



**HAL**  
open science

# Effet laser à contre réaction répartie (DFB) excité par voie optique dans les films minces polymères

Frank Sobel

► **To cite this version:**

Frank Sobel. Effet laser à contre réaction répartie (DFB) excité par voie optique dans les films minces polymères. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université d'Angers, 2001. Français. NNT : . tel-00114855

**HAL Id: tel-00114855**

**<https://theses.hal.science/tel-00114855>**

Submitted on 18 Nov 2006

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

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



***EFFET LASER A CONTRE REACTION  
REPARTIE (DFB) EXCITE PAR VOIE OPTIQUE  
DANS LES FILMS MINCES POLYMERES***

**THESE DE DOCTORAT**

Spécialité : Physique

**ECOLE DOCTORALE D'ANGERS**

Présentée et soutenue publiquement

le : 07 Septembre 2001

à : ANGERS

par : FRANK SOBEL

devant le jury ci-dessous :

Mr. Joseph Zyss	Rapporteur	Professeur	ENS	Cachan
Mr. Alain Fort	Rapporteur	Directeur de recherche	IPCMS	Strasbourg
Mr. Michael Canva	Examineur	Chargé de recherche	IOTA	Orsay
Mr. Werner J. Blau	Examineur	Professeur	Trinity College	Dublin
Mr Jean-Michel Nunzi	Examineur	Professeur	POMA	Angers
Mr. Denis Gindre	Examineur	Maître de Conférences	POMA	Angers

Directeur de thèse : Mr Jean-Michel Nunzi, Professeur, Université d'ANGERS

à ma famille,  
à Sophie,

## **REMERCIEMENTS**

Ces trois dernières années m'ont permis de découvrir l'évolution enrichissante d'un laboratoire de recherche. Les collaborations indispensables à la réalisation de ce mémoire sont nombreuses et capitales pour l'avancée des travaux. Il doit donc m'être adressé de virulentes critiques de la part des personnes qui, par mégarde ou manque de place, ne sont pas citées ici.

Je voudrais exprimer toute ma sympathie à l'égard de la gentillesse dont ont fait preuve Messieurs les membres du jury pour critiquer et apporter leur contribution objective à cette thèse.

Je tiens à remercier Mr Joseph Zyss, directeur du Laboratoire de Photonique Quantique et Moléculaire à l'école Normale Supérieure de Cachan et Mr Alain Fort, directeur de recherche du Groupe d'Optique Non Linéaire et Optoélectronique de l'Institut de Physique et de Chimie des Matériaux de Strasbourg, de leur participation active à la correction de ce rapport.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à l'égard de Mr. Werner Blau, directeur du *Molecular Electronics and Nanotechnology Group* au *Trinity College* de Dublin (Irlande), quant à sa participation et son effort de compréhension de la langue française, et Mr. Canva, Chargé de Recherches au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique Théorique et Appliquée à Orsay pour son jugement objectif.

Mr Jean-Michel Nunzi a eu l'aimable gentillesse de m'accepter au sein de ses propres recherches en tant que directeur de thèse, de présenter l'idée de ce sujet et de le rendre réalisable. Je lui témoigne donc ici toute ma reconnaissance, en particulier pour ses idées fulgurantes qui offrent la possibilité d'une constante progression des recherches engagées.

La lasers DFB polymères ont pu être caractérisés grâce à une personne sans qui mes travaux auraient duré encore quelques années. Denis Gindre a permis de m'accorder avec les techniques de mesures d'un laboratoire de recherche. Ses nombreuses critiques (quelquefois infructueuses pour me convaincre mais toujours argumentées et surtout indispensables) m'ont permis d'améliorer mes connaissances dans plusieurs secteurs. Je tenais donc à lui adresser un hommage pour sa gentillesse, sa présence d'esprit et sa confiance qu'il m'a offertes sans concession.

En parlant de l'étude expérimentale, René Chevalier m'a ouvert les portes de son savoir sans aucun a-priori et a toujours su quelle était la meilleure méthode pour parfaire la manip. Chapeau bas également !

Je voulais également souligner l'importance des fructueuses discussions sur la physique en général et les lasers en particulier, engagées avec Vincent, Xuan, Hervé, Honorat, Christophe's, et la plupart des gens du laboratoire. A ce propos, je tenais à m'excuser pour tous les dérangements occasionnés dans les bureaux pour comprendre ce qui pouvait bien se tramer dans mes petites plaquettes.

Enfin, je tenais juste à adresser un grand merci aux membres du GCO au CEA de Saclay : Christine, pour ses magnifiques plaquettes roses, Vincent pour son calcul théorique des modes couplés, et Licinio pour ses compétences et ses critiques que je n'ai jamais pu contredire, ainsi qu'à Barbara, qui m'a offert la connaissance secrète des astuces de l'ellipsométrie Kerr.

## **SOMMAIRE**

<b>REMERCIEMENTS .....</b>	<b>III</b>
<b>SOMMAIRE .....</b>	<b>V</b>
<b>INTRODUCTION GENERALE .....</b>	<b>7</b>
<b>1. LE LASER A GAIN DISTRIBUE : PRINCIPES ET ETAT DE L'ART.....</b>	<b>13</b>
INTRODUCTION .....	15
1.1. RAPPELS SUR LES LASERS.....	16
1.1.1. <i>Notions de base du laser Fabry Pérot.....</i>	<i>16</i>
1.1.2. <i>Modulation de la susceptibilité complexe d'un milieu à gain .....</i>	<i>22</i>
1.2. LE LASER DFB : ETAT DE L'ART.....	28
1.2.1. <i>Les principaux travaux théoriques.....</i>	<i>28</i>
1.2.2. <i>Les structures DFB semi-conducteurs .....</i>	<i>33</i>
1.3. EVOLUTIONS VERS LES MATERIAUX SOUPLES .....	37
1.3.1. <i>Etat de l'art des sources moléculaires .....</i>	<i>37</i>
1.3.2. <i>Les composantes structurelles du laser.....</i>	<i>41</i>
CONCLUSION .....	46
<b>2. NOTIONS DE BASE DU LASER DFB POLYMERE DYNAMIQUE : ETUDES SPECTRALES.....</b>	<b>49</b>
INTRODUCTION .....	50
2.1. LA THEORIE DES MODES COUPLES : LES BASES .....	51
2.1.1. <i>Equations du couplage de modes par modulation de la susceptibilité.....</i>	<i>51</i>
2.1.2. <i>Résultats théoriques du système laser stationnaire.....</i>	<i>57</i>
2.2. L'EMISSION LASER BIMODALE : CONTRADICTIONS .....	62
2.2.1. <i>Le dispositif expérimental .....</i>	<i>62</i>
2.2.2. <i>Démonstration de l'émission laser accordable .....</i>	<i>66</i>
2.2.3. <i>Structure modale complexe .....</i>	<i>71</i>
CONCLUSION .....	75

**3. MODES TRANSVERSES D'UN LASER A GAIN DISTRIBUE..... 78**

INTRODUCTION .....	79
3.1. LE GUIDE D'ONDE PLAN ASYMETRIQUE EN REGIME LASER.....	80
3.1.1. <i>Les modes transverses d'un guide plan asymétrique</i> .....	80
3.1.2. <i>Les fondements de la sélection modale</i> .....	87
3.2. SPECTRE MULTIMODAL D'UN LASER DFB POLYMERE.....	93
3.2.1. <i>Accordabilité laser</i> .....	93
3.2.2. <i>Evolution en intensité d'un spectre multimode</i> .....	99
CONCLUSION .....	102

**4. COMPRESSION TEMPORELLE DE L'EMISSION LASER DFB DANS LES FILMS POLYMERES ..... 105**

INTRODUCTION .....	106
4.1. ETUDE TEMPORELLE .....	107
4.1.1. <i>Compression temporelle : état de l'art et comparaisons</i> .....	107
4.1.2. <i>Méthodes expérimentales de l'optique non linéaire</i> .....	112
4.2. HOLOGRAPHIE DYNAMIQUE .....	116
4.2.1. <i>Principe de la technique de réseau induit par laser</i> .....	116
4.2.2. <i>Evolution temporelle de la diffraction</i> .....	121
CONCLUSION .....	126

**CONCLUSION GENERALE ..... 128**

**ANNEXE..... 133**

A. STRUCTURES LASER .....	134
B. EQUATIONS GENERALES DES MODES COUPLES .....	136

# INTRODUCTION GENERALE

Les lasers intégrés à base de matériaux semi-conducteurs se présentent sous différentes formes. Le plus classique est un laser de type Fabry-Pérot dont les faces clivées constituent la cavité. La génération de l'effet laser par injection électrique impose le dépôt de nombreuses couches. Elles sont disposées de telle sorte que les charges électriques et le champ lumineux créés dans la section émettrice sont confinés dans un espace microscopique. Ces lasers font partie intégrante des hautes technologies actuelles et futures dans la mesure où ils intègrent une grande majorité d'applications scientifiques. Les différentes implications grand public s'étendent des lecteurs optiques jusqu'aux émetteurs indispensables aux moyens de communication. Leurs propriétés particulières de cohérence dans l'espace et dans le temps accroissent les limites de la précision des processus physiques mis en jeu dans la plupart des dispositifs industriels. Les études scientifiques liées à ces sources ont permis d'étendre leur géométrie et leur composition pour améliorer les propriétés physico-chimiques et photo-physiques indispensables à une utilisation courante. Leur géométrie prend actuellement des aspects de plus en plus complexes, notamment par le développement de structures à multi-puits quantiques où les niveaux d'énergie des transitions lasers sont quantifiés.

Un des inconvénients majeurs des microlasers de type Fabry-Pérot est la sélection spectrale de l'émetteur car plusieurs modes longitudinaux peuvent émettre simultanément. Une alternative consiste à insérer un réseau de Bragg dans le milieu actif ou dans une couche adjacente. La sélection spectrale des réseaux de Bragg est employée dès que la mesure de fréquence des phénomènes observés ou induits constitue un élément de contrôle. Par exemple, des réseaux de Bragg sont insérés dans des fibres optiques pour connaître, par variation de la fréquence optique, les déformations structurelles de bâtiments publics. Cette modulation ancrée dans le laser implique un comportement physique très particulier. Il génère en effet une modulation des caractéristiques du milieu perçu par le champ lumineux. Ainsi, l'émission stimulée est résonante par diffraction de Bragg. La contre réaction nécessaire à l'émission laser est répartie sur l'ensemble du réseau. Ces lasers à gain distribué, ou *distributed feedback lasers* en anglais, permettent une émission stable monomode et avec une tenue au flux très intéressante. Ils sont intégrés dans de nombreux dispositifs de télécommunications optiques. La plupart des technologies WDM (*wavelength division multiplexing*) trouvent leur origine dans la pureté spectrale de cette émission contrôlée.

Cependant, la réalisation de ces émetteurs nécessite des moyens financiers conséquents car la synthèse des matériaux impose un contrôle précis de la structure périodique des réseaux cristallins développés à partir du substrat privilégié. De ce fait, l'équipement employé est constitué de bâtis de dépôt épitaxial et d'éléments lithographiques submicrométriques. La fabrication des différents composants nécessaires aux caractéristiques de contrôle des émetteurs télécoms dans les transmissions à haut débit ne peut être effectuée simultanément. Cette fabrication collective est l'une des ambitions de l'optoélectronique de demain.

Pour assurer son développement technologique, l'industrie de l'optique s'intéresse aux matériaux organiques. Les principaux avantages des polymères sont la diversité de constitution inégalable, et la fabrication collective compatible avec les technologies de l'électronique. Les polymères peuvent constituer des matrices hôtes dans lesquels un composé est emprisonné. Les propriétés optiques de ce matériau offrent de nouvelles perspectives. En effet, les colorants photoluminescents peuvent intégrer ce type de matrice pour revêtir une structure rigide. Leurs intéressantes propriétés optiques sont ainsi accessibles sous forme solide. La durée de vie des molécules du colorant peut même être améliorée lorsqu'elles sont introduites dans des matrices polymères.

Par ailleurs, les polymères semi-conducteurs, découverts au début des années 70, permettent de conduire le courant électrique à travers le réseau de liaisons  $\pi$ . La conduction électrique de ces nouveaux matériaux synthétiques est d'ores et déjà mise à profit dans certains dispositifs d'éclairage, ou de mémoires optiques. La plupart des nouveaux matériaux synthétiques offrent des propriétés optiques, électrooptiques, photoélectriques qui motivent à la fois le secteur de la chimie, de l'électronique et de la photonique. L'optoélectronique hybride se développe également. Le principal objectif de ces études est la réalisation d'écrans souples. En effet, la combinaison de capteurs et d'émetteurs hybrides peut offrir une facilité d'utilisation de nombreux produits grand public de haute technologie. Pour ne citer qu'un exemple, une société anglaise proposera d'ici quelques années un stylo-agenda dans lequel est enroulé un écran souple tactile. De plus, la réalisation d'une source cohérente polymère est un projet concret : le premier laser polymère à injection électrique a vu le jour en juillet dernier dans les laboratoires de Bell Labs Technologies.

Enfin, les techniques de dépôt des couches minces contribuent peu à l'investissement nécessaire pour la fabrication de telles structures. La mise en forme des matériaux organiques est très accessible. Ainsi, la réalisation de barreaux cylindriques polymères dopés avec des colorants peut, dans un proche avenir, concurrencer de nombreux dispositifs laser solides accordables en longueur d'onde. Corréler les études optoélectroniques dans les matériaux organiques à une fabrication simultanée de dispositifs électro-optiques polymères sur un même substrat, et ces composants promettent des retombées industrielles impressionnantes. Le nombre d'applications futures des matériaux organiques dans l'optique de demain n'est pas envisageable aujourd'hui.

La transition vers les lasers à gain distribué à base de polymères semi-conducteurs nécessite notamment l'étude des lasers DFB excités par voie optique. Notre travail appartient à cette étape de la recherche appliquée. Néanmoins, les secteurs des lasers semi-conducteurs, de l'optique non linéaire et des lasers organiques ne permettent pas une interaction directe et il est nécessaire de conjuguer les connaissances interdisciplinaires. Cet aspect, propre à tout nouveau sujet de recherche constitue la base de ce mémoire. L'effet laser à contre réaction répartie dans une couche mince polymère dopé avec un colorant laser permet de se familiariser avec les différents processus physiques qui interviennent dans la génération de l'émission. Deux aspects importants caractérisent l'émission cohérente d'un laser intégré. La démonstration du processus est le premier paramètre important. Il dépend essentiellement de

l'effet de seuil propre à l'émission stimulée. La seconde propriété est l'importance de la structure confinée du laser et son influence sur l'émission (propriétés de guide d'onde). D'autre part, les phénomènes propres aux matériaux organiques en condition de pompage optique pulsé sont également à l'origine d'études supplémentaires. Par exemple, un pompage par impulsions courtes induit une possibilité de compression temporelle. Cette notion n'est pas développée dans le domaine des matériaux semi-conducteurs inorganiques. En revanche, les projets industriels actuels concernant les télécommunication à haut débit incitent à rechercher ce type de comportement. La compression temporelle en fait partie, comme la modulation unique par le gain. Ces deux aspects sont au cœur de ce mémoire.

Le premier chapitre propose une vision globale de l'effet laser à contre réaction répartie. Dans un premier temps, le laser classique est décrit sur les notions théoriques d'une cavité Fabry-Pérot et d'un système quantique à deux niveaux d'énergie. Dans un deuxième temps, une notion essentielle à cette thèse est définie à partir de la susceptibilité diélectrique résonante du milieu actif. Les lasers à gain distribué à base de semi-conducteurs inorganiques sont considérés dans cette partie pour rendre compte des différentes évolutions historiques. Cet exposé permet d'aborder dans une dernière section les matériaux souples. Les colorants laser sont tout d'abord présentés avec leurs propriétés photophysiques et leurs deux systèmes d'énergie : singulet et triplet. Ensuite, les différentes comparaisons et analogies entre colorants et polymères permettent de prendre connaissance de l'importance relative de l'étude d'un laser composé de rhodamine 6G. La dernière partie est finalement consacrée à la technique de dépôt en couche mince par voie liquide. La technique de *spin-coating* est appropriée à la fabrication de nos futurs lasers.

Dans le deuxième chapitre, les études expérimentales nécessaires à l'observation de l'effet laser sont analysées dans le cadre théorique du couplage de modes. Les notions de déphasage des ondes par le gain et l'indice sont expliqués par la diffraction et la réflexion. La théorie des modes couplés développe par ailleurs l'idée sur un concept mathématique. Elle offre, sous certaines approximations une comparaison intéressante sur la répartition des modes longitudinaux entre un laser DFB et un laser Fabry-Pérot. Dans un second temps, les effets de seuil en énergie et le rétrécissement spectral offrent une démonstration expérimentale de l'effet laser. Elle est confirmée par l'accordabilité spectrale obtenue par interférométrie de Lloyd. Enfin, l'étude en intensité révèle un comportement spectral inattendu. Il est justifié essentiellement en terme de couplage complexe du champ laser.

Les équations des modes couplés ne permettent pas de prendre en compte la composition transverse des modes lasers. Cette particularité fait l'objet du troisième chapitre. L'introduction de la géométrie du guide d'onde plan permet de connaître la forme théorique de chaque mode et leur indice effectif. L'équation d'onde de Maxwell dans un guide d'onde plan est développée pour constater l'indépendance des modes transverses dans l'interaction entre les ondes qui forment le champ optique émis. Un film polymère dont la configuration

particulière se prête au guidage et à l'amplification de la lumière est ensuite analysé par le spectre laser multi-mode. Ce spectre est comparé aux simulations de la théorie linéaire des guides d'onde plans asymétriques. Enfin, l'étude en intensité aborde l'interdépendance qui peut exister entre le recouvrement en énergie des modes du guide et leur répartition dans la courbe de gain du colorant.

Le dernier chapitre est consacré à l'étude temporelle de l'émission laser. Elle permet au préalable de revenir sur l'aspect dynamique des équations couplées pour en expliciter chaque terme. Cette description permet d'introduire l'influence du couplage par le réseau de Bragg sur l'inversion de population des molécules actives et la notion d'auto-déclenchement par inversion des pertes dans la cavité. Par la suite, un bref rappel sur les méthodes d'analyse temporelle de l'optique non linéaire aborde l'ellipsométrie Kerr qui a permis de caractériser la réorientation moléculaire dans l'émission stimulée du colorant DCM en solution. Cette technique n'étant pas appropriée à l'analyse des couches minces polymères, une expérience de mélange à quatre ondes s'est avérée nécessaire pour étudier la relaxation de la modulation induite dans le matériau en régime d'émission laser. Les résultats sont finalement évalués à l'aide d'une comparaison avec les études temporelles antérieures sur les lasers DFB en phase liquide.

Toutes ces investigations nous permettent de préciser les différentes études nécessaires à la confirmation et aux développements de ce sujet en plein essor. Nous ouvrons aussi une perspective sur les différents aspects de la recherche envisagée à la suite de cette thèse.

**LE LASER A GAIN**  
**DISTRIBUE : PRINCIPES ET**  
**ETAT DE L'ART**

<b>1. LE LASER A GAIN DISTRIBUE : PRINCIPES ET ETAT DE L'ART.....</b>	<b>13</b>
INTRODUCTION .....	15
1.1. RAPPELS SUR LES LASERS.....	16
1.1.1. Notions de base du laser Fabry Pérot.....	16
1.1.1.1. La courbe de gain .....	17
1.1.1.2. Les modes de cavité .....	18
1.1.1.3. Le régime pulsé .....	20
1.1.2. Modulation de la susceptibilité complexe d'un milieu à gain .....	22
1.1.2.1. Définition de la susceptibilité diélectrique .....	22
1.1.2.2. réseau d'indice ou de gain - Les processus physiques .....	24
1.1.2.3. Le laser DFB- Le déphasage des ondes.....	26
1.2. LE LASER DFB : ETAT DE L'ART.....	28
1.2.1. Les principaux travaux théoriques.....	28
1.2.1.1. La théorie des modes couplés : généralités.....	28
1.2.1.2. Vers la méthode des matrices de transfert .....	30
1.2.1.3. La dynamique temporelle des lasers DFB .....	32
1.2.2. Les structures DFB semi-conducteurs .....	33
1.2.2.1. Le développement des structures laser .....	33
1.2.2.2. Limitations et exigences des structures cristallines .....	35
1.3. EVOLUTIONS VERS LES MATERIAUX SOUPLES .....	37
1.3.1. Etat de l'art des sources moléculaires .....	37
1.3.1.1. Les réseaux polymères photo-inscrits.....	38
1.3.1.2. Le laser DFB à colorant.....	39
1.3.1.3. Le laser DFB polymère en milieu confiné.....	40
1.3.2. Les composantes structurelles du laser.....	41
1.3.2.1. Un colorant laser : la rhodamine 6G.....	41
1.3.2.2. polymères semi-conducteurs et colorants .....	43
1.3.2.3. Réalisation des couches minces.....	44
CONCLUSION .....	46

## Introduction

Le laser à gain distribué, que l'on appelle plus communément laser DFB pour *Distributed Feedback* en anglais, fit sa première remarquable apparition dans la recherche scientifique au début des années 1970 avec les travaux entrepris par H. Kogelnik [1] dans les laboratoires de Bell Labs Technologies sur les réseaux holographiques. Les propriétés spectrales et le rendement important de ces lasers ont engendré une quantité considérable de recherches et de développements aussi bien en physique fondamentale que dans l'industrie. L'étude théorique, menée au cours de ces développements, porte essentiellement sur la structure spectrale de l'émission laser. Une des premières difficultés rencontrées est l'impossibilité d'obtenir une seule raie unique. Les justifications physiques, publiées par les précurseurs [2], montrent que le couplage d'onde par l'indice impose une émission sur deux modes distincts.

Les techniques pour pallier cet inconvénient se sont multipliées depuis. De nombreuses configurations, comme les lasers à réseau déphasé de  $\pi/4$ , les lasers *chirpés* ou les lasers DFB à couplage complexe [3] ont amené l'apparition depuis quelques années des lasers couplés par le gain, qui permettent d'obtenir une émission monochromatique.

Parallèlement à ces développements, les polymères semi-conducteurs ont connus une forte évolution et l'intégration de systèmes organiques dans les télécommunications ou dans l'optoélectronique plus généralement s'accroît à un rythme important. Il peut alors paraître intéressant d'étudier l'extrême richesse des matériaux souples, non seulement pour l'adaptabilité qu'ils offrent, mais également pour les nouvelles applications envisagées.

Dans un premier temps, les principes fondamentaux de cette émission laser particulière sont soulignés. Après un descriptif du laser Fabry-Pérot, les notions de déphasage des ondes par l'indice et le gain sont soulignées. Dans une deuxième partie, nous présentons les structures lasers les plus couramment mentionnées dans la littérature ainsi que leurs diverses applications. En effet, il existe de nombreuses configurations possibles pour la réalisation d'un tel composant. En particulier, la méthode des matrices de transfert qui permet la modélisation de tous ces types de structures est introduite en vue de développements futurs. Enfin, la dernière partie de ce chapitre traite des recherches actuelles concernant l'utilisation des structures souples dans l'élaboration de diodes lasers. La technique de la tournette est expliquée pour rendre compte de la simplicité de fabrication des composants polymères.

## 1.1. Rappels sur les lasers

Le laser<sup>†</sup> est constitué d'un matériau, appelé milieu actif, introduit dans une cavité résonante composée de plusieurs éléments. Ils permettent une rétroaction de l'émission stimulée sur sa source. Ce dispositif induit, par un effet collectif, des propriétés d'émission particulières comme la cohérence spatiale et temporelle.

Le laser DFB est une transposition de ce principe à une différence majeure : une modulation des propriétés du milieu actif (en particulier la susceptibilité diélectrique) se substitue à la cavité résonante. C'est ce que nous allons expliquer maintenant. Tout d'abord, un rappel des principaux aspects du laser de type Fabry Pérot introduit la notion de sélectivité spectrale. Ensuite, la susceptibilité diélectrique est mise en exergue comme le principal coefficient qui influe sur la réalisation et l'analyse de nos structures. Enfin, le laser DFB est introduit par une approche sur le déphasage des ondes considérées.

### 1.1.1. Notions de base du laser Fabry Pérot

Le laser Fabry Pérot est le dispositif d'émission cohérente le plus classique. Il se compose de deux miroirs dont au moins un est partiellement réfléchissant, et d'un milieu actif solide, liquide ou gazeux (figure 1.1a).

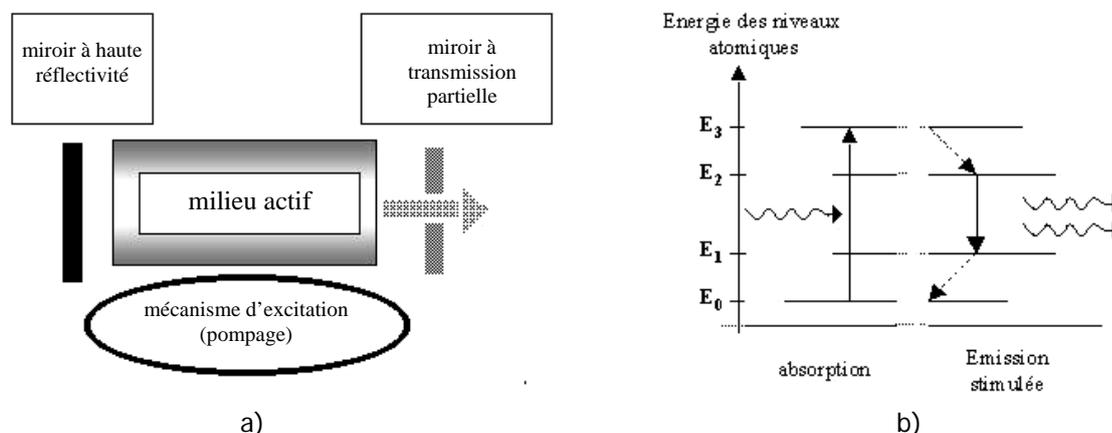


Figure 1.1a) schéma formel d'un laser de type Pérot Fabry avec un miroir semi-réfléchissant et un miroir totalement réfléchissant.

b) diagramme d'énergie d'un laser à quatre niveaux avec les mécanismes de transitions induites.

Ce milieu peut, lorsqu'il est excité par un source d'énergie externe, générer une onde lumineuse par émission stimulée. Celle-ci est alors distribuée sur tout le long de la cavité où elle s'amplifie au cours de son trajet. Le milieu à gain doit présenter une structure à trois ou quatre niveaux (figure 1.1b) pour favoriser l'émission stimulée au détriment de l'absorption, en négligeant pour l'instant

<sup>†</sup> le mot « LASER » est un acronyme de « *Light Amplification Stimulated Emission Radiation* ».

l'émission spontanée. En effet, la probabilité de transition  $E_1 \rightarrow E_2$  d'un milieu d'énergie inférieur  $E_1$  vers un milieu d'énergie supérieure  $E_2$  est égale, aux facteurs de dégénérescence près, à la probabilité de transition induite  $E_2 \rightarrow E_1$ . D'autre part, le champ optique présent doit avoir une pulsation  $\omega$  correspondant à la différence d'énergie  $\hbar\omega$  entre ces deux niveaux. Cette résonance possède une largeur de raie qui dépend des paramètres internes du matériau.

#### 1.1.1.1. La courbe de gain

La forme de la raie de résonance est prépondérante pour l'émission laser. Son profil est généralement lié à de deux types d'élargissement : l'élargissement homogène  $\Delta\omega_h$  et l'élargissement inhomogène  $\Delta\omega_{inh}$ .

L'élargissement homogène dépend de plusieurs paramètres :

- Le taux de relaxation radiative  $\gamma_{rad}$  du niveau haut de la transition considérée<sup>†</sup> ; il correspond à la probabilité de transition spontanée de cet état par émission lumineuse ;
- Le taux de relaxation non radiative  $\gamma_{nr}$  moyen des deux niveaux ; dans un milieu solide, il traduit les transitions qui génèrent des vibrations mécaniques essentiellement sous la forme de phonons ;
- Le taux de déphasage du dipôle électrique  $\gamma_\phi$  ; il prend en compte la présence d'interactions dipolaires intermoléculaires ou de vibrations thermiques qui impliquent une décroissance exponentielle de la polarisation.

Il peut être utile de définir le taux de relaxation totale  $\gamma$  des populations des niveaux  $E_1$  et  $E_2$ , somme des paramètres qui définissent la durée de vie moyenne des niveaux de la transition ( $\gamma = \gamma_{rad} + \gamma_{nr}$ ).

L'élargissement inhomogène, quant à lui, met en exergue la présence d'un environnement électromagnétique différent pour les molécules actives du milieu. Cette différence pour chaque molécule peut être due à une répartition spatiale non uniforme à l'intérieur de l'hôte (matrice pour les solides, solvant pour les liquides), ou bien à la présence de défauts, par exemple. La largeur totale de la raie s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \Delta\omega &= \Delta\omega_h + \Delta\omega_{inh} = \gamma + \gamma_\phi + \Delta\omega_{inh} \\ &= \gamma_{rad} + \gamma_{nr} + \gamma_\phi + \Delta\omega_{inh} \end{aligned} \quad \text{Equation 1.1}$$

Les phénomènes physiques définissant la largeur de la forme de raie sont les principales causes d'incohérence temporelle de l'émission. Le degré de cohérence temporelle d'une onde lumineuse détermine la qualité de la relation de phase moyenne des points internes de l'onde à chaque instant. En effet, si l'émission était parfaitement cohérente au niveau temporel, celle-ci se traduirait par une raie spectrale équivalente à une fonction de Dirac.

<sup>†</sup> en admettant que la transition basse ne peut se désexciter en émettant une onde électromagnétique.

Pour prendre un exemple simple, l'émission spontanée est partiellement cohérente ; il existe une relation de phase entre les différentes particules émettrices par l'égalité de leurs variables internes (sections efficaces d'absorption ou d'émission). Il s'en suit une cohérence temporelle qui est limitée par la nature quantique de l'émission spontanée (probabilité de transition) et par les processus de collisions ou les différences spectrales individuelles (élargissement inhomogène) par exemple.

Pour finir cette introduction sur la courbe de gain, il est nécessaire de préciser que la forme dépend essentiellement de la nature quantique — par leur diagramme d'énergie — des sources et des interactions qu'elles peuvent subir suivant leur environnement. Ainsi, si la composante inhomogène est très grande devant la partie homogène, la forme de raie devient alors gaussienne<sup>†</sup>. Dans le cas intermédiaire, la partie imaginaire de la susceptibilité adopte un profil qui est souvent associé à un profil intermédiaire, dit *profil de Voight*. Par contre, si  $\Delta\omega_h \gg \Delta\omega_{inh}$ , la courbe de gain est lorentzienne.

#### 1.1.1.2. Les modes de cavité

Le spectre d'un laser est déterminé par deux composantes : la courbe de gain délimite la partie du spectre concernée et la cavité sélectionne les fréquences de résonance dans cette courbe (figure 1.2).

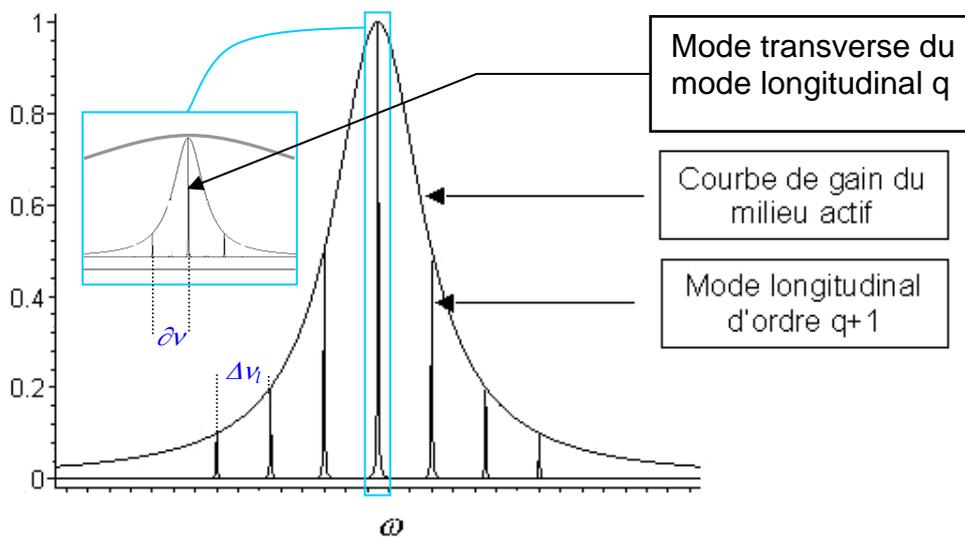


Figure 1.2 schéma de la répartition des modes longitudinaux dans une cavité de longueur optique  $n_{eff}d$  égale à  $1,5\text{ cm}$  pour un milieu actif résonant à  $580\text{ nm}$  sur une largeur purement homogène de  $10\text{ GHz}$  ( $0,1\text{ \AA}$ ).

<sup>†</sup> Ce point peut intuitivement se comprendre puisque les résonances de chaque molécule active sont conditionnées par leur environnement électromagnétique qui s'établit de façon aléatoire. Il en résulte une distribution gaussienne de la position du maximum de la forme de raie pour chaque molécule distribuée aléatoirement autour d'une valeur moyenne.

**Les fréquences de l'oscillation laser dans l'état stationnaire dépendent de la structure géométrique de la cavité.** La cavité résonante du laser Fabry Pérot impose la ou les fréquences plus strictement que la courbe de gain. Elles sont appelées modes longitudinaux et sont imposées par une condition de phase, nécessaire à l'existence du champ optique. En effet, l'onde électromagnétique peut exister si et seulement si elle interfère avec elle-même de façon constructive après un aller-retour. Mathématiquement, cela se traduit par :

$$2\beta_z d n_{eff} = 2q\pi \quad \text{Equation 1.2}$$

où  $\beta_z$  est la composante longitudinale du vecteur d'onde  $\vec{k}$  de l'onde définie par son champ électrique  $\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 e^{j(\omega t - \vec{k}\vec{r})}$ ,  $d$  est la longueur de la cavité, et  $n_{eff}$  est l'indice effectif réel moyen défini sur la cavité. Le nombre entier naturel  $q$  met en évidence la discrétisation des fréquences de résonance de la cavité. Il indique l'ordre du mode longitudinal et est nul pour la raie centrée sur la courbe de gain.

Ces modes sont espacés dans le spectre des fréquences de  $\Delta\nu_l = c / 2n_{eff}d$ , où  $c$  est la célérité de la lumière dans le vide, et de largeur  $\partial\nu = \frac{1-R_p}{\pi\sqrt{R_p}} \Delta\nu_l$ , avec  $R_p$  le

produit des réflectivités en amplitude des miroirs. La quantité  $\Delta\nu_l$  est généralement appelée intervalle spectral libre. Quant à  $\partial\nu$ , elle est valable dans le cadre de l'approximation de l'onde plane<sup>†</sup>.

Par ailleurs, si la diffraction de Fresnel du champ électromagnétique dans la cavité n'est plus négligée, la structure spatiale de l'onde induit une seconde sélection spectrale sous la forme de modes transverses. Mathématiquement, ces fréquences sont définies par l'évolution spatio-temporelle de l'amplitude complexe  $\vec{E}_0$  qui est solution de l'équation d'onde paraxiale. Dans un résonateur Fabry Pérot en régime stationnaire, ces modes sont de forme gaussienne et déterminés par des polynômes d'Hermite de degrés successifs. Leur fréquence dépend d'une condition de phase du même type que la condition de phase longitudinale. Celle-ci relie la fréquence de l'onde et les rayons de courbure des miroirs de la cavité :

$$\nu_{mnq} = \frac{c}{2n_{eff}d} \left( q + (m+n+1) \frac{\cos^{-1}(\pm\sqrt{g_1g_2})}{\pi} \right) \quad \text{Equation 1.3}$$

où  $g_i = (1-d/R_i)$ ,  $R_i$  étant le rayon de courbure du miroir  $i$  ( $i=1,2$ ). Les entiers naturels  $m$  et  $n$  définissent les ordres des modes transverses discrets de la cavité. Ainsi, pour un même mode longitudinal, plusieurs modes transverses existent et sont espacés de  $\Delta\nu_T = (c/2\pi n_{eff}d) \cos^{-1}(\pm\sqrt{g_1g_2})$  (figure 1.2, insert).

<sup>†</sup> On considère dans l'approximation de l'onde plane une phase constante sur un plan perpendiculaire à la direction de l'énergie et de la phase. L'amplitude du champ est alors constante sur tout ce plan.

L'influence de la géométrie de la cavité Fabry Pérot ne doit pas être négligée lorsque l'on souhaite obtenir une stabilité en fréquence importante, par exemple sans saut de mode lors de l'émission. On peut obtenir un laser monomode transverse (mono- ou multi- mode longitudinal) par le biais d'un filtrage spatial, par exemple.

L'étude des modes transverses fait l'objet de nombreux travaux, car ils définissent la cohérence spatiale d'un laser. Cette notion caractérise le degré de la relation de phase entre les différents points du plan d'onde par unité de temps. La cohérence spatiale permet à la lumière d'être concentrée dans l'espace ordinaire (par une lentille), ou dans l'espace des vecteurs d'onde (par collimation). Ainsi, le faisceau est à la limite de diffraction.

Les propriétés spectrales évoquées sont valides dans le cadre d'une étude de l'état stationnaire de l'émission laser. Elles peuvent être étendues au régime laser à impulsions sous certaines conditions que nous allons étudier dans le paragraphe suivant.

### 1.1.1.3. Le régime pulsé

Selon les matériaux et le type de cavité mis en œuvre, l'émission d'un laser n'est pas obligatoirement stable et continue. A titre d'exemple, les premiers lasers apparus fonctionnent par impulsions. Le régime pulsé se traduit par la génération de plusieurs pics d'émission espacés aléatoirement dans le temps, et de puissance inégale.

L'évolution temporelle du système est ainsi dépendante des constantes de temps associées, lesquelles sont reliées aux largeurs spectrales de façon intrinsèque. En effet, le principe d'incertitude appliqué dans le domaine optique relie le spectre à la dynamique du laser par  $\Delta\nu\Delta t \geq (2\pi)^{-1}$ . Dans le cas idéal, l'égalité permet d'obtenir la meilleure cohérence possible. Dans le domaine des impulsions femtosecondes, ce produit est minimisé pour éviter un spectre large lors de l'utilisation de ces lasers comme des sondes de phénomènes très brefs.

Les processus dynamiques peuvent être explicités par les mêmes paramètres :  $\gamma, \gamma_\phi, \Delta\omega_{inh}, \Delta\nu_l$  et  $\Delta\nu_T$ . De plus, une dernière constante très importante est l'intervalle de temps qui sépare l'émission d'un photon par le matériau et sa sortie de la cavité. C'est le temps de vie des photons dans la cavité  $\tau_c$ , ou bien du point de vue spectral, le taux de décroissance  $\kappa$  du champ dans la cavité.

Le traitement théorique de la dynamique temporelle repose sur le principe d'élimination adiabatique des variables rapides : **les variables dites lentes asservissent les variables dites rapides**. Ce raisonnement est uniquement valable pour les lasers monomodes en anneau (il n'existe plus d'interférences sur la longueur du trajet optique contrairement au laser Fabry Pérot), et à élargissement homogène. Autrement, les modes propres dynamiques du système doivent être déterminés [4]. Ainsi, on peut classer par ordre de grandeur les différentes variables pour ce système, ce qui nous donne :

$$\Delta\omega_{inh} \ll \gamma, \kappa, \gamma_\phi \ll \Delta\nu_T, \Delta\nu_l \quad \text{Equation 1.4}$$

Ces conditions de raisonnement théorique montrent que le système peut être défini à partir des trois paramètres suivants :

- le taux de relaxation moyen des niveaux  $\gamma$ ,
- le taux de décroissance du champ  $\kappa$ ,
- le taux de déphasage  $\gamma_\phi$ .

