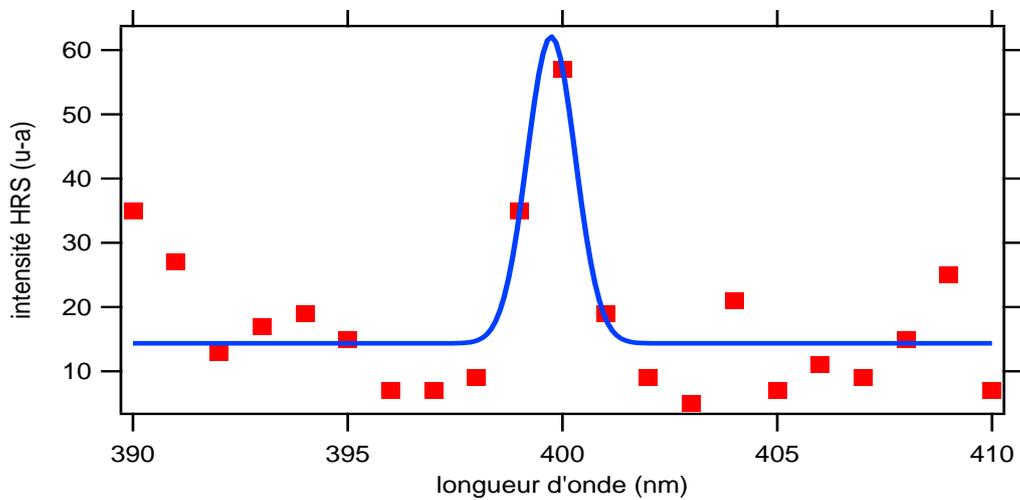
(f)



(g)



(h)



(i)

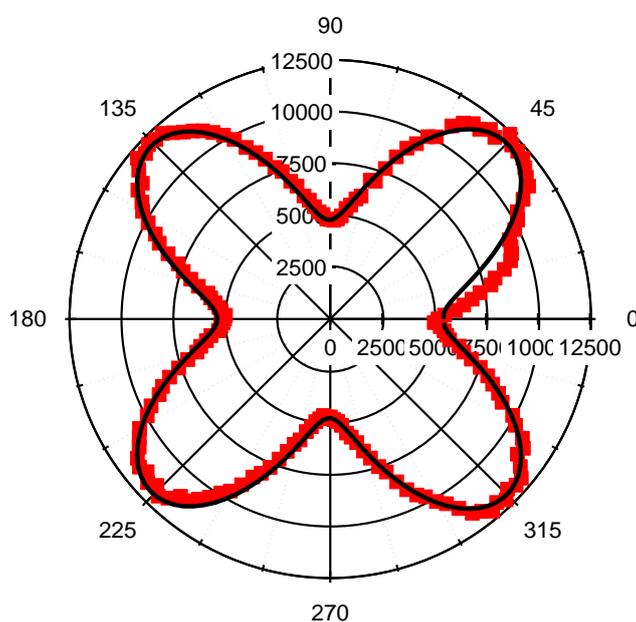
**Figure 4.4-** Monochromaticité du signal HRS de la solution  $N_{Ag}-N_{sp}$  pour différentes concentrations des billes de latex. (a) Ag pure, (a) solution  $N_{Ag}$  pure, (b)  $2.39 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>, (c)  $4.79 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>, (d)  $7.17 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>, (e)  $9.56 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>, (f)  $11.9 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>, (g)  $14.3 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>, (h)  $16.7 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>, (i)  $19.1 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>

La Figure 4.4 représente ainsi l'évolution du signal HRS en fonction de la concentration des billes de latex. Les valeurs expérimentales sont représentées par des points rouge. Elles sont ajustées par la courbe bleue en utilisant une fonction Gaussienne. On observe ainsi que le signal HRS diminue avec l'augmentation de la concentration des billes de latex. Les billes de latex jouent donc le rôle d'éléments diffuseurs. Lorsqu'on augmente la concentration des diffuseurs, l'intensité HRS provenant des nanoparticules d'argent à la fréquence harmonique diminue. En particulier, à forte concentrations de billes de latex, on collecte toujours un signal HRS. Le processus de diffusion par les billes de latex contribue donc à réduire le flux des

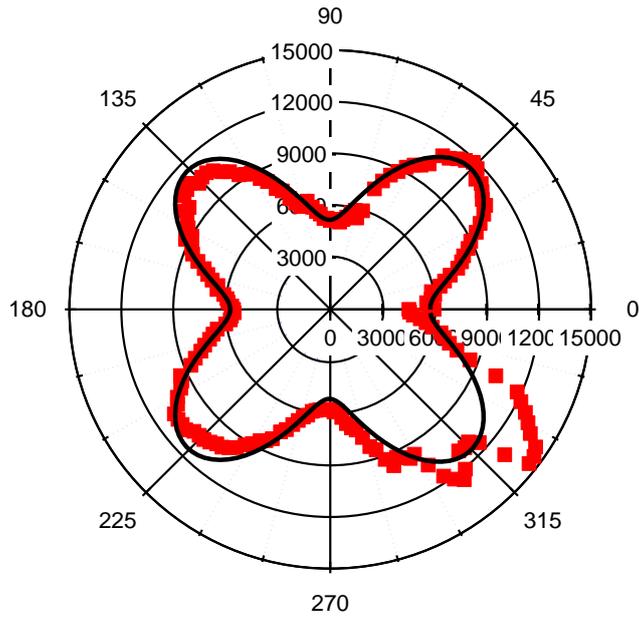
photons incidents. L'intensité HRS est donc diminuée d'autant. Néanmoins, ce processus de perte du signal HRS n'est pas complet. A forte concentration en particules de latex, un signal HRS résiduel reste observé.

#### 4.8. Analyse en polarisation

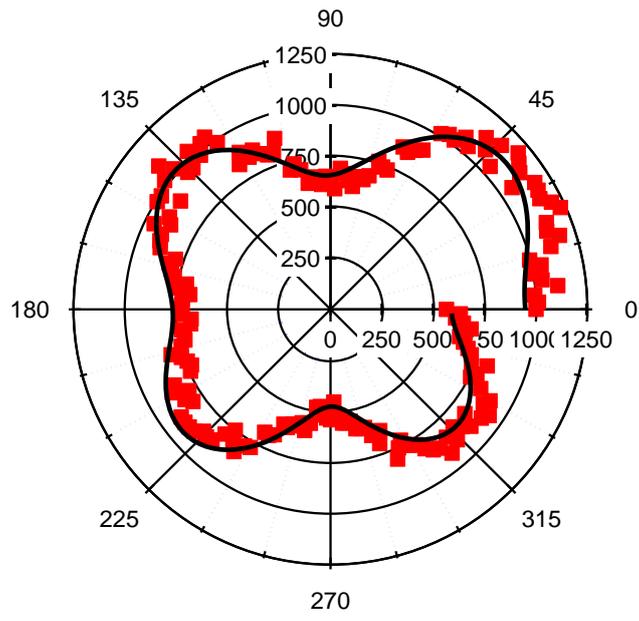
L'étude de la polarisation de l'intensité HRS a été réalisée par le montage expérimental montré dans le Chapitre 3 pour une longueur d'onde fondamentale de 800 nm. Les cellules préparées pour la mesure de la monochromaticité du signal HRS ont été utilisées pour l'analyse de la polarisation de l'intensité HRS. A chaque fois, le signal HRS à la fréquence harmonique de 400 nm a été enregistré en fonction de la variation de la polarisation incidente.



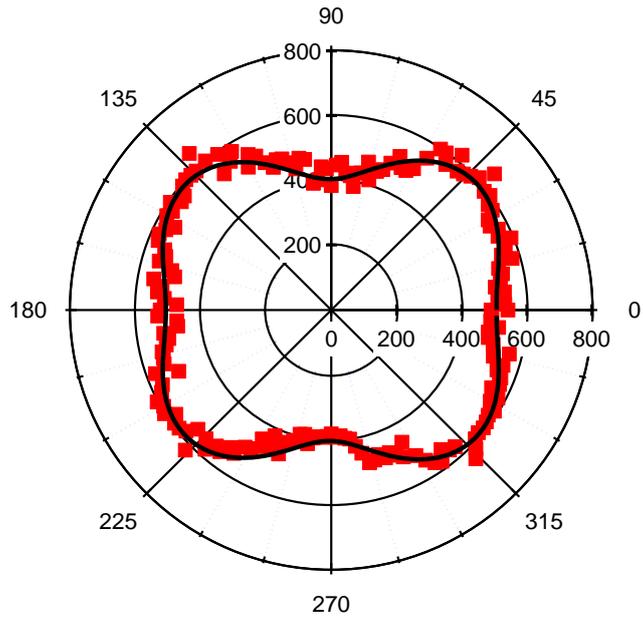
(a)



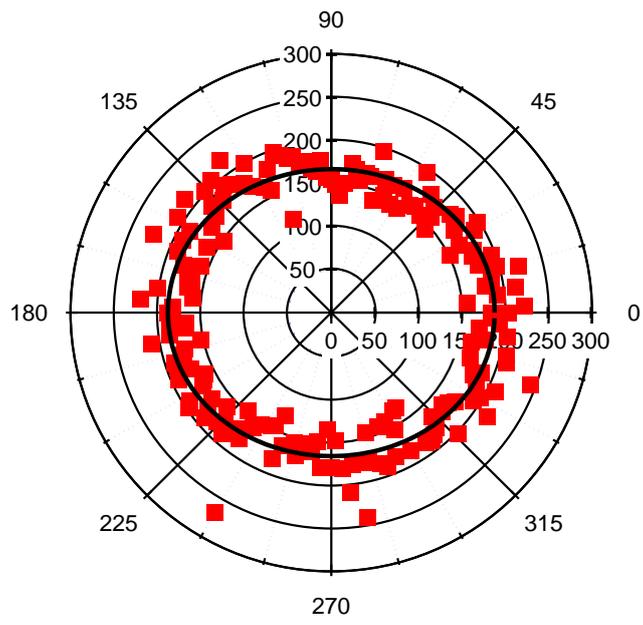
(b)



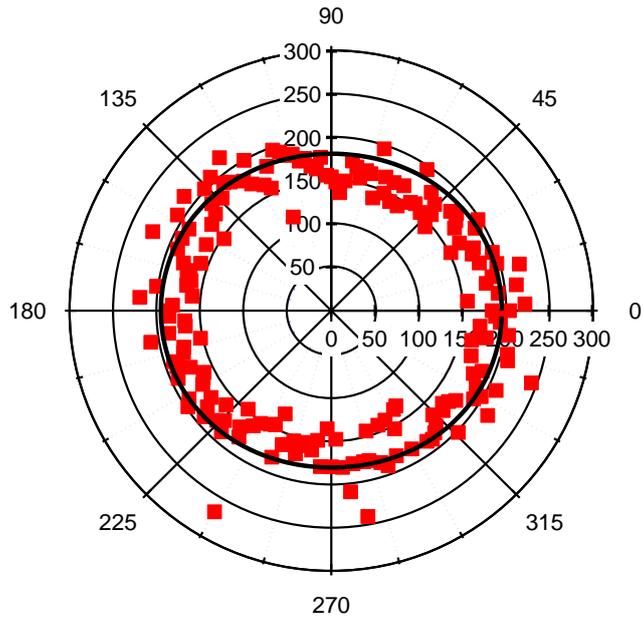
(c)



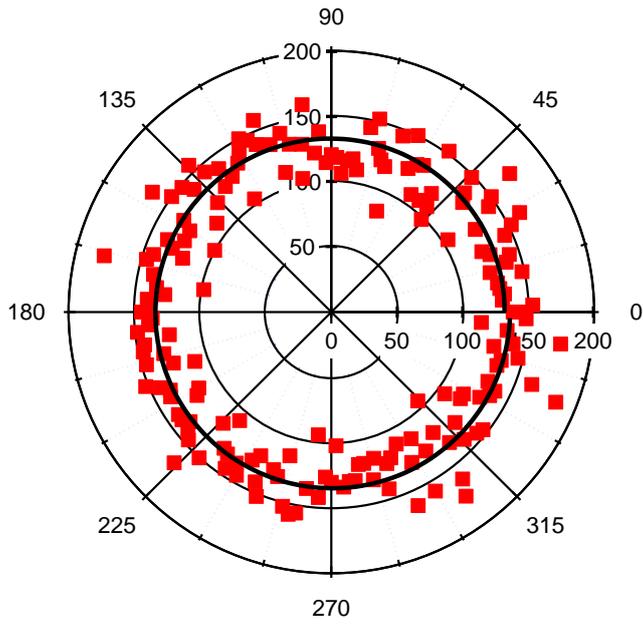
(d)