Chaque paramètre concerné est lié aux variables du système laser : la différence de population des niveaux  $\Delta N$ , le champ électrique  $\vec{E}$ , et la polarisation  $\vec{P}$ . Ainsi, les équations dynamiques qui régissent les lasers forment un système de trois équations couplées.

Si l'une des variables varie beaucoup plus lentement que les deux autres (et c'est la plupart du temps le taux de décroissance du champ qui est le plus petit), le système comporte uniquement une équation sur le champ électrique de l'onde. Ce type de laser est appelé laser de classe A. Dans le cas où seule la polarisation varie sur des temps beaucoup plus courts que les deux autres paramètres, le laser est de classe B. Le système revient à deux équations couplées sur la différence de population et sur le champ électrique. Enfin, si les trois paramètres sont du même ordre de grandeur, les trois équations couplées sont nécessaires pour rendre compte de la dynamique du laser, de classe C<sup>†</sup>.

La physique moderne, notamment par le biais de l'optique non linéaire, cherche à sonder des phénomènes ultra-rapides ou qui nécessitent une puissance importante. Un contrôle du déclenchement de l'émission est alors obligatoire, tout du moins pour le nombre d'impulsions émises. Le laser dit déclenché (*Q-switch* en anglais) permet d'obtenir un train d'impulsions bref.

Ce phénomène est obtenu en faisant varier au cours du temps le facteur de qualité. Un dispositif introduit dans la cavité, qu'il soit actif (à alimentation externe) ou passif, impose une perte d'énergie sur une certaine durée. Pendant ce temps, l'inversion de population nécessaire augmente de façon à égaler les pertes de la cavité. A l'instant où les pertes introduites disparaissent (pendant un temps court), l'émission laser apparaît et profite du fort gain imposé. Il est néanmoins utile de préciser que **la durée entre le début du processus et l'émission de lumière maximale est régi par l'émission spontanée.**

Les agents généralement utilisés pour créer cette inversion de pertes sont des modulateurs acousto- ou électro- optiques (pour les éléments actifs) ou bien des colorants absorbants saturables (pour les éléments passifs).

---

<sup>†</sup> Ce classement n'a aucun lien direct avec le classement I, II et III. Ce dernier repose sur la sécurité. Si un laser est de classe III-C, il fournit des impulsions puissantes et est par conséquent dangereux. En revanche, un laser de classe I-A correspond aux normes d'utilisations pour le particulier.

## 1.1.2. Modulation de la susceptibilité complexe d'un milieu à gain

### 1.1.2.1. Définition de la susceptibilité diélectrique

Les lois de Snell-Descartes de l'optique géométrique utilisent la notion d'indice de réfraction pour expliquer les divers processus que subit la lumière à l'interface de deux milieux matériels isotropes et transparents. L'origine de cet indice provient des différentes contributions des polarisations induites par la lumière le traversant. En effet, une onde électromagnétique se propageant dans le milieu impose une variation de la répartition spatiale des charges électriques, principalement sur les nuages électroniques du milieu actif.

La polarisation diélectrique totale  $\vec{P}$  est la réponse du matériau à la présence de l'onde<sup>†</sup>. Elle est égale à la somme de tous les moments dipolaires  $\vec{\mu}$  de chaque atome. Pour expliciter mathématiquement cette propriété, les équations de Maxwell définissent le vecteur déplacement électrique sous la forme suivante :

$$\vec{D}(\vec{r}, t) = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}_c + \vec{P}_{res} \quad \text{Equation 1.5}$$

où  $\vec{E}$  est le champ électrique, et  $\varepsilon_0$  la permittivité diélectrique du vide.  $\vec{P}_c$  est la polarisation due à toutes les résonances loin de la fréquence du champ optique, et  $\vec{P}_{res}$  traduit l'interaction quasi résonante entre le champ optique et le milieu actif.

Afin de caractériser chaque matériau, le rapport entre la polarisation  $\vec{P}(t)$  et le champ électrique de l'onde  $\vec{E}$ , soit  $[\chi] = \vec{P} / \varepsilon_0 \vec{E}$ , permet de caractériser les différents milieux d'un point de vue macroscopique. Cette quantité, généralement tensorielle, est appelée susceptibilité diélectrique et sera considérée scalaire dans cet exposé. En négligeant le phénomène d'absorption résiduelle due aux contributions non résonantes, on peut considérer que la susceptibilité correspondante  $\chi_c$  est uniquement réelle. Ceci implique que le vecteur déplacement s'écrit alors :

$$\vec{D}(\vec{r}, t) = \varepsilon_0 (1 + \chi_c) \vec{E} + \vec{P}_{res} = \varepsilon_0 \varepsilon_c \vec{E} + \vec{P}_{res} = \varepsilon_0 (\varepsilon_c + \chi_{res}) \vec{E} = \varepsilon \vec{E} \quad \text{Equation 1.6}$$

où  $\varepsilon_0 \varepsilon_c$  est la permittivité relative du milieu hors résonance et  $\chi_{res}$  est la susceptibilité diélectrique résonante.

<sup>†</sup> Le cadre de cette étude ne dépasse pas l'interaction dipolaire électrique d'une collection de molécules soumises à une onde électromagnétique. Nous ne nous intéresserons donc pas aux transitions magnétiques, ni multipolaires diélectriques d'ordre supérieur à 2.

L'indice de réfraction, qui apparaît dans le module du vecteur d'onde ( $|\vec{k}| = \frac{\omega n}{c}$ ), est défini par :

$$n^2 = \frac{\varepsilon}{\varepsilon_0} = \varepsilon_c + \chi_{res} = n_0^2 + \chi_r + j\chi_i \quad \text{Equation 1.7}$$

où  $\chi_r$  et  $\chi_i$  sont les parties réelle et imaginaire de la susceptibilité diélectrique et  $n_0$  est l'indice du milieu hors résonance (c'est un indice réel). **De ce fait, la susceptibilité diélectrique caractérise l'évolution du champ électrique de l'onde quasi-résonante, par le biais de l'indice de réfraction.**

Plaçons-nous dans le cas où un système atomique ouvert à deux niveaux est résonant avec une fréquence angulaire  $\omega_a$  sur une largeur homogène  $\Delta\omega_h$ , et une différence de population stationnaire  $\Delta N_0$  entre les niveaux  $E_1$  et  $E_2$ . Un tel milieu de volume actif  $V$  soumis à une onde sinusoïdale de fréquence angulaire  $\omega$  possède une susceptibilité diélectrique  $\chi_{res}(\omega)$  telle que :

$$\chi_{res}(\omega) = \frac{\Delta N_0 |\vec{\mu}|^2}{V \varepsilon_0 \hbar} \left( \frac{(\omega_a - \omega) - j\Delta\omega_h}{\Delta\omega_h^2 + (\omega_a - \omega)^2 + \Omega^2 \frac{\Delta\omega_h}{\gamma_{rad}}} \right) \quad \text{Equation 1.8}$$

où  $\Omega = \frac{-\vec{\mu}\vec{E}}{\hbar}$  est la pulsation de Rabi ; cette pulsation apparaît pour des régimes intenses et à haute variation d'amplitude de champ. Elle justifie les oscillations qui sont observées lorsque le temps de montée du pompage devient de l'ordre de grandeur du temps caractéristique de déphasage de la polarisation. Cette expression montre la nature retardée de la réponse atomique à une excitation lumineuse. En effet, si on considère un champ optique monochromatique uniforme se propageant dans un milieu d'indice répondant à l'équation 1.7, il subit alors une modification spectrale tant au niveau de sa phase (une dispersion chromatique par la partie réelle de la susceptibilité) qu'au niveau de son amplitude (une absorption ou une amplification par la partie imaginaire). Plus généralement, les relations de Kramers-Krönig relient ces deux variations :

$$\begin{aligned} \text{Re}\{\chi(\omega)\} &= \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\text{Im}\{\chi(\omega')\}}{\omega' - \omega} \partial\omega' \\ \text{Im}\{\chi(\omega)\} &= \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\text{Re}\{\chi(\omega')\}}{\omega' - \omega} \partial\omega' \end{aligned} \quad \text{Equation 1.9}$$

Ces relations entrent dans le cadre de la théorie de la réponse linéaire d'un système à un changement de son état initial. Elles restent valables pour l'émission laser [5].

### 1.1.2.2. réseau d'indice ou de gain - Les processus physiques

Une modulation de l'indice de réfraction permet la réalisation de réseaux de diffraction. Ils sont utilisés dans de multiples applications, notamment pour la spectrométrie ou dans les guides. Ils sont généralement constitués d'une plaque dont la surface est périodiquement modulée. Néanmoins, la surface peut être uniforme avec une modification périodique des propriétés du matériau, à savoir les variables thermodynamiques du milieu (température, concentration, volume), ou la répartition vectorielle des dipôles électriques. Cette modulation spatiale peut être définitive ou temporaire, suivant l'excitation et le milieu.

Dans les cas des transitions sur des niveaux d'énergie réels<sup>†</sup>, les interférences entre deux sources laser mutuellement cohérentes provoquent une modification spatiale de la susceptibilité diélectrique du milieu. Cette variation spatiale induit deux types de réseaux : Les réseaux d'amplitude et les réseaux de phase. En effet, comme le montre le système d'équation 1.9, les parties réelle et imaginaire sont reliées. Ainsi une variation spatiale de la susceptibilité implique l'existence d'un réseau de phase (la modulation de l'indice réel de réfraction implique une variation de phase locale de l'onde) et d'un réseau d'amplitude (la modulation de la partie imaginaire de l'indice entraîne une variation d'amplitude locale de l'onde). Pour reprendre l'exemple de l'ensemble atomique à deux niveaux soumis à un champ d'amplitude constante, le rapport  $\eta$  des efficacités de diffraction de ces deux réseaux est lié aux paramètres du matériau et s'exprime sous la forme la plus simple (dans le cas des faibles modulations):

$$\eta \approx \left( \frac{\text{Im}\{\Delta\chi_{res}\}}{\text{Re}\{\Delta\chi_{res}\}} \right)^2 = \left( \frac{\Delta\omega_h}{\omega_0 - \omega} \right)^2 \quad \text{Equation 1.10}$$

où  $\Delta\chi_{res}$  est l'amplitude de la modulation. Ainsi, **pour un grand (respectivement faible) décalage par rapport à la fréquence de résonance, le réseau de phase (respectivement d'amplitude) est favorisé.** Cette relation est établie pour un matériau isotrope. S'il est anisotrope, la susceptibilité devient un tenseur de rang 4 et il faut prendre en considération les polarisations des champs excitateurs. Il paraît évident que les interférences de deux faisceaux copolarisés seront très contrastées, au regard de la situation où les deux faisceaux sont polarisés orthogonalement (les interférences en intensité disparaissent mais un réseau de polarisation subsiste [6]).

<sup>†</sup> Les transitions réelles traduisent des processus ayant lieu aux fréquences de résonance. Elle s'opposent aux transitions virtuelles simultanées qui ont trait à des longueurs d'onde hors résonance.

Les réseaux induits par laser permettent une étude de l'interaction lumière-matière très appréciée depuis plus d'une trentaine d'années. En effet, cette périodicité transitoire apporte de nombreux renseignements quant à la nature des relaxations d'un milieu vers son état d'équilibre thermodynamique. Les phénomènes physiques généraux relatifs à ces transitions sont représentés sur la figure 1.1.3. Nous nous intéressons dans le dernier chapitre aux chemins empruntés par les dipôles pour les échelles de temps de la picoseconde à la nanoseconde, c'est à dire aux transitions primaires des états excités des molécules actives. A la suite d'une absorption d'énergie lumineuse, le matériau se trouve dans un état excité cohérent : une partie des atomes vibrent à la fréquence de l'onde avec une relation de phase connue. Les processus de déphasages cités au paragraphe 1.1.1.3 imposent une transition de cet état cohérent vers un état électronique incohérent. Le temps de relaxation vers ce nouvel état varie entre  $10^{-15}$  et  $10^{-7}$  s suivant le milieu. Les raisons de cette décohérence dépendent de la phase du matériau (liquide, solide ou gazeux). Pour les liquides, la relaxation moyenne vers l'état excité électronique est de l'ordre de la femtoseconde.

Les molécules actives possèdent des états d'énergie de vibration et de rotation qui forment des continums. L'état excité global du matériau est donc composé d'un grand nombre de niveau d'énergie. Elles ont tendance à se réorienter après l'excitation. Un temps de réorientation moléculaire, d'environ 200 ps en phase liquide, permet de quantifier cette transition. Le milieu, sous illumination, possède ainsi des propriétés d'anisotropie transitoire importantes.

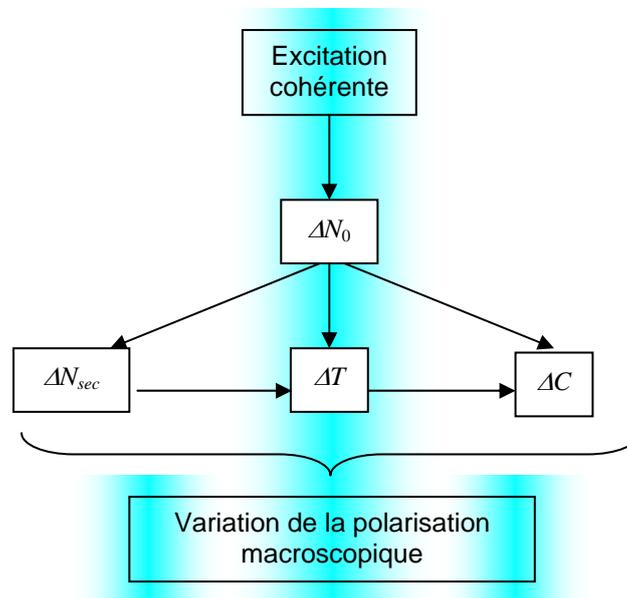


Figure 1.3 Mécanismes de relaxation de la matière après une excitation cohérente.

$\Delta N_0$  représente la variation sur la différence de population par les mécanismes d'absorption et d'émission induites.  $\Delta N_{sec}$  correspond à la différence de population secondaire des nouveaux états peuplés après relaxation métastable.  $\Delta T$  traduit la variation de température par échange d'énergie entre les molécules actives et la matrice hôte. Enfin,  $\Delta C$  correspond aux variations de concentration qui peuvent se présenter localement (essentiellement dans les liquides).

Cette réponse induit le phénomène de *hole burning* spatial dans les lasers ultra-rapides (les ondes contrapropagatives du laser créent un réseau longitudinal où le gain et l'indice ne sont plus uniformes) [7]. Pour les solides, en particulier les semi-conducteurs cristallins, les processus se classent selon deux catégories : les transitions à une particule et les transitions collectives. Les premières sont des transitions inter- ou intra-bandes entre la bande de valence des trous lourds, la bande de valence des trous légers et la bande de conduction (et son continuum d'états).

Ces transitions sont directes ou indirectes (les transitions intermédiaires ont lieu par la présence de phonons) [8]. Par contre, les processus à plusieurs particules ont pour cause la renormalisation de la bande interdite, ou l'absorption excitonique<sup>†</sup>.

### 1.1.2.3. Le laser DFB- Le déphasage des ondes

Considérons maintenant la situation où la lumière incidente se propage le long du réseau. L'onde est soumise à une variation périodique de l'indice de réfraction réel au cours de sa propagation : c'est une modulation de l'indice, ou en d'autres termes de la partie réelle de la susceptibilité. Sa fréquence doit répondre à la condition de Bragg :

$$\begin{aligned} |\vec{k}|(\sin \theta_i - \sin \theta_j) &= \frac{4\pi n_{eff}}{\lambda_{emis}} = \frac{2\pi l}{\Lambda_B} \\ \Rightarrow \lambda_{emis} &= \frac{2n_{eff} \Lambda_B}{l} \end{aligned} \quad \text{Equation 1.11}$$

où  $\Lambda_B$  est le pas du réseau,  $l$  un entier naturel qui représente l'ordre de diffraction du réseau inscrit et  $\lambda_{emis}$  est la longueur d'onde du champ optique dans le vide. Le vecteur d'onde de l'onde diffractée est de même direction et de sens contraire au vecteur d'onde incident, c'est à dire que le champ optique se propage et se réfléchit le long du réseau. Le pas du réseau d'ordre 1 est la plus petite période possible et correspond à  $\lambda_{emis}/2n_{eff}$ . La réflexion s'exprime ainsi en terme de phase par une variation de  $\pi$  entre l'onde incidente et les ondes réfléchies par chaque période du réseau. Pour les autres longueurs d'onde, ce déphasage n'est plus égal à  $\pi$  et la réflexion disparaît par interférences destructives entre chaque réflexion.

**Cette sensibilité spectrale dépend donc du nombre de périodes (la longueur du réseau) et de la variation d'indice sur une période.** La structure ainsi réalisée est un miroir de Bragg.

Si maintenant le milieu dans lequel est imposée cette variation se comporte comme un milieu à gain, la fréquence de l'émission générée peut résonner avec le réseau inscrit. Elle est amplifiée par émission stimulée et se réfléchit sur le réseau, dans les deux sens opposés. Ces réflexions s'amplifient par interaction entre elles, à chaque période du réseau. Ainsi, une émission laser est possible dans un réseau si le milieu possède une courbe de gain centrée sur les fréquences de résonance du réseau.

<sup>†</sup> Un exciton consiste en une paire électron-trou qui existe dans un état lié par attraction coulombienne.

La modulation de l'indice de réfraction réel est couramment employée dans les lasers DFB semi-conducteurs : de tels lasers sont dénommés laser DFB à couplage par l'indice. Néanmoins, moduler la partie imaginaire de la susceptibilité peut également aboutir à une émission laser distribuée. On parle alors de couplage par le gain. Il est en fait très difficile de séparer les deux couplages, puisque la susceptibilité possède une partie réelle et une partie imaginaire liées l'une à l'autre par les relations de Kramers Krönig (équation 1.9).

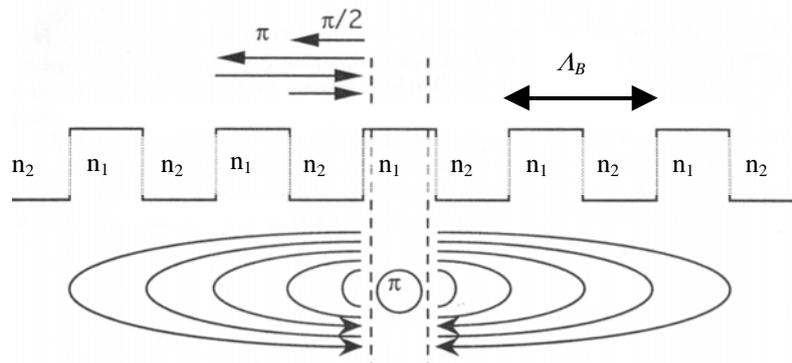


Figure 1.4 coupe transverse d'un réseau de Bragg à couplage par l'indice. Les ondes contrapropagatives présentent un déphasage de  $\pi$  entre elles. La résonance pour l'émission laser n'est donc pas exactement à la fréquence de Bragg [9].

De plus, l'émission laser n'obéit pas aux mêmes lois suivant le type de couplage. Lors d'un couplage par l'indice, l'émission est composée de deux modes ayant le même seuil en intensité autour de la fréquence de Bragg. Par contre, pour un couplage par le gain, une seule raie laser existe au seuil d'émission. En effet, pour comprendre ce phénomène qui sera appréhendé en détail dans le prochain chapitre, il suffit de constater que chaque période  $\Lambda_B$  contient la variation totale de la susceptibilité. La réflexion lors d'un couplage par l'indice entraîne une variation totale de  $\pi$  entre l'onde incidente et l'onde réfléchi au même point du réseau. Dans le sens opposé, le processus est identique. De fait, la phase totale aller-retour pour chaque onde sera un multiple impair de  $\pi$ . **La fréquence de Bragg n'est plus résonante pour l'émission laser lors d'un couplage par l'indice** (figure 1.4). Pour un couplage par le gain, les déphasages entre chaque période sont égales à  $\pi/2$ . Il en résulte cette fois un déphasage total aller-retour d'un multiple entier de  $2\pi$  entre les deux ondes à la fréquence de Bragg. **Celle-ci devient alors résonante pour une modulation du gain** [9]. Cette différence de comportement est la clé des lasers DFB à colorant pompés par interférences optiques : une émission monomode est possible car le couplage est dû essentiellement à la partie imaginaire de la susceptibilité. Les structures à couplage complexe (modulation par l'indice et par le gain) sont également étudiées et leurs intérêts sont discutés dans la partie qui suit.

## 1.2. Le laser DFB : état de l'art

Il existe actuellement un nombre considérable de compositions différentes et de configurations employées pour réaliser un laser à gain distribué monomode. Pour situer le cadre de notre étude, les faits principaux et les grands travaux qui jalonnent l'évolution de ces dispositifs apportent une information très instructive pour qui veut développer ces nouveaux lasers. Ainsi, un rappel historique sur leur apparition, en particulier du point de vue théorique, est exposé en premier lieu. Ensuite, l'état de l'art des différents composants est développé pour acquérir une vue d'ensemble et aborder sereinement l'évolution vers les matériaux souples.

### 1.2.1. Les principaux travaux théoriques

Les études théoriques fondamentales du laser DFB, et des structures à contre réaction répartie plus globalement, ne sont pas nombreuses et sont couramment utilisées pour caractériser l'émission attendue et optimiser les paramètres des réseaux. Pour comprendre l'impact et l'importance de ces sources laser, une description des techniques employées pour les transmissions par fibre optique au niveau industriel montre le développement qui s'est opéré depuis plus de trente ans. Afin de présenter l'état de l'art de ces sources, l'historique de ces études sera le fil conducteur de cette première partie. Les premiers travaux et les premières importantes améliorations sous leur forme générique permettent d'aborder ensuite la seconde méthode nécessaire à la simulation des lasers constitués de plusieurs sections. Finalement, les travaux concernant la dynamique temporelle lasers DFB seront exposés.

#### 1.2.1.1. La théorie des modes couplés : généralités

Les successions de travaux sur les lasers DFB prennent, pour la plupart, leur source dans la publication déjà citée de Kogelnik et Shank [2] qui développent pour la première fois la théorie des modes couplés (TMC) applicable au régime laser. Le couplage de modes, apparu une vingtaine d'années plutôt [10], analyse l'interaction entre les différentes résonances dans une structure longitudinale périodique. L'intérêt de l'article de Kogelnik réside dans l'appréhension de la modulation de gain et d'indice le long de la direction de propagation. Une amplification et une sélectivité spectrale du champ émis ont apporté un an plus tôt la preuve de l'émission laser dans un film de gélatine dont l'indice de réfraction spatialement modulé est permanent [11]. Dans la même période, Fork *et al.* [12] publiaient leurs résultats concernant une méthode interférométrique pour pomper optiquement un laser polymère dopé avec un colorant ; ce film possède une propriété de mémoire optique qui lui permet de conserver puis d'effacer le réseau de phase inscrit.

Dans la structure DFB, l'émission stimulée génère un champ optique dans le réseau de longueur  $L$ . Ce champ est décomposé en deux ondes

contrapropageantes, une onde aller d'amplitude  $F(z)$  et une onde retour d'amplitude  $R(z)$ . Le développement théorique s'appuie sur deux assises principales, à savoir l'équation de propagation d'onde de Maxwell sur le champ électrique scalaire  $E$ , et la modulation de l'indice réel moyen  $n_m$  et du gain moyen  $\alpha_m$  (indice imaginaire). Les variations sont cosinusoidales de période  $\Lambda_B$  (c'est un réseau d'ordre 1) et d'amplitude totale  $n_l$  et  $\alpha_l$ . La théorie des modes couplés repose sur deux équations linéaires du premier ordre avec second membre qui couplent les deux amplitudes scalaires  $F(z)$  et  $R(z)$ , en régime stationnaire :

$$\begin{aligned} \frac{\partial F(z)}{\partial z} &= (\alpha_m - j\delta)F(z) + j\kappa R(z) \\ \frac{\partial R(z)}{\partial z} &= -(\alpha_m - j\delta)R(z) - j\kappa F(z) \end{aligned} \quad \text{Equation 1.12}$$

où  $\delta$  représente le décalage spectral de la fréquence commune aux ondes  $F$  et  $R$  par rapport à la fréquence angulaire de Bragg ( $\omega_B = 2\pi/\Lambda_B$ ). Le paramètre important est la constante de couplage qui s'écrit :

$$\kappa = \kappa_r + j\kappa_i = \frac{\pi n_l}{\lambda} + \frac{1}{2} j\alpha_l \quad \text{Equation 1.13}$$

La dépendance mathématique de  $\kappa$  avec les amplitudes des modulations réelle et imaginaire s'interprète d'une façon simple : **cette constante complexe traduit l'efficacité du couplage entre les deux ondes opposées**. D'après l'équation 1.12, on constate qu'elles se nourrissent l'une de l'autre : la contre-réaction se justifie ici. Une équation transcendante provenant de la divergence des réflectivités de chaque onde permet de déterminer la fréquence et le seuil d'émission laser. Elle relie le couple de paramètres adimensionnés  $\kappa L$  et  $\alpha_m L$ , censés être connus, au décalage spectral  $\delta L$ .

Les résultats déduits de ces solutions sont le seuil d'émission et le décalage spectral par rapport à la fréquence de Bragg pour chaque mode longitudinal du laser suivant le type de couplage choisi (indice ( $\alpha_l=0$ ) ou gain ( $n_l=0$ )). La distribution en intensité du champ dans le réseau est également assujettie à la constante de couplage. Les auteurs définissent ainsi trois régimes suivant la forme de cette distribution : le laser est dit sous-couplé si l'intensité du ou des modes fondamentaux est importante aux extrémités du réseau ( $\kappa_i L \ll 1$  ou bien  $\kappa_r L \ll 1$ ); il est dénommé sur-couplé dans le cas inverse ( $\kappa_i L \gg 1$  ou bien  $\kappa_r L \gg 1$ ); il est simplement couplé quand la répartition en intensité est plus ou moins uniforme le long du réseau ( $\kappa_i L \approx 1$  ou bien  $\kappa_r L \approx 1$ ). Les modes longitudinaux d'ordre supérieur n'ont pas la même distribution.

Chaque structure possède ses propres constantes de couplage [13]. Leur calcul est possible avec une prise en compte de la variation de l'indice de réfraction, de l'ordre et de la forme du réseau, et de l'épaisseur du milieu actif. Ils démontrent que les réseaux sinusoidaux possèdent des coefficients de couplage qui diminuent

rapidement avec l'ordre du réseau. Ces constantes sont déterminées théoriquement à partir du calcul développé par A. Yariv et ses confrères : ils introduisent les modes transverses électriques et magnétiques du guide d'onde plan uniforme comme base des états propres de propagation des ondes dans ces structures périodiques. Ces travaux sont publiés en 1977 dans un article où la théorie des modes couplés est appliquée aux différents dispositifs existants [14]. Les auteurs considèrent alors uniquement le couplage par la modulation de l'indice de réfraction et le gain est uniforme le long de la structure.

#### 1.2.1.2. Vers la méthode des matrices de transfert

A partir de cette étude, la théorie et l'expérience sont améliorées et développées vers de nouvelles structures comme les lasers DBR (pour *Distributed Bragg Reflector* en anglais). S. Wang fait intervenir dans son étude théorique les matériaux semi-conducteurs (GaAs) pour la première fois et montre les différences entre les deux structures de Bragg [15]. D'autre part, une cavité externe, ou un miroir, influence également les modes longitudinaux du laser DFB à couplage par l'indice [16]. Ces modes et leur distribution en intensité peuvent perdre leur symétrie imposée par la théorie des modes couplés selon la position des miroirs, symétrique ou non par rapport au réseau, et leur réflectivité. Tous les résultats théoriques de cette simulation sont paramétrés par  $\kappa L$ .

Ainsi, il est apparu dans les années 80 de nombreuses configurations et combinaisons de ces structures de Bragg. Un calcul théorique s'impose alors rapidement car il est plus efficace et plus simple à utiliser, notamment dans le cas où le nombre de sections qui composent le laser augmente : la méthode des matrices de transfert (MMT). Une publication de la fin des années 80 applique cette méthode, bien connue dans le domaine des micro-ondes, au laser DFB à décalage de phase asymétrique [17]. Elle s'est développée au cours des années avec une critique sur la difficulté de son interprétation physique [18]. T. Makino [19] présente notamment ses résultats sur l'augmentation du seuil laser par la présence des pertes dans un laser DFB à couplage complexe [20] et apporte une comparaison intéressante avec la théorie des modes couplés.

Il faut garder à l'esprit que cette méthode est une évolution de la théorie des modes couplés qui permet de simuler simplement le comportement de l'émission laser dans une structure périodique. Elle est basée sur les matrices de Pauli définies en mécanique quantique. L'adaptation repose sur la formulation des équations aux modes couplés sous une forme matricielle :

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \sigma_3(\alpha_m - j\delta)E + \kappa\sigma_2E \quad \text{Equation 1.14}$$

avec  $E = \begin{bmatrix} F(z) \\ R(z) \end{bmatrix}$ ,  $\sigma_2 = \begin{bmatrix} 0 & -j \\ j & 0 \end{bmatrix}$  et  $\sigma_3 = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix}$ . Elle exprime alors les ondes aller et retour comme un vecteur propre  $E$  de fonctions dépendant de la coordonnée de

propagation (en régime stationnaire) en fonction de la matrice de transfert totale  $M$  (de rang  $2 \times 2$ ) et des amplitudes aux limites de l'ensemble des sections :

$$E(z) = ME(0) \quad \text{Equation 1.15}$$

Cette matrice  $M$  est la résultante de toutes les matrices décrivant chaque ondulation du réseau comme un changement sur la phase et l'amplitude de chaque onde. Elle est souvent exprimée en terme de coefficients de réflexion et de transmission des modes de propagation.

Il existe ainsi de nombreuses différences entre les deux raisonnements car la MMT introduit plusieurs paramètres qui ne sont pas considérés dans la TMC, comme le facteur de confinement optique. Celui-ci décrit le rapport entre l'intensité de la partie de l'onde qui se propage dans une couche et l'intensité totale du champ laser. Sa prise en compte implique une différence sur l'intensité seuil des modes laser dans un laser à couplage d'indice car ce facteur, attribué à chaque couche du guide, engendre une modulation du gain dans la structure [21].

De plus, les deux méthodes sont équivalentes pour de faibles valeurs des paramètres d'entrée que sont le coefficient de couplage, le gain moyen et l'échange d'énergie entre les ondes contrapropageantes. Par contre, les résultats obtenus par la TMC deviennent équivalents à ceux obtenus par la MMT si la valeur du coefficient de couplage est déterminée par cette dernière. Plus exactement, la structure DFB est assimilée à une section uniforme de constante de propagation  $\gamma$  déterminée par une équation transcendante (le déterminant de la matrice de transfert doit être non nul) et deux pseudo miroirs dont les coefficients de réflexion décrivent les variations de l'indice de réfraction.

Ainsi, la condition de seuil laser possède la même forme que celle exposée par la TMC, mais avec une constante de propagation et un coefficient de réflexion différents<sup>†</sup>.

**L'avantage général de la méthode des matrices de transfert réside dans l'application du raisonnement à n'importe quelle combinaison de section, uniforme ou modulée.** Ainsi, les décalages de phase introduits pour retrouver une émission monomode sont aisément justifiables analytiquement. Les lasers DBR profitent également de cette avancée, d'autant que le calcul matriciel par les outils informatiques modernes devient très accessible.

<sup>†</sup> Le coefficient de réflexion attribué aux équations aux modes couplé correspond à la force de couplage des ondes diffractées par le réseau, autrement dit, au rapport des parties copropageantes des amplitudes des ondes aller et retour.

### 1.2.1.3. La dynamique temporelle des lasers DFB

Une donnée importante est négligée jusqu'alors car l'intérêt des lasers DFB repose sur la sélectivité spectrale d'une source lumineuse qui peut s'intégrer dans les composants optiques. Les variations temporelles de cette émission en régime pulsé concernent à ce moment uniquement l'équipe de Z. Bor [22] qui travaille sur les lasers à gain distribué à colorant en phase liquide, pompés optiquement. La modulation a lieu uniquement sur la susceptibilité complexe des molécules actives. L'auteur met en exergue l'importance du comportement dynamique de la cavité en réseau qui se forme au cours du pompage. Il précise également que **le couplage se fait seulement par le gain pour le laser à colorant en solution.**

Dans ce schéma théorique où il développe les équations cinétiques d'un système à deux niveaux, le paramètre principal est le temps effectif de décroissance du champ. En effet, il dépend du carré de l'inversion de population, qui varie avec le temps lors d'un pompage pulsé. L'impulsion de pompe induit une augmentation brutale de l'inversion de population qui devient positive. Dépassant le seuil d'émission laser en régime stationnaire, l'inversion de population chute et le temps effectif de décroissance diminue d'autant plus vite. Il libère alors toute l'émission stimulée résonante sous la forme d'une impulsion. Le phénomène peut se répéter suivant les paramètres internes du milieu actif, et plusieurs impulsions laser sont alors émises successivement. C'est ainsi que la notion d'auto-déclenchement (*self Q-switch* en anglais) est apparu pour les laser DFB liquides. La compression temporelle s'est vérifiée expérimentalement à plusieurs reprises et des impulsions DFB ont atteint des valeurs inférieures à la picoseconde [23].

Une amélioration sur les dépendances temporelles des paramètres de pompage est apportée par IRL N. Duling III et M.G. Raymer [24] où ils comparent la théorie de Z. Bor à leur théorie semi-classique dépendant du temps pour les lasers DFB couplés uniquement par le gain. Elle consiste en une dérivation des équations de la matrice densité d'un système à deux niveaux pour déterminer l'inversion de population  $\Delta N(z,t)$ . Le système se compose des équations du champ électromagnétique sur les ondes aller et retour et une équation sur l'inversion de population:

$$\begin{aligned} \frac{\partial F(z,t)}{\partial z} + \frac{n}{c} \frac{\partial F(z,t)}{\partial t} &= (\alpha_m(z,t) - j\delta)F(z,t) + j\kappa(z,t)R(z,t) \\ \frac{\partial R(z,t)}{\partial z} - \frac{n}{c} \frac{\partial R(z,t)}{\partial t} &= -(\alpha_m(z,t) - j\delta)R(z,t) - j\kappa(z,t)F(z,t) \\ \frac{\partial \Delta N(z,t)}{\partial t} &= \psi(t)(N_{tot} - \Delta N(z,t)) - \gamma_{rad}\Delta N(z,t) \\ &\quad - \frac{|\vec{\mu}|^2}{2\hbar^2} \frac{\gamma}{\gamma^2 + (\omega - \omega_0)^2} \left( |F(z,t)|^2 + |R(z,t)|^2 \right) \Delta N(z,t) \end{aligned} \quad \text{Equation 1.16}$$

où  $\psi(t)$  est le taux de pompage optique.

Les simulations numériques montrent une compression temporelle d'un facteur dépendant de la durée de la pompe et de la longueur d'irradiation, c'est à dire la longueur du réseau. Si la durée de pompage est de l'ordre de grandeur de la durée de vie moyenne du niveau excité, le facteur de compression peut atteindre 70, et si la pompe excite le milieu sur un laps de temps plus court, ce facteur a tendance à chuter. Le taux de décroissance des photons dans la cavité dépendant directement de la longueur du réseau, **l'émission laser sera d'autant plus longue que le réseau est grand**. De plus, le profil d'intensité longitudinal varie au cours de l'interaction ; le laser DFB peut, selon les conditions choisies, changer de régime de couplage. Enfin, Les auteurs montrent par leurs simulations que l'effet de *hole burning* spatial intervient de manière négligeable dans la dynamique temporelle du laser : il tend à diminuer légèrement l'intensité crête de l'impulsion et à augmenter sa durée.

Du point de vue des diodes laser, les premiers travaux sur l'étude temporelle des structures DFB, commencent à apparaître dans la littérature au milieu des années 80. La génération d'impulsions picosecondes se répand mais les réseaux sont inscrits dans le matériau et le temps de décroissance du champ ne varie que par la présence d'agents influant sur le facteur de qualité de la cavité ou par une modulation directe du pompage électrique dans les diodes laser [25,26].

De plus, ces réseaux sont généralement des structures à couplage d'indice et sont étudiés lors d'une modulation du pompage en vue d'applications télécom. Ces études ont par contre montré l'influence de la modulation sur la variation temporelle de la longueur d'onde émise et de sa largeur spectrale. C'est pour compenser ces effets d'indice que de nouveaux lasers sont apparus ensuite, comme les lasers à décalage de phase ou les réseaux *chirpés* [3].

## 1.2.2. Les structures DFB semi-conducteurs

### 1.2.2.1. Le développement des structures laser

Les lasers DFB sont généralement des guides d'ondes plans où la superposition de plusieurs couches permet de contrôler le spectre d'émission. Plusieurs structures à gain distribué ont été développées au cours des deux dernières décennies. La première et la plus commune est l'inscription dans une couche d'un réseau d'épaisseur en créneaux. L'épaisseur de la couche active est modulée lorsqu'elle est déposée sur ce réseau. L'onde se propageant alors dans ce milieu actif perçoit une modulation de l'indice effectif qui évolue avec l'épaisseur. Pour acquérir une émission monomode (ce qui n'est pas le cas pour un laser DFB à couplage d'indice uniforme), des compensateurs de phase sont introduits pour obtenir la monochromaticité par accord de phase entre les ondes contrapropageantes, à la fréquence de Bragg. Ce dispositif est généralement appelé laser DFB à décalage de phase de  $\pi/4$ .

Différentes techniques permettent d'introduire ce désaccord. On peut par exemple allonger une demi-période d'une longueur équivalente à  $\lambda_{emis} / 4$  ou bien reproduire le même schéma sur deux demi-périodes par un allongement de  $\lambda_{emis}/8$ . La seconde est plus répandue car la fabrication est mieux contrôlée et la stabilité lors d'une modulation directe semble supérieure.

Pour compenser la dispersion chromatique, d'autres structures de modulation existent et permettent cette émission unimodale. Il s'agit de lasers à réflecteurs de Bragg, ou lasers DBR. Ils sont constitués généralement d'un milieu amplificateur uniforme entouré par deux miroirs de Bragg dont les pas sont choisis de telle sorte que l'émission laser apparaît à une unique fréquence. Leur structure requiert une attention particulière quant à la longueur optique du milieu à gain pour conserver l'accord de phase entre les ondes aller et retour, comme pour les lasers DFB à décalage de phase. Ils sont connus pour leur faible seuil d'émission mais aussi pour la capacité d'accordabilité en longueur d'onde (sur quelques nanomètres), ainsi que leur stabilité lors d'une modulation en intensité rapide (de 1 à 10 GHz). Néanmoins, le couplage entre les deux sections active et passive s'avère être un inconvénient important.

D'autre part, des structures combinées prennent également de l'importance. Il s'agit de lasers DFB à couplage externe où un ou plusieurs miroirs entraînent une rétroaction dans la structure de Bragg et génèrent ainsi une émission monomode selon les positions respectives. Il est alors possible d'introduire un système de blocage de modes pour générer une impulsion laser intense à un haut degré de répétition, mais néanmoins large bande. Ces lasers sont également accordables en longueur d'onde. A ce propos, il est intéressant de connaître les différents développements pour l'accordabilité des diodes laser. Pour n'en citer qu'un seul, les lasers *push-pull* sont accordables avec une tenue au flux très intéressante : Le pompage est divisé en plusieurs zones du réseau pour moduler non pas l'intensité totale mais le profil longitudinal de l'intensité.

Plus récemment, les miroirs de Bragg ont entraîné l'apparition des lasers à émission par la surface. L'acronyme couramment employé pour ce système optique est VCSEL (*vertical cavity surface emitting laser* en anglais). Les éléments clé d'un VCSEL sont les miroirs de Bragg et la microcavité, obtenus par empilement successif de nombreuses couches atomiques. Leurs avantages principaux résident dans l'absence d'astigmatisme (excellent couplage dans les fibres), et la possibilité de fabriquer des matrices d'émetteurs lasers. Enfin, et pour finir cette brève description des lasers existants, la variation de fréquence et de largeur de raie des émissions lors de la modulation rapide a entraîné l'apparition de géométries dites *chirpées*. Ces réseaux sont pseudo-périodiques au sens où le pas du réseau peut augmenter ou diminuer sur la longueur de la structure. Il sont développés dans le but d'obtenir des lasers monomodes émettant de fortes puissances ou accordables en longueur d'onde [27]. L'annexe A est consacré aux principales formes de lasers mentionnées dans ce paragraphe.

1.2.2.2. Limitations et exigences des structures cristallines

Pour fabriquer ces lasers, on effectue habituellement une croissance cristalline (épitaxie) par jets moléculaires (technique MBE) à basse température (très inférieure à la température de fusion des matériaux) pour obtenir des couches minces semi-conductrices aux interfaces bien localisées. En effet, elle permet d'atteindre actuellement des précisions à la couche atomique près (de 10 Å à 1Å). La technique de dépôt chimique organo-métallique en phase vapeur (MOCVD) sous ultraviolette est également très pratiquée.

La composition de différents matériaux semi-conducteurs permet une ingénierie des niveaux d'énergie et donc l'émission de photons aux longueurs d'onde désirées. Les faces permettant l'oscillation laser sont obtenues en découpant des facettes sur deux tranches perpendiculaires aux couches cristallines (clivage). Le réseau est ensuite inscrit par des procédés holographiques ou par microlithographie. Cette ingénierie est complexe et nécessite des techniques de contrôle très impressionnantes, comme le contrôle par la diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (*Reflection High Energy Electron Diffraction* en anglais ou diffraction RHEED).

D'autre part, les mailles cristallines doivent répondre à certains critères lors de l'élaboration d'hétérostructures (les réseaux cristallins diffèrent suivant les éléments utilisés), car la variation de la maille lors d'une superposition de deux matériaux différents doit rester faible pour éviter les contraintes possibles. C'est ce que révèle le diagramme de la classification des composés représentant leur bande interdite en fonction de la maille du réseau cristallin. Néanmoins, le nombre de possibilités qu'offre ces procédés est si important que son exploitation se développe encore.

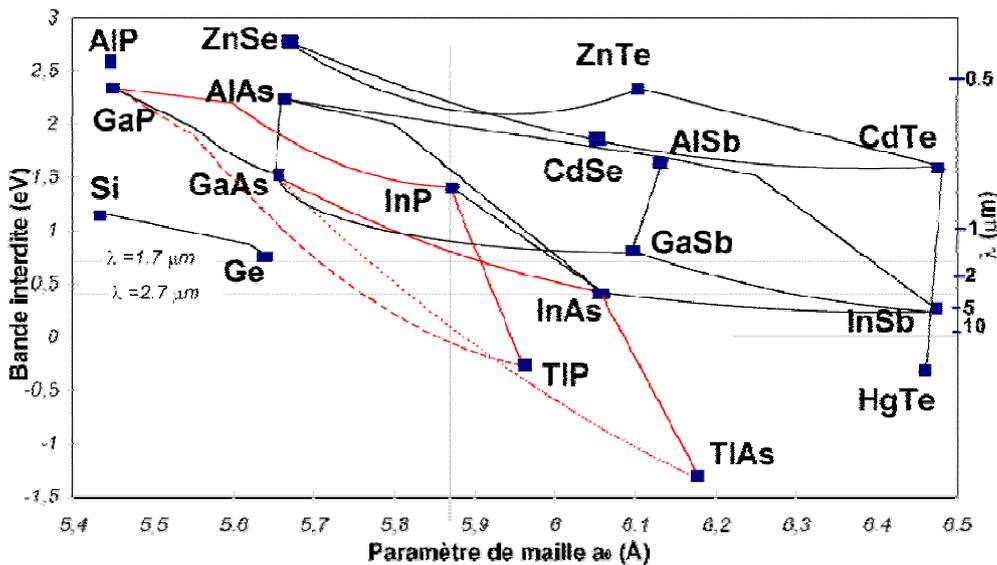


Figure 1.5 diagramme des bandes interdites en fonction du paramètre de maille pour les composés semi-conducteurs III-V, II-VI, IV-IV.

Par exemple, les lasers DFB à multi-puits quantiques ( $< 20 \text{ nm}$ ) sont maintenant très bien maîtrisés. Et le désaccord de maille est même profitable à certaines structures qui deviennent plus stables lors de la modulation directe de la source laser. De plus, les composants optoélectroniques réalisés actuellement repoussent les limites de la précision. Par exemple, une matrice de lasers à sélection en fréquence de  $2,3 \text{ mm} \times 0,1 \text{ mm} \times 20 \text{ }\mu\text{m}$  peut contenir 8 microlasers DFB, un multiplexeur, un amplificateur semi-conducteur optique, et un modulateur électroacoustique [28].

Un des inconvénients du laser semi-conducteur est lié aux caractéristiques du guide d'onde plan. En effet, comme les variations de maille sont faibles, les variations d'indice de réfraction entre la couche active et les couches de gaine sont généralement de 3% environ. Les techniques de gradient d'indice pour permettre de parer à cet inconvénient. Ainsi, fabriquer un laser DFB semi-conducteur nécessite le dépôt d'un grand nombre de couches pour guider la lumière, et un confinement des charges dans le matériau.

Concernant les longueurs d'onde, les lasers semi-conducteurs couvrent une large partie du spectre visible et infrarouge, de  $0,4$  à  $10 \text{ }\mu\text{m}$ . Néanmoins, il n'existe que peu de lasers semi-conducteurs émettant entre  $500$  et  $600 \text{ nm}$  [29].

### 1.3. Evolutions vers les matériaux souples

A l'heure de la montée en puissance des réseaux optiques multicolores à hauts débits, la perspective de composants innovants et à bas coût de production fondée sur les molécules organiques suscite un grand intérêt de la part des industriels. Depuis une vingtaine d'années, les polymères sont apparus dans des domaines aussi variés que l'optique non-linéaire, les cristaux liquides, l'électroluminescence, l'électronique et même le domaine biomédical.

Le premier polymère semi-conducteur, le polyacétylène, n'a pas pu faire naître de nouvelles applications ; les caractéristiques chimiques qui lui donnaient sa conductivité électrique étaient aussi responsables de son instabilité [30]. Ce matériau, à l'origine du prix Nobel de chimie de 1963, diffère en effet des plastiques que nous utilisons tous les jours, parce qu'il est «  $\pi$ -conjugué », c'est-à-dire que les atomes de carbone qui en constituent les chaînes sont reliés alternativement par des liaisons simples et doubles. Les électrons supplémentaires des liaisons  $\pi$  sont alors disponibles pour créer certains types de liaison chimique et ils peuvent même se déplacer sur les atomes voisins. D'autres polymères conjugués intéressent l'optique intégrée : le polythiophène, la polyaniline ou le poly-phénylène-vinylène (PPV) par exemple. La diversité des polymères disponibles et la possibilité d'ajuster leurs propriétés électroniques en modifiant les constituants permettent de régler la fréquence de leur émission lumineuse. On trouve déjà des diodes électroluminescentes organiques (« OLED ») dans des systèmes d'affichage. Plus récemment, Schön *et al.* ont réalisé le premier laser polymère à pompage électrique [31]. Cette dernière réalisation a motivé l'idée de réaliser des réseaux de télécommunication entièrement plastiques.

Devant ces avancées technologiques, il s'avère intéressant de présenter tout d'abord l'état de l'art des sources optiques polymères. Nous présentons ensuite les colorants comme des candidats intéressants pour le dopage de matrices polymères inertes. Enfin, le procédé de fabrication de nos couches minces polymères est détaillé pour mettre en évidence son efficacité.

#### 1.3.1. Etat de l'art des sources moléculaires

Un polymère est une grande molécule formée d'une chaîne d'un même motif lié de nombreuses fois à lui-même par liaisons covalentes. Il est caractérisé par une masse moléculaire moyenne et un indice de polymolécularité (qui donne un idée de la répartition moléculaire des éléments de la chaîne). Quand plusieurs de ces macromolécules sont assemblées, on peut parler de matériaux, ayant des propriétés physiques et chimiques propres. Ils présentent notamment des propriétés plastiques qui permettent leur intégration dans des dispositifs flexibles, mais ils possèdent de plus les propriétés optiques et électriques nécessaires au développement de dispositifs à fonctions complexes : sources, détecteurs, mémoires, afficheurs. les réseaux diffractifs réalisés à partir de

polymères sont le plus souvent constitués de matériaux photoréfractifs. Mais les propriétés opto-mécaniques permettent également d'inscrire des réseaux dans un matériau polymère.

### 1.3.1.1. Les réseaux polymères photo-inscrits

Les techniques employées pour inscrire un réseau temporaire ou permanent dans les polymères sont très diverses. Le blanchiment [32] ou l'irradiation par ultraviolet [33] sont des exemples d'inscription permanente. En ce qui concerne les structures temporaires, l'holographie dans les organiques, par effet photoréfractif<sup>†</sup> [34], est familière aux techniques d'induction de réseaux de phase en volume par processus photochimiques. Depuis quelques années, il est possible d'inscrire des réseaux de surface permanents de façon réversible dans certains matériaux dont la particularité est l'existence de deux formes géométriques distinctes.

Ces molécules qui ne diffèrent que sous leur forme structurale sont des isomères : ils peuvent prendre une forme trans, où la molécule possède une enveloppe de forme allongée, et une forme cis : elle se présente sous une forme repliée sur elle-même (figure 1.6). Sous l'effet d'un champ optique résonant, l'absorption transfère les molécules vers un état excité, lesquelles relaxent ensuite de façon non radiative vers la forme cis ou trans de l'état fondamental. L'isomère cis peut alors subir une relaxation spontanée ou une interconversion vers la forme trans. Ces isomérisations trans-cis et cis-trans peuvent se répéter sous l'action d'un champ continu : on parle alors de cycle d'isomérisation trans-cis-trans. Celui-ci est accompagné d'une rotation de la molécule.

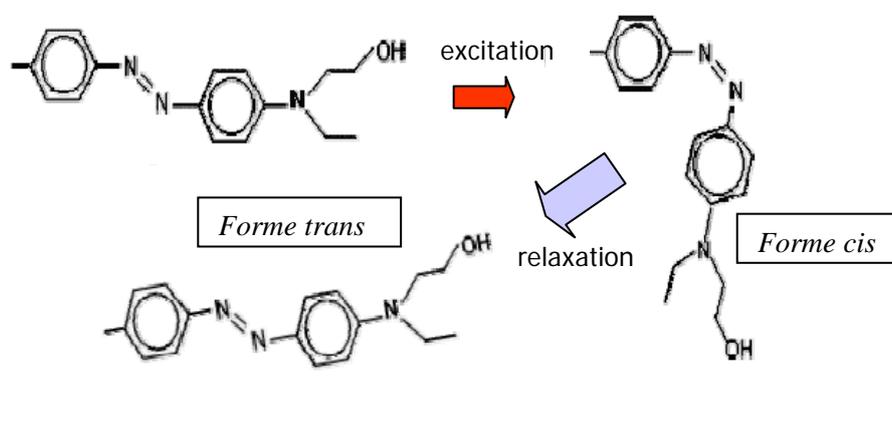


Figure 1.6 isomérisation trans-cis-trans du colorant Disperse Red 1 sous l'effet d'un champ électromagnétique. La molécule subit alors un mouvement de rotation pour un cycle et une translation par diffusion de matière

<sup>†</sup> Dans les matériaux photoréfractifs, la variation de l'indice de réfraction est obtenue sous éclaircissement non uniforme. Elle est induite par le biais de la photoconduction et de l'effet électro-optique. On obtient ainsi de fortes modulations de l'indice dans la zone de transparence du matériau et cela sous faible éclaircissement (quelques  $mW/cm^2$ ).

La probabilité d'absorption de ces molécules dépend de l'intensité, de la température, de l'environnement hôte, et surtout de l'angle entre la polarisation de l'onde électromagnétique et l'axe principal des molécules. En effet, celles-ci ont tendance à s'orienter perpendiculairement au champ électrique de l'onde pour acquérir un état d'énergie minimum [35].

Ce phénomène est accompagné d'un mouvement des molécules actives, selon la matrice polymère dans laquelle elles sont incluses. Ce déplacement, qui semble être de type brownien, comporte des caractéristiques anisotropes dans le cas d'un pompage par interférences. En effet, la diffusion de la matière est dictée principalement par des effets thermodynamiques. Ainsi, les zones alternées produites par les franges lumineuses ne possèdent plus les mêmes caractéristiques, autant sur l'activité d'isomérisation que sur les propriétés thermodynamiques locales. De ce fait, les gradients de pression et de température induits sont vectoriels et incitent les molécules à se déplacer vers les zones sombres : un réseau surfacique est induit par absorption. Il suffit par la suite d'éclairer le matériau avec un faisceau non polarisé pour annuler l'effet. Un des problèmes auquel les chercheurs font face est un effet mémoire peu prononcé. Une fois que les molécules sont réorientées dans la matrice, elles doivent conserver cette nouvelle répartition afin de préserver l'amplitude du réseau. Mais avec le temps, les plupart des molécules ont tendance à se disperser et à retrouver un état désordonné.

#### 1.3.1.2. Le laser DFB à colorant

Les lasers à colorant permettent une compression temporelle au regard de la durée de pompage, comme cela a été évoqué précédemment dans le cas particulier des réseaux DFB (§ 1.2.1.3). Les durées temporelles des lasers en cavité ont atteint rapidement l'ordre de grandeur de la femtoseconde par des dispositifs résonants en anneau et des méthodes d'inversion de pertes dans la cavité. Les travaux théoriques de Bor concernant des structures à gain distribué ont engendré de nombreux travaux expérimentaux où la compression temporelle est manifeste.

A l'institut Max Planck, les chercheurs ont montré expérimentalement que ces structures permettent de générer des impulsions ultra courtes à différentes longueurs d'onde et par pompage optique faiblement cohérent [22]. Le réseau est créé par interférences entre les ordres +1 et -1 de diffraction d'un réseau en réflexion (voir figure 1.7a où la source laser N<sub>2</sub> excite de la rhodamine 6G en solution dans l'éthanol et le DMSO (di-méthyl(sulfoxyde))). L'émission montre une succession d'impulsions picosecondes (pour un pompage nanoseconde) dont le nombre dépend de l'intensité de pompe. De plus, la même équipe a mis en évidence un décalage angulaire, dans le plan des faisceaux, suivant la longueur d'onde émise [36]. Cet effet est justifié théoriquement par l'existence d'un gradient d'indice réel purement électronique (l'effet du mirage).

En outre, l'excitation apportée par un laser Nd :YAG picoseconde doublé ou triplé en fréquence sur différentes combinaisons solvant/colorant permet de vérifier cet effet temporel, pour une partie d'entre elles [37]. L'amélioration théorique apportée par Duling et Raymer justifie cette chute du taux de compression car la

longueur d'illumination semble allonger la durée de l'impulsion lorsqu'elle augmente. Intuitivement, le phénomène peut s'expliquer par la prise en compte du temps de cavité qui augmente pour un réseau long : le parcours moyen des photons dans la cavité doit s'accorder avec la longueur de cette structure DFB.

Le laser polymère à gain distribué dans un matériau solide a également fait l'objet d'une étude [38], notamment pour un dispositif du type de celui développé par Bor [22] (figure 1.7a). A base de perylène rouge, un colorant laser, et d'une matrice hôte polymère de PMMA (polyméthylmétacrylate), le milieu solide est obtenu après polymérisation à température contrôlée et taillé sous une forme trapézoïdale pour éviter les réflexions séculaires. Une émission laser multimode efficace et très fine (de l'ordre du dixième d'angström) est accordable sur 40 nm, par variation mécanique de l'angle d'interférence entre les deux faisceaux pompe. Une étude temporelle de l'émission en fonction de l'énergie incidente (l'impulsion de pompage est plus courte à haute énergie (15 ns)) montre que la structure DFB émet une impulsion aussi longue que le pompage (figure 1.7b).

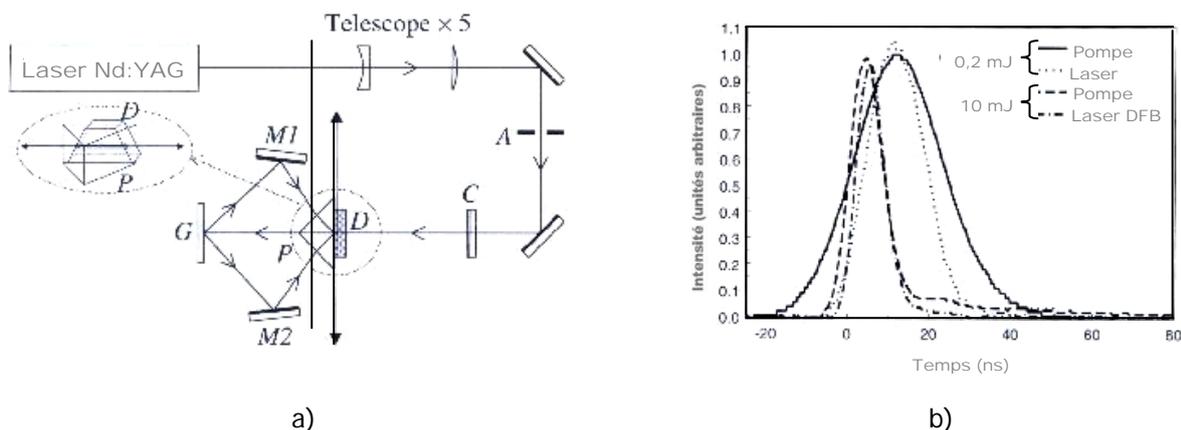


Figure 1.7 Extrait de l'article de Wadsworth *et al.* [38].

- a) montage d'interférences par diffraction d'un faisceau laser Nd :YAG sur un réseau en réflexion dans l'ordre +1 et -1.
- b) évolution de la durée de l'impulsion DFB au regard de l'énergie de pompe.

### 1.3.1.3. Le laser DFB polymère en milieu confiné

Les réseaux inscrits précédemment évoqués dans la partie §1.3.1.1 permettent une émission laser longitudinale par une structure DFB [39]. Dans ce cas, le colorant DR1 est utilisé pour inscrire la structure et le milieu actif polymère/colorant est déposé par spin-coating. Le spectre est fin (4 Å) et la présence du seuil est démontrée. De plus, une étude de la variation du pas du réseau d'ordre 2 permet une émission sur toute la bande de fluorescence du colorant laser.

D'autres méthodes sont également employées pour graver ces réseaux. Les structures polymères DFB des laboratoires de Lucent Technologies sont obtenues par différentes techniques de gravure nanométriques [40]. Leurs réseaux sont du troisième ordre et, suivant les différents procédés de fabrication, l'émission laser est générée soit par un couplage complexe, soit par un couplage par l'indice. Les conclusions sont identiques pour l'équipe allemande [41] qui travaille sur le même matériau ( $\text{Alq}_3$ :DCM) déposé par sublimation sous vide. Il est d'ailleurs comparé au polymère para-poly-phénylène (LPPP ou PPP maillé) déposé à la tournette. Les réseaux inscrits 2D sont du deuxième ordre et émettent alors perpendiculairement aux couches déposées, l'oscillation étant promue par les ondes contrapropageantes diffractées dans l'ordre 2, parallèlement au film.

Par ailleurs, les structures DFB dynamiques permettent également l'émission laser. Dans le cas des polymères, Kretsch *et al.* [42] ont comparé deux substances d'OPV (oligo-p(phénylène-vinylène)), déposées en couche mince à la tournette. Pour se faire, un mécanisme de miroirs symétriques permet une variation du pas du réseau d'interférences appliqué sur la couche mince. Les accordabilités de plusieurs dizaines de nanomètres observées dans le spectre visible ont permis de mettre en exergue les propriétés multimodes du guide d'onde réalisé.

D'un point de vue temporel, le laser DFB en couche mince pompé optiquement semble vérifier la compression évoquée au paragraphe précédent. Maeda *et al.* [43] utilisent un miroir de Lloyd (la description en est donnée au paragraphe 2.2.1.1) pour créer temporellement un réseau d'interférences dans une couche de polymère PMMA dopé à la rhodamine 6G. Le réseau est d'ordre 2 et le taux de compression semble effectivement augmenter avec une diminution de la zone de pompage.

### 1.3.2. Les composantes structurelles du laser

Avant d'aborder nos résultats expérimentaux, une présentation des matériaux utilisés se justifie de part leur importance dans la réalisation du laser. Les matériaux polymères offrent une telle variété qu'il est important de préciser ce point et de comparer notamment les milieux actifs couramment utilisés dans les lasers déjà maîtrisés et ces nouvelles structures destinées à un avenir certain dans l'optoélectronique de demain.

C'est pourquoi, après un rapide rappel sur les colorants lasers, ces derniers sont comparés aux polymères semi-conducteurs luminescents. Ce premier chapitre introductif est conclu par la méthode de dépôt des couches minces, employée pour réaliser nos lasers DFB.

#### 1.3.2.1. Un colorant laser : la rhodamine 6G

Les colorants lasers sont des molécules qui possèdent une transition laser permise sur les électrons des liaisons  $\pi$ , alternées avec les liaisons  $\sigma$ . Actuellement, ces molécules couvrent le spectre laser du proche ultraviolet jusqu'au proche infrarouge, soit de manière quasi-continue, soit en régime pulsé. Le colorant dominant pour les applications, et l'un des plus étudiés, est la

rhodamine 6G. Cette molécule de la classe des xanthènes est composée de trois cycles benzéniques, et de deux groupes amines différents à ses extrémités (figure 1.8a). Cette dissymétrie implique une géométrie qui n'est pas parfaitement planaire. Elle possède de nombreux états d'énergie, à la fois électroniques (entre 1,7 eV et 2,4 eV, ou entre 500 et 700 nm), vibrationnels (entre 0,1 et 0,25 eV) et rotationnels (entre 1 et 2,5 meV). Elles présentent principalement un élargissement homogène, en accord avec les conditions posées pour le traitement théorique de l'évolution temporelle.

Mais ces transitions dépendent beaucoup du solvant et de la phase thermodynamique dans lesquels se trouve la molécule. De ce fait, les spectres d'absorption et de fluorescence peuvent changer. Un diagramme d'énergie typique est représenté sur la figure 1.8b. La molécule possède deux systèmes d'énergie : les états singulets  $S_n$  et les états triplets  $T_n$ . Ils peuvent interférer, bien que la probabilité de ces transitions soit faible devant les transitions singulets-singulets [44]. De plus l'absorption entre états triplets recouvre le spectre de fluorescence de la rhodamine. Ces deux derniers effets peuvent empêcher un rendement de fluorescence idéalement proche de 100% et son gain important, de plusieurs ordres de grandeur par rapport aux lasers solides ou gazeux. Ils sont en particulier à l'origine des difficultés d'une émission laser continue : les lasers à colorants continus emploient des agents qui s'opposent, par collision, à cette absorption  $T_1$ - $T_2$  et le liquide actif est généralement soumis à un mouvement rapide perpendiculairement à l'axe de la cavité.

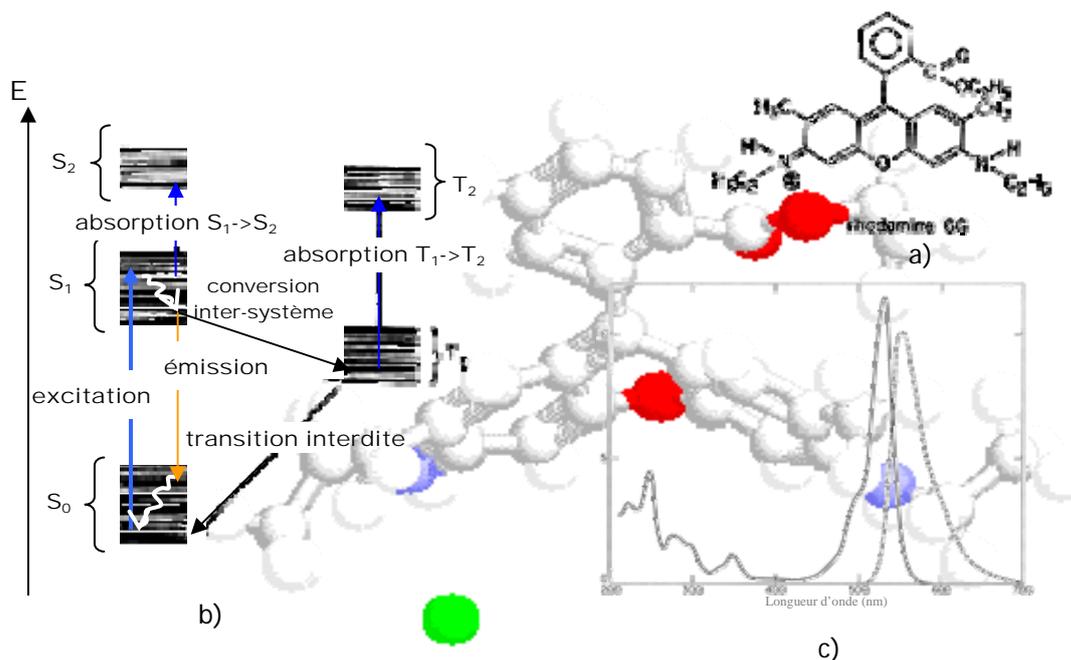


Figure 1.8 Rhodamine 6g :

- représentation 2D de la molécule.
- diagramme d'énergie typique d'un xanthène.
- spectre de transition singulet-singulet (absorption en trait plein et fluorescence en pointillés). En fond est exposée une vue 3D de la molécule : les sphères bleues schématisent les atomes d'azote, les sphères rouges, les oxygènes et la sphère verte représente la charge positive due à la lacune sur l'atome d'azote.

Mais en ce qui concerne le régime pulsé, la conversion inter-système est trop lente (environ 50 ns) pour se produire, si l'émission laser est déclenchée rapidement. **Par exemple, pour un pompage d'une durée de 30 ps, si l'émission laser se produit dans les 0,5 ns qui suivent, la perte d'énergie due aux états triplets sera négligeable.** En revanche, si le pompage (par lampe flash par exemple) dure environ 1  $\mu$ s, l'émission laser peut s'annuler avant la fin du pompage et l'efficacité s'en trouve très altérée, voire annihilée. De ce fait, l'émission laser présente une structure en train d'impulsions courtes. Enfin, pour un pompage de l'ordre de la nanoseconde, l'effet de l'absorption triplet-triplet est présent et influe plus sur la partie rouge du spectre de fluorescence. Toutes ces précisions concernent essentiellement les molécules à l'état liquide et semblent être relativement identiques pour l'état solide.

#### 1.3.2.2. polymères semi-conducteurs et colorants

Les polymères semi-conducteurs en couche mince peuvent être considérés comme des molécules dans un état désordonné. Ainsi, les états excités sont de nature électroniques, vibrationnels et rotationnels, comme les colorants. Et les formes spectrales de l'absorption et de la fluorescence sont larges et parfois assez décalées pour éviter les réabsorptions éventuelles.

De ce fait, ces deux types de molécules offrent une éventuelle accordabilité laser qui est particulièrement utilisée dans les lasers à colorant, moyennant des dispositifs de sélection spectrale intracavité. D'autre part, des études temporelles sur les relaxations de ces matériaux permettent de conclure à un bon rendement quantique, car les relaxations non radiatives entre les niveaux intermédiaires sont de deux à trois ordres de grandeur plus courtes que l'émission spontanée de la transition laser [45]. Ainsi, la modélisation du laser à quatre niveaux pour ces polymères est justifiée.

De plus, comme les semi-conducteurs classiques, des pièges non radiatifs existent, en grande densité parfois, et induisent une diminution du rendement quantique de l'émission stimulée. L'analogie entre ces pièges et les états triplets n'est que symbolique mais produit le même effet sur la qualité de l'émission. D'autres processus physiques peuvent porter atteinte à la luminescence des polymères (voir la référence [46] pour plus de détails). Mais il est important de préciser que les mécanismes inter- et/ou intra- moléculaires provoquent une dégradation des propriétés de luminescence des polymères. Pour les colorants, cette photo-dégradation impose, pour les lasers industriels, un remplacement régulier des substances, comme c'est le cas pour les absorbants saturables dans les lasers déclenchés par inversion des pertes de cavité.

La structure solide des couches minces peut être un avantage pour les molécules, que ce soit des polymères ou des colorants. En effet, la matrice inerte dans laquelle ils sont insérés peut gêner les différentes transitions non radiatives entre les molécules. Pour les colorants par exemple, les groupes amines perdent leur liberté de mouvement. Dans certains cas, cet effet contribue à une amélioration du rendement de fluorescence des milieux actifs [47].

L'équivalence entre les colorants laser et les polymères semi-conducteurs n'est pas réelle du point de vue phénoménologique — excepté leur état désordonné et la présence de liaisons  $\pi$  dans la structure moléculaire —, mais les conséquences sont très ressemblantes. C'est pourquoi l'étude des lasers polymères dopés avec des colorants est une approche intéressante, bien qu'elle ne fait pas apparaître les concepts de porteurs de charges (électrons-trous) et de zone de charges d'espace, familiers aux lasers semi-conducteurs classiques.

### 1.3.2.3. Réalisation des couches minces

Pour réaliser nos couches minces, nous utilisons une méthode de *spin-coating*, appelée aussi méthode de la tournette. Ce procédé de dépôt chimique de couche mince est relativement simple d'utilisation et n'entraîne pas de surcoût de fabrication. L'idée de base réside dans la solidification ou la gélification d'une solution comportant des espèces chimiques qui constituent le milieu actif et la matrice hôte. Un traitement thermique de séchage et de densification de ce gel conduit ensuite au matériau. Cette méthode particulière des procédés sol-gel permet la préparation de films minces de polymère déposés sur verre ou silicium ayant des rugosités de surface de l'ordre de  $10 \text{ \AA}$ . Les qualités requises de la solution pour obtenir un film mince sont une bonne homogénéité des composés chimiques et une bonne adhérence sur le substrat pour atteindre une régularité suffisante de l'épaisseur de la couche, ajustable de surcroît.

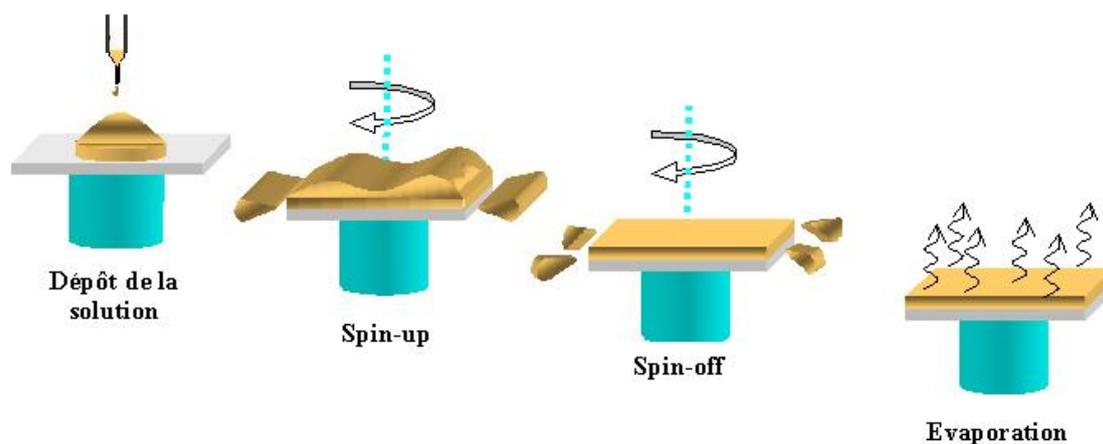


Figure 1.9. schéma des quatre étapes de la préparation d'une couche mince polymère. La dernière étape n'est imposée que lors de solvants peu volatiles.

Le système repose sur l'effet de centrifugation. Une goutte de la solution préparée est déposée sur le substrat, et la rotation de celui-ci entraîne l'étalement du liquide. Le film ainsi formé s'amincit par écoulement centrifuge et évaporation. Bornside *et al.* [48] distinguent quatre phases : dépôt, *spin-up*, *spin-off* et évaporation (bien que cette dernière recouvre parfois les autres étapes durant un dépôt sol-gel). Ces différentes phases sont représentées sur la figure 1.9. L'excès de liquide déposé sur le substrat (phase de dépôt) s'écoule radialement vers l'extérieur, sous l'effet de la force centrifuge, durant la phase de *spin-up*. Puis cet excès s'écoule sur le périmètre. Il est éjecté sous forme de

gouttelettes ; c'est le *spin-off*. Durant cette phase, l'élimination du liquide en excès diminue quand le film s'amincit, car il devient ainsi plus résistant à l'écoulement et parce que la viscosité augmente avec la concentration en composés non volatils. L'évaporation devient le mécanisme d'amincissement dominant. L'avantage de la tournette est que le film tend à devenir uniforme pendant le *spin-off* et à le rester, si l'on suppose que la viscosité ne dépend pas du cisaillement et ne varie pas sur le substrat ; cette tendance reflète un équilibre entre les deux forces principales : force centrifuge (radiale, dirigée vers l'extérieur) et force visqueuse, ou friction (radiale, dirigée vers l'intérieur).

Il est possible d'effectuer des dépôts multicouches pour augmenter l'épaisseur du film. Dans ce cas, il est indispensable d'effectuer un recuit entre deux dépôts successifs, afin de densifier la dernière couche déposée et éviter sa redissolution. Insistons sur l'importance du contrôle de la viscosité de la solution au moment du dépôt car elle conditionne la porosité du film obtenu et son épaisseur.

## Conclusion

Ce premier chapitre a exposé succinctement le domaine des lasers polymères et des structures à gain distribué en particulier. Une attention particulière sur la définition du laser, du point de vue spectral et temporel, nous a permis d'aborder l'importance de la modulation de la susceptibilité diélectrique d'un milieu actif. Ce paramètre imbrique toutes les caractéristiques du matériau utilisé, mais également de l'aspect structural, dans le cadre d'un pompage interférentiel. Ce fait n'est pas considéré directement dans les structures DFB des semi-conducteurs cristallins. En effet, la modulation est obtenue par des techniques de gravure. La théorie développée pour ces réseaux de diffraction est la théorie des modes couplés. Elle comporte des paramètres importants, comme les constantes de couplage par l'indice, par le gain ou bien par les deux. Nous avons à ce propos évoqué le principe de la méthode de la matrice de transfert dans un but d'information, car les futurs lasers polymères, comme c'est déjà le cas pour les « OLEDs », se composeront certainement de plusieurs couches superposées et de différentes sections uniformes et modulées.

Pour revenir aux lasers DFB classiques, les structures cristallines profitent de l'explosion économique de l'optoélectronique qui permet des avancées technologiques comme le dépôt monoatomique des composés. En revanche, les polymères semi-conducteurs offrent d'autres possibilités d'application, de part leur structure plastique souple. Ces molécules ont des potentialités chimiques beaucoup plus importantes que les matériaux inorganiques. Cette nouvelle étude a entre autres ouvert la voie à de nouvelles applications, comme les écrans flexibles. En ce qui concerne les sources lumineuses, les lasers polymères font l'objet d'intenses recherches et la réalisation du premier laser à pompage électrique motive davantage ce domaine de recherche [31]. Un des avantages de ces matériaux réside dans l'analogie possible avec les colorants lasers bien maîtrisés de nos jours.

Ainsi, il est important de bien connaître les différentes caractéristiques et les divers comportements de ces lasers, tant du point de vue spectral, spatial que temporel. Après avoir exposé la nature de ces composés chimiques, la méthode simple et bon marché de la tournette permet à certaines de ces molécules d'être développées comme de futurs lasers intégrés. Cet atout offrira dans le futur un procédé de fabrication collective pour le 'tout-intégré' des applications grand public.