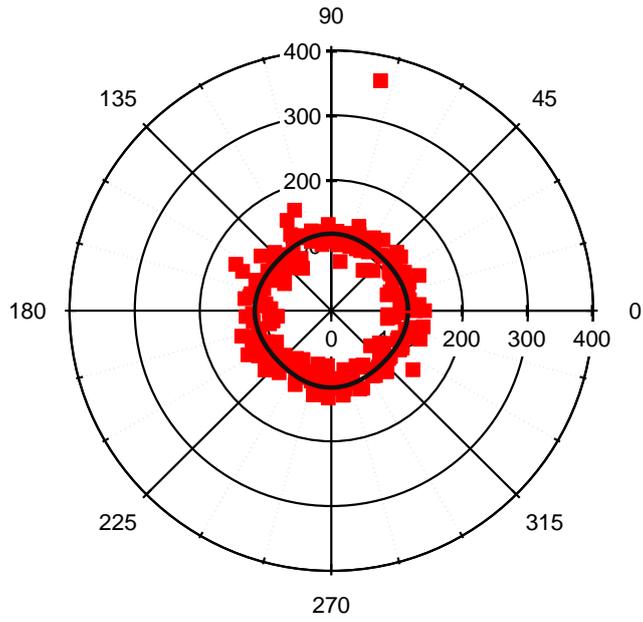
(e)



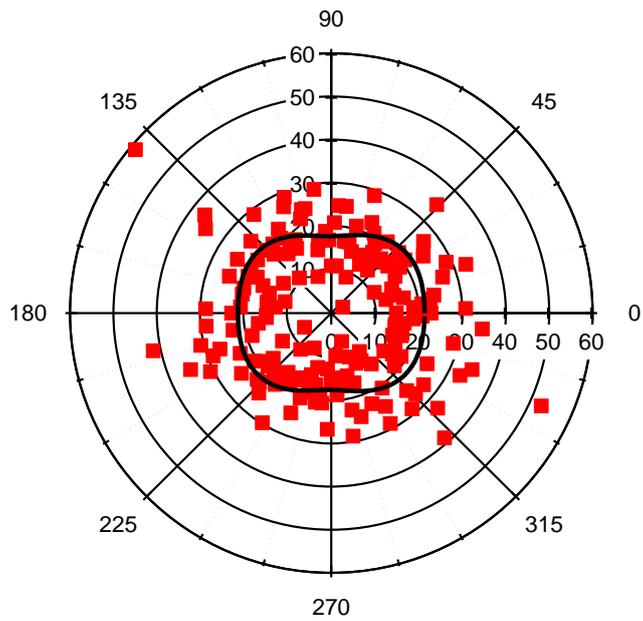
(f)



(g)



(h)

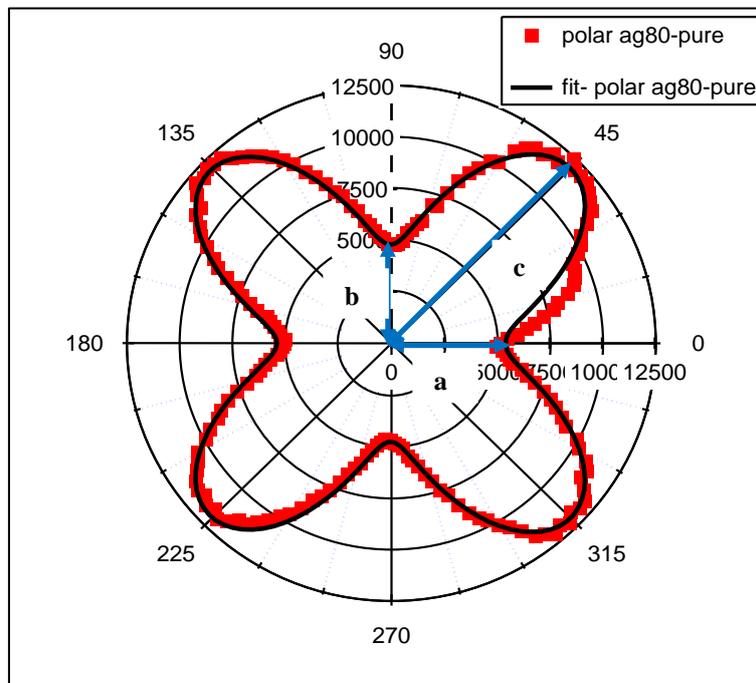


(i)

**Figure 4.5-** Courbes en coordonnées polaires de l'intensité HRS d'une solution  $N_{Ag}$ - $N_{sp}$  en fonction de l'angle de la polarisation de l'onde incidente. (a) solution  $N_{Ag}$  pure, (b)  $2.39 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>, (c)  $4.79 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>, (d)  $7.17 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>, (e)  $9.56 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>, (f)  $11.9 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>, (g)  $14.3 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>, (h)  $16.7 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>, (i)  $19.1 \times 10^{10}$  part/cm<sup>3</sup>

On observe à partir de la Figure 4.5 (a) jusqu'à (e) une diminution de l'intensité HRS et la disparition de la forme quadripolaire lorsqu'on augmente la concentration des billes de latex. La diminution d'intensité peut s'expliquer par le phénomène de diffusion : plus le nombre de sphères de latex augmente, plus les photons (fondamentaux et harmoniques) sont diffusés dans toutes les directions avec perte de l'état de polarisation. Il en résulte que de moins en moins de photons harmoniques sont collectés par le détecteur.

Les résultats expérimentaux sont présentés par les points rouges, et l'ajustement est montré par la courbe noire. L'ajustement des résultats expérimentaux a été obtenu par l'équation (3.12). En outre, les coefficients a, b et c peuvent être calculés théoriquement comme montré dans le Chapitre 3. Ils peuvent être tirés directement des figures représentées en coordonnées polaires. La Figure 4.6 les coefficients a, b et c de chaque figure en coordonnées polaires sont présentés.