## **BIBLIOGRAPHIE**

---

- [1] H. Kogelnik, « *Coupled Wave Theory for Tick Hologram Gratings* », Bell Sys. Tech. J., vol. 48, n°9, (2909-2947), 1969
- [2] H. Kogelnik, C.V. Shank, « *Coupled-Wave Theory of Distributed Feedback Lasers* », J. Appl. Phys., vol. 43, n°5, (2327-2335), 1972
- [3] J. Carroll, J. Whiteaway, D. Plumb, « *Distributed feedback semiconductor lasers* », IEE Circuits, Devices and Systems Series 10, 1998
- [4] P. Glorieux, « *Dynamique des lasers* », compte-rendus de l'Ecole d'été 'Les lasers et leurs applications scientifiques et médicales' à Cargèse, France, Les éditions de Physique SFO, (41-64), 1994
- [5] M. Greenhow, « *High frequency and low frequency asymptotic consequences of the Kramers-Krönig relations* », J. Eng. Math., vol. 20, (293-306), 1986
- [6] H.J. Eichler, P. Günter, D.W. Pohl, « *Laser-induced dynamic gratings* », Springer-Verlag, § 2.2.3, 1986
- [7] R.L. Fork, B.I. Greene, C.V. Shank, « », Appl. Phys. Lett., vol. 38, n°, (671- ), 1981
- [8] W. Streifer, R. D. Burnham, D. R. Scifres, « *Effects of external reflectors on longitudinal modes of distributed feedback lasers* », IEEE J. Quant. Elec., vol. QE-11, n°4, (154-161), 1975
- [9] G. Morthier, P. Vankwikelberge, « *Handbook of Distributed Feedback Laser Diodes* », Artech House, 1997, § 4.1.1
- [10] J. R. Pierce, « *Coupling of modes of propagation* », J. Appl. Phys., vol. 25, n°2, (179-183), 1954
- [11] H. Kogelnik, C. V. Shank, « *Stimulated emission in a periodic structure* », Appl. Phys. Lett., vol. 18, n°4, (152-154), 1971
- [12] R. L. Fork, K. R. German, E.A. Chandross, « *Photodimer distributed feedback laser* », Appl. Phys Lett., vol. 20, n°3, (139-141), 1972
- [13] W. Streifer, D. R. Scifres, R. D. Burnham, « *Coupling coefficients for distributed feedback single and double-heterostructure diode lasers* », IEEE J. Quant. Elec., vol. QE-11, n°11, (867-873), 1975
- [14] A. Yariv, M. Nakamura, « *Periodic structures for integrated optics* », IEEE J. Quant. Elec., vol. QE-13, n°4, (233-253), 1977
- [15] Shyh Wang, « *Principles of distributed feedback and distributed Bragg reflector lasers* », IEEE J. Quant. Elec., vol. QE-10, n°4, (413-427), 1974 et les références proposées
- [16] S. R. Chinn, « *Effects of mirror reflectivity in a distributed feedback laser* », IEEE J. Quant. Elec., vol. QE-9, n°6, (574-580), 1973
- [17] G. Björk, O. Nilsson, « *A new exact and efficient numerical matrix theory of complicated laser structures : Properties of asymmetric phase-shifted DFB lasers* », J. Lightw. Tech., vol. LT-5, n°1, (140-146), 1987
- [18] J. Hong, W. Huang, T. Makino, « *On the transfer matrix method for distributed feedback waveguide devices* », J. Lightw. Tech., vol. 10, n°12, (1860-1868), 1992

- [19] T. Makino, « *Threshold condition of DFB semiconductor lasers by the local normal-mode transfer matrix method : Correspondence to the coupled wave method* », IEEE J. Quant. Elec., vol. 12, n°12, (2092-2099), 1992
- [20] E. Kapon, A. Hardy, A. Katzir, « *The effect of complex coupling coefficients on distributed feedback lasers* », IEEE J. Quant. Elec., vol. QE-18, n°1, (66-71), 1982
- [21] T. Makino, « *effective-index matrix analysis of distributed feedback semiconductor lasers* », IEEE J. Quant. Elec., vol. 28, n°2, (434-440), 1992
- [22] Z. Bor, « *Tunable picosecond pulse generation by a N2 laser pumped self Q-switched distributed feedback dye laser* », IEEE J. Quant. Elec., vol. QE-16, n°5, (517- 524), 1980
- [23] S. Szatmari, B. Racz, « *Generation of 320 fs pulses with a distributed feedback dye laser* », Appl. Phys. B, vol. 43, (93-97), 1987
- [24] IRL N. Duling III, M.G. Raymer, « *Time dependent semiclassical theory of gain coupled distributed feedback lasers* », IEEE J. Quant. Elec., vol. QE-20, n°10, (1202-1207), 1984
- [25] N. Onodera, H. Ito, H. Inaba, « *Generation and control of bandwidth-limited, single mode optical pulses by strong RF modulation of a distributed feedback InGaAsP diode laser* », IEEE J. Quant. Elec., vol. QE-21, n°6, (568-575), 1985
- [26] H. F. Liu, M. Fukazawa, Y. Kawai, T. Kamiya, « *Gain-switched picosecond pulses (< 10 ps) generation from 1,3 μm InGaAsP laser diodes* », IEEE J. Quant. Elec., vol. QE-25, n°6, (1417-1425), 1989
- [27] K. A. Winick, « *Longitudinal mode competition in chirped grating distributed feedback lasers* », vol. 35, n°10, (1402-1411), 1999
- [28] Kudo *et al.*, « *1.55 μm wavelength selectable microarray DFB-LD's with monolithically integrated MMI combiner, SOA, and EA-modulator* », IEEE Photonics Tech. Lett. , vol. 12, n°3, (242-244), 2000
- [29] J. Y. Duboz, « *Laser for optoelectronic integrated circuits* », papier invité, Optoelectronic and photonics winter school, Trento, 2001, à paraître
- [30] P. Bernier, « *Des plastiques pour l'optique et l'optoélectronique* », La Recherche, vol. 337, ( 25-27), Déc. 2000
- [31] J. H. Schön, Ch. Kloc, A. Dodabalapur, B. Batlogg, « *An organic solid state injection laser* », Science, vol. 289, (599-601), 2000
- [32] K. B. Rochford, R. Zanoni, Q. Gong, G. I. Stegeman, " *Fabrication of integrated optical structures in polydiacetylene films by irreversible photoinduced bleaching* ", Appl. Phys. Lett., vol. 55, n°12, (1161-1163), 1989
- [33] M. Bolle, S. Lazare, M. Le Blanc, A. Wilmes, " *Submicron periodic structures produced on polymer surfaces with polarized excimer laser ultraviolet radiation* ", Appl. Phys. Lett., vol. 60, n°6, (674-676), 1992
- [34] T. Todorov, L. Nikolova, N. Tomova, " *Polarization holography. 1 : A new high-efficiency organic material with reversible photoinduced birefringence* ", Appl. Opt., vol. 23, n° 23, (4309-4312), 1984
- [35] N. Böhm *et al.*, " *Optically induced dichroism and birefringence of disperse red 1 in hybrid polymers* ", Macromol., vol. 31, n°13, (4265-4271), 1998
- [36] S. Szatmari, Z. Bor, « *Directional and wavelength sweep of distributed feedback dye laser pulses* », Appl. Phys. B, vol. 34, (29-31), 1984

- [37] A. Müller, « *Two independently tunable distributed feedback dye lasers pumped by a single picosecond Nd :YAG laser* », Appl. Phys. B, vol. 63, (443-450), 1996
- [38] W.J. Wadsworth, I.T. McKinnie, A.D. Woolhouse, T.G. Haskell, « *Efficient distributed feed-back solid state dye laser with a dynamic grating* », Appl. Phys. B, vol. 69, n°2, (163-165), 1999
- [39] L. Rocha et al., « *Laser emission in periodically modulated polymer films* », J. Appl. Phys., vol. 89, n°5, (3067-3069), 2001
- [40] J.A. Rogers et al., « *Distributed feed-back ridge waveguide lasers fabricated by nanoscale printing dans pold inf on nonplanar substrates* », Appl. Phys. Lett., vol. 74, N°22, (3257-3259), 1999
- [41] C. Kallinger et al., « *A Flexible Conjugated Polymer Laser* », Adv. Mat., vol. 10, n°12, (920-923), 1998
- [42] K. P. Kretsch, « *Distributed feed-back laser action from polymeric waveguides doped with oligo phenylene vinylene model compounds* » Appl. Phys. Lett., vol. 76, n°16, (2149-2151), 2000
- [43] M. Maeda, Y. Oki, K. Imamura, « *Ultrashort pulse generation from an integrated single chip dye laser* », IEEE J. Quant. Elec., vol. QE 33, n°12, (2146-2149), 1997
- [44] site internet : [http://cord.org/cm/leot/course03\\_mod10/mod03\\_10.htm](http://cord.org/cm/leot/course03_mod10/mod03_10.htm)
- [45] Z. V. Vardeny et al., « *Stimulated emission and lasing in  $\pi$ -conjugated polymer films, microstructures and opal photonics crystals* », Proc. SPIE, Denver (USA), vol. 3797, (2-16), 1999
- [46] G. Wegmann et al., « *Conjugated polymer lasers: emission characteristics and gain mechanism* », Phys. Chem. Chem. Phys., vol. 1, (1795-1800), 1999
- [47] F. P. Schäfer, « *Dye lasers* », chap. 5, (155-198), Topics in applied physics, vol. 1, Springer Verlag, 1990
- [48] D.E. Bornside, C.W. Macosko, L.E. Scriven., « *Spin-coating : one-dimensional model.* », J. Appl. Phys., vol. 66, (5185-5198), 1989.
- [49] M. Sargent III, W.H. Swanter, J. D. Thomas, « *Theory of a distributed feedback laser* », IEEE J. Quant. Elec., vol. QE-16, n°4, (465-472), 1980
- [50] A. Brignon, « *Conjugaison de phase par mélange d'onde dans les milieux laser* », Ann. Phys., EDP Sciences, \$ 3.4 et \$ 4.1, 1999
- [51] S.R. Chinn, « *Relaxation oscillations in distributed feedback lasers* », Opt. Comm., vol. 19,(208-211), 1976
- [52] S. Stzamari, F.P. Schäfer, « *simple generation of high-power, picosecond, tunable excimer laser pulses* », Opt. Comm., vol. 48, n°4, (279-283), 1983
- [53] S. Szatmari, Z. Bor, « *Directional and wavelength sweep of distributed-feedback dye laser pulses* », Appl. Phys. B., vol. 34, (29-34), 1984
- [54] A.G. Weber, W. Ronghan, E. Holger Böttcher, M. Schell, D. Bimberg, « *Measurement of the turn-on delay time jitter in gain-switched semiconductor lasers* », IEEE J. Quant Elec., vol. QE-28, n°2, (441-445), 1981
- [55] R.L. Abrams, R.C. Lind, « *Degenerate four-wave mixing in absorbing media* », Opt. Lett., vol. 2, n°4, (94-96), 1978

- [56] B. Zel'dovich, N.F. Pilipetsky, V.V. Shkunov, « *principles of phase conjugation* », Springer Verlag, vol.42, 1985
- [57] R.W. Hellwarth, « *generation of time-reversed wave fronts by nonlinear refraction* », J. Opt. Soc. Am., vol.67, n°1,(1-3), 1977
- [58] D. Walbeck, A.J. Cross Jr., D.B. McDonald, G.R. Fleming, « *Picosecond pulse induced transient molecular birefringence and dichroism* », J. Chem. Phys., vol. 74, n°6, (3381-3387), 1981
- [59] N. Pfeffer, F. Charra, J-M. Nunzi, « *Phase and frequency resolution of picosecond optical Kerr nonlinearities* », Opt. Lett., vol. 16, n°24, (1987-1989), 1991 et références citées.
- [60] D.S. Alavi, R.S. Hartman, D.H. Waldeck, « *Optically heterodyned polarization spectroscopy. Measurement of the orientational correlation function* », J. Chem. Phys., vol. 92, n°7, (4055-4066), 1990
- [61] D.W. Phillion, D.J. Kuizenga, A.E. Siegman, « *Subnanosecond relaxation time measurements using a transient induced grating method* », Appl. Phys. Lett., vol. 27, n°2, (85-87), 1975
- [62] J.R. Salcedo, A.E. Siegman, D.D. Dlott, M.D. Fayer, « *dynamics of energy transport in molecular crystals : the picosecond transient-grating method* », Phys. Rev. Lett, vol.42, n°2, (131-134),1978, et références incluses.
- [63]L. Dhar, J. A. Rogers, « *High frequency one-dimensional phononic crystal characterized with a picosecond transient grating photoacoustic technique* »,Appl. Phys. Lett., vol. 77, n°29, (1402-1404), 2000
- [64] J.C. Gummy, O. Nicolet, and E. Vauthey , « *Investigation of the solvation dynamics of an organic dye in polar solvents using the femtosecond transient grating technique* », J. Phys. Chem. A, vol. 103, (10737-10743), 1999
- [65] Y. Silberberg, I. Bar-Joseph, « *Transient effects in degenerate four-wave mixing in saturable absorbers* », IEEE J. Quant Elec., vol. QE-17, n°9,(1967-1970) 1981

**NOTIONS DE BASE DU**  
**LASER DFB DYNAMIQUE :**  
**ETUDES SPECTRALES**

**2. NOTIONS DE BASE DU LASER DFB POLYMERE DYNAMIQUE : ETUDES SPECTRALES.. 49**

INTRODUCTION .....	50
2.1. LA THEORIE DES MODES COUPLES : LES BASES .....	51
2.1.1. <i>Equations du couplage de modes par modulation de la susceptibilité</i> .....	51
2.1.1.1. Principe physique des ondes couplées.....	51
2.1.1.2. Gain et déphasage.....	53
2.1.1.3. Les équations des modes couplés .....	55
2.1.2. <i>Résultats théoriques du système laser stationnaire</i> .....	57
2.1.2.1. Solutions du système d'équations couplées.....	57
2.1.2.2. Seuil laser et sélectivité spectrale théorique .....	59
2.2. L'EMISSION LASER BIMODALE : CONTRADICTIONS .....	62
2.2.1. <i>Le dispositif expérimental</i> .....	62
2.2.1.1. Les couches minces.....	62
2.2.1.2. Les interféromètres.....	63
2.2.1.3. Le montage.....	65
<i>Démonstration de l'émission laser accordable</i> .....	66
2.2.2.1. Le seuil laser .....	67
2.2.2.2. L'accordabilité laser des films polymères .....	68
2.2.2.3. La photo-dégradation des couches minces .....	70
2.2.3. <i>Structure modale complexe</i> .....	71
2.2.3.1. Etude en intensité de la raie double .....	71
2.2.3.2. Discussion sur la structure spectrale.....	73
CONCLUSION .....	75

## Introduction

Le premier chapitre a permis d'énoncer les principales caractéristiques du laser Fabry Péro. Elles constituent les fondements de notre travail : une comparaison avec le comportement d'un laser DFB offre des points de repères classiques dans le domaine des lasers. La susceptibilité est prédominante dans le processus physique. En effet, le pompage interférentiel utilisé pour induire une émission laser dans les films minces polymères impose une variation spatiale de la réponse du milieu actif.

Le présent chapitre est consacré à l'étude théorique et à l'analyse expérimentale du comportement spectral de différentes couches minces. Les études spectrales d'un laser apportent un renseignement sur la ou les fréquences de l'émission. Elles peuvent être comparées aux longueurs d'onde attendues, notamment par rapport au spectre de fluorescence du matériau actif. De plus, suivant l'intensité de pompage, on peut déduire de ce spectre le seuil en intensité qui définit la transition entre une émission laser et une émission stimulée non résonante avec la cavité.

Dans une première partie, la théorie des modes couplés est développée par l'intermédiaire d'une modulation de la susceptibilité diélectrique du matériau en utilisant le raisonnement de Sargent *et al.* [49], adapté à nos travaux. Ce calcul aboutit, par approximations successives, à des résultats analytiques sur la sélectivité spectrale et l'intervalle spectral libre du laser DFB. Ensuite, l'expérience engagée pour mettre en évidence l'émission laser du point de vue spectral est décrite. Le montage interférentiel permet d'obtenir les mesures du seuil laser et de l'accordabilité sur la bande de fluorescence. Enfin, une émission laser inattendue à fort pompage est analysée puis justifiée en terme de couplage complexe de la structure DFB.

## 2.1. La théorie des modes couplés : les bases

A partir des équations de Maxwell, les théories de l'interaction entre la lumière et la matière dans le cadre de l'électrodynamique classique considèrent le milieu actif comme un système quantique à plusieurs états d'énergie et la lumière comme un champ électromagnétique classique. La théorie des modes couplés est établie sur les mêmes principes ; le milieu impose une polarisation à l'onde, et réciproquement. Cette polarisation est définie par une modulation spatiale de la susceptibilité générée dans le milieu actif lors d'un pompage interférentiel. Le pompage est donc implicite car la réponse du milieu est représentée par la variation des populations des états de la transition laser. L'onde électromagnétique est composée de deux termes qui interagissent au cours de leur propagation. L'équation d'onde scalaire déduite des équations de Maxwell est développée pour mettre en évidence le système d'équations couplées qui définit cette théorie. Il permet de conclure à un comportement laser dans une structure à contre-réaction répartie sous certaines conditions déterminées.

Tout d'abord, le système analysé est défini du point de vue de sa géométrie. L'écriture mathématique du champ électrique de l'onde émise et de la polarisation induite par le milieu sont explicitées. Ensuite, le calcul théorique est développé de l'équation d'onde scalaire sur le champ électrique au système couplé sur les amplitudes de ce même champ. Les développements de la susceptibilité sont simplifiés pour permettre une compréhension plus aisée. A partir de ce système, les conditions de seuil laser sont mises en évidence sous la forme d'une équation transcendante sur la constante de propagation complexe des amplitudes. L'approximation de fort gain est finalement présentée ; elle permet de constater les premiers résultats théoriques sur le spectre laser, qualitativement confirmés par les simulations numériques des précédents travaux concernant les lasers DFB.

### 2.1.1. Equations du couplage de modes par modulation de la susceptibilité

Les équations des modes couplés forment la base théorique du laser DFB. Une description mathématique de ce système est développée dans un premier temps. L'interaction dépend essentiellement de la susceptibilité du matériau, car celle-ci agit directement sur l'amplitude et la phase du champ électrique de l'onde. L'accent est mis par conséquent sur l'évolution de ce champ créé dans un milieu à fort gain. Enfin, un calcul théorique, par le biais d'une méthode d'approximation sur une longueur d'onde optique, aboutit aux équations linéaires couplées et les variables essentielles de l'émission laser sont définies.

#### 2.1.1.1. Principe physique des ondes couplées

La situation physique est définie par un milieu périodique à deux niveaux, dont la résonance est à élargissement homogène. Cette considération ne nuit pas à la description, compte tenu des échelles de temps considérées. L'onde électromagnétique est décrite par le champ électrique, composé de deux

amplitudes se propageant dans les deux sens opposés de la direction longitudinale ( $Oz$ ). Le schéma 2.1 représente le milieu périodique, de longueur  $L$ , de période  $\Lambda_B$ , qui définit le pas du réseau de Bragg imposé par le pompage optique interférentiel.

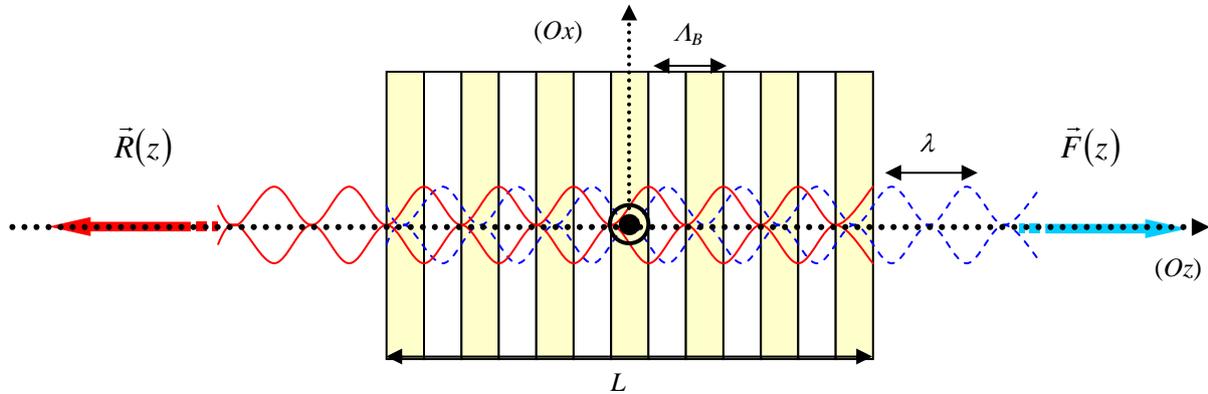


Figure 2.1 schéma de la propagation d'une onde électromagnétique dans une structure de Bragg.

Les ondes contrepropageantes  $\vec{F}(z)$  et  $\vec{R}(z)$  sont induites dans la structure.

L'origine du référentiel est choisie au centre du réseau. Pour ce qui concerne la lumière, le champ électrique est défini par une longueur d'onde  $\lambda$ , correspondant à une pulsation  $\omega$  qui est déterminée par les équations des modes couplés. Un laser peut néanmoins comporter plusieurs modes longitudinaux. Il existe une possibilité d'interaction entre ces différents modes de propagation. Le calcul théorique doit alors prendre en compte un ensemble de fréquences mais ce phénomène n'est pas considéré pour plus de simplicité. Le chapitre suivant fait intervenir l'ensemble de ces fréquences et démontre la sélection des modes dans les équations couplées.

L'expression mathématique du champ électrique qui peut se propager dans la structure périodique selon la direction ( $Oz$ ) s'écrit :

$$\vec{E}(z,t) = \frac{1}{2} \left( \vec{F}(z) e^{-j\beta_B z} + \vec{R}(z) e^{j\beta_B z} \right) e^{j\omega t} + c.c. \quad \text{Equation 2.3}$$

$\vec{F}(z)$  définit l'onde qui se propage dans le sens des  $z$  croissants et l'amplitude  $\vec{R}(z)$  est la partie du champ qui progresse dans le sens opposé. Elles sont définies pour un système à l'état stationnaire, c'est à dire sans dépendance temporelle. Chaque champ oscille à la pulsation  $\omega$ . Le vecteur d'onde longitudinal est le vecteur de Bragg  $\beta_B = \frac{l\pi}{\Lambda_B} = \frac{\omega_B}{c} n_0$  où  $l$  est l'ordre du réseau (correspondant à

l'ordre de diffraction) et  $n_0$  est l'indice effectif du milieu réel du milieu sans champ électromagnétique. Il faut insister ici sur le fait que l'onde laser peut se propager avec une pulsation différente de celle de Bragg ( $\omega_B$ ). Cependant elles restent proches l'une de l'autre. Le décalage théorique de chaque composante fréquentielle par rapport à ce vecteur d'onde sera déterminé par la variable  $\delta$ , une variable essentielle dans la résolution mathématique du problème physique. Le milieu, quant à lui, impose une réponse sur le champ  $E(z,t)$  par sa

polarisabilité. La polarisation de la lumière dépend alors du milieu périodique. Elle constitue le terme source dans l'apparition du champ électrique. Elle doit donc osciller à la même fréquence que le champ électrique :

$$\bar{P}(z,t) = \frac{1}{2} \left( \bar{P}_F(z) e^{-j\beta_B z} + \bar{P}_R(z) e^{j\beta_B z} \right) e^{j\omega t} + c.c. \quad \text{Equation 2.4}$$

Le champ électromagnétique est régi par l'électrodynamique classique et répond à l'équation de Maxwell à deux dimensions : la direction longitudinale et le temps. Pour simplifier le problème, les champs sont scalaires et la polarisation des ondes est linéaire transverse électrique. L'équation d'onde du champ devient alors:

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} E(z,t) - \frac{n_0^2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E(z,t) - \frac{\alpha_0}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial}{\partial t} E(z,t) = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} P(z,t) \quad \text{Equation 2.5}$$

où  $\varepsilon$  est la permittivité du milieu ( $\varepsilon = \varepsilon_0 \varepsilon_c$ ) et  $\alpha_0$  est un terme qui prend en compte les pertes dans le milieu produites par exemple par diffusion de la lumière sur des hétérogénéités. Cette équation, et en particulier sa résolution, dépend du terme de polarisation introduit par la présence du milieu. Il est donc prépondérant de connaître son expression et de l'explicitier avec des variables abordables.

#### 2.1.1.2. Gain et déphasage

Si le milieu est désordonné et ne présente pas d'anisotropie permanente, la polarisation peut s'écrire comme le produit du champ électrique par la susceptibilité du matériau, à la permittivité du milieu près. Il est utile de rappeler ici l'expression mathématique de cette susceptibilité :

$$\chi_{res}(z,t) = \frac{\Delta N_0(z,t)}{V} \frac{\mu^2}{\varepsilon_0 \hbar} \left( \frac{(\omega_a - \omega) - j\Delta\omega_h}{\Delta\omega_h^2 + (\omega_a - \omega)^2} \right) \quad \text{Equation 2.6}$$

où  $\mu$  est la norme de l'élément dipolaire électrique,  $\omega_a$  la pulsation de la transition considérée,  $\Delta\omega_h$  la largeur de la raie homogène et  $V$  le volume effectif d'interaction. La pulsation de Rabi est négligée car seul l'état stationnaire est considéré. Isoler la partie imaginaire de la susceptibilité permet d'introduire la section efficace d'émission stimulée  $\sigma_e(\omega)$  [50]:

$$\text{Im}\{ \chi_{res}(z) \} = \chi_i(z) = -2 \frac{\Delta N_0(z,t)}{V} \sigma_e(\omega) \quad \text{Equation 2.7}$$

Le signe négatif de la partie imaginaire de  $\chi_{res}$  indique que l'amplification est présente quand l'inversion de population est réalisée (la différence des populations devient négative). La dépendance spatio-temporelle de la susceptibilité diélectrique se justifie par la présence de la différence de population  $\Delta N_0$  entre les deux niveaux de la transition laser. Elle varie en espace

et en temps du fait du pompage interférentiel pulsé. Elle est déterminée par les équations de la matrice densité (ou équations de Bloch optiques) qui traitent de l'évolution statistique des densités de population de chaque niveau et de leur composante dipolaire respective (les cohérences des états peuplés). Pour ne pas alourdir le paragraphe, le détail du calcul est présenté en annexe B.

Considérons ainsi uniquement la variation spatiale pour rester dans le domaine du régime stationnaire. Comme l'irradiation excitatrice module les différences de population le long du milieu actif, l'indice de réfraction devient, en considérant la susceptibilité résonante très inférieure à 1 :

$$n(z) = n_0 \sqrt{1 + \frac{\chi_{res}(z)}{n_0^2}} \approx n_0 + \frac{1}{2} \chi_r(z) + \frac{j}{2} \chi_i(z) \quad \text{Equation 2.8}$$

Les parties imaginaire et réelle, permettent d'explicitier la variation de phase et d'amplitude du champ considéré. Pour simplifier l'écriture mathématique, les notions de gain et de déphasage sont plus appropriées. En effet, les amplitudes du champ électrique varient maintenant suivant le signe de la partie imaginaire de la susceptibilité et sont déphasées suivant la partie réelle. Le déphasage et le gain pour l'amplitude peuvent ainsi se noter :

$$\begin{aligned} \phi(z) &= \frac{\beta_B}{2} \chi_r(z) \\ g(z) &= \frac{\beta_B}{2} \chi_i(z) \end{aligned} \quad \text{Equation 2.9}$$

En effet, le champ électrique s'écrit alors :

$$E(z, t) = \frac{1}{2} \left( F(z) e^{-j(\beta_B + \phi(z))z} e^{g(z)z} + R(z) e^{j(\beta_B + \phi(z))z} e^{-g(z)z} \right) e^{j\omega t} + c.c. \quad \text{Equation 2.10}$$

Le champ subit ainsi une amplification ou une absorption suivant le signe de  $g(z)$ . D'autre part, une variation de la phase induit un décalage spectral par rapport au vecteur d'onde incident  $\beta_B$ . On constate donc que la variation de la susceptibilité due à la présence du champ implique directement un déphasage et une variation d'amplitude sur l'onde se propageant dans le milieu.

Les dépendances suivant  $z$  du gain et du déphasage sont équivalentes à celles de la différence de population, car c'est cette variable du système qui impose la modulation longitudinale des caractéristiques du milieu. Soumis à une illumination sinusoïdale, la différence de population possède la même période que l'excitation. Mais la forme du réseau d'amplitude est différente car elle dépend de l'intensité du pompage par rapport à l'intensité de saturation de la transition laser  $I_{sat} = \frac{\hbar\omega}{\sigma_e(\omega)}\gamma$ , où  $\gamma$  est le taux de relaxation moyen des états de la transition.

Ce phénomène de saturation interdit de prétendre à une modulation sinusoïdale du gain et du déphasage [50]. Ainsi, comme toute fonction périodique, la susceptibilité peut s'écrire sous la forme d'une série de Fourier :

$$\chi_{res} = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} c_{res}^m e^{2j \frac{m\pi}{\Lambda_B} z} \quad \text{Equation 2.11}$$

Cette expression contient toutes les fréquences qui décrivent la forme du réseau. Les constantes  $c_{res}^m$  définissent l'amplitude de chaque fréquence. Plus elles sont importantes, plus les fréquences correspondantes peuvent coupler les ondes émises, comme nous allons le constater dans le paragraphe suivant.

### 2.1.1.3. Les équations des modes couplés

La polarisation  $P$  dans l'approximation scalaire possède maintenant deux expressions mathématiques (équation 2.4 et  $P = \varepsilon_0 \chi_{res} E$ ). Pour connaître la relation entre les amplitudes de la polarisation et la susceptibilité diélectrique, il est nécessaire d'isoler les composantes d'un même mode, dont le sens de propagation correspond à celui de l'amplitude recherchée. Pour obtenir cette expression, une multiplication de l'expression 2.4 par le terme exponentiel suivant  $z$  de l'amplitude concernée ( $P_F$  ou  $P_R$ ) suivi d'une intégration sur une période du réseau permet d'isoler le terme recherché. La méthode s'apparente à une séparation des composantes de Fourier à l'aide de l'expression suivante :

$$\frac{k}{2\pi} \int_0^{2\pi/k} f(z + \zeta) e^{jk(z+\zeta)} d\zeta \quad \text{Equation 2.12}$$

où  $\zeta$  est la variable d'intégration et  $f(z)$  prend lieu et place de l'expression utile  $P$  ou  $E$ . On obtient ainsi une équation pour chaque amplitude en égalisant les composantes de même dépendance spatio-temporelle dans l'expression de  $P$  et des composantes de  $\chi_{res} E$  :

$$P_F(z) = \varepsilon_0 \sum_m c_{res}^m \frac{\beta_B}{2\pi} \int_0^{2\pi} \left( F(z + \zeta) e^{-2j \frac{m\pi}{\Lambda_B} (z+\zeta)} + R(z + \zeta) e^{j \left( \frac{2m\pi}{\Lambda_B} - \beta_B \right) (z+\zeta)} \right) d\zeta \quad \text{Equation 2.13}$$

$$P_R(z) = \varepsilon_0 \sum_m c_{res}^m \frac{\beta_B}{2\pi} \int_0^{2\pi} \left( R(z + \zeta) e^{2j \frac{m\pi}{\Lambda_B} (z+\zeta)} + F(z + \zeta) e^{-j \left( \frac{2m\pi}{\Lambda_B} - \beta_B \right) (z+\zeta)} \right) d\zeta \quad \text{Equation 2.14}$$

avec  $\beta_B = l\pi / \Lambda_B$ ,  $l$  étant l'ordre du réseau. Ces deux amplitudes sont non nulles si l'un des deux termes exponentiels dans chaque parenthèse est égal à 1. Le premier est effectivement non nul si  $m$  est nul. Le terme  $c_{res}^0$  correspond à une composante de la susceptibilité constante sur toute la longueur du réseau. C'est ce que l'on peut définir comme un fond continu de susceptibilité. Pour la deuxième composante, elle ne s'annule pas si  $m - l = 0$ . Seule la composante  $c_{res}^l$  peut, si elle est non nulle, induire une dépendance des composantes de polarisations avec les amplitudes des ondes contrapropagatives. Ces relations sont obtenues en considérant les amplitudes comme constantes sur une longueur d'onde optique<sup>†</sup>.

Les amplitudes de polarisation peuvent alors être écrites sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} P_F(z) &= \varepsilon_0 c_{res}^0 F(z) + \varepsilon_0 c_{res}^l R(z) \\ P_R(z) &= \varepsilon_0 c_{res}^{0*} R(z) + \varepsilon_0 c_{res}^{l*} F(z) \end{aligned} \quad \text{Equation 2.15}$$

Il suffit maintenant de remplacer ces expressions dans l'équation 2.5, de multiplier chaque terme de l'équation de Maxwell par  $e^{j\beta_B z}$  et d'intégrer sur une longueur d'onde optique, selon l'expression 2.12. On applique pour ce calcul l'approximation de l'enveloppe lentement variable sur  $z$  : les dérivées secondes des amplitudes du champ électrique sont négligeables devant les termes en dérivées premières. L'équation devient un système de deux équations couplées si les termes de fréquence sont isolés les uns des autres :

$$\begin{cases} \frac{\partial F(z)}{\partial z} = (\alpha_q - j\delta_q)F(z) - j\kappa R(z) \\ \frac{\partial R(z)}{\partial z} = -(\alpha_q - j\delta_q)R(z) - j\kappa F(z) \end{cases} \quad \text{Equation 2.16}$$

avec

$$\alpha_q = \frac{\beta_B}{2n_0^2} \text{Im}\{c_{res}^0\} - \frac{\alpha_0}{2\varepsilon_0 n_0 c} \quad \text{Equation 2.17}$$

$$\delta_q = \frac{1}{2\beta_z} \left( \beta_B^2 - \left( \frac{\omega n_0}{c} \right)^2 \right) + \frac{\beta_B}{2} \frac{\text{Re}\{c_{res}^0\}}{2n_0} \quad \text{Equation 2.18}$$

$$\kappa = \frac{\beta_B}{2n_0^2} c_{res}^l \quad \text{Equation 2.19}$$

On a considéré l'approximation  $\beta_B \cong \omega n_0 / c$ , excepté dans les termes intervenants dans le décalage spectral  $\delta_q$ . Ce dernier correspond à l'écart spectral entre la pulsation de Bragg et la pulsation du mode d'ordre  $q$ . En effet, nous allons mettre en évidence que le nombre de solutions possibles pour ce système est un nombre infini et discret, décrivant la présence de modes longitudinaux du laser.

<sup>†</sup> Elle est équivalente à l'approximation de l'enveloppe lentement variable sur la variable  $z$ .

L'amplitude du champ  $F(z)$  varie sur la longueur du réseau. Elle peut subir une amplification par le coefficient de gain  $\alpha_q$ . Elle est soumise d'autre part à une variation de la phase, ou en d'autres termes un décalage spectral de l'ordre de  $\delta_q$ . Mais le point le plus important réside dans le fait que ce système est fermé au sens où **chaque onde progressive se nourrit de l'autre**. Mathématiquement, cette interaction relie les amplitudes entre elles par un coefficient de couplage  $\kappa$ . Cette constante permet de quantifier le couplage entre les ondes ;  $\kappa$  peut être imaginaire, réel ou complexe, suivant le type de modulation longitudinale. En effet, ce coefficient dépend directement du développement en série de Fourier de la susceptibilité. Le couplage est purement imaginaire si l'émission laser a lieu au centre de la raie de résonance. Il sera purement réel très loin du centre de la résonance et complexe dans un cas intermédiaire (§ 1.1.2.2.).

Ces équations couplées sont générales car la modulation imposée au milieu peut être liée à la susceptibilité indirectement. En effet, quand un réseau est gravé dans une couche de gaine, la modulation primaire est celle de l'épaisseur du guide qui varie dans la direction de propagation. Mais la présence de ce réseau influe directement sur le (ou les) mode(s) transverse(s) du guide, et par conséquent sur l'indice effectif du (ou de ces) mode(s). Il est possible d'introduire cette variation en terme de susceptibilité, mais même si le raisonnement reste valable, le phénomène physique n'est plus correctement décrit.

### 2.1.2. Résultats théoriques du système laser stationnaire

Kogelnik [2] propose des solutions qui sont fondées sur la symétrie du système. A. Yariv [14] suggère quant à lui des solutions non symétriques avec une écriture du système couplé 2.16 légèrement modifiée. Le principe repose sur une modulation longitudinale de l'indice avec un gain uniforme sur toute la longueur du réseau. Ce développement est plus approprié pour les lasers DFB à réseau gravé et à injection électrique. Mais les solutions sur la répartition spectrale sont qualitativement identiques car l'équation transcendante qui en découle est la même. Nous n'utilisons donc pas ce raisonnement dans cette partie. Les solutions sont soit symétriques, soit antisymétriques. Les conditions de seuil laser sont obtenues par une équation transcendante sur les constantes de propagation complexes des amplitudes du champ électrique.

#### 2.1.2.1. Solutions du système d'équations couplées

La forme des amplitudes du champ électrique s'écrit, aux vues des équations couplées :

$$\begin{aligned} F(z) &= r_a e^{\sigma_q z} + r_b e^{-\sigma_q z} \\ R(z) &= s_a e^{\sigma_q z} + s_b e^{-\sigma_q z} \end{aligned} \quad \text{Equation 2.20}$$

avec  $\sigma_q^2 = \kappa^2 + (\alpha_q - j\delta_q)^2$ , et  $r_a$ ,  $r_b$ ,  $s_a$ ,  $s_b$  des constantes. Les expressions des amplitudes  $F(z)$  et  $R(z)$  soumises aux équations couplées sont symétriques (resp. antisymétriques) si la relation  $E(z) = E(-z)$  (resp.  $E(-z) = -E(z)$ ) est vérifiée.

Les conditions aux limites sont quant à elles nulles ( $E(-L/2) = E(L/2) = 0$ ). Elles imposent ainsi une relation d'égalité (au signe près) entre les constantes de l'équation 2.20. Dans ce cas les solutions sont les suivantes :

$$\begin{aligned} F(z) &= \sinh\left[\sigma_q\left(z + \frac{L}{2}\right)\right] \\ R(z) &= \pm \sinh\left[\sigma_q\left(z - \frac{L}{2}\right)\right] \end{aligned} \quad \text{Equation 2.21}$$

Si l'origine du référentiel se trouve en entrée du réseau, les solutions sont identiques avec le changement de variable  $z + L/2 \rightarrow z$  pour  $F(z)$  et  $z - L/2 \rightarrow z - L$  pour  $R(z)$ . Le signe positif correspond à une solution impaire et le signe négatif s'applique pour une solution paire. Les amplitudes sont choisies pour être égales à l'unité car elles ne peuvent pas être déterminées par ce système linéaire. Seules des études numériques permettent de les quantifier.

Les conditions aux limites imposent d'elles-mêmes un système auto-oscillant puisqu'aucune onde incidente initiale ne parcourt le réseau. Si les deux ondes contrepropageantes sont non nulles en sortie du réseau, une propagation d'onde est générée. Il est donc nécessaire pour résoudre le système de connaître les trois paramètres principaux,  $\delta_q$ ,  $\alpha_q$ , et  $\kappa$ , par l'intermédiaire de la constante de propagation complexe  $\sigma_q$ . Pour connaître les valeurs propres de  $\sigma_q$ , insérons les solutions trouvées dans les équations couplées :

$$\begin{aligned} -\sigma_q \sinh\left(\frac{1}{2}\sigma_q L\right) + (\alpha_q - j\delta_q) \cosh\left(\frac{1}{2}\sigma_q L\right) &= \pm j\kappa \cosh\left(\frac{1}{2}\sigma_q L\right) \\ -\sigma_q \cosh\left(\frac{1}{2}\sigma_q L\right) + (\alpha_q - j\delta_q) \sinh\left(\frac{1}{2}\sigma_q L\right) &= \mp j\kappa \sinh\left(\frac{1}{2}\sigma_q L\right) \end{aligned} \quad \text{Equation 2.22}$$

En combinant les résultats obtenus, on obtient alors deux équations :

$$\begin{aligned} \sigma_q + (\alpha_q - j\delta_q) &= \pm j\kappa e^{\sigma_q L} \\ \sigma_q - (\alpha_q - j\delta_q) &= \mp j\kappa e^{-\sigma_q L} \end{aligned} \quad \text{Equation 2.23}$$

Ces deux équations permettent d'introduire l'équation transcendante qui détermine les constantes de propagation complexes de l'émission laser :

$$\sigma_q \coth(\sigma_q L) = \alpha_q - j\delta_q \quad \text{Equation 2.24}$$

Cette équation transcendante est difficile à résoudre car elle fait intervenir des nombres complexes. Sa résolution numérique utilise une méthode de Newton-Raphson à une ou deux dimensions en exprimant la constante de propagation  $\sigma_q$  sous la forme  $x+jy$ . La constante de couplage  $\kappa$  est normalement connue car elle dépend du matériau utilisé et des puissances interférant sur la couche. Connaissant les valeurs discrètes de  $\sigma_q$ , les valeurs de  $\delta_q$  et de  $\alpha_q$  sont déterminées. Mais il est possible de trouver des valeurs de seuil laser et des décalages spectraux approximatifs dans certaines configurations.

### 2.1.2.2. Seuil laser et sélectivité spectrale théorique

Les solutions discrètes de l'équation transcendante peuvent être obtenues analytiquement si on se permet quelques approximations dans certains cas particuliers. Pour commencer, on peut supposer un coefficient de couplage très faible par rapport au gain moyen du milieu actif : c'est l'approximation de fort gain moyen. La constante de propagation se réduit alors à  $\sigma_q \approx \alpha_q - j\delta_q$ . L'introduction de cette nouvelle relation dans la première équation du système 2.23 apporte une indication sur la sélectivité et la répartition spectrale de l'émission laser.

En isolant les valeurs absolues et les phases de chaque membre du système 2.23, on obtient le système suivant:

$$\begin{aligned} |\kappa|^2 &\approx 4(\alpha_q^2 + \delta_q^2)e^{-2\alpha L} \\ \arctan\left(\frac{\delta_q}{\alpha_q}\right) &\approx \left(-\arctan\left(\frac{\text{Im}\{\kappa\}}{\text{Re}\{\kappa\}}\right) + \delta_q L + \left(q \pm \frac{1}{2}\right)\pi\right) \end{aligned} \quad \text{Equation 2.25}$$

$q$  étant un entier relatif. Le sens du signe devant  $\frac{1}{2}$  conserve l'indication de la parité des solutions. Pour comprendre l'intérêt de ce système d'équation, il est nécessaire de comparer  $\delta_q$  à  $\alpha_q$ . Comme ce dernier est grand devant  $\kappa$  dans cette configuration, on distingue deux cas possibles : soit  $\delta_q$  tend vers 0 et l'émission est proche de la fréquence de Bragg, soit  $\delta_q$  est grand (on le supposera de l'ordre de  $\alpha_q$  pour quantifier cet écart par rapport à la fréquence de Bragg) et on peut avoir accès aux seuils des modes longitudinaux d'ordre supérieur. Cette approximation est possible si l'écart spectral est exprimé dans la dimension du gain. Si  $\delta_q \approx 0$ , alors la seconde équation du système précédent devient :

$$\delta_q L \approx \left(\arctan\left(\frac{\text{Im}\{\kappa\}}{\text{Re}\{\kappa\}}\right) + \left(q \mp \frac{1}{2}\right)\pi\right) \left(\frac{\alpha_q L}{\alpha_q L - 1}\right) \quad \text{Equation 2.26}$$

L'expression 2.26 est le résultat important de cette théorie. Il relie le décalage spectral du mode fondamental à la constante de couplage dans l'approximation de fort gain. Si la partie imaginaire de  $\kappa$  est beaucoup plus grande que la partie réelle, le premier terme de l'égalité tend vers  $\pi/2$ . Ainsi, il existe une résonance, et une seule, pour un décalage spectral nul ( $q = 0$  pour une solution symétrique unique). **Un couplage uniquement par le gain implique un seul mode d'émission laser au seuil.** En revanche, si c'est la partie réelle de la constante de couplage qui prédomine, le même terme tend vers 0 et la première résonance a lieu pour  $\delta_0 \approx \pm \pi/2L \left(\frac{\alpha L}{\alpha L - 1}\right)^\dagger$ .

<sup>†</sup> Le terme de l'expression  $\alpha$  correspond au gain moyen au seuil d'émission. Il ne porte pas l'indice 0 car il peut être confondu avec les pertes résiduelles  $\alpha_0$  introduites dans les équations. Il est précisé dans la partie expérimentale que les  $\alpha_q$  sont en fait égaux avec une très bonne approximation.

Le terme  $\delta_q$  défini par l'équation 2.18 possède en fait un terme additionnel qui dépend de la partie réelle de la valeur moyenne de la susceptibilité résonante du milieu actif. Ce terme est négligé dans le raisonnement théorique pour rendre plus aisée la compréhension du problème physique. Si on compare cette expression en négligeant pour le moment  $\kappa_1$  et avec la relation suivante  $\delta_q \approx \frac{n_0}{c}(\omega_B - \omega)$ , on peut écrire le décalage spectral en fréquence  $\Delta\nu_0$  sous la forme suivante :

$$\Delta\nu_0 = \mp \frac{c}{4n_0L} \left( \frac{\alpha L}{\alpha L - 1} \right) \quad \text{Equation 2.27}$$

Ainsi, plusieurs résonances lasers peuvent exister suivant les valeurs de  $q$ . Dans le cas d'un couplage par le gain, le mode fondamental se trouve exactement à la fréquence de Bragg. Les modes longitudinaux d'ordre supérieur sont espacés de  $|\Delta\nu_0|$  de part et d'autre de la fréquence de Bragg. Si le couplage dépend préférentiellement de la partie réelle de la susceptibilité, le mode fondamental est divisé en deux raies distinctes, espacées de  $2|\Delta\nu_0|$  autour de la fréquence de Bragg. **Une bande spectrale interdite existe donc pour un laser à couplage d'indice.**

Les simulations numériques de H. Kogelnik et C.V. Shank [2] vérifient ce comportement pour les modes fondamentaux. Pour apporter une comparaison, le laser Fabry Pérot possède un intervalle spectral libre (ISL) égal à  $\Delta\nu_l = \frac{c}{2n_{eff}L}$ .

Dans le cas d'un couplage par le gain, l'intervalle entre le mode fondamental et le premier mode d'ordre supérieur du laser DFB est égal à la moitié de l'ISL du laser Fabry Pérot à  $\alpha L/(\alpha L - 1)$  près. Ce facteur de confinement tend très rapidement vers 1 dès que  $\alpha L > 3$ . Pour des valeurs de gain plus élevées, l'intervalle entre la fréquence de Bragg et la fréquence laser tend vers la moitié de l'ISL de la cavité Fabry Pérot. La comparaison entre les écarts spectraux sur les modes longitudinaux des deux structures sera exploitée dans la seconde partie. Néanmoins, l'écart entre les modes longitudinaux du laser DFB à fort gain moyen est supérieur ou inférieur à l'ISL d'un laser Fabry Pérot de même longueur suivant les valeurs de  $\alpha L$ .

Dans l'approximation de gain faible, les calculs un peu plus ardues montrent également le même phénomène. Le couplage par le gain implique une seule raie laser centrée sur la fréquence de Bragg et un couplage par l'indice montre une bande interdite de l'ordre de  $2\kappa$ . L'écart entre les modes longitudinaux est uniquement déterminé par les simulations.

En ce qui concerne la sélectivité spectrale, un laser Fabry Pérot ne permet pas, à courbe de gain identique, de séparer aussi aisément les modes longitudinaux sans l'ajout de dispositifs externes. En effet, le seuil d'émission pour le mode fondamental repose également sur la constante de couplage. Celle-ci doit augmenter, selon l'équation sur le seuil du système 2.25 de  $4\delta_q^2 e^{-2\alpha L}$  à mesure

que l'on veut atteindre les modes longitudinaux d'ordre supérieur. Cette affirmation est uniquement valable si le gain ne dépend pas de la fréquence d'émission. Pour un colorant par exemple, la courbe de gain est si large que la variation de  $\alpha$  avec la fréquence reste négligeable pour  $L > 0,5 \text{ mm}$  et  $n_0 \approx 1,5$ . Les simulations montrent à ce propos une sélectivité pour le gain de l'ordre de 10 dB entre le mode fondamental et le mode supérieur, correspondant à une augmentation de la constante de couplage d'un facteur 2 environ.

La théorie des modes couplés convient parfaitement aux lasers à gain distribué. Elle met en exergue les phénomènes physiques essentiels, comme la présence des modulations de gain ou d'indice nécessaires à son fonctionnement et la contre réaction répartie entre les deux ondes contrapropagatives. Nous avons présenté un raisonnement pour des modes de même fréquence. Il peut s'étendre à une combinaison linéaire de champs de différentes longueurs d'onde, mais la conclusion sur les équations couplées reste inchangée par des considérations supplémentaires. Le traitement multimode est exposé au prochain chapitre car il permet d'introduire les modes transverses pour une structure guidante.

Par ailleurs, les résultats sont accessibles par des méthodes numériques. Néanmoins, une approximation de fort gain permet d'aboutir à une estimation de l'intervalle spectral libre et de la sélectivité en énergie sur chaque mode longitudinal dans le cas d'un couplage par le gain. Les molécules utilisées pour réaliser nos lasers sont des colorants et il a été montré que les lasers DFB à colorants sont couplés essentiellement par le gain [22]. L'émission doit être alors monochromatique au seuil.

## 2.2. L'émission laser bimodale : Contradictions

Nous allons maintenant présenter les premières mesures expérimentales que nous avons effectuées pour analyser ce système optique. Les études réalisées ont porté sur des couches minces de polymères dopés avec des colorants laser habituellement utilisés dans les systèmes industriels. Ces couches minces sont soumises à une excitation optique par interférences. Les dispositifs permettant ce type de pompage sont nombreux et bien connus. Mais le montage choisi est composé d'un miroir de Lloyd car il permet une rotation autour d'un axe pour permettre une variation continue de l'interfrange. Il comporte donc certains avantages et quelques inconvénients, détaillés dans cette partie. Le dispositif expérimental offre une approche rapide des caractéristiques de seuil laser et d'accordabilité des films minces. Mais le point le plus important de ces expériences est l'apparition d'une structure spectrale double sur une grande partie de la gamme d'accordabilité laser.

Ainsi, le premier paragraphe est consacré au montage expérimental. Il comprend les paramètres de la méthode de dépôt pour la configuration choisie, une critique de l'interféromètre utilisé pour le pompage laser et l'ensemble du montage. Ensuite, les résultats obtenus pour le seuil, l'accordabilité, et le comportement laser à haute intensité révèlent une émission bimodale.

### 2.2.1. Le dispositif expérimental

#### 2.2.1.1. Les couches minces

La configuration des films minces est déterminée par les conditions nécessaires à l'émission laser, précédemment explicitées. La solution active est constituée de solvant dans lequel sont insérées les poudres de polymère et de colorant. Les concentrations sont déterminées pour éviter d'une part la formation d'agrégats et une absorption trop importante, et d'autre part pour fixer de façon approximative l'épaisseur future de la couche.

Les configurations substrats/polymères/colorants sont précisées pour chaque expérience mais la plus commune est la configuration verre/PMMA/Rhodamine 6G. Les concentrations typiques sont de 150 g/l pour le polymère, et de  $4 \cdot 10^{-3}$  mol/l pour le colorant dissout dans du 1-1-2, trichloro-éthane. Les couches minces sont déposées par *spin-coating* avec des vitesses et des durées de *spin-up* et de *spin-off* (figure 1.8) variables suivant les composés de la solution. Le dépôt des couches est effectué en atmosphère saturée pour obtenir une bonne homogénéité de surface. L'épaisseur est contrôlée par un profilomètre Dektak 3 ST sur 2 mm. Pour la configuration citée, l'épaisseur est de 1,9  $\mu\text{m}$ . Enfin, l'évaporation dure 10 minutes dans une étuve à 80°C : le solvant disparaît de la couche totalement. La mesure des spectres d'absorption et de fluorescence (figure 2.2) permet de

connaître la densité optique<sup>†</sup> ( $D.O.$ ) des couches qui varie entre 0,5 et 0,7 à la longueur d'onde de travail, correspondant à une absorption linéaire faible signal  $\alpha_f$  de l'ordre de  $1500 \text{ cm}^{-1}$ .

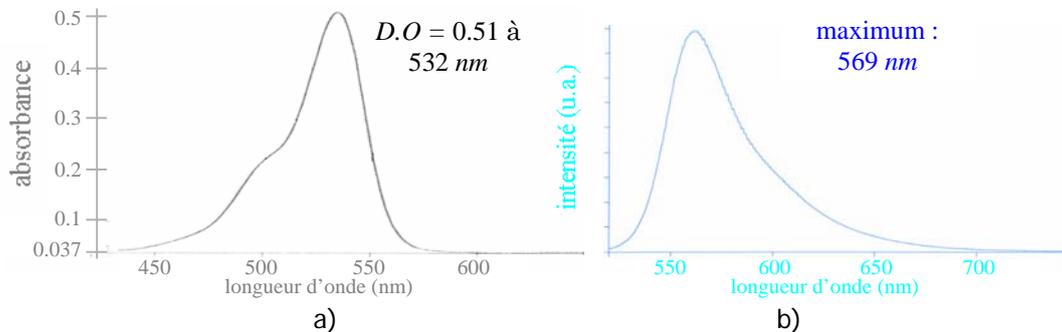


Figure 2.2 Spectres de la couche mince de rhodamine 6G dans du PMMA ( $1,9 \mu\text{m}$  d'épaisseur).  
 a) spectre d'absorption obtenu avec un spectrophotomètre Perkin Elmer Lambda 19  
 b) spectre de fluorescence obtenu avec un spectrofluorimètre Hitachi F4500

Ces spectres de photoluminescence profitent d'un bon décalage (*Stokes shift*) entre absorption et fluorescence pour éviter les effets d'interférence entre ces deux processus qui risquent de diminuer l'efficacité de l'émission stimulée. D'autre part, l'absorption maximale à  $530 \text{ nm}$  offre la possibilité d'une excitation à une raie doublée d'un laser Nd:YAG ( $532 \text{ nm}$ ). Enfin, la bande d'émission spontanée est très large (environ  $50 \text{ nm}$  de largeur totale à mi-hauteur) et permet ainsi une accordabilité théorique sur plusieurs dizaines de nanomètres.

#### 2.2.1.2. Les interféromètres

L'accordabilité est obtenue mécaniquement par variation de l'interfrange de pompage  $\Lambda_B$ . Le miroir de Lloyd est un interféromètre qui permet une variation angulaire symétrique entre les faisceaux de pompe. Le principe repose sur la technique dite du coin de cube : tout faisceau, quelque soit son angle d'incidence, est réfléchi dans la même direction. En effet, il se compose essentiellement d'un miroir à haute réflexion à  $45^\circ$  et un support de plaque qui permet l'orthogonalité entre la couche mince, collée au support, et le miroir. Le faisceau pompe est envoyé sur l'axe central de rotation du montage. Ainsi, une partie du faisceau (la moitié gauche sur la figure 2.3a) illumine directement le film, tandis que la seconde partie (la moitié droite) se réfléchit et interfère sur la plaquette avec la première partie.

Le décalage temporel entre ces deux sections de faisceau s'étend entre 0 et  $25 \text{ ps}$  pour une surface d'interaction sur la couche mince de  $5 \text{ mm}$ . Autrement dit, la cohérence d'une impulsion excitatrice de  $35 \text{ ps}$  est conservée, d'autant que le maximum de puissance est concentré dans la zone où le décalage temporel est le plus faible.

<sup>†</sup> Elle correspond au logarithme décimal du rapport des intensités transmises et incidentes. Elle permet de déterminer l'intensité de saturation d'un matériau à partir de la section efficace d'émission stimulée.

L'interféromètre de Lloyd possède des réglages sur le miroir et le support de plaquette qui dépendent essentiellement de l'axe du faisceau de pompe. En effet, la moindre variation de direction du laser excitateur brise la symétrie du montage. De plus, ce dispositif est compact et lourd. Ce poids n'est pas équilibré parfaitement et c'est pourquoi la rotation se fait dans l'espace et non plus sur un plan. Cet interféromètre est donc délicat à aligner bien que la rotation totale ne dépasse jamais  $3^\circ$  pour les expériences sur la rhodamine. En revanche, la rotation autour de son axe permet de conserver la symétrie angulaire entre les sections du faisceau incident et la normale à la couche mince. C'est l'un des principaux avantages de ce dispositif. L'angle  $\theta$  entre l'axe de la pompe et le miroir, qui correspond au demi-angle d'interférences, est ainsi un paramètre essentiel car il contrôle le pas du réseau.

D'autre part, la détection par fibre optique s'effectue sur la tranche du film polymère. Elle permet de suivre continuellement la rotation du dispositif et de conserver un contact optique identique pour toutes les positions angulaires par une proximité importante voire un contact avec le film. Une étude de la répartition verticale du spectre d'émission est possible par un balayage le long de la tranche. Enfin, la couche polymère peut être translatée par rapport au miroir et ainsi illuminée par la pompe à des endroits différents pour observer la variation des pertes d'émission au cours de sa propagation dans la zone non éclairée.

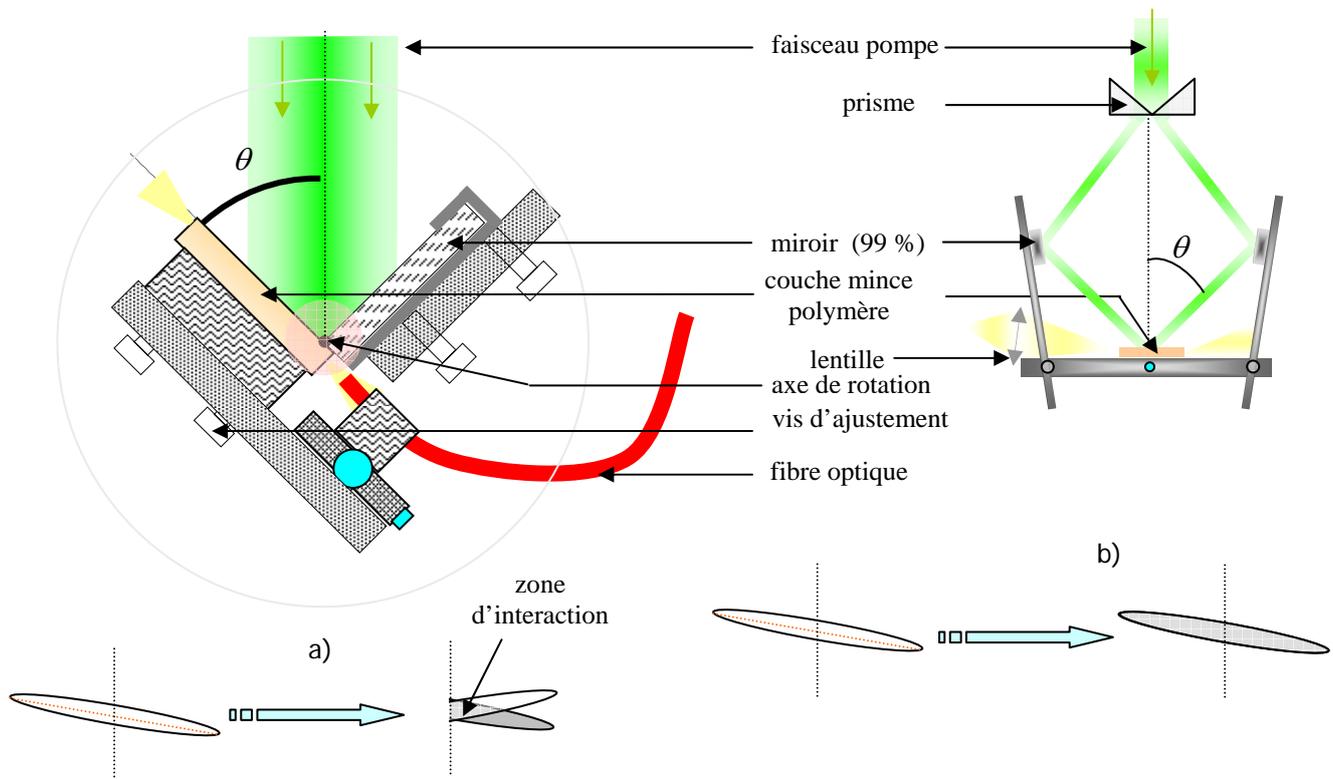


Figure 2.3 interféromètres. a) montage de Lloyd. b) montage interférométrique mécanique. En dessous de chaque dispositif est représenté le recouvrement spatial des faisceaux secondaires sur la couche mince polymère dans le cas où la lentille cylindrique est présente.

L'interféromètre de la figure 2.3b est le dispositif utilisé par L. Rocha *et al.*[39]. Il présente des similitudes avec le miroir de Lloyd, malgré une géométrie très différente. Deux prismes permettent la séparation du faisceau excitateur en deux sources cohérentes. Les faisceaux secondaires sont symétriques par rapport à la normale au film et présentent un décalage de phase uniquement angulaire. Les deux miroirs sont chacun montés sur un axe qui s'incline pour conserver cette symétrie. Ils peuvent être remplacés pour une excitation à 355 nm du laser Nd :YAG triplé en fréquence. La plaquette est fixe et la détection peut se faire par une fibre optique ou par une lentille convergente. La détection est dans ce dernier cas plus sensible.

Mais l'avantage majeur de ce dispositif concerne le recouvrement spatial des deux sources. En effet, la section transverse de la source primaire (précédant les prismes) peut présenter des différences avec un faisceau circulaire parfait. Pour prendre un exemple, la lentille cylindrique transforme le faisceau sous une forme elliptique. Dans ce cas, les axes de l'ellipse peuvent ne pas être alignés avec les axes principaux de la symétrie du montage. Ainsi, les faisceaux qui interagissent sur la plaquette, conservent tous les deux les axes de l'ellipse et ainsi le recouvrement des sections est très important, comparativement au miroir de Lloyd (figure 2.3).

### 2.2.1.3. Le montage

L'intégration du dispositif interférométrique dans un montage expérimental nécessite une mise en forme du faisceau et une détection appropriée. Le montage est représenté sur la figure 2.4. Le laser excitateur, de la société Quantel (modèle YG 472) est constitué d'un barreau de Nd : YAG (pour *neodimium doped yttrium aluminium garnet*). L'impulsion, obtenue par déclenchement passif et blocage de mode actif, est doublée en fréquence par un cristal de KDP. Ce laser délivre des impulsions à polarisation linéaire, de longueur d'onde 532 nm et d'une durée moyenne de 35 ps. La fluctuation de la durée temporelle est de l'ordre de 10 %.

Par ailleurs, les impulsions sont créées à un taux de répétition de 1 Hz mais il peut fonctionner en mode *monocoup* par une invite externe du système de détection. La puissance de sortie du faisceau excitateur est de l'ordre de la millijoule et est contrôlée par un variateur d'intensité au travers d'une sélection en polarisation. La polarisation du faisceau effectue une rotation axiale par rapport aux lignes neutres d'une lame demi-onde et un polariseur de Glan-Taylor sélectionne la contribution d'énergie par projection sur son axe. Ce variateur d'énergie est suivi par un système afocal, composé de deux lentilles de focale respective  $f_1 = -50 \text{ mm}$  et  $f_2 = 200 \text{ mm}$ , et un diaphragme : ils sélectionnent une partie du faisceau dont la distribution spatiale en intensité est à peu près constante. L'énergie du faisceau incident est ensuite contrôlée par une photodiode qui récupère la réflexion de la pompe sur une lame de verre. Nous pouvons également utiliser un joulemètre Digirad modèle R-752 couplé à une tête pyroélectrique type P-444 qui offre une lecture numérique de l'énergie. Il est beaucoup plus précis car son étalonnage est mieux maîtrisé et sa précision meilleure (l'incertitude relative est de  $10^{-2}$ ). La lentille cylindrique, de focale 90 mm, transforme le faisceau circulaire en un pinceau lumineux, de 20  $\mu\text{m}$  d'épaisseur, perpendiculaire à l'axe de rotation du miroir de Lloyd : la lumière est concentrée sur une seule dimension, perpendiculaire aux franges du réseau.

Enfin, la détection de la lumière émise par la couche mince est uniquement spectrale. Une fibre optique multimode récupère une émission localisée sur la tranche du film, dans l'axe de l'illumination. La lumière est ensuite sélectionnée par une fente source d'un spectromètre composé d'un réseau blazé de 1200 traits/mm et de deux lentilles convergentes de focale 300 mm. Ce réseau permet une visualisation de l'émission sur environ 50 nm près du centre du spectre de l'émission spontanée du colorant. La dispersion par le réseau est analysée au foyer de la seconde lentilles par une caméra CCD Hamamatsu C- 4880, refroidie à  $-30^{\circ}\text{C}$  par un triple étage Peltier. Cette caméra possède une matrice CCD de  $1000 \times 1018$  pixels et un obturateur électronique qui présente un temps d'ouverture minimum de 75 ms. La sensibilité du capteur, contrôlé par le logiciel Hipic 4.1.3, peut être différente suivant le mode d'utilisation (*mode faible, haut ou très haut gain, mode super matrice, mode comptage de photons*).

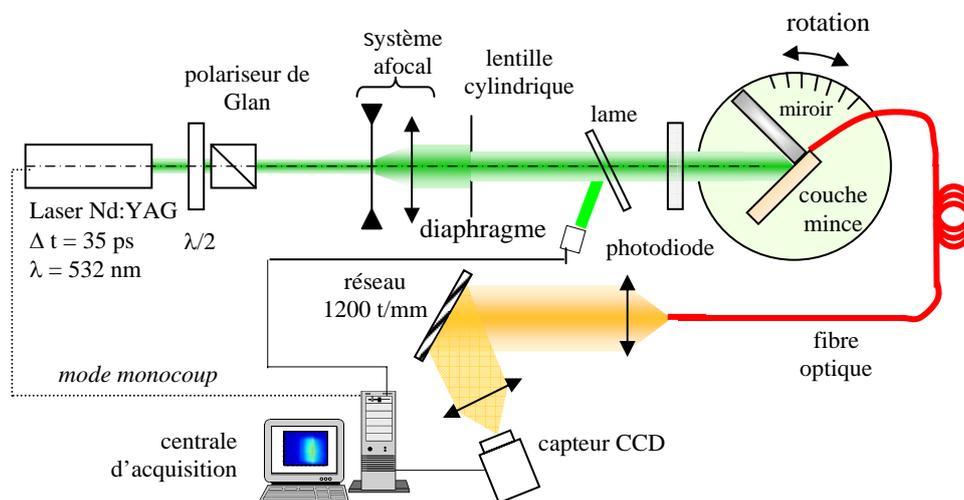


Figure 2.4 montage expérimental. La centrale d'acquisition peut déclencher le laser à distance. Ce déclenchement est synchronisé avec le capteur CCD.

### 2.2.2. Démonstration de l'émission laser accordable

Le dispositif expérimental a permis de vérifier dans un premier temps le comportement à seuil de l'émission de la couche mince polymère. Ce seuil est caractérisé par une émission spectrale fine et une variation du rapport de puissance entre le laser polymère et le laser Nd : YAG. Outre cette justification sommaire de l'émission laser, l'accordabilité sur le spectre de fluorescence permet de confirmer ce type d'émission pour différentes configurations. Par ailleurs, une comparaison entre ces couches minces permet d'aboutir à la notion de confinement de la lumière dans le film polymère qui sera développée dans le troisième chapitre. Mais les expériences sont limitées par la photodégradation des couches minces car le pompage picoseconde implique une dynamique de puissance importante.

### 2.2.2.1. Le seuil laser

L'émission de la couche mince polymère est contrôlée tout d'abord par le joulemètre et le spectromètre. La première expérience consiste à vérifier le seuil laser pour la raie spectrale, tant au niveau de sa largeur à mi-hauteur, que de son amplitude maximale. L'illumination est effectuée sans lentille cylindrique dans un premiers temps. Le diaphragme limite le diamètre du faisceau à 10 mm. La pompe illumine le film sur environ 7 mm car l'angle  $\theta$  est proche de 45°. Cet angle provient du fait que la configuration verre/PMMA/Rh6G impose un réseau d'ordre 2 par les longueurs d'ondes de pompe et d'émission, et par l'indice de réfraction moyen, comme cela sera détaillé lors des expériences d'accordabilité. Nous avons mesuré le seuil laser à une longueur d'onde 580 nm. Ce seuil apparaît à 50  $\mu\text{J}/\text{cm}^2$  dans cette configuration. Les figures 2.5 montrent l'évolution de la puissance émise (a) et du rétrécissement spectral (b) en fonction de la puissance de pompe. Ainsi, pour des valeurs de pompe inférieures à 1,4  $\text{MW}/\text{cm}^2$ , la largeur totale de la raie à mi-hauteur n'est pas représentée car l'émission est trop large bande et la puissance émise est trop faible. Sa valeur au-dessus du seuil laser est de 5 Å. D'autre part, le rapport des puissances n'est plus constant au-dessus du même seuil. Le niveau de bruit des acquisitions est estimé à 120 unités arbitraires (u.a.).

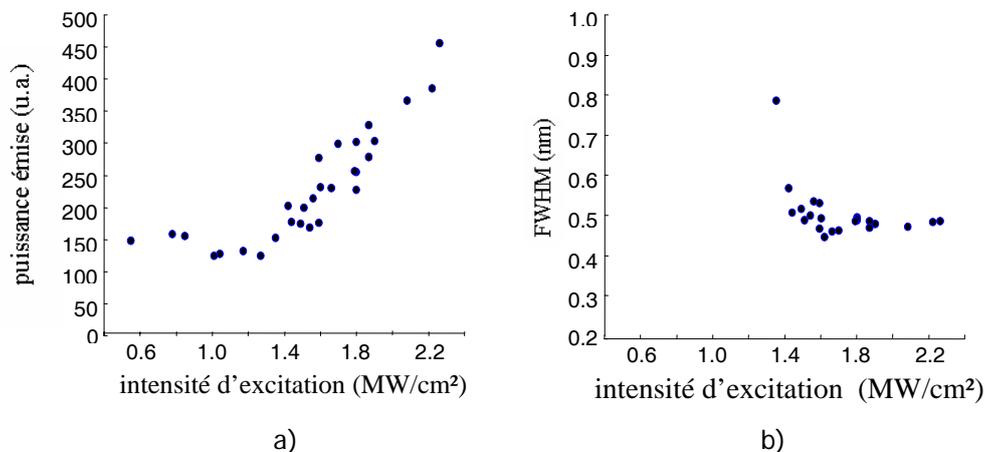


Figure 2.5 seuil d'excitation laser. Les points proviennent du même spectre d'émission. a) seuil en intensité de l'émission laser. b) seuil en largeur spectrale.

L'intensité seuil de 1,4  $\text{MW}/\text{cm}^2$  est à comparer à l'intensité de saturation de l'absorption de la transition entre l'état fondamental de la rhodamine 6G et son état excité  $S_1$  : 3,8  $\text{MW}/\text{cm}^2$ . Il existe un facteur de 2,6 entre ces deux valeurs, ce qui semble montrer un faible rendement laser. La valeur obtenue par Maeda *et al.* [43] pour le même matériau est trois ordres de grandeur plus bas, mais le pompage est nanoseconde, les concentrations de colorant beaucoup plus importantes et la longueur d'onde n'est pas précisée. Concernant la largeur à mi-hauteur de la raie laser, le spectre est en limite de résolution de la détection. Le seuil laser pour ces couches polymères a également été obtenu avec la lentille cylindrique et une ouverture de diaphragme de 2,6 mm. La valeur mesurée est de

21 MW/cm<sup>2</sup>. Ce seuil est légèrement supérieur au précédent. Ce résultat s'oppose au fait que la lumière dans le second cas est confinée sur un espace restreint à une dimension. Les pertes d'efficacité devraient ainsi chuter brutalement pour laisser l'émission laser s'installer. Mais l'analyse de ces résultats doit prendre en compte la durée temporelle de l'émission laser car le seuil laser doit augmenter lorsque la durée d'impulsion diminue. Cette durée augmente de plus avec la longueur du réseau. Une expérience menée par A. Müller [37] a confirmé ce fait pour la rhodamine 6G en solution avec une durée de pompe de 35 ps. Dans notre cas, le seuil laser plus important pour une illumination confinée pourrait être justifié par la réponse temporelle du laser.

#### 2.2.2.2. L'accordabilité laser des films polymères

Les lois de la diffraction pour le miroir de Lloyd impliquent une relation de proportionnalité entre le sinus de l'angle  $\theta$  entre le faisceau incident et le miroir et le rapport des longueurs d'onde :

$$\lambda_{emis} = \frac{2n_{eff} \Lambda_B}{m} = \frac{2n_{eff}}{m} \frac{\lambda_p}{2 \sin \theta}$$

$$\Rightarrow \sin \theta = \frac{n_{eff}}{m} \frac{\lambda_p}{\lambda_{emis}}$$

Equation 2.28

Si le rapport des longueurs d'onde  $\lambda_{emis} / \lambda_p$  est inférieur à l'indice effectif de réfraction, l'ordre du réseau ne peut pas être égal à 1. Le maximum pour la longueur d'onde de l'émission laser de la couche mince PMMA/Rh6G, d'indice effectif moyen 1,45, est à 595 nm et ce rapport est inférieur à 1,12. De ce fait seul un réseau d'ordre 2 au minimum est possible<sup>†</sup>, avec un angle théorique correspondant de 40,4°.

L'accordabilité de la raie d'émission apporte une justification supplémentaire du régime laser. En effet, l'émission spontanée amplifiée est présente sans réseau au delà d'un certain seuil, mais celui-ci est trop rapidement atteint par notre régime d'excitation. La variation continue du pas du réseau a permis de mesurer des gammes de spectres laser pour deux configurations différentes : verre / PMMA / Rh6G (figure 2.6b) et quartz / PMMA / DCM (figure 2.6a). Les courbes ci-dessous reproduisent l'évolution du spectre avec l'angle entre la pompe et le miroir.

La rhodamine6G offre une émission laser entre 564 nm et 592 nm. La précision sur les valeurs expérimentales absolues est de 1 nm. Cet intervalle correspond au spectre de fluorescence du film, qui s'étend de 550 nm à 600 nm, en négligeant l'étalement des raies. L'émission laser semble plus efficace autour de 575 nm, ce qui traduit une différence de quelques nanomètres entre le maximum de fluorescence et le maximum d'émission laser. Ce décalage peut provenir de la réabsorption de l'émission par la rhodamine aux plus courtes longueurs d'ondes.

<sup>†</sup> Par contre, un pompage avec la troisième harmonique du laser Nd :YAG permet d'obtenir un réseau du premier ordre avec un angle théorique de 59,9°.

Les pertes induites sont alors plus importantes pour la partie bleue du spectre et l'émission laser est plus efficace sur la partie rouge. Dans le paragraphe 1.3.2.1, nous avons montré qu'une émission laser inférieure à la nanoseconde pour une durée d'excitation de 30 ps évite un couplage inter-système entre les états singulets et les états triplets. Si on considère une émission aussi courte, l'interférence entre ces deux systèmes est négligeable. Néanmoins ces mesures ne permettent pas d'apporter un éclaircissement sur le rôle quantitatif de ces deux processus opposés (réabsorption et couplage inter système). En effet, nous avons tenté d'ajuster la puissance d'entrée pour constater le plus grand intervalle d'accordabilité. Ainsi, l'enveloppe en puissance des raies laser ne traduit aucun effet de variation de gain laser dans l'accordabilité. Ce propos est uniquement valable pour la figure 2.6b. Concernant les mesures des angles, un décalage de 4° par rapport aux valeurs attendues est attribué à une erreur systématique sur la position angulaire initiale de l'interféromètre.

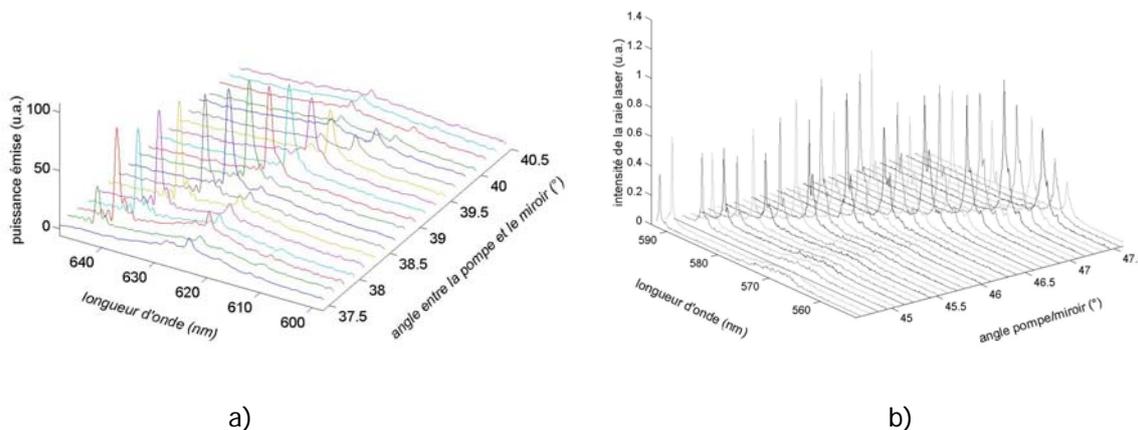


Figure 2.6 spectres d'accordabilité laser des films polymères: émission laser sur 30 nm.  
a) la configuration quartz / PMMA / DCM. b) la configuration verre / PMMA / Rh6g .

La couche mince de PMMA / DCM dont l'épaisseur est de 1,9  $\mu\text{m}$ , présente des spectres d'absorption et d'émission qui se recouvrent moins et la réabsorption est donc négligeable pour les faibles longueurs d'onde. Le maximum d'absorption est à 460 nm et la densité optique à 532 nm est compensée par une concentration plus importante que celle de la rhodamine 6G ( $3.10^{-2} M$ ). L'émission couvre également un large spectre (près de 100 nm) autour d'un maximum à 598 nm. L'émission laser est décalée, l'intervalle étant de 614-645 nm.

Des études supplémentaires sur ce matériau sont nécessaires pour justifier cet effet. Le troisième chapitre met en évidence l'importance des propriétés de guide d'onde sur la position spectrale de l'émission spontanée amplifiée. Par contre, les valeurs d'angles recouvrent les angles théoriques avec un décalage systématique de 1° de plus.

### 2.2.2.3. La photo-dégradation des couches minces

L'étude de l'accordabilité sur les couches de PMMA / Rh6G a mis en évidence la photodégradation du matériau : les spectres se sont décalés vers les courtes longueurs d'ondes au cours des tirs laser. Pour mettre en évidence cet effet de vieillissement, un montage interférométrique du type de celui schématisé en figure 2.3b est plus approprié.

**En effet, le réglage du miroir de Lloyd nécessite un grand nombre de tirs en présence du film.** De ce fait, deux faisceaux secondaires de la source laser Nd :YaG sont adaptés pour créer le réseau d'interférences nécessaire à l'émission laser. Les polarisations, les puissances et le décalage temporel relatifs entre eux sont vérifiés et optimisés pour l'émission laser. Un échantillon test permet de régler l'interférence et le spectre est obtenu par les méthodes exposées plus haut. La longueur d'onde de travail est moins bien contrôlée car aucune rotation n'est possible. Les acquisitions présentées sont toujours obtenues pour la même configuration du film. La puissance de travail est de  $100 \mu J$ , la section illuminée, sans lentille cylindrique, est de  $1,6 \text{ mm}^2$ . La variation spectrale et l'amplitude du pic sont représentées sur la figure 2.7. Les points expérimentaux caractérisent la moyenne sur 50 tirs car des fluctuations d'énergie sont présentes, non seulement sur l'excitation, mais surtout sur l'émission laser. Elles ne permettent pas une reproductibilité tir à tir. L'évolution de la longueur d'onde est linéaire et décroît relativement peu avec l'éclairement (le coefficient de la droite est de  $8,3 \cdot 10^{-5} \text{ nm} / \text{tir}$ ).

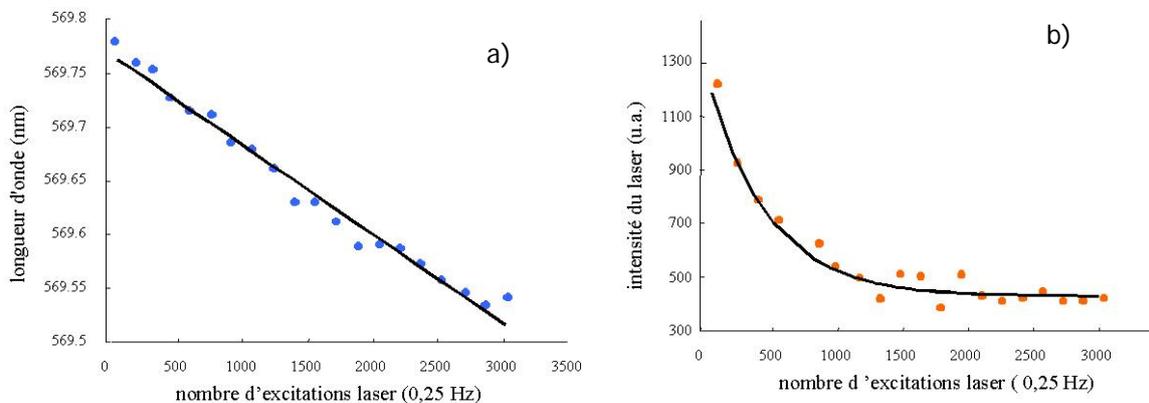


Figure 2.7 dégradation de l'émission laser près de  $579 \text{ nm}$ . L'intensité est de  $7 \text{ MW/cm}^2$ .

a) évolution de la longueur d'onde et courbe ajustée (variation de  $0,08 \text{ pm} / \text{tir}$ )

b) évolution de la puissance laser émise et courbe ajustée (temps de décroissance égal à 462 tirs).

La puissance émise par la couche mince est par contre dégradée sous une forme exponentielle. Un ajustement des points expérimentaux montre en effet que la puissance est réduite de 90% après 500 tirs environ, ce qui dénote une dégradation du milieu actif au cours des expériences. Néanmoins, dans la zone de décroissance très faible qui suit ce comportement exponentiel, l'émission laser est toujours présente et permet d'étudier son évolution avec l'intensité de pompe. Dans les couches minces, la justification de ces processus repose sur la mauvaise tenue au flux par variation de température.

### 2.2.3. Structure modale complexe

Au cours des expériences illustrant l'accordabilité, le spectre d'émission peut présenter deux raies pour des intensités de pompage supérieures au seuil d'un facteur 5 environ. Cette structure n'est pas attendue pour des émissions proches du maximum d'émission spontanée car le couplage dépend uniquement du caractère imaginaire de la susceptibilité diélectrique du milieu actif. En revanche, il est possible d'obtenir un couplage par l'indice, en d'autres termes une bande interdite d'émission laser centrée sur la fréquence de Bragg, pour les émissions éloignées de la fréquence de gain maximum. Ainsi, les résultats expérimentaux sont présentés tout d'abord par une expérience sur l'évolution en intensité. Ensuite, une tentative d'explication sera justifiée dans les termes de la partie théorique.

#### 2.2.3.1. Etude en intensité de la raie double

Le comportement à fort pompage du laser est délicat à mener du fait de la photodégradation plus rapide des couches minces. L'expérience consiste à étudier l'évolution de la raie laser en fonction de la puissance d'entrée. Le pompage est effectué en présence de la lentille cylindrique et le diaphragme a une ouverture de 2,6 mm de diamètre. La détection spectrale est optimisée pour obtenir une résolution spectrale relative de 0,5 nm. La caméra CCD fonctionne en mode *binning* : elle effectue une somme verticale de 8 lignes, pour améliorer le rapport signal sur bruit. Les deux pics ne sont pas résolus. La largeur totale à mi-hauteur augmente de 0,5 nm, alors qu'elle devrait rester constante, voire diminuer (figure 2.8a).