**Figure 4.6-** Coefficients a,b et c dans une figure en coordonnées polaires

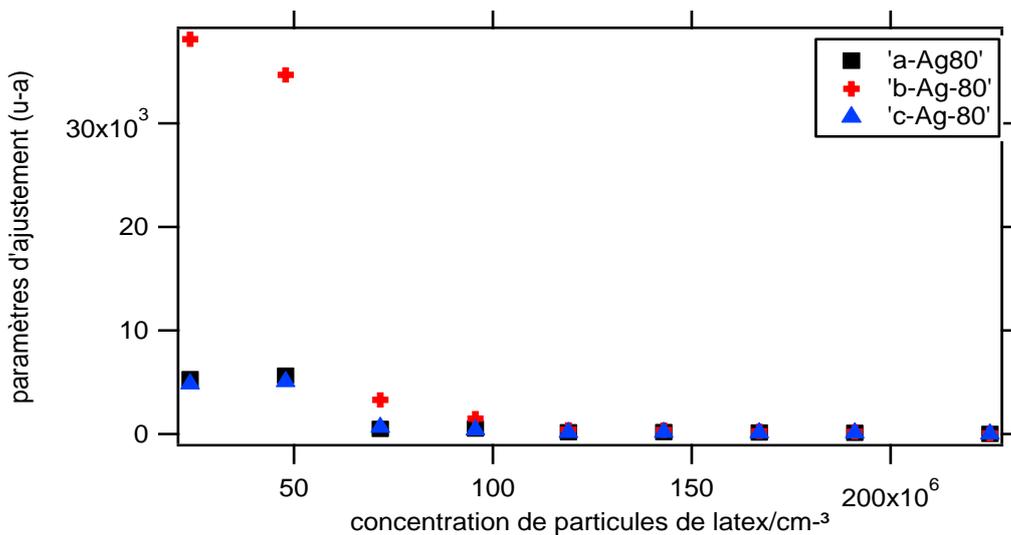
Les coefficients a, b et c correspondent aux angles polaires  $0^\circ$ ,  $45^\circ$  et  $90^\circ$  respectivement pour les solutions  $N_{Ag}-N_{sp}$ . Les coefficients a, b et c pour différentes concentrations de la solution en billes de latex  $N_{sp}$  sont donnés par le Tableau 4.2.

$N_{sp}(\times 10^7 \text{part/cm}^3)$	0	2.39	4.79	7.17	9.56	11.9	14.3
a (uni_arb)	5303	5636.8	491.16	520.26	179.94	192.2	142.12
b (uni_arb)	38118	34674	3303.62	1486.31	406.89	375.17	266.24
c (uni_arb)	4853	5073.2	654.82	409.95	156.85	179.43	132.36

**Tableau 4.2-** Coefficients a, b et c calculés en fonction de la concentration des billes de latex.

Les coefficients a, b et c donnent des informations sur la taille des nanoparticules d'argent et le caractère quadripolaire de la radiation émise à la fréquence harmonique. En effet, lorsque la contribution du signal HRS en polarisation est dipolaire, la relation  $a+b=c$  est vérifiée. D'après le Chapitre 3. On a,  $a=I_{HRS}(0^\circ)$ ,  $c=I_{HRS}(90^\circ)$  et  $b=4 \times I_{HRS}(45^\circ)-a-c$ . Les valeurs théoriques des coefficients calculés montrent un excellent accord avec les valeurs expérimentales.

On observe ainsi que les coefficients diminuent avec l'augmentation de la concentration des billes de latex comme le montre la Figure 4.7.

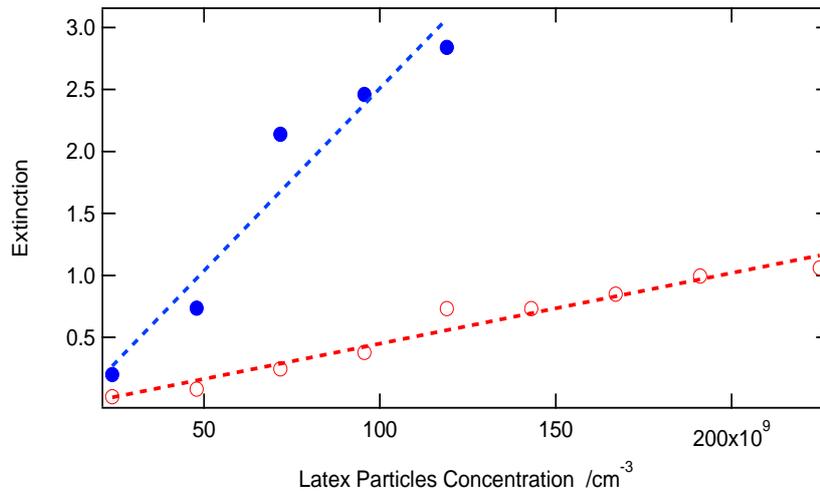


**Figure 4.7-** Evolution des coefficients a, b et c en fonction de la concentration des billes de latex.

#### 4.9. Libre parcours moyen des photons diffusés

Les propriétés de diffusion des échantillons ont été analysées pour déterminer le libre parcours moyen à la fréquence fondamentale  $l^{(\omega)}$  et à la fréquence harmonique  $l^{(2\omega)}$ . Le spectre d'extinction est tracé en fonction de la concentration des billes de latex en fixant la concentration de la solution de nanoparticules d'argent. Dans tout ce qui suit, les courbes présentées sont obtenues pour la solution de nanoparticules d'argent diluées par la solution des billes de latex. Dans le cas général, la section efficace est la somme de la section efficace d'absorption et de la section efficace de diffusion. Comme les billes de latex n'absorbent pas la lumière incidente, la section efficace est égale à celle de diffusion.

La Figure 4.8 présente l'extinction en fonction de la concentration des billes de latex pour les deux longueurs d'onde, fondamentale à 800 nm et harmonique à 400 nm.



**Figure 4.8-** Extinction en fonction de la concentration de billes de latex, les cercles remplis pour la fréquence fondamentale et les cercles vides pour la fréquence harmonique.

Les sections efficaces à la fréquence fondamentale et à la fréquence harmonique obtenues sont respectivement  $\sigma^{(\omega)}=1.1 \times 10^{-8} \text{ cm}^2$  et  $\sigma^{(2\omega)}=5.9 \times 10^{-8} \text{ cm}^2$

La section efficace est donnée par la formule suivante :

$$\sigma_{ext} = \frac{A}{LC} \quad (4.7)$$

Le Tableau 4.3 présente donc les valeurs de concentration des billes de latex, l'extinction et la section efficace d'extinction à la fréquence fondamentale et à la fréquence harmonique. Pour différentes concentrations de billes de latex, les valeurs de la section efficace ont été calculées. La valeur de la section efficace finale est la moyenne de valeurs calculées.

Nsp( $\times 10^7 \text{ part/cm}^3$ )	0	2.39	4.79	7.17	9.56	11.9	14.3	16.7
A à 400 nm	0.2	0.73	2.14	2.4	2.8	2.84	2.89	3.03
A à 800 nm	0.02	0.08	0.24	0.38	0.73	0.73	0.84	0.99

**Tableau 4.3-** Concentration des billes de latex, extinction à la fréquence harmonique et à la fréquence fondamentale.

Selon la figure(4-8) le libre parcours moyen à la fréquence fondamentale et à la fréquence harmonique sont obtenus. Ces valeurs doivent être comparées à la longueur géométrique du chemin balistique des photons dans la cellule. La longueur de la cellule utilisée est égale à

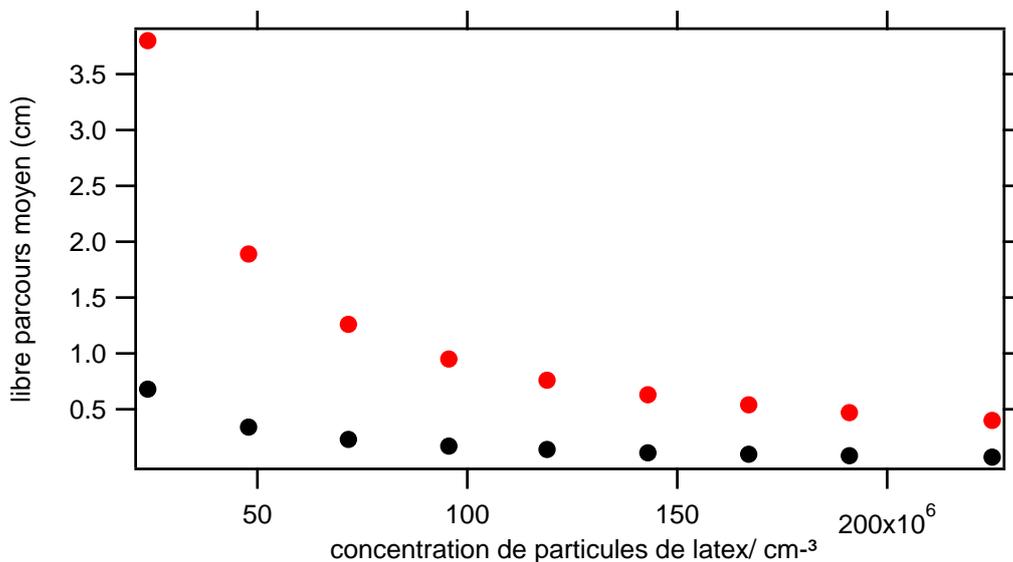
$L=0.5$  cm. L'intensité incidente est en effet focalisée au centre de la cellule ce qui conduit à une longueur du chemin balistique égale à 0.25 cm. Les valeurs du libre parcours moyen varient en fonction de la concentration de billes de latex. Elles sont obtenues en utilisant l'équation (4.1). Ces valeurs sont représentées dans le tableau ci-dessous :

$N_{sp}(\times 10^7 \text{ part/cm}^3)$	2.39	4.79	7.17	9.56	11.9	14.3	16.7	19.1	22.5
$l_s^{(2\omega)}$	0.71	0.35	0.23	0.17	0.14	0.12	0.10	0.08	0.07
$l_s^{(\omega)}$	3.8	1.89	1.26	0.95	0.76	0.63	0.54	0.47	0.4

**Tableau 4.4-** Représentation des valeurs, concentration de billes de latex, libre parcours moyen à la fréquence harmonique et fondamentale

Le régime balistique se produit lorsque le libre parcours moyen est de l'ordre de la longueur de la cellule. Cette condition est toujours satisfaite pour le cas du libre parcours moyen à la fréquence fondamentale. En revanche, à la fréquence harmonique, la condition est satisfaite pour des concentrations de billes de latex supérieure à la concentration critique  $C_{crit}^{(2\omega)} = 68 \times 10^6 \text{ part/cm}^3$ . Cette valeur est obtenue lorsque  $L=l^{(2\omega)}=0.25$

La Figure 4.9 représente l'évolution de la longueur du libre parcours moyen à la fréquence fondamentale et à la fréquence harmonique en fonction de la concentration de billes de latex.



**Figure 4.9-** Evolution de la longueur du libre parcours moyen en fonction de la concentration de billes de latex, les points rouges à la fréquence fondamentale et les points noirs à la fréquence harmonique.

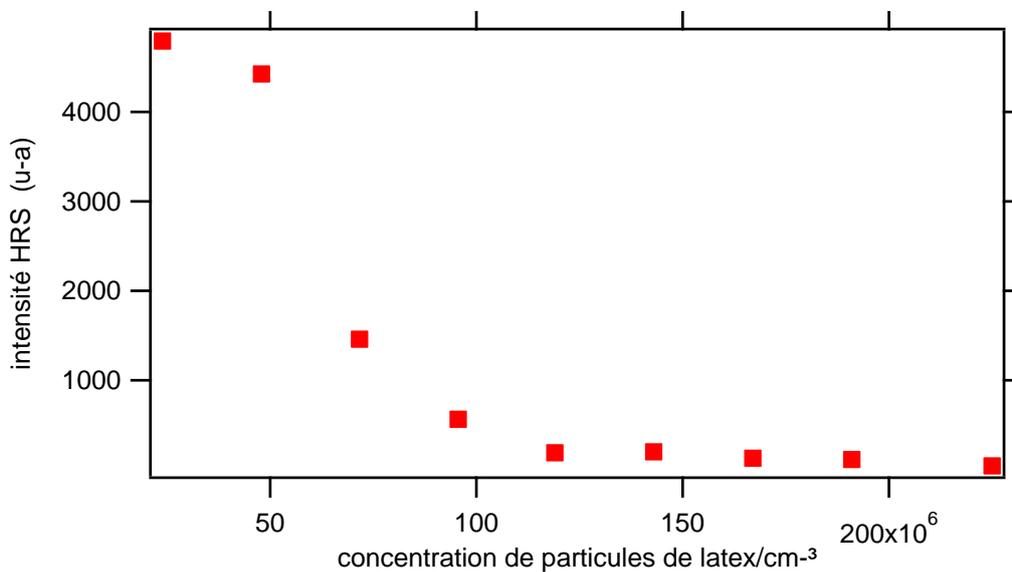
On observe que la longueur du libre parcours moyen diminue lorsqu'on augmente la concentration de billes de latex. A faible concentration de billes de latex, le libre parcours moyen est de l'ordre de la longueur de la cellule ce qui conduit une propagation balistique(en une ligne droite) des photons dans le milieu. A la concentration critique de billes de latex, le libre parcours moyen des photons à la fréquence harmonique devient plusfaible que la longueur de la cellule. Le nombre important des diffuseurs cause la diffusion des photons et provoque une transition de la propagation de la lumière d'un régime balistique à un régime de diffusion.