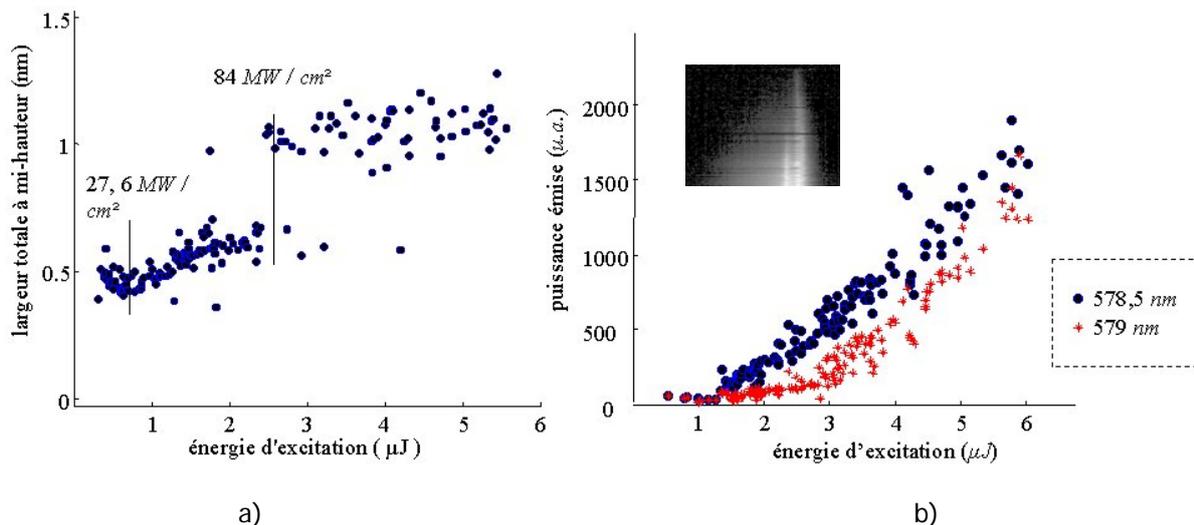


Figure 2.8 Mise en évidence de l'émission bimodale à deux longueurs d'ondes différentes.  
 a) largeur totale à mi-hauteur en fonction de la puissance d'entrée (obtenue après un filtrage en fréquence).  
 b) distribution en énergie et effet de seuil de la seconde raie laser. L'encart présente l'évolution du spectre avec la puissance d'entrée.

La largeur totale à mi-hauteur, obtenue après un filtrage spatial numérique par transformée de Fourier, montre toute l'évolution de la raie laser sur un grand intervalle de puissance d'entrée. Jusqu'à  $27,6 \text{ MW/cm}^2$ , la raie spectrale s'affine. Ce phénomène vérifie la sélectivité spectrale d'une émission laser. Au delà de cette valeur, le pic commence par s'élargir et subit une transition discontinue aux alentours de  $84 \text{ MW/cm}^2$ . Ce comportement est confirmé par le spectre de l'émission (figure 2.8b). Les longueurs d'onde sont égales à  $579 \text{ nm}$  et  $578,5 \text{ nm}$ , les raies n'étant pas complètement séparées (le pouvoir de résolution du spectromètre est égal à 60 000).

L'énergie d'entrée lors de l'apparition du second mode est de  $2,4 \mu\text{J}$ , qui correspond à une intensité seuil de  $84 \text{ MW/cm}^2$ . On peut ainsi conclure que le seuil de ce deuxième mode est supérieur d'un facteur 3 à celui du mode fondamental. Au delà de ce seuil, le pic principal ne possède plus tout à fait la même linéarité de réponse. Il semble donc exister un second mode laser pour des intensités de pompage importantes. Il est à préciser que l'écart entre les deux raies ne varie pas sur toute l'accordabilité laser. Néanmoins, la résolution limitée du spectromètre nous permet seulement de conclure qu'il n'augmente pas avec la longueur d'onde. Et pour finir cette étude en intensité, la photodégradation des couches minces conserve cette donnée : les deux pics évoluent dans le spectre de la même façon.

L'écart en longueur d'onde entre le mode fondamental et le premier mode d'ordre supérieur est ainsi estimé à  $0,5 \text{ nm}$ . L'intervalle spectral libre d'un laser DFB est donné par l'équation 2.27 :

$$\Delta\nu_0 = \mp \frac{c}{4n_0L} \left( \frac{\alpha L}{\alpha L - 1} \right) \quad \text{Equation 2.29}$$

Pour un laser DFB classique à couplage par l'indice, la bande interdite centrale est égal à deux fois cet écart dans l'approximation de fort gain. Un intervalle spectral libre (ISL) de  $2 \times 0,5 \text{ nm}$ , correspond à une longueur de la structure de  $120 \mu\text{m}$  pour un laser Fabry Pérot, alors que la longueur totale du réseau d'illumination est de  $1,95 \text{ mm}$ . Par ailleurs, le gain moyen  $\alpha$  répond à la relation suivante :

$$\alpha = \frac{\alpha_f}{1 + I/I_s} \quad \text{Equation 2.30}$$

La rhodamine 6G possède un fort gain à faible signal  $\alpha_f$  ( $1500 \text{ cm}^{-1}$ ). Si on considère un contraste d'interférence de 0,5, le fond continu du gain  $\alpha L$  est de l'ordre de 15. L'intervalle entre les premiers modes longitudinaux prévue par la théorie dans l'approximation de fort gain moyen est de  $2 \cdot 10^{-2} \text{ nm}$ . De plus, les simulations de Kogelnik et Shank [2] traduisent un intervalle de  $5 \cdot 10^{-2} \text{ nm}$  pour un fort couplage et un gain moyen proche de zéro. Il semble donc difficile d'attribuer à ce mode un caractère longitudinal.

Un faible recouvrement des deux sources secondaires ne peut pas justifié une

telle différence d'ordre de grandeur entre les observations et la valeur théorique. Néanmoins, l'effet de seuil justifie le caractère modal de cette raie laser.

Le mode observé semble donc être un mode laser d'ordre supérieur comme son comportement spectral tend à l'indiquer. L'écart spectral entre ces deux raies lasers est trop important pour confirmer que ce pic correspond à un mode d'ordre supérieur. De plus, aucun mode laser d'ordre supérieur ne devrait apparaître seul, selon la théorie des modes couplés. Le paragraphe qui suit tente d'énumérer toutes les causes possibles de ce phénomène et conclut à la possibilité d'un couplage complexe dans le film mince.

### 2.2.3.2. Discussion sur la structure spectrale

Les expériences qui viennent d'être décrites ont montré l'existence d'un seuil d'émission laser à  $21 \text{ MW/cm}^2$ , d'une accordabilité de  $30 \text{ nm}$  au centre de la bande de fluorescence et d'une raie double au delà de  $84 \text{ MW/cm}^2$ . Cette structure spectrale pose une difficulté d'interprétation par la théorie développée dans la première partie. Dans le cas d'un couplage par le gain unique, l'émission au seuil est monomode. Les modes d'ordre supérieur apparaissent par deux, de part et d'autre de la fréquence de Bragg. L'expérience confirme l'émission monochromatique au seuil. Mais nos résultats ont montré qu'un second mode apparaissait seul. Ce mode est attribué au processus laser car il présente un seuil d'émission, et il s'accorde avec le pas du réseau sur le même intervalle que le mode fondamental, excepté aux extrémités où le gain devient beaucoup plus faible. Ce mode possède un seuil supérieur au mode fondamental dont la fréquence est supérieure. L'intervalle spectral avec le premier mode de seuil plus bas est beaucoup plus grand que la valeur prédite par la théorie. Le spectre laser à haute intensité perd donc sa symétrie théorique et les écarts spectraux ne concordent pas. Plusieurs arguments peuvent être invoqués dans une première approche.

Tout d'abord, le matériel expérimental peut être mis en cause. En particulier, le miroir de Lloyd possède l'inconvénient majeur de la dissymétrie du recouvrement spatial des faisceaux secondaires. En effet, la modulation du gain n'est pas symétrique car le maximum de puissance est concentré sur l'axe de rotation, c'est à dire au bord du réseau. Ainsi, la modulation décroît en amplitude, d'une extrémité à l'autre de la cavité DFB.

Ensuite, la courbe de fluorescence présente un recouvrement spectral avec la courbe d'absorption à haute fréquence. La réabsorption est néanmoins à négligeable à l'échelle du nanomètre. Aucun effet de dissymétrie ne peut être dû à cet effet.

Par contre, les lasers DFB à couplage externes sont réputés pour briser la symétrie des seuils de chaque mode longitudinal [16]. Il peut s'agir alors d'une réflexion différente sur chaque extrémité de la couche mince. Cependant, les expériences ont montré que, quelle que soit la position de l'impact du faisceau excitateur sur la plaquette, les deux modes apparaissent.

Il pourrait s'agir d'un phénomène de couplage complexe. L'étude théorique considère un couplage uniquement par le gain. Les résultats numériques de E. Kapon *et al.* [20] montrent que le spectre reste symétrique dès qu'une modulation de l'indice apparaît, quelque soit la valeur de la constante de couplage. Le seuil

d'émission pour des constantes de couplage  $\kappa L$  supérieures à 4 devient différent pour le mode d'ordre supérieur (dont le décalage  $\delta$  se situe vers les plus basses fréquences). Ce raisonnement indiquerait que le laser DFB est surcouplé, c'est à dire que la distribution en intensité est plus importante au centre de la structure qu'aux extrémités. De plus, la présence d'un couplage par l'indice tend à séparer les modes longitudinaux d'autant plus que le coefficient de couplage  $\kappa L$  est grand.

L'origine de la modulation, même faible, de l'indice n'est pas clairement établie. La courbe de gain du milieu actif est dissymétrique. Cette bande très large est susceptible d'introduire une modulation de l'indice réel lors d'un pompage interférentiel. Ainsi un faible couplage par l'indice peut survenir et changer la répartition des seuils des modes laser. Par ailleurs, le réseau est du second ordre. Les réseaux d'ordre 2 sont connus pour présenter un couplage entre les modes guidés et les modes radiatifs dans le cas de réseaux gravés [3]. Dans ce cas, un champ laser peut être produit suivant une direction orthogonale au film. Mais la couche mince ne permet pas de guider la lumière car l'indice du PMMA est inférieur à l'indice du verre. Une étude sur le couplage possible entre les modes de radiation est envisageable pour confirmer ce point.

De nouvelles mesures sont nécessaires pour justifier un tel processus physique. L'observation de la structure fine du spectre et de son évolution en intensité est primordiale car la résolution du spectromètre limité ne permet pas de quantifier efficacement l'écart en fréquence entre les deux modes. D'autre part, seule une détermination de la constante de couplage peut permettre d'offrir une comparaison concrète entre théorie et expérience

## Conclusion

Ce chapitre présente les bases théoriques d'un laser DFB en couche mince dopé avec un colorant. Après avoir développé le calcul des équations couplées, par le biais de l'expression de la susceptibilité diélectrique du matériau, cette étude a mis en évidence l'importance de trois paramètres fondamentaux du laser. Le premier est la constante de couplage  $\kappa$ , qui traduit l'efficacité de couplage entre les deux ondes contrapropagatives qui sont créées dans la structure périodique. Le second paramètre est le gain moyen  $\alpha$  fourni par le milieu actif, en particulier par la susceptibilité moyenne imaginaire. Enfin, le décalage spectral  $\delta_q$  représente l'écart fréquentiel entre la fréquence angulaire de Bragg et la pulsation du mode d'ordre  $q$  créé dans le réseau.

Les résultats analytiques dans l'approximation de fort gain moyen ont montré que l'intervalle spectral dépend du type de couplage. Si l'indice est modulé sur la longueur et si le gain est uniforme, la différence de fréquence entre les deux modes fondamentaux est proportionnel à l'intervalle spectral libre du laser Fabry Pérot. Lorsque le couplage entre les champs est due uniquement à la modulation de gain, le mode fondamental se trouve à la pulsation de Bragg et les modes d'ordre supérieur sont espacés entre eux d'un intervalle proportionnel au même ISL.

Cette théorie est en accord avec les résultats expérimentaux car les couches minces polymères dopés avec des colorants ont vérifié l'émission laser monomodal au seuil à partir d'un montage de type miroir de Lloyd. Ils ont donné l'occasion d'introduire l'importance de la durée du pompage pulsé dans cette valeur de seuil. De plus, le dispositif utilisé a permis de constater une émission accordable sur la grande partie de la fluorescence du dopant dans deux configurations de couches différentes. Les nombreuses expériences ont également permis de quantifier la photodégradation des couches minces par le pompage optique interférentiel. Enfin, une étude en intensité a montré l'apparition d'une structure modale double. Cette seconde raie laser est attribuée à un mode de propagation d'ordre 1 car il subit les mêmes évolutions que la fréquence du mode fondamental lors de la variation du pas du réseau. Mais les intervalles spectraux entre les deux modes ne coïncident pas avec les prédictions théoriques..

La théorie des modes couplés en régime stationnaire présentée dans la première partie n'a pas permis d'expliquer la présence à haute intensité d'un seul mode d'ordre supérieur, alors qu'un second mode est attendu au même seuil. Une tentative d'explication a été menée en considérant la possibilité d'un couplage complexe.

---

[49] M. Sargent III, W.H. Swanter, J. D. Thomas, « *Theory of a distributed feedback laser* », IEEE J. Quant. Elec., vol. QE-16, n°4, (465-472), 1980

[50] A. Brignon, « *Conjugaison de phase par mélange d'onde dans les milieux laser* », Ann. Phys., EDP Sciences, \$ 3.4 et \$ 4.1, 1999

**MODES TRANSVERSES**  
**D'UN LASER A GAIN**  
**DISTRIBUE**

<b>3. MODES TRANSVERSES D'UN LASER A GAIN DISTRIBUE.....</b>	<b>78</b>
INTRODUCTION .....	79
3.1. LE GUIDE D'ONDE PLAN ASYMETRIQUE EN REGIME LASER .....	80
3.1.1. <i>Les modes transverses d'un guide plan asymétrique</i> .....	80
3.1.1.1. L'équation de helmholtz sur l'amplitude transverse.....	81
3.1.1.2. Equation transcendante du guide plan asymétrique.....	83
3.1.1.3. Distribution transverse et facteur de confinement .....	85
3.1.2. <i>Les fondements de la sélection modale</i> .....	87
3.1.2.1. La base mathématique des modes couplés .....	87
3.1.2.2. Correction sur la constante de propagation .....	88
3.1.2.3. Equation des modes couplés généralisée.....	90
3.2. SPECTRE MULTI-MODAL D'UN LASER DFB POLYMERE.....	93
3.2.1. <i>Accordabilité laser</i> .....	93
3.2.1.1. Configuration nécessaire au guide multi-mode .....	94
3.2.1.2. Accordabilité des modes transverses.....	95
3.2.1.3. Superposition des résultats .....	96
3.2.2. <i>Evolution en intensité d'un spectre multimode</i> .....	99
3.2.2.1. Répartition des seuils .....	99
3.2.2.2. Discussion .....	100
CONCLUSION .....	102

## Introduction

Les premières expériences sur les films minces polymères dopés avec la rhodamine 6G ont permis de démontrer la génération de l'effet laser dans une couche mince. L'intérêt de ce type de laser intégré est le confinement de la lumière dans la couche polymère. C'est pourquoi la plupart des lasers DFB classiques sont également des guides d'onde plan. Pour étudier l'influence des propriétés de guide d'onde dans une couche polymère, celle-ci doit vérifier certaines conditions concernant essentiellement l'indice de réfraction et l'épaisseur. Le polymère est majoritaire dans le film mince et impose ainsi son indice de réfraction. En ce qui concerne le poly(vinyl-carbazole), ou PVK, son indice de réfraction convient parfaitement à l'élaboration d'un guide d'onde plan lorsque le matériau est déposée sur un substrat de verre. Les couches réalisées offrent ainsi l'opportunité d'observer le comportement laser d'un film polymère en configuration de guide plan.

Du point de vue théorique, il est tout d'abord indispensable de présenter les modes transverses d'un guide d'onde plan asymétrique dans le régime de propagation linéaire des ondes électromagnétiques, puis de vérifier l'influence de cette structure sur les équations des modes couplés. Ces deux théories sont complémentaires car elles permettent d'apporter une correction sur les constantes de propagation des modes guidés. A cette occasion, on pourra généraliser le développement sur les constantes de couplage de chaque mode. Dans un second temps, les expériences sur le spectre d'émission laser accordable de la couche mince de PVK / DCM sont présentées selon l'épaisseur du film. Les mesures d'accordabilité sont ensuite comparées aux simulations des équations de dispersion du guide. Enfin, une étude en énergie est effectuée pour rendre compte de l'évolution de chaque mode transverse suivant leur position spectrale.

### 3.1. Le guide d'onde plan asymétrique en régime laser

La lumière peut être confinée dans une couche mince si les indices de réfraction des milieux environnants sont inférieurs à celui du film guidant : une réflexion totale aux interfaces peut avoir lieu. Si ce n'est pas le cas, l'énergie lumineuse s'échappe du guide par transmissions successives. De plus, un guide d'onde présente des propriétés de sélection discrète des modes de propagation. En effet, une onde peut exister dans cette structure si sa fréquence correspond à certains paramètres structurels du guide. Pour prendre un exemple simple, une couche mince de  $1\mu\text{m}$  d'épaisseur ne peut transporter un champ électromagnétique de longueur d'onde égale à  $10\mu\text{m}$ . De plus, si cette dernière est bien inférieure à l'épaisseur, elle se décompose à l'intérieur du guide sur la base des modes propres de propagation. En d'autres termes, le nombre d'angles de réflexion possibles d'un rayon lumineux qui se propage entre deux interfaces est discret et fini : seuls ces modes peuvent se propager en conservant la plus grande partie de leur énergie dans la couche. Les modes propres de propagation sont définis à partir des conditions de réflexion totale aux interfaces, dans les directions transverses à la propagation. C'est pourquoi on nomme ces résonances les modes transverses du guide d'onde plan.

Le guide plan peut être symétrique : les deux milieux à chaque interface du film ont des indices de réfraction égaux. Dans le cas inverse, où les indices des trois milieux sont tous différents, le guide est asymétrique. Il n'existe pas de profondes différences physiques entre ces deux configurations.

Le but de cette partie est de quantifier les différents modes transverses d'un guide plan asymétrique. Le raisonnement théorique repose sur l'équation de Helmholtz scalaire de l'évolution spatiale de l'amplitude transverse du champ électrique. Les conditions aux interfaces mènent ensuite à l'équation transcendante qui est résolue graphiquement, pour finir par une présentation de la disposition des différents modes de propagation et de la notion de facteur de confinement.

#### 3.1.1. Les modes transverses d'un guide plan asymétrique

Nous allons nous attacher à expliciter les différents modes transverses électriques d'un guide d'onde plan quelconque. Le raisonnement considère une onde plane propagative traversant un milieu d'épaisseur  $2e$  selon l'axe ( $Oz$ ) (figure 3.1) L'étude théorique est basée sur l'équation scalaire de Helmholtz que l'on applique à chaque couche du guide, en imposant l'évanescence des ondes des couches supérieures et inférieures, avec les conditions de continuité des champs aux interfaces. L'équation transcendante est la déduction d'un système de trois équations, présenté sous la forme matricielle. Elle permet de déterminer les constantes de propagation ou les indices effectifs des différents modes et aboutit finalement à la distribution transverse en intensité de chaque mode.

### 3.1.1.1. L'équation de helmholtz sur l'amplitude transverse

L'équation d'onde scalaire est obtenue à partir des équations de Maxwell dans le cas linéaire. Seule la dépendance des amplitudes du champ dans les directions orthogonales à la propagation est considérée. Leurs dépendances transverses sont alors exprimées séparément de leurs dépendances longitudinales et temporelles qui ne varient que par la présence de gain ou d'absorption au cours de la propagation. Le champ électrique prend alors la forme suivante :

$$E_{xc}(x, y, z, t) = \frac{1}{2} \left[ A_c(x, y) e^{jk_{yc}} + B_c(x, y) e^{-jk_{yc}} \right] e^{j(\omega t - \beta_z z)} + c.c. \quad \text{Equation 3.1}$$

Dans cette expression, l'indice 'x' est introduit pour signifier que le champ est à polarisation linéaire transverse électrique, et 'c' indique la couche considérée. Ainsi le champ électrique de l'onde possède une expression mathématique pour chaque domaine de l'espace. La constante de propagation longitudinale est identique dans chaque milieu pour conserver la même vitesse de groupe dans chaque couche du guide plan. L'axe optique, ou axe de propagation se trouve être suivant (Oz). L'axe transverse (Oy) est défini par la normale aux couches et la direction latérale (Ox) correspond à l'axe perpendiculaire à (Oz) et parallèle aux couches (figure 3.1).

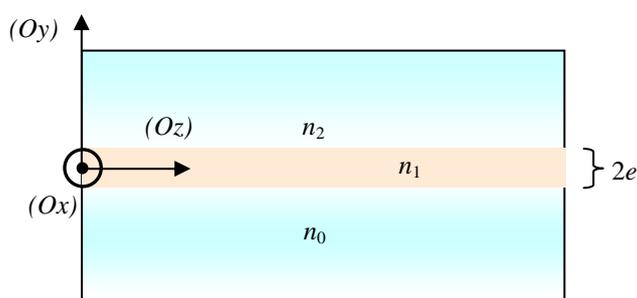


Figure 3.1 Schéma du principe physique de la propagation dans un guide plan asymétrique.

L'équation de Helmholtz s'applique à chaque milieu. En considérant le milieu infini dans la direction Ox, elle s'écrit :

$$\frac{\partial^2}{\partial y^2} E_{xc} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} E_{xc} + \beta_g^2 n_c^2 E_{xc} = 0, \quad \text{Equation 3.2}$$

où  $\beta_g$  est la constante de propagation de l'onde dans le vide.

Pour le substrat et le superstrat, les amplitudes des champs doivent induire des ondes évanescentes. Ceci implique que les composantes latérales des vecteurs d'onde de ces champs doivent être imaginaires et tels que l'onde s'annule à

l'infini. Si  $2e$  est l'épaisseur de la couche guidante, centrée sur l'origine du système de coordonnées, le champ latéral peut s'écrire :

$$E_x(x, y, z) = \begin{cases} A_2 e^{-p(y-e)} e^{-j\beta_g z} & y \geq e \\ (A_1 e^{jky} + B_1 e^{-jky}) e^{-j\beta_g z} & |y| < e \\ B_0 e^{q(y+e)} e^{-j\beta_g z} & y \leq -e \end{cases} \quad \text{Equation 3.3}$$

L'expression de ces champs introduite dans l'équation 3.2 implique un système de trois équations. En considérant uniquement les termes des composantes transverses des constantes de propagations, les trois équations deviennent :

$$\begin{aligned} k^2 &= \beta_g^2 n_1^2 - \beta_z^2 \\ p^2 &= \beta_g^2 n_0^2 + \beta_z^2 \\ q^2 &= \beta_g^2 n_2^2 + \beta_z^2 \end{aligned} \quad \text{Equation 3.4}$$

Posons maintenant les conditions aux interfaces des éléments du guide plan. Pour une polarisation parallèle au guide, les composantes tangentielles des champs électriques et magnétiques sont conservées aux interfaces. Ainsi les composantes tangentielles du champ  $E_{x0}(x, e, z)$  et du champ  $E_{x2}(x, -e, z)$  sont respectivement égales aux composantes tangentielles des champs  $E_{x1}(x, e, z)$  et  $E_{x1}(x, -e, z)$ .

Et d'après la relation de Maxwell sur le rotationnel de  $E$ , les composantes tangentielles des dérivées du champ  $E$  connaissent les mêmes égalités aux interfaces. Ces quatre égalités forment un système d'équations qui est la base des conditions de propagation d'une onde dans le guide. Il peut être intéressant de mettre ce système d'équations sous une forme matricielle. Tout d'abord, il permet d'obtenir une équation qui traduit la condition d'existence d'onde guidée dans les couches. Et ensuite, il permet de vérifier que la résolution du système pour les amplitudes des champs est possible (par l'intermédiaire du déterminant sur les équations choisies). Sous cette forme, le système devient :

$$\begin{pmatrix} -e^{-jke} & 0 & 1 & -e^{jke} \\ ke^{jke} & -jp & 0 & -ke^{-jke} \\ ke^{-jke} & 0 & jq & -ke^{jke} \\ -e^{jke} & 1 & 0 & -e^{-jke} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_1 \\ A_2 \\ B_0 \\ B_1 \end{pmatrix} = 0 \quad \text{Equation 3.5}$$

A partir de l'équation précédente, on peut déterminer les différentes constantes de propagation qui satisfont aux conditions d'interfaces.

### 3.1.1.2. Equation transcendante du guide plan asymétrique

La nullité du déterminant de cette matrice induit une condition sur les valeurs des constantes de propagation de chaque milieu. Après quelques calculs, une relation entre les différentes constantes permet de conclure la résolution du problème car il ne manque plus qu'une équation reliant les quatre inconnues  $k$ ,  $p$ ,  $q$  et  $\beta_z$ . En effet, le système d'équation 3.4 relie les composantes transverses à la composante longitudinale. Ainsi, l'équation qui suit permet de résoudre le système :

$$\tan(2ke) = \frac{p/k + q/k}{1 - \frac{pq}{k^2}} \quad \text{Equation 3.6}$$

A partir de cette équation transcendante, on peut déduire numériquement les solutions pour  $k$ . Ces solutions sont finies et discrètes, si les conditions de guidage sont respectées ( $n_1 > n_0 > n_2^\dagger$ ). Elles correspondent aux modes transverses du guide. Ces modes guidés ont la propriété d'être confinés et de répondre à différents indices effectifs de réfraction dans le guide. Ils représentent le rapport de la composante longitudinale  $\beta_z$  sur le vecteur d'onde de la propagation dans le vide du champ électrique  $\beta_g$  pour chaque mode.

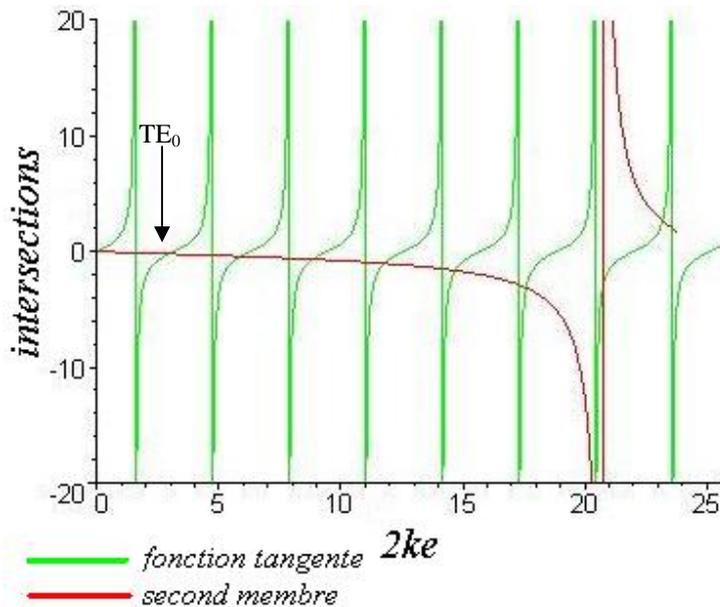


Figure 3.2 résolution numérique des différents modes transverses électriques d'un guide plan asymétrique, d'épaisseur  $2,9 \mu\text{m}$ , d'indice de couches  $n_1=1,68$ ,  $n_0=1,5$ ,  $n_2=1$  pour une longueur d'onde de  $580 \text{ nm}$ .

<sup>†</sup> Ces inégalités sont choisies arbitrairement. En effet,  $n_0$  peut être inférieur à  $n_2$ , ce qui revient au même système en inversant les expressions des amplitudes entre le substrat et le superstrat.

La résolution de cette équation se fait graphiquement, en relevant les intersections du graphe de la fonction  $f(2ke) = \tan(2ke)$  avec la courbe qui représente le membre de droite de l'équation, la variable étant  $2ke$ . A titre d'illustration, la figure 3.2 montre les intersections obtenues pour une longueur d'onde incidente, définie dans le vide et se propageant dans le guide. A partir des intersections, la composante transverse du vecteur d'onde est déterminée et la composante longitudinale déduite peut être reliée, par la relation de la diffraction sur le réseau de Bragg (équation ) Le graphe de la figure 3.3 est un relevé des intersections pour un intervalle de longueurs d'onde incidentes. Elles sont appelées courbes de dispersion du guide d'onde plan. Elles sont exprimées à partir des angles d'interférence  $\theta$  entre le miroir et la pompe, pour offrir un point de comparaison à l'expérience. Elles donnent accès directement au nombre de modes de propagation. et aux valeurs des indices effectifs de chaque mode transverse.

Il existe dans ce guide plan asymétrique quatre discontinuités sur les équations de dispersion (représentés par des limites sur le graphe des indices effectifs). Ces discontinuités traduisent l'existence de fréquences de coupure. En effet, un mode de propagation peut être éliminé si la longueur d'onde incidente augmente. Par exemple, huit modes existent pour ce guide lorsque qu'une onde à  $550 \text{ nm}$  est guidée par la couche. Par contre, seuls sept modes peuvent se propager au-delà de  $580 \text{ nm}$ .

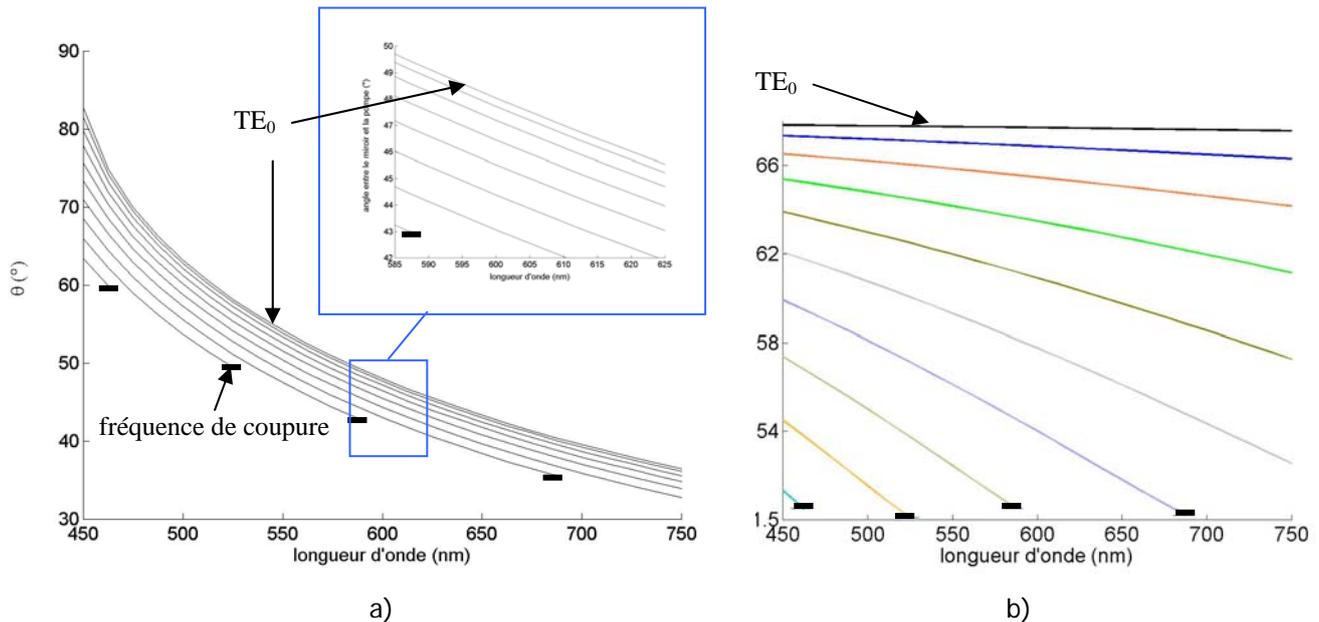


Figure 3.3 équation de dispersion d'un guide plan asymétrique pour les mêmes indices que précédemment. Les fréquences de coupure des modes sont représentés par un trait épais. Le mode  $TE_0$  est le mode fondamental du guide.

- a) angles d'interférence correspondant aux constantes de propagation imposée par le réseau.
- b) indices effectifs des modes transverses en fonction des longueurs d'onde dans le vide

Les courbes de dispersion confèrent une information importante sur le guide d'onde utilisé. Elles permettent de connaître les indices effectifs correspondant à chaque mode de propagation (en encart). Néanmoins, l'émission DFB créée dans un guide d'onde doit se soumettre à ces modes propres. En effet, le guide d'onde est généralement soumis à une onde incidente, laquelle se décompose sur la base des états propres de propagation. Dans le cas d'une émission laser, aucune onde incidente n'est présente. Ainsi, si la courbe de gain du matériau est assez large, plusieurs raies laser peuvent apparaître si, d'une part, elles s'accordent avec le réseau gravé, et d'autre part, elles peuvent se décomposer sur les modes propres du guide plan. La première condition repose sur la période du réseau  $\Lambda_B$  et la seconde sur l'indice effectif des modes propres de propagation. Ces deux conditions peuvent être remplis d'après l'équation 1.11 sur la longueur d'onde émise : celle-ci est exprimée en fonction du pas du réseau et de  $n_{eff}$ . Ainsi, plusieurs modes laser peuvent être émis simultanément.

### 3.1.1.3. Distribution transverse et facteur de confinement

Il est également possible de connaître la forme transverse de l'intensité de chaque mode dans le guide. Pour ce faire, il est nécessaire de choisir trois équations parmi les quatre du système linéaire 3.5. En effet, ce système est maintenant indéterminé car le déterminant de la matrice a été annulé. Pour notre part, les équations aux limites correspondant aux lignes 1, 3 et 4 de la matrice des conditions aux limites forment le mineur approprié (le déterminant n'est pas nul) pour exprimer les amplitudes de chaque champ en fonction de l'une d'elles. On peut alors représenter les distributions transverses des intensités de chaque mode.

Considérons pour simplifier que l'intensité dans la couche guidante est égale à l'unité. Les modules au carré des amplitudes du champ dans le film guidant sont alors égaux à  $\frac{1}{2}$ . Les amplitudes déduites du nouveau système d'équation permettent de représenter les intensités de chaque mode. Pour un guide plan asymétrique, les modes sont sinusoïdaux et ne présentent pas de symétrie par rapport à l'axe central  $Oy$ . La figure 3.4 expose les trois premiers modes pour les mêmes conditions géométriques que précédemment. La parité de ces fonctions est brisée par la dissymétrie du guide.

On peut ensuite déterminer le rapport entre les intensités dans chaque couche pour tout mode et l'intensité totale du mode : ce sont les facteurs de confinement. Pour obtenir ces relations, il est nécessaire de considérer que l'énergie totale en entrée de guide est conservée au cours de la propagation. L'énergie de l'état propre de propagation  $m$  dans un milieu non dispersif, isolant et sans charge répond à l'équation :

$$\frac{\beta_g}{2\omega\mu_0} \iint_{\text{section}} |E_x^{(m)}|^2 dx dy = cste \quad \text{Equation 3.7}$$

La constante de propagation  $\beta_g$  possède un norme identique pour chaque mode transverse. Cette expression est valable si les champs dans chaque couche s'expriment comme des fonctions réelles. La coordonnée sur  $x$  est éliminée car le système est infini sur  $Ox$ . Les calculs analytiques étant un peu ardu, les facteurs de confinement seront juste exprimés sur la figure 3.4.

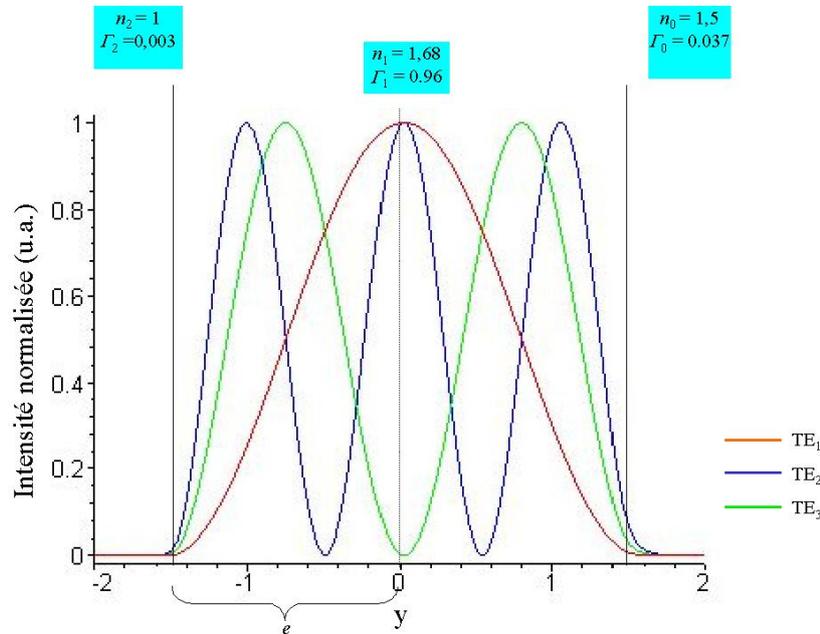


Figure 3.4 Distribution transverse en intensité des trois premiers modes guidés avec les mêmes conditions que précédemment. Les facteurs de confinement sont dépendant de la longueur d'onde (580 nm).

Il existe une condition d'orthogonalité sur les composantes transverses des champs qui se déduit directement de cette expression si la dépendance en  $z$  de tous les modes est du même type. Elle est valable uniquement pour les modes guidés. L'équation 3.7, dont le noyau se constitue sur le produit vectoriel du champ électrique du mode  $m$  et du champ magnétique du mode  $n$ ,  $n$  étant différent de  $m$ , peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\iint_{\text{section}} E_x^{(m)}(x, y) E_x^{(n)}(x, y) dx dy = 2 \frac{\omega \mu_0 \delta_{m,n}}{\beta_g} \quad \text{Equation 3.8}$$

Cette expression est importante pour la résolution du système théorique du laser à gain distribué. Les modes transverses d'un guide d'onde plan forment un ensemble discret et fini d'états propres orthogonaux entre eux. La théorie générale des modes couplés dans les guides reposent sur cette base.

### 3.1.2. Les fondements de la sélection modale

Le développement linéaire des modes d'un guide d'onde plan asymétrique apporte un renseignement sur les différents modes propres de propagation possibles. La théorie des modes couplés est donc adaptée à cette configuration géométrique car les modes qui s'amplifient de l'un sur l'autre doivent nécessairement se propager dans le guide<sup>†</sup>. Il est donc important de réécrire le développement mathématique qui implique le système d'équations couplées pour constater des différences possibles avec les calculs précédents.

#### 3.1.2.1. La base mathématique des modes couplés

Nous allons traiter ici les équations générales des modes couplés dynamiques. Le développement sur les quatre dimensions de l'espace et du temps sera exploité pleinement dans le dernier chapitre. L'ajout de la dimension temporelle allonge le calcul mais est finalement soumis aux mêmes approximations et c'est pourquoi il est introduit ici. Les équations de Maxwell impliquent les équations dynamiques couplées du laser DFB au seuil. Les équations cinétiques (*rate equations*) nous donnent des informations sur le comportement temporel des variables du système, comme cela a été évoqué dans le chapitre précédent. Commençons tout d'abord par exprimer le champ optique guidé dans la structure en réseau.