#### 4.10. Effet de la diffusion sur l'intensité HRS

L'intensité HRS est mesurée à la longueur d'onde harmonique de 400 nm.Les valeurs de l'intensité HRS sont représentées dans le tableau ci-dessous :

$N_{sp}(\times 10^7 \text{ part/cm}^3)$	0	2.39	4.79	7.17	9.56	11.9	14.3	16.7	19.1	22.5
I HRS (u-a)	4792	4424.5	1458	563.07	189.1	199.14	127.39	113.76	42.44	51.59

**Tableau 4.5-** Concentration de billes de latex et l'intensité HRS

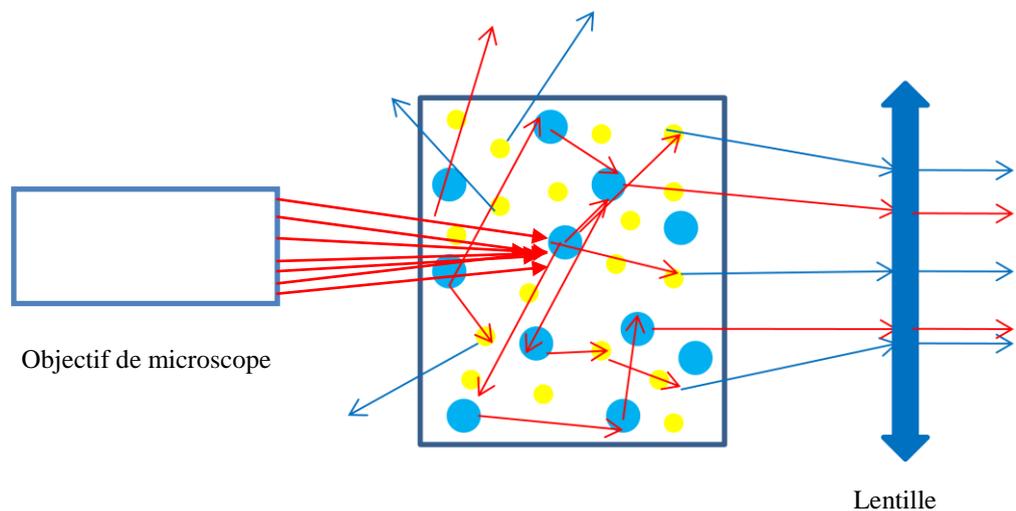


**Figure 4.10-** Variation de l'intensité HRS en fonction de la concentration de billes de latex.

L'intensité HRS décroît d'une façon exponentielle avec l'augmentation de la concentration de billes de latex. Cette diminution est due à la pertedes photons balistiques dans la cellule. Les photons balistiques sont produits par les nanoparticules d'argent après la conversion de fréquence lorsque deux photons de même fréquence fondamentale s'annihilent et sont

convertis à un photon à la fréquence harmonique. Cependant, le nombre des photons balistiques collectés par le détecteur diminue lorsqu'on augmente la concentration de billes de latex qui diffusent les photons dans toutes les directions. Les photons absorbés par les nanoparticules d'argent sont ici en quantité négligeable dans cette étude car la section efficace d'absorption est négligeable par rapport la section efficace de diffusion des billes de latex. Par conséquent, les pertes sont simplement dues à la diffusion par les billes de latex à la fréquence fondamentale et harmonique.

La Figure 4.10 présente le phénomène de diffusion par les billes de latex. On observe clairement la perte des photons fondamentaux et harmoniques par les billes de latex.



**Figure 4.11**-Schéma représentant le phénomène de diffusion multiple des photons harmonique (en bleu) et fondamentaux (en rouge).Les sphères de latex (en bleu) ainsi que le phénomène HRS par les nanoparticules d'argent (en jaune).

Pour approfondir la compréhension de problème de la diffusion, nous pouvons définir un nouveau paramètre  $\zeta$ . Pour une nanoparticule de 80 nm de diamètre, l'approximation dipolaire n'est plus valable et les effets de retard doivent être pris en compte. Le paramètre  $\zeta$  est donné par la formule suivante :

$$\zeta = 1 - \frac{a_{\Gamma} + c_{\Gamma}}{b_{\Gamma}}$$

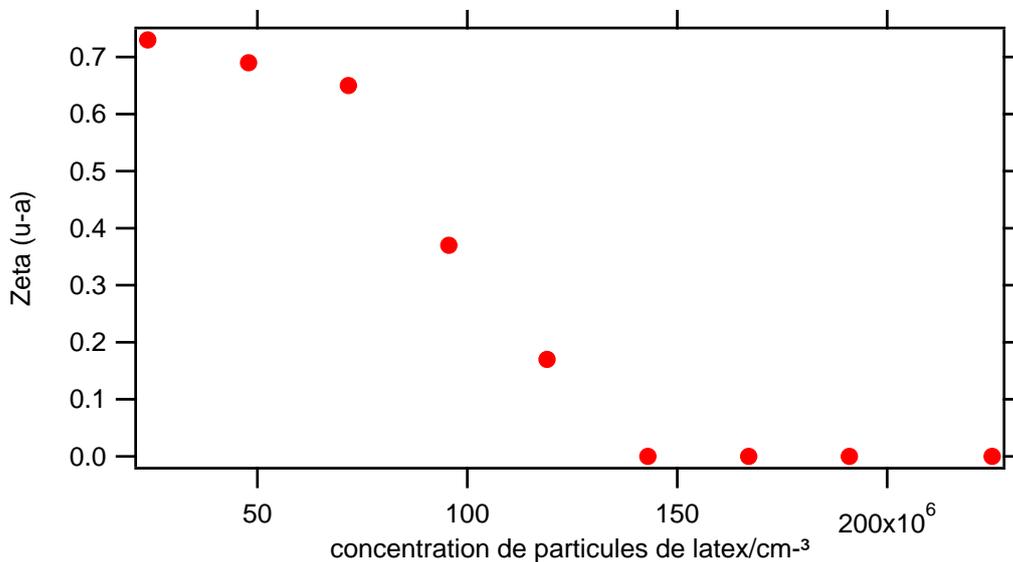
Pour une nanosphère parfaite dont la réponse en polarisation est purement quadripolaire, le paramètre  $\zeta$  est proche de l'unité et disparaît pour une réponse non polarisée. Par conséquent

le rôle du paramètre zeta  $\zeta$  est de quantifier la nature de la contribution multipolaire de la réponse HRS à travers son état de polarisation. Les valeurs de  $\zeta$  dans notre expérience varient en fonction de la concentration de billes de latex. Elles sont données par le tableau suivant :