Il est nécessaire de préciser que notre étude relate uniquement le comportement du mode TE d'ordre le plus bas. En effet, l'expérience montre que le champ en sortie de laser est principalement transverse électrique. Mais la justification n'est pas simple et nous laissons le lecteur consulter la référence [3] pour de plus amples détails. Nous pouvons simplement préciser ici que les constantes de couplages des modes TM sont généralement plus faibles et que le facteur de confinement  $\Gamma_1$  est meilleur pour les ondes transverses électriques. Nous écrivons donc les modes longitudinaux du laser sous la forme d'une somme :

$$E(x, y, z, t) = \frac{1}{2} \left( \sum_i E_{xy}(x, y) E_{zt}^i(z, t) e^{j(\omega t - (-1)^i \beta_i z)} \right) + c.c. \quad \text{Equation 3.9}$$

La distribution des champ transverses  $E_{xy}(x, y)$  indépendante du temps est supposée identique pour tous les modes longitudinaux. Elle correspond à celle du mode transverse électrique le plus bas possible. Cette supposition repose sur le fait que les fréquences optiques des modes longitudinaux sont relativement proches les unes des autres. Cette approximation est confirmée par les études en intensité du chapitre 2.

<sup>†</sup> Il peut exister un couplage entre les modes radiatifs, non guidés, et les modes propres de propagation [3]. La condition première à ce phénomène est l'ordre du réseau : il doit être supérieur ou égal à 2. La justification théorique nécessite un développement mathématique complexe qui n'apparaît pas dans ces travaux.

Les amplitudes complexes  $E_{zi}(z,t)$  représentent les variations lentes en  $z$  et en  $t$ , par rapport à la fréquence optique et à la période du réseau. Ainsi,  $\omega_i$  est la fréquence angulaire correspondant au mode longitudinal  $i$  au seuil et  $\beta_i$  est égale à  $l\pi/\Lambda_B$ . Celle-ci est généralement imposée pour satisfaire à la condition spectrale de gain maximum pour le mode TE le plus bas. L'équation à laquelle doit répondre le champ optique s'écrit ainsi :

$$\nabla^2 E - \frac{n(x,y,z,t)^2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E - \frac{\alpha_0}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial}{\partial t} E = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} P, \quad \text{Equation 3.10}$$

où l'opérateur  $\nabla^2$  désigne l'opérateur laplacien. Les dépendances des champs sur les coordonnées ne sont pas exprimées pour plus de clarté. Pour reprendre l'expression de la polarisation du premier chapitre obtenue à partir du vecteur déplacement diélectrique, celle-ci s'exprime à partir de la susceptibilité résonante :

$$P = \varepsilon_0 \chi_{res} E. \quad \text{Equation 3.11}$$

L'indice  $n(x,y,z,t) = n_m(x,y,z,t) + \Delta n(x,y,z,t)$  devient complexe : il prend en compte la polarisation du milieu sans gain ni pertes et sans réseau par  $n_m$ , et les changements d'indice induits par la moyenne des variations spatiales de la densité de molécules excitées (gain, absorption, variation de la partie réelle de la susceptibilité) par  $\Delta n$ . Mais la susceptibilité  $\chi_{res}$  conserve son rôle de médiateur entre le réseau périodique induit et les ondes se propageant dans la structure. Seul le premier terme de la série de Fourier est maintenant annulé, car l'écart d'indice  $\Delta n$  prend lieu et place du fond continu dans le changement d'indice du milieu actif. L'élément de polarisation  $\chi_{res}$  et  $\Delta n$  sont supposés faibles devant le premier ( $n_m$ ).

L'équation de Maxwell vectorielle peut être transformée sous sa forme scalaire : La première approximation impose une variation lente pour les indices de réfraction par rapport aux fréquences optiques<sup>†</sup>. La seconde suggère que le seuil laser est atteint le premier par le mode TE d'ordre le plus bas.

### 3.1.2.2. Correction sur la constante de propagation

La partie transverse  $E_{xy}(x,y)$  de l'amplitude du champ optique est indépendante de  $z$  et de  $t$ . Elle est supposée égale à la distribution transverse du champ optique du mode TE le plus bas dans le guide en absence de réseau. De ce fait, pour chaque mode laser longitudinal  $i$ ,  $E_{xy}(x,y)$  répond à l'équation de Helmholtz suivante (sans bruit d'émission spontanée, ni réseau) :

$$\frac{\partial^2}{\partial x^2} E_{xy} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} E_{xy} + \beta_g^2 n_1(x,y,z)^2 E_{xy} = \beta_{g,c}^2 E_{xy}. \quad \text{Equation 3.12}$$

<sup>†</sup> cette approximation ne concerne pas  $\chi_{res}$  du fait de la modulation du pompage ; les variations temporelles sont évincées sur ces indices sans aucune justification physique dans notre cas. Rappelons juste que la théorie est adaptée à une excitation électrique continue.

La constante de propagation  $\beta_{g,c}$  est différente de la constante de propagation calculée précédemment. En effet, le milieu est résonant maintenant et la variation moyenne de l'indice de réfraction  $\Delta_n$  est non nul, et uniforme sur toute la longueur du milieu. De ce fait, la distribution de champ transverse est différente du cas où le milieu est transparent. Le second membre de cette équation différentielle est dépendant de  $z$ , de  $t$  et de  $i$ , par l'intermédiaire de  $\beta_{g,c}$ . Il permet d'introduire les différents changements d'amplitude et de phase uniformes dus à la présence d'un milieu résonant dans le guide.

Une relation existe entre la constante de propagation déterminée par les équations du guide plan asymétrique  $\beta_g$  et cette nouvelle constante de propagation  $\beta_{g,c}$ . Elle dépend de  $\Delta_n$ , de  $E_{xy}(x,y)$  précédemment calculé et de  $\omega_i$ . En écrivant  $\beta_{g,c}$  en fonction de  $\beta_g$  ( $\beta_{g,c} = \Delta_\beta + \beta_g$ ), l'équation 3.12 se simplifie par les termes s'annulant pour  $E_{xy}(x,y)$  dans le cadre d'un milieu transparent, si elle est assimilée à l'amplitude transverse déterminée dans la première partie ( $E_{xy}(x,y) \cong E_x(y)$ ). Par ailleurs, les approximations concernant les grandeurs relatives entre les indices permettent d'obtenir l'expression de  $\Delta_\beta$ .

Néanmoins, l'expression de l'amplitude transverse est la composition de chaque champ transverse dans chaque couche du guide. Elle doit donc être multipliée par l'amplitude transverse puis intégrée sur la section transverse à la propagation. La multiplication permet d'exprimer la différence  $\Delta_\beta$  en fonction de la distribution d'intensité transverse. L'indice de réfraction du milieu  $n(y)$  dans la forme intégrale ne possède pas d'indice car la décomposition en différentes couches n'a plus lieu. Après ce développement mathématique, l'expression devient :

$$\Delta_\beta = \frac{\omega_i^2}{c^2 \beta_g} \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} E_x(y)^2 n(y) \Delta_n(y) dy}{\int_{-\infty}^{+\infty} E_x(y)^2 dy} \quad \text{Equation 3.13}$$

On peut simplifier cette expression dans le cas où le profil d'indice  $n(y)$  est constant pour chaque couche du guide. Le facteur de confinement  $\Gamma_c$  de chaque couche apparaît alors :

$$\Delta_\beta = \frac{\omega_i^2}{c^2 \beta_g} (n_0 \Delta_{n_0} \Gamma_0 + n_1 \Delta_{n_1} \Gamma_1 + n_2 \Delta_{n_2} \Gamma_2), \quad \text{Equation 3.14}$$

avec  $\Delta_{n_c}$  la différence d'indice moyen entre un milieu transparent et un milieu à pertes ou à gain uniforme pour chaque couche  $c$  du guide.

L'évolution transverse de l'onde optique par la constante de propagation  $\beta_{g,c}$  est maintenant établie. L'équation d'onde scalaire sur le champ électrique  $E(x, y, z, t)$  peut être développée.

### 3.1.2.3. Equation des modes couplés généralisée

Les premiers développements mathématiques se font sur un seul mode car l'ensemble des états propres subit simultanément les mêmes opérateurs. Le champ est maintenant décomposé en deux termes contrapropagatifs, uniquement sur la partie de l'amplitude dépendant de  $z$  et de  $t$ . En fait, le mode  $i$  et le mode  $-i$  sont maintenant explicités comme un seul mode  $i$ . L'amplitude  $E_{zt}$  est ainsi décomposée en  $F$  pour la partie se propageant dans les  $z$  positifs et  $R$  pour les  $z$  négatifs :

$$E^{(i)}(x, y, z, t) = \frac{1}{2} E_x(y) \left( F e^{j(\omega t - \beta_i^{(i)} z)} + R e^{j(\omega t + \beta_i^{(i)} z)} \right) + c.c. \quad \text{Equation 3.15}$$

Le développement de l'équation d'onde est fastidieux. Il prend en compte l'approximation de l'enveloppe lentement variable sur  $z$  et  $t$ , et les approximations sur les grandeurs relatives pour la constante de propagation et les indices de réfraction complexes (les corrections sont faibles au regard des valeurs moyennes). Il profite également des calculs précédents et assimile l'amplitude du champ transverse à  $E_x(y)$  du guide plan sans milieu actif. De ce fait, l'équation de Helmholtz déjà développée permet d'éliminer de nombreux termes par identification. De plus, la susceptibilité est introduite sous la forme de série de Fourier :

$$\chi_{res} = \sum_{m \geq 1} \left( c_{res}^{p,m} e^{j \frac{2m\pi}{\Lambda_B}} + c_{res}^{n,m} e^{-j \frac{2m\pi}{\Lambda_B}} \right) \quad \text{Equation 3.16}$$

Ainsi, par intégration sur quelques périodes optiques, les modes longitudinaux sont découplés les uns des autres et le traitement de chaque mode devient individuel. En outre, une intégration sur une période du réseau permet de séparer chaque terme se propageant dans un sens bien défini. Les termes de constantes de couplage apparaissent à nouveau, mais sous une forme différente. Les termes oscillant dans l'expression dépendent de  $\pm (\beta_l^i - 2m\pi/\Lambda_B)$ . Ceci implique que seul les termes oscillant à cette fréquence sont résonants et en phase avec le champ optique. La série de Fourier peut donc être réduite uniquement aux termes en accord de fréquence avec ce champ optique, à savoir le terme  $m = l$  de cette série. Enfin une intégration sur la section transverse après une multiplication par  $E_x(y)$  offre l'accès au système d'équation couplées suivant, par l'intermédiaire de la condition d'orthogonalité 3.8 :

$$\begin{aligned} \frac{\partial F(z,t)}{\partial z} + \frac{1}{v_{gr}} \frac{\partial F(z,t)}{\partial t} &= (\alpha_i - j\delta_i) F(z) - j\kappa_{FR} R(z) \\ \frac{\partial R(z)}{\partial z} - \frac{1}{v_{gr}} \frac{\partial F(z,t)}{\partial t} &= -(\alpha_i - j\delta_i) R(z) - j\kappa_{RF} F(z) \end{aligned}, \quad \text{Equation 3.17}$$

avec les relations suivantes pour chaque paramètre :

$$\frac{1}{v_{gr}} = \frac{\omega_i}{2c^2 \beta_{g,c}} \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} n^2(y) E_x(y)^2 dy}{\int_{-\infty}^{+\infty} E_x(y)^2 dy} \quad \text{Equation 3.18}$$

$$\alpha_i = -\frac{\alpha_0 \omega_i}{2c^2 \beta_{g,c}} \quad \text{Equation 3.19}$$

$$\delta_i = \beta_l^i - \beta_{g,c} \quad \text{Equation 3.20}$$

Les coefficients de couplage sont maintenant différents car la série de Fourier est également décomposée en deux termes contrapropagatifs. Ainsi, l'indice de sommation  $m$  est uniquement positif. Ces constantes de couplage s'écrivent respectivement selon  $c_{res}^{p,l}$  et  $c_{res}^{n,l}$ , avec les notations  $p$  et  $n$  pour positif et négatif et le terme  $c_{res}^0$  :

$$\kappa_{FR} = \frac{\omega_i^2}{2c^2 \beta_{g,c}} \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} c_{res}^{n,l}(y) E_x(y)^2 dy}{\int_{-\infty}^{+\infty} E_x(y)^2 dy} \quad \text{Equation 3.21}$$

$$\kappa_{RF} = \frac{\omega_i^2}{2c^2 \beta_{g,c}} \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} c_{res}^{p,l}(y) E_x(y)^2 dy}{\int_{-\infty}^{+\infty} E_x(y)^2 dy} \quad \text{Equation 3.22}$$

Le système est défini alors par deux équations couplées. Le détail du calcul mathématique est exposé en annexe B. En comparaison du système développé dans le chapitre 2, le terme correctif sur la constante de propagation prend bien la place du terme de fond continu dans la série de Fourier de la susceptibilité résonante. Les constantes de couplages peuvent maintenant être différentes l'une de l'autre. Les valeurs absolues des constantes sont identiques par symétrie du système. Mais l'inégalité intervient suivant le type de couplage : la décomposition des composantes de Fourier en partie réelle et imaginaire permet d'expliciter, suivant l'origine des coordonnées, si le réseau de gain est en phase ou en opposition de phase avec le réseau d'indice. En effet, la variation du confinement du champ transverse du mode considéré ne suit pas exactement la modulation imposée par le réseau, si celui-ci est gravé dans le film (ce qui n'est pas notre cas). Mais pour un couplage unique par le gain, les deux constantes sont égales et purement imaginaires.

Ces équations dynamiques permettent de connaître l'évolution spatio-temporelle de l'émission laser DFB dans un film mince guidant. Les expériences présentées dans ce chapitre concernent uniquement l'aspect spectral de l'émission. Les termes temporels ne sont pas considérés ici. De ce fait, les solutions du système 3.17 sont identiques aux conclusions du chapitre précédent. Néanmoins, les spectres attendus ne sont plus identiques dans le cas d'un film guidant multimode, comme cela a été évoqué dans la partie 3.1.1.3.

### 3.2. Spectre multi-modal d'un laser DFB polymère

La partie précédente a fait l'objet du traitement théorique d'un laser DFB en couche mince de type guide d'onde. Il repose sur le fait que les amplitudes des champs varient suffisamment peu devant les fréquences optiques. Ainsi, les modes longitudinaux sont découplés les uns des autres. Ils possèdent par contre une structure transverse identique, du fait de leur proximité spectrale. Néanmoins, dans le cas où plusieurs raies laser peuvent apparaître simultanément au seuil, leur justification repose uniquement sur la structure transverse du guide : chaque couple de modes longitudinaux d'un laser DFB possède un seuil d'émission laser différent. D'un point de vue expérimental, il est possible de réaliser des films minces polymères dont les caractéristiques peuvent générer une émission laser guidée. En conservant la même idée de créer une source laser accordable, le montage expérimental du chapitre 2 permet d'analyser l'émission laser de telles couches. De plus, les courbes de dispersion donne accès au nombre de modes laser qui peuvent coexister dans une situation où la courbe de gain du milieu actif est assez large.

Ainsi, avant d'observer le spectre d'émission d'une couche mince polymère dopée avec des colorants, les propriétés structurales des films doivent être contrôlées pour répondre aux attentes de l'émission désirée. Ensuite, l'émission laser guidée est analysée en termes d'accordabilité, comme dans le cas de la configuration verre / PMMA / rhodamine 6G du chapitre 2. Enfin une comparaison des modes suivant leur réponse en intensité révèle leur interdépendance et l'influence respective des propriétés de guide d'onde et de la courbe de gain.

#### 3.2.1. Accordabilité laser

La configuration choisie pour réaliser les guides d'onde laser est la composition PVK / DCM sur un substrat de verre. L'avantage de sa nature chimique réside dans l'indice de réfraction du polymère de poly(vinyl-carbazole) (PVK), car il est plus élevé que celui du verre. De plus la méthode de la tournette permet de contrôler correctement son épaisseur. Ainsi, plusieurs couches minces de différentes épaisseurs ont été soumises à l'expérience. Les mesures expérimentales présentées ici proviennent du même traitement effectué sur les films minces non guidants. Elles offrent à nouveau la mesure des seuils d'émission laser pour chaque mode observé et leur domaine d'accordabilité.

Tout d'abord, les premières mesures permettent de vérifier l'influence des paramètres du guide sur l'évolution du spectre. Ensuite, l'accordabilité des différents modes apparaît par compilation des spectres suivant l'angle d'interférence. Enfin, une comparaison avec les courbes de dispersion linéaire et une analyse des écarts avec les mesures expérimentales permet de confirmer les approximations effectuées.

### 3.2.1.1. Configuration nécessaire au guide multi-mode

Le choix des paramètres du guide d'onde influence directement l'émission laser. En effet, nous avons déjà vu que les courbes de dispersion sont à la base de la distribution spectrale des raies lasers. Il est donc important de contrôler les indices de réfraction et les épaisseurs des couches qui forment le guide. En fait, les expériences ont précédé l'étude théorique de cette répartition en fréquence. L'origine de ces travaux provient d'une étude effectuée au Groupe des Composants Organiques du CEA (Saclay), où les films polymères sont réalisés. L'épaisseur du film est contrôlée par la méthode de la tournette : la vitesse de rotation de l'étape de *spin-up* permet de faire varier ce paramètre entre 150 nm et 3  $\mu\text{m}$ . La configuration choisie est composée du polymère PVK dopé avec le colorant laser DCM et déposé sur un substrat de verre. L'indice du PVK est de 1,68. Il permet donc à la couche mince de guider l'émission laser créée par la présence du colorant, dont la bande de fluorescence est centrée sur 598 nm.

L'interféromètre utilisé est présenté sur la figure 2.3b. La détection se fait par une lentille collectrice qui focalise la lumière à l'entrée du spectromètre intégré Oriel 77400 couplée à une tête CCD EEV 40-11 de 1024\*128 pixels. Cette technique recueille toute la lumière émise, qu'elle provienne de l'effet laser ou de l'émission spontanée amplifiée (ASE).

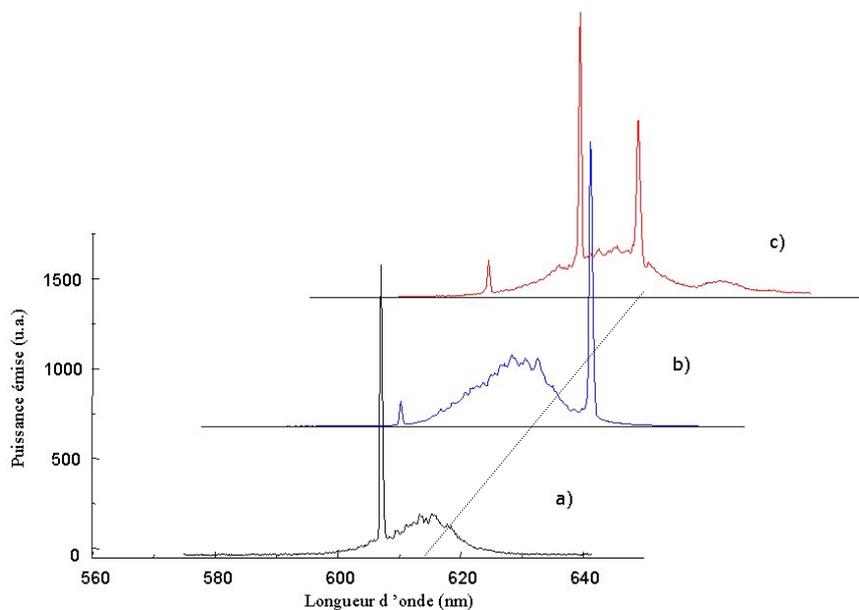


Figure 3.5 évolution du spectre laser dans une configuration PVK/DCM pour différentes épaisseur. a) 240 nm (un seul mode). b) 740 nm (deux modes). c) 1,6  $\mu\text{m}$  (trois modes).

Les spectres laser sont mesurés pour trois angles d'interférence et trois épaisseurs différents (figure 3.5). La répartition spectrale des raies laser observées diffère à chaque épaisseur et pour chaque angle d'interférence. A 240 nm d'épaisseur, une seule raie est observée. Deux raies apparaissent pour 740 nm

et trois modes lasers sont observés pour un film de  $1,6 \mu\text{m}$ . Dans ce dernier cas, l'espacement spectral entre les raies n'est pas constant ( $15 \text{ nm}$  et  $10 \text{ nm}$ ). Ce point apporte un début de confirmation sur la nature transverse des modes observés. De plus, l'intensité de chaque raie varie suivant leur position dans le spectre. Sur la figure 3.5c, les intensités des deux raies se trouvant aux extrémités du spectre d'ASE sont plus faibles que le pic d'émission central.

La courbe de gain du matériau semble responsable de cette disparité en intensité. En revanche, pour comparer ces deux pics, l'émission est plus intense vers les hautes longueurs d'onde. Ce fait corrobore les observations précédentes pour la configuration sans guidage PMMA / Rhodamine 6G. Cet effet est donc imputable à la nature du colorant et non pas aux propriétés de guide plan.

Malgré la présence des raies laser, l'ASE apparaît sur chaque spectre avec une amplitude non négligeable. On observe une variation du maximum d'émission spontanée amplifiée avec l'épaisseur. La figure 3.5a, obtenue pour un film de  $240 \text{ nm}$  d'épaisseur est centrée sur  $615 \text{ nm}$ . Pour la couche de  $740 \text{ nm}$  (figure 3.5b), le maximum se trouve à  $611 \text{ nm}$  tandis qu'une épaisseur de  $1,6 \mu\text{m}$  présente une bande d'émission centrée sur  $608 \text{ nm}$ . Cette évolution peut être expliquée par une photodégradation des films plus rapide au fur et à mesure que l'épaisseur diminue. Cependant, dans le deuxième chapitre, la figure d'accordabilité (figure 2.6a) montre un décalage vers le rouge du maximum de l'ASE par rapport au centre de la bande de fluorescence du matériau. Pour le film (PMMA / DCM) déposé sur du quartz (le régime de guidage est présent), le maximum de l'émission spontanée amplifiée apparaît à  $625 \text{ nm}$ . Ce décalage vers le rouge semble donc provenir d'effets de guide car il évolue suivant la composition d'indice utilisée (le quartz possède un indice de réfraction de 1,33) et suivant l'épaisseur (le centre de la bande d'émission tend vers les hautes fréquences quand l'épaisseur augmente).

L'interprétation est liée aux mécanismes de guidage : l'indice effectif perçu par les ondes parcourant le guide est compris entre l'indice de réfraction du milieu dans lequel elles se propagent et l'indice le plus grand des couches environnantes (l'encart de la figure 3.3b le justifie). L'ASE est créée dans le film: elle doit s'accorder avec les modes propres du guide d'onde. Ainsi, les longueurs d'onde de l'émission spontanée amplifiée dépendent de la géométrie de la structure.

Enfin, aucune explication en terme de réabsorption ne peut justifier la présence des écarts entre les position de l'ASE et les courbes de fluorescence du colorant DCM car le *Stokes shift* est trop important pour observer un recouvrement suffisant.

#### 3.2.1.2. Accordabilité des modes transverses

Il est possible d'observer également l'évolution de la répartition spectrale de l'émission laser en fonction de l'interfrange imposé. Un film mince, de même composition et d'épaisseur  $2,9 \mu\text{m}$  est soumis aux interférences du miroir de Lloyd. Dans ce montage, la lentille cylindrique est utilisée et le diaphragme présente un diamètre de  $2,6 \text{ mm}$  de. Les relevés expérimentaux sont présentés en figure 3.6. Une mesure de l'accordabilité a permis de vérifier que les modes laser peuvent apparaître au maximum par 5 sur un même spectre, du fait des limitations imposées par la courbe de gain. Chaque acquisition pour un

interfrange donné est accolé pour obtenir la variation de la longueur d'onde laser avec l'angle entre le miroir et la pompe. Cette présentation originale permet de visualiser la richesse modale du guide. L'émission spontanée amplifiée est centrée sur  $606 \text{ nm}$  ; la bande de fluorescence possède un maximum à  $598 \text{ nm}$ , soit un décalage vers les hautes fréquences de  $8 \text{ nm}$ . Cette observation est en accord avec l'étude concernant l'influence de l'épaisseur du guide. La présence des modes laser diminue fortement l'émission spontanée amplifiée, en particulier pour un accord de fréquence laser avec le centre de l'ASE. Sur le faible domaine spectral couvert, l'évolution des longueurs d'onde en fonction de  $\theta$  est quasi linéaire (l'intervalle correspond à la fenêtre de la figure 3.3a). Au delà, la courbe de gain limite l'accordabilité laser et l'énergie est principalement concentrée sur l'ASE.

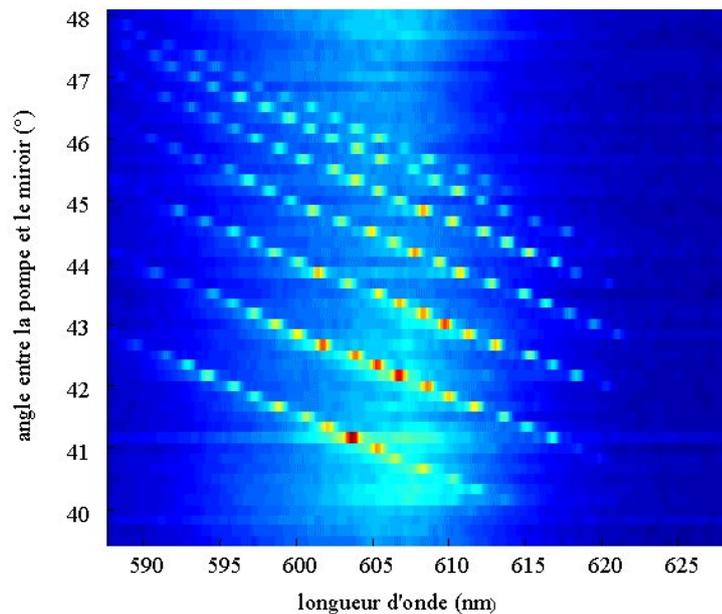


Figure 3.6 émission laser multimode dans un film guidant de PVK /DCM de  $2,9 \mu\text{m}$  d'épaisseur déposé sur un substrat de verre. L'évolution du spectre d'émission est exprimée en fonction de l'angle  $\theta$  entre la pompe et le miroir.

Au total, sept modes apparaissent (certains disparaissent quand d'autres sont générés dans la courbe de gain, à mesure que l'angle  $\theta$  diminue). Les plages d'accordabilité sont quasiment identiques pour chaque mode et égales à environ  $35 \text{ nm}$ . L'écart spectral entre les différentes raies tend à diminuer avec l'angle. Il reste à peu près constant entre chaque mode quelque soit l'angle entre le faisceau pompe et le miroir. Les valeurs correspondantes sont :  $3 \text{ nm}$  ,  $5,2 \text{ nm}$ ,  $7,2 \text{ nm}$ ,  $9,3 \text{ nm}$ ,  $11,2 \text{ nm}$ , et  $12,9 \text{ nm}$ .

### 3.2.1.3. Superposition des résultats

La structure modale du guide d'onde plan étudié dans les expériences peut être justifiée. En effet, la figure 3.6 met en évidence un espacement spectral différent pour chacun des modes. Le laser Fabry-Pérot possède un intervalle spectral libre constant sur les modes longitudinaux, imposant de ce fait un espacement quasi constant entre les modes transverses. Pour un laser DFB,

l'espacement longitudinal varie suivant la valeur du gain à la longueur d'onde considérée. Dans le cas du colorant, la courbe de gain est large et le gain, supposé alors constant, n'induit pas de variation importante sur l'intervalle entre modes longitudinaux. Il semble donc indéniable que les modes laser observés sont de nature transverse. De plus, il est possible de comparer ces points de mesure avec les courbes de dispersion théoriques attendues pour ce guide.

La première partie indique la nécessité d'une correction sur le vecteur d'onde des modes d'un guide plan par la présence d'une variation moyenne de l'indice de réfraction complexe du milieu en présence du champ laser. La composante longitudinale évolue suivant les facteurs de confinement du guide d'onde et les variations  $\Delta n_c$  de chaque couche composant la structure guidante. L'équation 3.14 traduit l'importance du facteur de confinement sur le spectre de l'émission laser. Les facteurs de confinement sont déterminés lors du calcul de la distribution transverse mais les corrections sur les indices ne sont pas directement déterminés. En effet, le contraste des franges d'interférences doit être défini expérimentalement pour permettre d'accéder au fond continu d'intensité qui génère cette variation d'indice. Néanmoins, les interférences du miroir de Lloyd sont supposées de bonne qualité car la polarisation des deux sources secondaires est conservée par un miroir de bonne qualité optique. De plus, la cohérence temporelle est vérifiée quand la tâche est inférieure à 5 mm, ce qui est actuellement le cas. Cette variation d'indice, constante sur toute la tache d'illumination, est égale à la constante de couplage  $\kappa_0$  car elle correspond au premier terme de la série de Fourier de la susceptibilité. Négligée jusqu'alors, elle intervient à nouveau. Mais sa mesure n'a pas été effectuée et c'est pourquoi la correction n'est pas introduite dans les résultats.

La simulation déjà exposée dans le paragraphe 3.1.1.2 est appliquée à la configuration PVK /DCM où l'indice du substrat est de 1,52, l'indice du film polymère est fixé à 1,68 (le polymère constitue en grande majorité la couche et impose ainsi son indice de réfraction). L'air environnant prend le rôle du superstrat : son indice est égal à 1. La figure 3.7 reprend les résultats expérimentaux présentés sur la figure 3.6, uniquement pour les positions spectrales de chaque mode. Du point de vue théorique, les courbes de dispersion sont exprimées en fonction de l'angle d'interférence pour un réseau d'ordre 2. Les courbes expérimentales présentent une différence systématique de 2° d'angle. Cette erreur est corrigée sur la figure par translation des points verticalement. Les courbes de dispersion ne prennent pas en compte la courbe de gain et n'ont donc pas de limite en fréquence, excepté pour les fréquences de coupure de chaque mode.

L'accord global entre la simulation et les valeurs expérimentales semblent globalement vérifié. Les écarts restent faibles. Les courbes expérimentales et de simulation semblent parallèles entre elles. Le mode fondamental  $TE_0$  se situe au plus haut de la figure. Au fur et à mesure que l'ordre du mode transverse augmente, l'écart entre la simulation et les mesures s'accroît pour atteindre un écart maximal de 2,5 nm. Ce facteur d'échelle n'a pu être obtenu avec les simulations. Les valeurs des indices semblent donc suffisamment correctes pour ne pas être mis en doute ici. Elles ont néanmoins permis d'appréhender leur rôle respectif dans la répartition des courbes de dispersion : la différence d'indice entre le substrat et le film polymère agit essentiellement sur l'évolution des

intervalles entre les modes. Mais au-delà d'une certaine valeur, les fréquences de coupure des modes d'ordre supérieurs apparaissent. L'épaisseur de la couche, quant à elle, influence également le facteur d'échelle entre les modes, mais cet effet est négligeable par rapport à l'importance de la différence d'indice. Par contre, une translation des courbes de dispersion vers les grands angles est effective lorsque l'épaisseur du guide augmente. La correction sur la composante longitudinale pourrait faire évoluer ce spectre. Néanmoins, les écarts théoriques sont progressifs et systématiques, quelque soit la longueur d'onde du mode. Ils ne peuvent alors être dus à une différence dans la composante longitudinale des modes. Aucune explication physique n'a pu expliquer ces intervalles différents entre les raies laser observés et les modes transverses attendus.

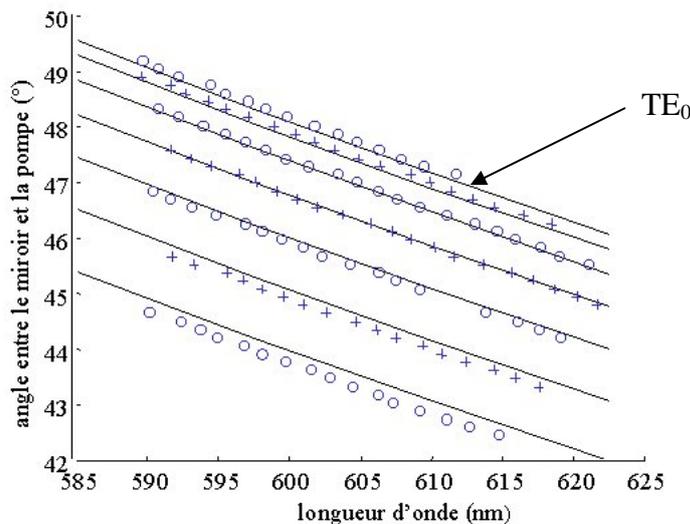


Figure 3.7 comparaison entre les courbes de dispersion d'un guide d'onde plan asymétrique et l'évolution spectrale des modes transverses du laser DFB.

Les courbes de dispersion du guide plan asymétrique permettent de confirmer la structure transverse des modes d'un laser DFB polymère. Elles indiquent que les modes laser créés dépendent de la géométrie du milieu actif et de la pseudo-cavité résonante. Un guide d'onde est généralement décrit par ses courbes de dispersion et la situation physique veut que l'onde guidée possède une fréquence identique en sortie et en entrée de guide (excepté dans le cas de hautes intensités ou des effets non linéaires du type de l'effet Kerr peuvent apparaître). Dans notre cas, l'onde est créée dans la couche mince : les longueurs d'onde générées dans le guide sont imposées par la structure géométrique. De ce fait, les fréquences laser ne correspondent pas directement à la courbe de gain du matériau. Ce fait essentiel corrobore l'influence du régime de guidage sur l'émission spontanée amplifiée.

### 3.2.2. Evolution en intensité d'un spectre multimode

Les courbes d'accordabilité montrent l'influence directe de la courbe de gain par rapport à la position spectrale des raies. Cette prédominance semble évidente car le gain est la première condition sur l'émission laser. Les propriétés de guide d'onde induisent uniquement une condition de d'accord des modes laser aux modes transverses du guide, autrement dit elles n'ont d'influence que sur la répartition spectrale.

L'étude en intensité qui est présentée ici permet une vérification supplémentaire du comportement à seuil de chaque raie observée. Dans un premiers temps, l'étude en intensité porte uniquement sur la comparaison entre les seuils des modes apparaissant à un angle d'interférence donné. Ensuite une analyse sur leur interdépendance et leur comportement à haute énergie est exposée.

#### 3.2.2.1. Répartition des seuils

Une mesure de l'évolution d'un spectre multimode à un angle d'interférence de  $44,6^\circ$  permet de constater la distribution d'énergie de ces modes laser (figure 3.8a). Ces courbes ont été obtenues après un traitement numérique. Un ajustement polynomial est nécessaire car, pour des énergies de pompage supérieures à  $3 \mu J$ , les mesures se dispersent beaucoup. Une moyenne de l'évolution des raies est présentée en trait plein épais. Elle permet de constater l'évolution globale de l'émission laser avec l'intensité de pompage. Le régime d'émission du film est quasi-linéaire jusqu'à  $4 \mu J$ . Pour des énergies plus grandes, une saturation apparaît progressivement : le rendement de l'émission laser diminue. L'énergie de l'émission spontanée amplifiée évolue à l'opposé de ce comportement. En effet, pour une énergie de  $7,3 \mu J$ , elle n'est plus négligeable dans l'allure du spectre, au regard de celui obtenu pour une énergie de  $2,9 \mu J$  (figure 3.8b).

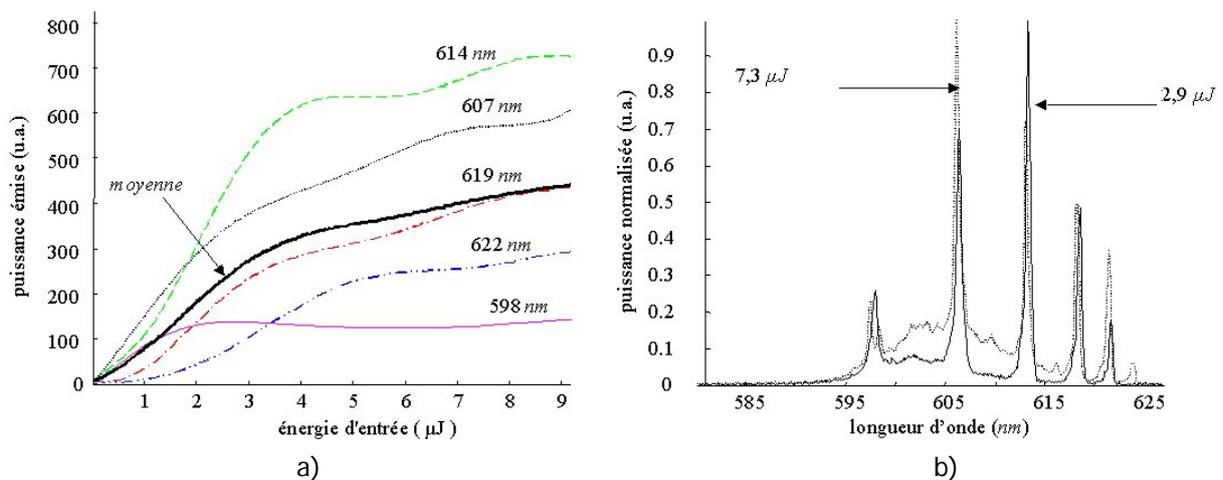


Figure 3.8 a) évolution de l'intensité de chaque mode laser en fonction de la puissance d'entrée pour un angle  $\theta$  donné. La courbe noire épaisse est une moyenne de toutes les raies. b) comparaison de l'émission spontanée amplifiée pour deux spectres à deux intensités différentes.

L'émission laser est obtenue à faible intensité pour les trois modes à 598 nm, 607 nm, et 614 nm. Les seuils correspondants, dont les valeurs sont quasi identiques, n'apparaissent pas sur les courbes. Ils présentent une réponse linéaire pour les faibles valeurs de pompage, en particulier le plus intense, à 607 nm. Pour les deux derniers modes, un seuil d'émission laser est mesuré à 1,5  $\mu J$  et 2  $\mu J$  pour les modes à 619 nm et 622 nm respectivement (ils sont mesurés à partir des valeurs expérimentales sans traitement). L'émission générée dans ces modes altère les réponses linéaires des trois autres raies laser. De ce fait, la moyenne présente un fléchissement au-delà de 3  $\mu J$ . Enfin, la raie à 614 nm ne subit pas de fléchissement jusqu'à 4  $\mu J$  puis le rendement moyen diminue. La raie à 598 nm semble indépendante des quatre autres à haute énergie. Elle présente un rendement laser constant dans cette gamme d'énergie.

#### 3.2.2.2. Discussion

La réponse en intensité des modes du laser n'est pas identique suivant la courbe de gain du matériau. En effet, les modes centrés sur l'émission spontanée amplifiée sont naturellement plus intenses que les raies présentes aux extrémités. Néanmoins, la répartition en énergie de l'émission laser reste complexe car les modes ne semblent pas être indépendants les uns des autres, en particulier à fort pompage. Ce comportement limite de futures applications d'émission laser multimode par une seule structure. D'autre part, certaines expériences ont montré un dédoublement de certaines raies à haute énergie. Cet effet est principalement attribué aux raies centrées sur l'ASE. Il est néanmoins difficile de conclure à un comportement reproductible et plusieurs expériences sont nécessaires pour confirmer et analyser cet effet qui semble s'opposer aux principes développés dans ce travail. En effet, le couplage complexe exposé au chapitre précédent devrait privilégier ce phénomène sur les raies présentes sur les bords du fond d'émission stimulée, à l'endroit où la partie réelle de la susceptibilité devient plus grande.

Par ailleurs, un seul spectre ne peut permettre de déterminer lequel des modes correspond au fondamental. Celui-ci peut même ne pas être présent sur l'acquisition. Mais le spectre est obtenu à haute énergie et la seule possibilité d'obtenir cinq raies laser sur un seul spectre fait obligatoirement intervenir le mode fondamental, situé le plus haut en longueur d'onde (figure 3.6). Il est donc attribué au mode à 622 nm. Il présente théoriquement une distribution transverse en énergie de forme cosinusoidale, sans nœud au centre de la structure (figure 3.4). Le recouvrement avec le milieu actif est très important, au regard des autres modes d'ordre supérieur. L'interaction doit donc se révéler plus importante et la réponse également. Néanmoins, sa position spectrale dans la configuration de la figure 3.8b limite son évolution, sans pour autant l'annihiler totalement. A titre de comparaison, le mode d'ordre plus élevé, à l'autre extrémité de la bande d'émission stimulée, ne possède plus d'évolution au dessus d'un certain seuil. Il disparaît à ce propos entièrement dans la bande d'émission stimulée, à très haute énergie. Ce mode d'ordre 4 ne possède pas un tel recouvrement avec le film polymère, ce qui limite sa réponse avec l'énergie de pompe. De plus, la présence de la courbe d'absorption pourrait limiter son

efficacité, alors que le mode fondamental ne subit pas cette influence. Ces deux précisions permettent de justifier qualitativement l'évolution de ces deux modes.