$N_{sp}(\times 10^7 \text{ part/cm}^3)$	0	2.39	4.79	7.17	9.56	11.9	14.3	16.7	19.1	22.5
$\zeta$ (u-a)	0.73	0.69	0.65	0.37	0.17	0.01	0.03	0.09	0.18	0.03

**Tableau 4.6-** Paramètre zeta  $\zeta$  pour chaque concentration de billes de latex

La Figure 4.11 présente l'évolution du paramètre  $\zeta$  en fonction de la concentration de billes de latex.



**Figure 4.12-** Paramètre  $\zeta$  en fonction de la concentration de billes de latex.

Pour la première solution de nanoparticules d'argent pure, la valeur de  $\zeta$  est égale à 0.73 car la contribution de la réponse quadripolaire de l'intensité HRS domine. La dernière solution indique une valeur de  $\zeta$  qui est égale à 0.03. La chute de la valeur du paramètre  $\zeta$  est causée par la perte de polarisation du signal HRS comme le montre la Figure 4.6.

Comme nous avons indiqué auparavant, dans un milieu de diffusion, les photons à la fréquence fondamentale se propagent balistiquement tout comme les photons diffusés à cette même fréquence. Par conséquent, la diffusion linéaire à la fréquence fondamentale réduit l'intensité incidente, conduisant à une diminution du nombre de photons diffusés non linéairement. Le même raisonnement s'applique pour la diffusion à la fréquence harmonique. Les photons balistiques à la fréquence harmonique sont collectés par le détecteur.

L'observation de la perte de l'état de polarisation progressivement en fonction de la concentration croissante de billes de latex est la signature du processus de diffusion à cette fréquence aussi. Par conséquent, on peut conclure que des photons diffusés sont aussi collectés par le détecteur lorsque la concentration de billes de latex est importante. Dans ce cas, les photons diffusés dominent le signal HRS au détriment des photons balistiques.

#### **4.11. Conclusion**

L'intensité de diffusion hyper Rayleigh pour une suspension de nanoparticules d'argent a été étudiée en fonction de la concentration en particules de latex. Le libre parcours moyen a été calculé à la fréquence fondamentale et la fréquence harmonique. A faible diffusion, les photons se propagent balistiquement. La transition du régime balistique à un régime de diffusion est observé pour une concentration proche de  $19.1 \times 10^7$  part/cm<sup>3</sup>. Cette transition est clairement observée dans les spectres d'intensité HRS ainsi que dans les courbes de polarisation.

Pour des fortes concentrations de particules de latex, la perte de l'état de polarisation de l'intensité HRS a été observée. De même, on observe que le signal HRS ne disparaît pas complètement. Notamment, nous montrons que l'état de polarisation est déterminé par les photons balistiques et les photons diffusés. Par conséquent, pour des faibles concentrations, les photons balistiques dominent et pour des fortes concentrations, les photons diffusés dominent le signal HRS.

## **Bibliographie**

- [1] Ming Hsu Kao. Multiple Light Scattering from Isotropic and Anisotropic Turbid Media. Thèse de doctorat, université de Pennsylvania. États-Unis, (1995).
- [2] M. C. W. van Rossum, Th. M. Nieuwenhuizen. Multiple scattering of classical waves: microscopy, mesoscopy, and diffusion. *Rev. Mod. Phys.*, Vol. 71, No. 1, (1999).
- [3] H Cao. Random lasers development, features and applications. *Optics & Photonics News*, (2005)
- [4] D.S. Wiersma. The physics and application of random laser. *Nature photonics*, 4, 359-367, (2008).
- [5] B. Redding, M.A. Choma, H. Cao. Speckle-free laser imaging using random laser illumination. *Nature photonics*, 6, 355-359, (2012).
- [6] L. Margerin. Diffusion approximation with polarization and resonance effects for the modelling of seismic waves in strongly scattering small-scale media. *Geophysical Journal International*. 192 :326-345, (2013).
- [7] V. Backman, R. Gurjar, K. Badizadegan, I. Itzkan, R R. Dasari, L T. Perelman, and M S. Feld. Polarized light scattering spectroscopy for quantitative measurement of epithelial cellular structures in situ. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, vol. 5, no. 4, (1999).
- [8] J. Fernandez, S. Garcia-Revilla, I. Solab, R. Balda, L. Rosob, D. Levy, M. Zayate. Two-photon pumped solid state random laser. Abstract #2361, 218th ECS Meeting, The Electrochemical Society, (2010).
- [9] E. V. Chelnokov, N. Biturin, I. Ozerov and W. Marine. Two-photon pumped random laser in nanocrystalline ZnO. *APPLIED PHYSICS LETTERS* 89, 171119, (2006).
- [10] E.V. Makeev and S.E. Skipetrov. Second harmonic generation in suspensions of spherical particles, *Opt. Commun*, 244, 139-147, (2003).
- [11] J I. Dadap, J. Shan, K B. Eisenthal, T F. Heinz. Second harmonic Rayleigh scattering from a sphere of centrosymmetric, *Phys. Rev. Lett.*, 83, 4045-4048, (1999).
- [12] I. Russier-Antoine, E. Benichou, G. Bachelier, Ch. Jonin, P F . Brevet. Multipolar contributions of second harmonic generation from silver and gold nanoparticles. *J. Phys. Chem. C*, 111, 9044-9048, (2007).
- [13] S K. Kurtz, T T. Perry. A powder technique for the evaluation of nonlinear optical materials. *J. Appl. Phys.*, 39, 3798, (1968).

**[14]** J. Nappa, G. Revillod, I. Russier-Antoine, E. Benichou, Ch. Jonin, P F. Brevet. Electric dipole origin of second harmonic generation of small mettalic particles. *Phys. Rev. B*,71, 165407-165410,(2005).

**[15]** P C Lee, D Meisel. Adsorption and surface-enhanced Raman of dyes on silver and gold sols. *J. Phys. Chem.* 86 3391, (1982).

**[16]** L. Ge, Q. Li, M. Wang, J. Ouyang, X. Li, et M M. Xing. Nanosilver particles in medical applications: synthesis, performance, and toxicity. *Int J Nanomedicine* 9: 2399–2407,( 2014).

## Conclusion générale

Au premier chapitre, après avoir introduit les concepts nécessaires à la description des lasers impulsionsnels d'une façon générale puis la dynamique non linéaire d'un laser à absorbant saturable en particulier, on a abordé la dynamique non linéaire des lasers à impulsions à travers une étude bibliographique. La simulation numérique est l'outil privilégié pour l'étude de la dynamique non linéaire d'un laser monomode à absorbant saturable en milieu homogène. On a établi un modèle compact simple basé sur les équations du bilan permettant de décrire la dépendance entre l'intensité et les différents paramètres laser à savoir l'inversion de population du milieu actif, l'inversion de population du milieu absorbant et le coefficient de saturation du milieu absorbant. On a déduit que l'augmentation de l'intensité de l'impulsion laser est causée principalement par l'augmentation du pompage du milieu actif et la diminution de la valeur du coefficient de saturation du milieu absorbant.

Au deuxième chapitre, nous nous sommes intéressés au développement d'une source laser par effet Talbot. Dans la première partie de ce chapitre, on a montré la possibilité de mesurer la phase de l'effet Talbot dans l'approximation de Fraunhofer. Nos valeurs théoriques sont en excellent accord avec les valeurs expérimentales. La deuxième partie présente l'étude expérimentale et théorique de la génération de taux de répétition THz par effet Talbot dans un laser Saphir-Titane à décalage de fréquence. Le modèle théorique montre que les phases de l'effet Talbot temporel fractionnaire varient quadratiquement avec  $n$  modes. Pour une distance fractionnaire  $p/q Z_t$ , lorsque  $q$  n'est pas un multiple du nombre de mode  $n$ , le spectre d'intensité montre moins de fluctuations par rapport au cas où  $q$  est un multiple de  $n$ . Le montage expérimental montre que pour une distance spécifique égale à  $4/5 Z_t$ , le spectre sans mode à 100 MHz ainsi que le spectre avec injection à 400 MHz sont moins bruités par rapport aux autres fractions. En outre, la trace d'auto-corrélation montre une diminution de fluctuations lorsqu'on se rapproche de la distance  $4/5 Z_t$  et une augmentation de la fluctuation lorsqu'on s'éloigne de cette dernière.

L'étude de la diffusion dans un milieu désordonné présente un potentiel d'application riche. Ensuite on s'intéresse à l'étude de l'évolution de l'intensité de second harmonique des nanoparticules métalliques dans un milieu désordonné. Au troisième chapitre, on a présenté une description théorique de la génération de la second harmonique et en particulier la diffusion hyper Rayleigh, un montage expérimental a été mis en place pour cette étude. Les résultats théoriques ont été utilisés ensuite au chapitre quatre. L'évolution de l'intensité de la second harmonique dans une suspension de nanoparticules métalliques a été étudiée en

fonction de la concentration des diffuseurs de billes de latex. À travers résultats obtenus des spectres de l'intensité et l'analyse de polarisation, la transition du régime balistique en un régime de diffusion a été observée, à savoir que le régime balistique et le régime de diffusion son définis par leur libre parcours moyen du milieu. L'analyse de l'intensité résolue en polarisation montre que pour des fortes concentrations de billes de latex, le signal mesuré perd sa polarisation, en revanche, la génération de la seconde harmonique ne disparaît pas.

## **Résumé**

Au cours de ce travail, les problèmes des lasers d'une façon générale ont été traités. Nous avons commencé par un simple modèle mathématique qui traite un laser à absorbant saturable de classe B. A travers ce modèle, nous avons étudié l'évolution temporelle des photons dans une cavité Fabry-Pérot en fonction de plusieurs paramètres tels que le pompage du milieu actif et le milieu absorbant. Par ailleurs, pour apporter des informations supplémentaires sur ces types de lasers de classe B, une étude expérimentale et théorique a été faite pour permettre de développer une source laser de type Ti-Sa par effet Talbot. En premier lieu, une étude de l'effet Talbot spatial a été présentée pour définir ce phénomène optique. Ensuite, nous avons donné une description théorique complète de l'effet Talbot temporel pour la génération de taux de répétition THz dans un laser Ti-Sa à décalage de fréquence. Dans la dernière partie de cette thèse, une expérience de la génération de la seconde harmonique par des nanoparticules métalliques dans un milieu désordonné a été réalisée, l'évolution de l'intensité de la seconde harmonique générée par des nanoparticules d'argent dans un milieu de diffusion constitué par des billes de latex a été analysée en fonction de la concentration des billes de latex. Une analyse de la polarisation de la lumière fournit en outre des détails sur la transition du régime balistique en un régime de diffusion des photons harmoniques. L'étude de la diffusion multiple ouvre de nombreuses perspectives pour la compréhension des processus de conversion de photons mais aussi pour le développement des sources lasers aléatoires.

## **Abstract**

During this work, the problems of lasers generally have been analysed. We started with a simple mathematical model that describes a class B laser with saturable absorber. Through this model we studied the time evolution of photons in a Fabry-Perot cavity based on several parameters such as the pumping of the active medium and the absorbing medium. Moreover, to provide additional information about these types of class B lasers, an experimental and theoretical study was done to develop a laser source type Ti-Sa by Talbot effect. First, a study of the spatial Talbot effect was introduced to define this optical phenomenon. Then we gave a complete theoretical description of THz repetition rate of generation in a Ti-Sa laser frequency shifter using the temporal Talbot effect. In the last part of this thesis, an experiment of the second harmonic generation by metallic nanoparticles in a disordered medium was realized; the evolution the second harmonic scattering intensity from silver metallic nanoparticles in a disordered medium consisting of latex particles was analyzed depending on the latex particles concentrations. A light polarization analysis further provides details about the transition from the ballistic to scattered character of the second harmonic photons. The study of multiple scattering opens numerous perspectives for understanding the photon conversion process but also to develop random laser sources.