En ce qui concerne les modes intermédiaires, situés près du maximum de l'ASE, leur évolution dépend essentiellement des effets de guide. En effet, une étude réalisée à plus haute énergie montre un croisement des courbes : l'évolution de l'intensité de chaque mode ne subit plus la même loi. En effet, le mode fondamental voit sa réponse devenir supérieure au mode d'ordre 1, supérieure elle-même au mode  $TE_2$ . Mais, dans ces régimes d'énergie, il est difficile de mesurer la valeur réelle de la puissance de chaque raie car les modes longitudinaux d'ordre supérieur apparaissent et l'émission spontanée amplifiée devient prépondérante. Ainsi, il est probable que la courbe de gain influence beaucoup la répartition spectrale au seuil des modes laser. Mais les propriétés de guide interviennent majoritairement à très haute énergie, dans un régime où les modes longitudinaux sont générés. Ce fait peut apparaître cohérent dans la mesure où, au-delà d'une certaine énergie, le gain de chaque longueur d'onde laser a atteint une limite et seules les distributions transverse en énergie des modes lasers interviennent dans leur évolution respectives.

## Conclusion

Ce chapitre a été l'occasion de démontrer le caractère transverse de l'émission d'un laser DFB en couche mince dans une configuration de guide d'onde. La première partie permet de vérifier que les équations couplées développées par Kogelnik et Shank [2] restent valables dans cette configuration, aux expressions des constantes de couplage près. En effet, elles sont exprimées sous la forme d'intégrales : le champ électrique de l'onde est divisée par les trois sections que sont le substrat de verre, le film mince polymère et l'air (considéré comme le superstrat). La correction apportée par le fond continu de la susceptibilité diélectrique est exprimée en terme de facteur de confinement. Cette écart sur la composante longitudinale n'est pas pris en compte dans les simulations des courbes de dispersion du guide d'onde plan asymétrique car il est nécessaire d'estimer ce fond continu, qui dépend directement du contraste d'interférence des faisceaux pompes. Néanmoins, ces courbes de dispersion permettent de justifier l'influence de la géométrie de la structure du laser DFB sur le spectre d'émission. Elles peuvent être exprimées en fonction de l'angle d'interférence car il impose la longueur d'onde d'émission par l'accord en fréquence avec le réseau de Bragg.

Par ailleurs, la partie expérimentale permet de comparer l'évolution du spectre multimode avec les courbes de dispersion théoriques. Les sept modes guidés prédits par la simulation apparaissent sur les mesures expérimentales. L'accord obtenu sur ces courbes montre que la correction sur la composante longitudinale, qui dépend de la longueur d'onde laser, est négligeable dans notre cas. Mais une étude sur l'évolution en intensité des raies laser présentent des propriétés intéressantes sur l'importance de la réponse du matériau en comparaison de la géométrie du système. En effet, la courbe de gain influence l'évolution des raies spectrales à faible intensité de pompage, alors que les distributions spatiales des modes guidés prennent une part importante dans les réponses à plus haute énergie. Néanmoins, l'expérience est limitée par l'apparition des modes longitudinaux d'ordre supérieur du laser DFB, en condition de couplage complexe, apparemment identique aux mesures effectuées avec la rhodamine 6G dopant une matrice de PMMA.

Jusqu'ici, l'aspect temporel n'a pas été étudié dans cette configuration. Il serait par exemple intéressant de connaître la répartition temporelle de chaque raie laser mais ces mesures nécessitent des dispositifs complexes (une caméra à balayage de fentes, par exemple). Néanmoins, une étude du comportement dynamique du réseau DFB dans la configuration PMMA / rhodamine 6G peut apporter une information sur la dynamique de l'émission laser, au niveau des états d'énergie moléculaires du milieu actif.

**COMPRESSION TEMPORELLE**  
**DE L'EMISSION LASER DFB**  
**DANS LES FILMS POLYMERES**

<b>4. COMPRESSION TEMPORELLE DE L'EMISSION LASER DFB DANS LES FILMS POLYMERES .....</b>	<b>105</b>
INTRODUCTION .....	106
4.1. ETUDE TEMPORELLE .....	107
4.1.1. <i>Compression temporelle : Etat de l'art et comparaisons</i> .....	107
4.1.1.1. Les équations de pompage du système.....	108
4.1.1.2. L'auto-déclenchement de l'effet laser .....	109
4.1.1.3. Les études sur les lasers colorants à gain distribué.....	110
4.1.2. <i>Méthodes expérimentales de l'optique non linéaire</i> .....	112
4.1.2.1. Le principe du mélange à quatre ondes dégénérées.....	113
4.1.2.2. L'ellipsométrie Kerr.....	114
4.2. HOLOGRAPHIE DYNAMIQUE .....	117
4.2.1. <i>Principe de la technique de réseau induit par laser</i> .....	117
4.2.1.1. Description du montage expérimental.....	118
4.2.1.2. Le système de détection .....	120
4.2.1.3. Acquisition des mesures.....	121
4.2.2. <i>Evolution temporelle de la diffraction</i> .....	122
4.2.2.1. L'artéfact de cohérence .....	122
4.2.2.2. Relaxation temporelle du réseau .....	124
4.2.2.3. Interprétation des résultats.....	125
CONCLUSION .....	127

## Introduction

La dynamique temporelle d'un laser DFB en couche mince se complique si la contre réaction est obtenue par interférences de deux impulsions laser courtes. En effet, la cavité se construit uniquement pendant la durée d'excitation, contrairement au laser à cavité fixe où la résonance par les miroirs est constante. Les propriétés du laser polymère énoncées lors des précédents chapitres, notamment en ce qui concerne les seuils d'émission, ont permis de souligner l'importance de la longueur du réseau et des effets temporels qui en dépendent.

Ce chapitre présente l'aspect dynamique de l'émission laser DFB dans les couches minces polymères. En premier lieu, il expose les équations couplées et permet d'analyser les différents paramètres, ainsi que leur influence sur l'émission. Cette interprétation physique est fondé sur le principe de *self-Q-switch*, ou auto-déclenchement de l'émission par inversion des pertes dans la cavité. Enfin, un descriptif des principales avancées expérimentales précise l'échelle temporelle dans laquelle notre film mince peut émettre un champ laser.

Dans un second temps, les expériences d'optique non linéaire nécessaires à notre travail sont décrites. Le mélange à quatre ondes dégénérées en fréquence permet d'accéder, après une modification géométrique du montage, à la technique des réseaux induits par laser (*laser induced transient grating* (LITG) en anglais). Le dispositif expérimental est détaillé, en particulier le matériel utilisé et les mesures préliminaires indispensables à une telle expérience. Ce procédé offre une information sur l'efficacité de diffraction du réseau DFB au cours du temps. Les résultats obtenus sont finalement interprétés par rapport aux phénomènes induits dans le film.

## 4.1. Etude temporelle

L'analyse théorique du comportement dynamique d'un laser DFB à colorant décrite par Duling III et Raymer [24] s'inscrit dans le cadre de la théorie semiclassique de l'interaction résonante d'un champ électromagnétique et d'une transition laser à deux niveaux. Ces travaux prennent leur source sur les publications précédentes de Z. Bor [22] et M. Sargent III *et al.* [49]. Le premier met en évidence l'importance du taux de décroissance des photons dans la cavité et le second exprime la modulation de gain en terme de variation spatiale de la différence de population.

L'auto-déclenchement du laser, déjà évoqué dans le premier chapitre, provient de la dynamique temporelle de cette inversion de population. Ce phénomène permet de générer une émission laser dont la durée peut être inférieure à la durée de l'excitation sous certaines conditions. Par contre, ce processus de déclenchement révèle une génération de l'émission laser à partir de l'émission spontanée. Celle-ci se traduit par un temps de relaxation radiatif de l'ordre de la nanoseconde. Il est donc intéressant de constater le délai entre cette émission laser et l'instant d'illumination.

De plus, la théorie développée pour le laser considère un retour à l'état fondamental après l'excitation. Les processus de relaxation sont nombreux dans le cas des colorants : la réorientation moléculaire et les transitions spontanées radiatives et non radiatives sont les deux principaux phénomènes. Ces relaxations peuvent fournir des informations sur l'évolution de l'état d'énergie des molécules actives si tous les phénomènes qui interviennent sont analysés précisément.

La compression temporelle est tout d'abord décrite au travers des études théoriques développées précédemment. L'accent est mis sur le temps équivalent de cavité qui traduit l'évolution de la différence de population d'une transition à deux niveaux en régime de pompage optique pulsé. Ensuite, les différentes études sur la dynamique de relaxation des molécules sont détaillées. Les expériences d'ellipsométrie Kerr concluent cette partie.

### 4.1.1. Compression temporelle : Etat de l'art et comparaisons

La modulation de gain est prépondérante dans la formation des impulsions laser générées. Elle dépend de l'évolution temporelle de la différence de population. Cela dépend notamment de la saturation du gain dans la structure et du *spatial hole burning*, notions propres à tous les lasers. L'étude théorique qui suit rend compte de l'importance relative de ces mécanismes. La distribution longitudinale de l'énergie dans la structure est accessible par simulation numérique des équations cinétiques qui régissent le champ électromagnétique dans la structure et l'évolution des populations.

Pour commencer, les équations de l'évolution temporelle sont décrites, la démonstration étant apportée par l'annexe B. Ensuite, le temps équivalent de cavité permet de situer le régime de couplage par le gain (sous-couplage, couplage ou sur-couplage). Enfin, les différentes expériences évoquées dans le premier chapitre sont détaillées pour appréhender l'influence de la longueur du réseau sur la compression temporelle de l'émission laser.

#### 4.1.1.1. Les équations de pompage du système

Il est intéressant d'analyser chaque terme des équations dynamiques du laser DFB (présentées rapidement au chapitre 1) pour comprendre la dynamique et la répartition en énergie à l'intérieur du réseau :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial F(z,t)}{\partial z} + \frac{1}{v_{gr}} \frac{\partial F(z,t)}{\partial t} &= (\alpha_m(z,t) - j\delta)F(z,t) - j\kappa(z,t)R(z,t) \\
 \frac{\partial R(z,t)}{\partial z} - \frac{1}{v_{gr}} \frac{\partial R(z,t)}{\partial t} &= -(\alpha_m(z,t) - j\delta)R(z,t) - j\kappa(z,t)F(z,t) \\
 \frac{\partial \Delta N(z,t)}{\partial t} &= \psi(t)(N_{tot} - \Delta N(z,t)) - \gamma_{rad} \Delta N(z,t) \\
 &\quad - \frac{|\bar{\mu}|^2}{2\hbar^2} \frac{\gamma}{\gamma^2 + (\omega - \omega_0)^2} \left( |F(z,t)|^2 + |R(z,t)|^2 \right) \Delta N(z,t)
 \end{aligned}
 \tag{Equation 4.1}$$

Les termes de couplage intervenant dans ces équations sont en fait identiques aux coefficients des équations 3.17 :  $\kappa(z,t) = \kappa_{FR} = \kappa_{RF}$  et  $\alpha_m(z,t) = \alpha_i$ . Les deux premières équations, couplées par le coefficient  $\kappa$ , décrivent l'évolution de chaque amplitude contrapropagative qui compose le champ électromagnétique laser.

Les amplitudes  $F$  et  $R$  évoluent suivant le gain dans la structure par les deux paramètres  $\alpha_m$  et  $\kappa$ . Si  $\kappa$  est nul, les amplitudes deviennent indépendantes et présentent une amplification uniquement par la présence de gain uniforme due au milieu actif. La constante  $\delta$  dépend uniquement de  $\alpha_m$  présent dans le matériau par le terme continu de la série de Fourier de la susceptibilité.

En revanche, si  $\alpha_m$  est nul, le gain est uniquement présent dans la constante de couplage. Un coefficient purement réel implique uniquement une sélection en fréquence sans altérer l'amplitude de chaque onde contrepropagante centrée sur la fréquence de Bragg. Par contre, dans le cas où elle est purement imaginaire, l'évolution croissante des amplitudes dans leurs sens privilégié ne provient que de l'amplitude posée.

Enfin, la vitesse de groupe dépend directement de la géométrie du guide, en particulier par les facteurs de confinement. Un milieu actif en couche mince génère alors une énergie lumineuse dont la vitesse de propagation dépend du mode propre de propagation.

En ce qui concerne la dernière équation, l'inversion de population entre le niveau excité et le niveau fondamental de la transition laser est décrite par  $\Delta N = N_2 - N_1$ . Le premier terme du second membre en  $\psi(t)$  rend compte du taux de pompage sur la population des états excités. La population totale des

molécules actives est représentée par  $N_{tot}$ . Ensuite, la relaxation spontanée, supposée uniquement radiative pour les colorants, intervient par le taux  $\gamma_{rad}$ . Il tend à diminuer l'inversion de population. Enfin, le dernier terme du second membre couple la différence de population au champ électromagnétique du laser par l'intermédiaire des variables internes du colorant. Les termes croisés dans l'expression du module du champ électrique sont négligés dans cette équation : ils sont caractéristiques du *spatial hole burning*. Cet effet est également négligé lors des approximations sur la variation lente de l'inversion de population. Il consiste en une détérioration locale du gain par la présence des champs laser opposés dans la cavité. Une seconde modulation est créée en accord avec la longueur d'onde de l'émission laser. Il a été démontré dans les simulations numériques que l'influence des interférences du champ sur le gain du matériau impose une légère atténuation au centre du réseau [20]. En effet, l'une des amplitudes est nulle au bord du réseau, annulant ainsi les termes de produit croisé. Néanmoins, son influence au milieu de la structure peut atteindre 40 %, sans pourtant autant altérer significativement le champ optique en sortie.

Le champ électrique semble être indépendant de l'inversion de population dans la formulation des équations. Néanmoins, il faut se rappeler l'expression de la constante de couplage qui fait intervenir la susceptibilité diélectrique sous la forme d'une série de Fourier. De ce fait, les termes  $c_{res}(z,t)$  s'expriment en fonction de l'inversion de population. Elles sont donc bien couplées les unes aux autres et le champ laser agit sur l'inversion de population.

#### 4.1.1.2. L'auto-déclenchement de l'effet laser

Les simulations de ce système d'équations permettent d'acquérir une compréhension sur les phénomènes à l'origine de l'oscillation laser [24]. La première considération est l'introduction d'un terme de fluctuation uniforme qui représente l'émission spontanée dans la cavité. Son énergie est équivalente à l'énergie d'un photon à la longueur d'onde considérée. Elle ne dépend pas de la variable  $t$  dans les simulations effectuées. Elle est à l'origine de l'émission du laser DFB à colorant.

L'excitation induit une variation de la susceptibilité diélectrique du milieu actif. Elle impose alors l'accroissement de l'inversion de population, et du gain dans la cavité. Celui-ci augmente comme l'intégrale de l'impulsion excitatrice. Les champs électromagnétiques se créent dans la cavité par réflexion de Bragg sur le réseau de susceptibilité et l'inversion de population croît alors moins rapidement : c'est la saturation de gain. Les ondes tendent à diminuer le gain de la structure. Cet effet devient prédominant lorsque l'onde électromagnétique devient très importante. A cet instant, les réflexions de Bragg deviennent suffisamment négligeables pour laisser échapper de la cavité toute l'énergie lumineuse sous forme d'une impulsion laser. **On parle alors de cavité auto-relaxante (*self cavity dumping*) ou de laser à auto-déclenchement.** Le pompage, à l'origine de la présence de gain dans la cavité, n'a plus aucun effet sur le matériau et le champ généré par celui-ci détruit la cavité par l'intermédiaire de la saturation de gain.

Si la durée du pompage est grande, ce processus peut s'instaurer de nouveau dans la cavité, permettant ainsi la génération d'un train d'impulsions laser. La saturation de gain disparaît totalement et l'excitation devient à nouveau dominante et à l'origine d'une nouvelle inversion de population. Si la puissance d'excitation augmente, la relaxation brutale de l'inversion de population apparaît plus rapidement.

Enfin, la longueur du réseau est cruciale dans la durée de l'émission DFB. En effet, cette longueur de réseau  $L$  est décrite en terme de temps de transit des photons dans la cavité, soit  $L / v_{gr}$ . En effet, les équations cinétiques sur l'inversion de population et la densité de photons créés dans la structure ont été simulées [22]. De ces équations est apparu un paramètre qui décrit toute la dynamique temporelle de la génération de l'émission laser : le temps de vie des photons dans la cavité.

Il est explicité dans une publication de S. Chinn [52], basée sur les expressions de la première théorie des modes couplés [2]. Ce temps caractéristique est proportionnel au carré de la constante de couplage du réseau et au cube de sa longueur. Il est donc évident maintenant que le temps de vie des photons dans la cavité varie en fonction de l'inversion de population, via la constante de couplage  $\kappa(z,t)$ . Il est en outre d'autant plus grand que la longueur du réseau est grande. Il permet ainsi d'accéder au taux de compression de l'émission laser, à son régime de couplage et à l'éventuel nombre d'impulsions générés.

Mais les équations aux modes couplés dynamiques ne reposent pas sur les mêmes bases car l'énergie lumineuse n'est pas quantifiée. Elles sont démontrées théoriquement, au regard des démonstrations d'ordre phénoménologique qui sont à l'origine des équations de Z. Bor [22]. C'est pourquoi les simulations du système d'équations 4.1 ne prennent pas en compte ce temps de cavité.

Pour observer l'influence de la longueur du réseau, la durée de l'excitation doit être du même ordre de grandeur ( $10^{-11}$  s) que l'impulsion générée. Dans le cas où celle-ci est plus grande, de plusieurs ordres de grandeur, la longueur  $L$  n'a pratiquement aucun effet et le taux de compression est quasiment constant. **Par contre, si le pompage optique est de quelques dizaines de picosecondes, l'émission engendrée est d'autant plus courte que le réseau est petit, au détriment du gain dans la cavité.** Pour ne citer qu'un résultat, une interférence excitatrice de 70 ps sur une cuve de rhodamine 6g en solution dans l'éthylène glycol devrait théoriquement induire une émission laser de 3 à 14 ps, pour une longueur de réseau effective de 0,5 à 4 mm. Si les prédictions qualitatives sont très bonnes, les expériences liées à ces études théoriques semblent plus prudentes en ce qui concerne les mesures du taux de compression.

#### 4.1.1.3. Les études sur les lasers colorants à gain distribué

La rhodamine 6G en solution est le premier colorant étudié en régime d'interférences de type contre réaction répartie. Les études expérimentales menées via la méthode développée par Z. Bor [22] et expliquées par la figure 1.6a révèlent une compression temporelle d'un facteur 100 pour ce colorant. En effet, le pompage est effectué par un laser  $N_2$  qui fournit des impulsions de 5,5 ns. Les impulsions DFB mesurées par une caméra à balayage de fentes peuvent être

générées seules ou successivement. Elles atteignent parfois la résolution de la caméra, et sont estimées à environ 60 *ps*. La compression est alors quantitative.

Mais la reproductibilité des résultats n'est pas suffisante. Les simulations à partir des équations cinétiques de pompage sont en accord pour les durées, contrairement aux mesures d'énergie (supérieures aux valeurs prédites) et aux mesures d'écart entre les impulsions. Ce dernier varie entre 200 et 250 *ps* alors que les équations prévoient des intervalles de 600 *ps* à 1 *ns*. En comparaison, la théorie semi-classique prévoit des intervalles de l'ordre de 30 *ps* pour une durée d'excitation de 70 *ps*. Ces valeurs seront comparés aux résultats observés dans l'expérience de réseau induit par laser dans les films minces polymères.

Une étude postérieure propose un autre dispositif qui permet de générer des impulsions de quelques centaines de femtosecondes [53]. Elles sont obtenues à partir un laser DFB en solution. Le pompage en cascade de lasers à colorants fournit des impulsions de 8,5 *ps*. La zone d'illumination est longue de 100  $\mu\text{m}$  et s'étend sur 10  $\mu\text{m}$  de hauteur. Le signal en sortie est amplifié sur trois étages avant d'être analysé par un auto-corrélateur<sup>†</sup>. Le signal mesuré possède une durée estimée, pour un ajustement à une forme temporelle sécante hyperbolique, de 324 fs. Dans ce cas, la compression temporelle est de 25. Ces résultats restent approximatifs du fait d'une modification possible de la durée de l'impulsion par la présence des amplificateurs. Mais la compression temporelle est effective.

Par ailleurs, une analyse de nombreux composés organiques dans un dispositif expérimental complexe [37] permet de visualiser l'influence de la longueur du réseau sur la compression temporelle. Il est démontré que les estimations théoriques suivent le comportement expérimental du taux de compression avec le rapport entre la durée de l'excitation et le temps de transit des photons dans la cavité. Mais le taux de compression est généralement surestimé : il existe un facteur 10 environ pour les plus longs réseaux (supérieurs à 1 *mm*) et les valeurs expérimentales confirment la théorie pour les plus courts d'entre eux (inférieurs à 0.5 *mm*).

Enfin, il est intéressant de citer une dernière expérience menée par la même équipe [54]. Celle-ci révèle la relation entre le spectre de l'émission laser, la répartition temporelle et spatiale des impulsions du train généré. Il est démontré auparavant que les impulsions successives présentent un décalage spectral les uns par rapport aux autres. Cet écart en longueur reste inférieur à l'angström.

En ce qui concerne la répartition spatiale des impulsions laser, elle est voisine de 15 *mrad* entre la première impulsion et la seconde. Cette ouverture angulaire est attribuée à un gradient d'indice de réfraction dans la cuve, uniquement d'origine électronique, et non pas thermique. Une sélection spatiale permet ainsi d'obtenir une impulsion laser picoseconde unique avec une cuve de rhodamine 6G en solution.

---

<sup>†</sup> Ce dispositif permet de mesurer l'évolution statistique du contraste des interférences créées par doublage de fréquence du signal en fonction du retard temporel d'un des bras de l'interféromètre.

A notre connaissance, aucune étude ne traite du délai entre l'émission laser et le pompage optique pour un laser DFB organique. Les études concernant les lasers DFB déclenchés par le gain peuvent néanmoins apporter un éclaircissement sur ce problème [55]. Mais le réseau DFB est maintenant gravé dans la structure et l'inversion de population n'impose plus son effet sur le temps équivalent de cavité<sup>†</sup>.

Ces dernières expériences montrent que les variations du délai d'émission dépendent de la puissance d'excitation : le temps de montée de l'excitation est de 250 ps, la largeur de l'impulsion est de 10 ns et les expériences ont lieu à 50 KHz. Les résultats obtenus pour le laser DFB monomode traduisent un écart type conséquent sur le délai temporel entre l'émission et l'excitation (entre 10 et 20 ps) au seuil d'émission. Les fluctuations du déclenchement de l'impulsion laser dans les structures semi-conductrices sont donc plutôt faibles.

Les matériaux utilisés dans notre étude et le processus physique différent du laser à semi-conducteur *Q-switché*. Il est difficile d'évaluer ces fluctuations dans nos films polymères. Seules des expériences à partir d'une source excitatrice dont la forme spectrale et temporelle ne fluctuent pas peut fournir une estimation des fluctuations de l'auto-déclenchement laser.

#### 4.1.2. Méthodes expérimentales de l'optique non linéaire

L'optique non linéaire permet d'étudier la plupart des matériaux, qu'ils soient résonants ou non. En effet, les lasers de forte puissance induisent des effets qui sont plus proportionnels à l'énergie incidente. L'histoire de cette discipline veut que les interactions de type non linéaire soient attribuées à des transitions sur des états d'énergie virtuels. Mais son champ d'application s'étend aussi aux matériaux dont la bande d'absorption recouvre les longueurs d'onde d'excitation [56]. Par exemple, l'absorption à deux photons ou la limitation optique mettent en jeu des niveaux d'énergie réels. Ces processus font partie intégrante de l'optique non linéaire.

Les différents processus de relaxation des matériaux sont également accessibles à partir de l'optique non linéaire. Ainsi, les mesures temporelles peuvent décrire les différents états d'énergie des particules pendant et après l'excitation. Les méthodes les plus répandues pour les caractériser sont la conjugaison de phase<sup>‡</sup> ou holographie dynamique [57]. La relaxation d'un matériau peut être aussi observée par d'autres méthodes telles que l'ellipsométrie Kerr.

<sup>†</sup> Les oscillations de relaxation rencontrées dans ces structures lors de la mise en route du courant électrique d'injection proviennent de la pulsation de Rabi qui devient importante pour les matériaux dont le temps de déphasage est proche du temps de montée de l'excitation. Ainsi, les cohérences explicitées dans les équations de la matrice densité (annexe B) présentent des oscillations, induisant les trains d'impulsions bien connus dans le cas du laser à Ruby.

<sup>‡</sup> La conjugaison de phase est définie par la possibilité de créer un champ optique de même forme spatio-temporelle que l'onde qui en est à l'origine, à une particularité près : son front d'onde est renversé dans le temps, au regard du front de l'onde incidente [58].

#### 4.1.2.1. Le principe du mélange à quatre ondes dégénérées

La méthode du mélange à quatre ondes dégénérées en fréquence est une technique très développée dans l'analyse des non-linéarités de matériaux solides, liquides ou gazeux. Le principal objectif de cette expérience repose sur l'analyse des composantes du tenseur de la susceptibilité d'ordre 3 (lorsque les champs sont traités sous une forme scalaire, le tenseur laisse la place à un scalaire). En effet, dans le cas des milieux transparents à la longueur d'onde d'excitation, la polarisation du milieu, non résonant au premier ordre avec l'excitation, peut être décomposée suivant une série de Taylor. La susceptibilité suit ce raisonnement et le  $[\chi^{(3)}]$  est le troisième terme de cette série. Le tenseur précédant,  $[\chi^{(2)}]$ , apparaît uniquement dans les matériaux non-centrosymétriques. De ce fait, les milieux liquides soumis à une unique longueur d'onde d'excitation présentent des non-linéarités optiques uniquement du troisième ordre.

Mais l'expression de la polarisation comprend d'autre part l'expression du champ électrique. Au terme d'ordre  $n$  pour la susceptibilité est associé une puissance  $n$  du champ électrique. Ce champ peut être vectoriel, scalaire, et décomposé en plusieurs composantes de phase différente. Ainsi, le terme de puissance du champ comporte de nombreux termes suivant le nombre de composantes impliquées.

Le problème physique peut être décrit comme suit : trois faisceaux incidents interagissent sur un milieu suivant une géométrie que l'on choisit. La plus classique est représentée sur la figure 4.1. Deux ondes contrapropageantes, de

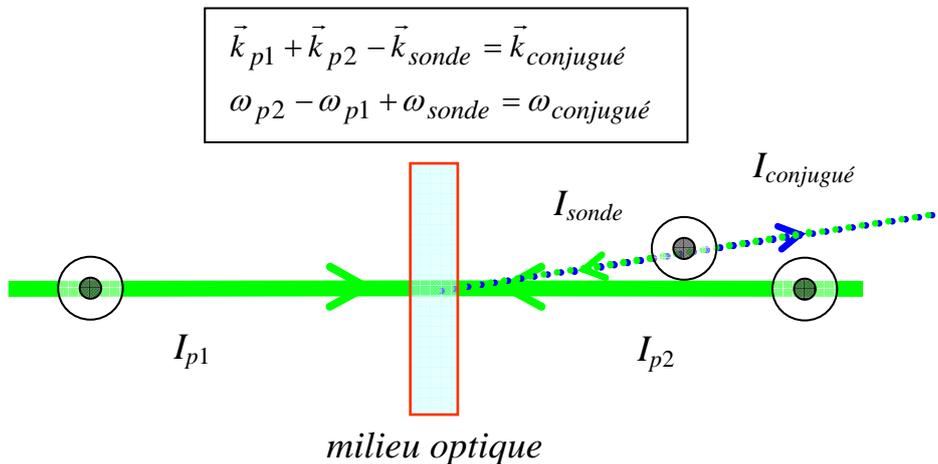


Figure 4.1 principe du mélange à quatre ondes dégénérées. Les deux faisceaux pompes  $I_{p1}$  et  $I_{p2}$  sont représentés en trait plein vert et le faisceau sonde  $I_{sonde}$  est dirigé avec un angle faible par rapport à l'axe défini par  $I_{p1}$  et  $I_{p2}$ . L'onde conjuguée en phase est émise ici sur la même direction mais de sens opposé à  $I_{sonde}$ . Les polarisations sont représentées à titre d'exemple.

forte intensité, imposent une excitation du milieu vers des états d'énergie d'ordre supérieurs et créent un réseau de Bragg dans le matériau. Une troisième onde,

incidente sur une direction légèrement différente, permet, malgré sa faible intensité, la génération d'une quatrième onde dont la fréquence angulaire et la constante de propagation dépendent des trois autres champs et de la susceptibilité diélectrique du milieu : le faisceau conjugué en phase.

Le principe général de la conservation de l'énergie impose la création de cette composante supplémentaire pour le champ, composé de plusieurs faisceaux, dès lors que l'interaction avec le milieu, décrit par la polarisation, se produit. La conservation de l'énergie n'est pas le seul critère d'apparition de la quatrième onde. Il est nécessaire aussi de vérifier l'accord vectoriel de phase entre les différentes constantes de propagation  $\vec{k}_i$  du champ.

Ces deux conditions sont généralement résumés ainsi :

$$\begin{aligned} \sum_i \vec{k}_i &= 0 \\ \sum_i \omega_i &= 0 \end{aligned} \quad \text{Equation 4.3}$$

Ces deux conditions sont à la base de la conjugaison de phase. Il faut garder à l'esprit que les expressions mathématiques des champs comportent des termes complexes conjugués. De ce fait, il est possible d'écrire les pulsations  $\omega_i$  sous une apparence algébrique, permettant ainsi de remplir la seconde condition. Cette possibilité mathématique est à l'origine de la notion de renversement temporel du front d'onde car le champ généré devient le champ complexe conjugué du faisceau sonde, si les pompes sont contrepropageantes. Son front d'onde est ainsi identique à celui de la sonde, mais il se propage dans la même direction et dans le sens opposé. Le faisceau conjugué en phase possède ainsi des propriétés très particulières : elles dépendent directement des polarisations des composantes du champ électrique et de la susceptibilité du matériau non linéaire. En ce qui concerne les matériaux absorbants, le développement en série de Taylor n'est plus acceptable car les termes d'ordre supérieur ne peuvent plus être négligés. Néanmoins, l'expérience est profitable pour plusieurs raisons. Pour l'expérience sur le laser DFB, ce montage n'a pas pour but la détermination des composantes du tenseur d'ordre trois de la susceptibilité diélectrique : il permet de sonder le matériau en régime DFB pendant et après l'interaction laser. Cette étude porte plus habituellement le nom de technique de réseau induit par laser.

#### 4.1.2.2. L'ellipsométrie Kerr

Les interactions de la lumière avec un milieu optique permettent souvent d'obtenir des informations sur la structure atomique du matériau. Les différents processus de relaxation, définis dans le premier chapitre, peuvent être caractérisés par des expériences de l'optique non linéaire. Par exemple, l'effet Kerr optique dans le CS<sub>2</sub>, représenté mathématiquement par le  $[\chi^{(3)}]$  est dû une réorientation moléculaire<sup>†</sup>. Cette réorientation des molécules dans le référentiel du champ électromagnétique est accessible par une méthode d'ellipsométrie Kerr.

<sup>†</sup> L'effet de la déformation du nuage électronique dans les expériences du disulfure de carbone peut être négligé en première approximation.

Cette technique, initialement connue sous le nom de porte Kerr optique, consiste à placer un échantillon entre deux polariseurs croisés et à observer la transmission du faisceau polarisé incident de faible intensité (la sonde), lorsque l'échantillon est excité par une pompe monochromatique. La position angulaire de l'analyseur correspondant au minimum de transmission,  $\phi_{min}$ , déterminée statistiquement, indique la déviation angulaire des molécules lorsque le faisceau pompe est présent. Un retard temporel du faisceau sonde permet d'accéder à la réorientation moléculaire du matériau. En effet, les molécules ont tendance, lors de l'interaction, à s'orienter dans le sens de la polarisation du faisceau intense. Le délai temporel permet de caractériser la répartition angulaire des molécules excités à des intervalles de temps supérieurs à la durée de l'impulsion excitatrice. Un temps caractéristique de réorientation moléculaire permet d'accéder aux sections efficaces d'absorption des niveaux de la transition considérée et aux biréfringences induites [58].

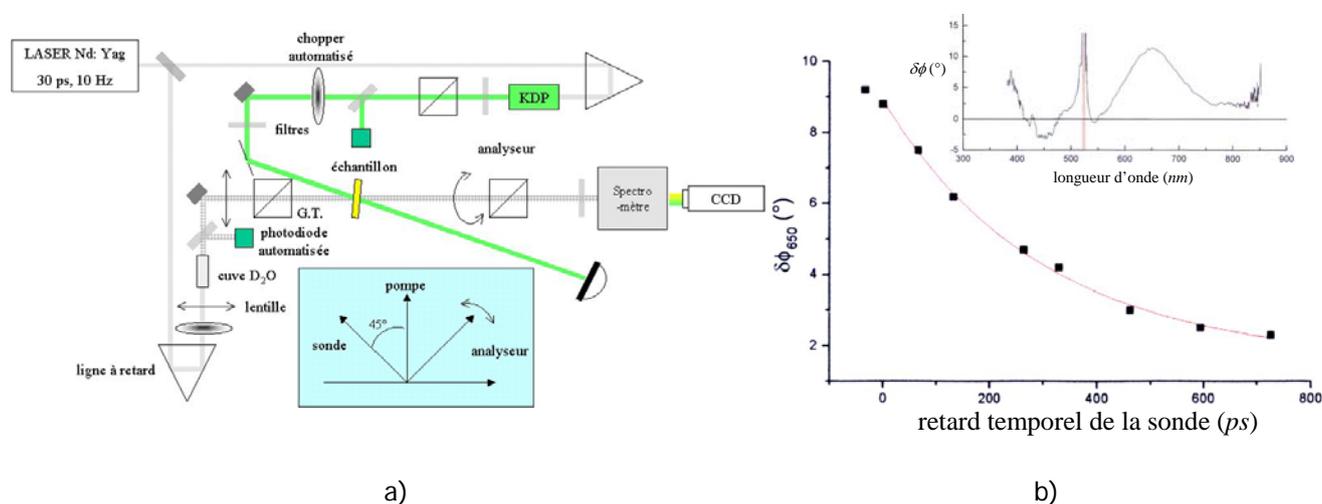


Figure 4.2 a) montage d'ellipsométrie Kerr. Seuls les premiers éléments sont décrits. Le faisceau en trait plein gris est à  $1,06 \mu\text{m}$ . La cuve d'eau lourde génère un spectre blanc homogène (en trait pointillé gris) à partir d'un faisceau à  $1,06 \mu\text{m}$ . Les traits plein verts indiquent que le faisceau incident est à  $532 \text{ nm}$ . L'encart expose les polarisations des deux faisceaux. b) décroissance temporelle de l'orientation angulaire induite des molécules de DCM à  $200 \text{ MW/cm}^2$  pour l'intensité de pompe. L'insert expose un spectre du dichroïsme induit.

Mais le montage d'ellipsométrie Kerr offre une évolution importante à la porte Kerr. Il offre la possibilité de mesurer la réorientation moléculaire en fonction de la longueur d'onde de la sonde [59]. Le montage schématisé ci-dessous, indique que la cuve d'eau lourde introduite sur le chemin optique de la sonde permet d'obtenir un spectre blanc assez homogène. Ainsi, elle permet la mesure séparée des parties réelle (biréfringence) et imaginaire (dichroïsme) de l'indice de réfraction non-linéaire sur tout le spectre visible et infrarouge proche. L'ellipsométrie Kerr procure également les spectres d'absorption (via le dichroïsme) des molécules excitées. La très grande sensibilité de l'ellipsométrie Kerr provient du fait que l'intensité n'est pas un facteur limitant ici. Seule la détection spectrale du faisceau sonde polychromatique est critique par la courbe de sensibilité spectrale du détecteur.

L'expérience d'ellipsométrie Kerr offre la possibilité d'étudier la réponse spectrale de l'effet Kerr optique dans les couches minces polymères, dopés avec des colorants. Avant d'étudier ces couches minces, les premières études ont porté sur une solution de DCM dans du DMSO (di-méthyl sulfoxyde). L'absorption à 532 nm offre une très grande non linéarité et les angles d'orientation des molécules peuvent atteindre 20°. Cette variation importante apporte une limite supérieure à l'expérience. En effet, selon l'encart de la figure 4.2, la sonde est polarisée linéairement à 45° de la pompe et l'analyseur varie autour de la direction orthogonale à la sonde. De ce fait, un trop grand angle  $\phi_{min}$  tend à recueillir une partie du faisceau de pompe, malgré son désalignement avec le spectromètre. Ainsi, l'expérience perd sa sensibilité spectrale car la position angulaire du minimum n'est plus attribuée uniquement au faisceau sonde.

Le dichroïsme induit est maximum autour de 650 nm de longueur d'onde. Il semble donc être important sur les états triplets de la molécule, plutôt que pour les états singulets. La largeur à mi-hauteur de la réponse du matériau est sensiblement constante (50 nm) quelle que soit l'intensité de pompe. Les expériences temporelles ont révélé un temps de réorientation moléculaire de  $220 \pm 20$  ps, pour une intensité de pompe de  $200 \text{ MW/cm}^2$ . Ce temps de relaxation est en bon accord avec les résultats expérimentaux antérieurs pour ce type de colorant [60].

Enfin, les études menées avec les films polymères n'ont pas permis d'établir une comparaison avec ces mesures car l'intensité nécessaire détruit rapidement la couche.

## 4.2. Holographie dynamique

L'expérience d'holographie dynamique consiste en l'étude de la diffraction d'un faisceau de faible intensité sur une modulation temporaire des propriétés physiques d'un matériau. La modulation complexe démontrée au deuxième chapitre peut être analysée du point de vue temporel. L'effet laser produit par une excitation interférentielle pulsée dans une structure à gain distribué est générée par la présence du réseau complexe induit.

Ce phénomène est transitoire au sens où la durée d'excitation est inférieure ou de l'ordre de la relaxation radiative spontanée des molécules actives. Dans ce cas, la réponse du matériau ne dépend plus seulement de ces propriétés intrinsèques, mais également des propriétés géométriques de l'excitation. Par exemple, la longueur du réseau induit est cruciale car elle fait intervenir le temps de transit des photons dans la cavité.

D'autre part, les travaux antérieurs ont mis en évidence la possibilité d'une émission laser sous la forme d'un train d'impulsions dont la composition dépend directement de l'intensité et de la durée du pompage.

Les techniques de l'optique non linéaire sont alors appropriées pour étudier la relaxation ou l'éventuelle renouvellement de cette modulation de la susceptibilité diélectrique. En effet, elles rendent l'étude temporelle accessible du fait des hautes puissances mis en jeu et du régime pulsé de très courte durée. Les lasers femtosecondes sont déterminants dans ce cadre de recherche. Mais une connaissance assez précise du processus analysé est nécessaire pour aborder la question de l'échelle des temps. En effet, sonder avec un source femtoseconde des effets thermiques dont la durée est supérieure à la nanoseconde n'a aucun sens.

Les lasers DFB en configuration PMMA/Rh6G possèdent, d'après les travaux de M. Maeda et al. [43], des taux de compression d'environ 20 en régime picoseconde (cinq fois plus faible qu'en régime nanoseconde). Néanmoins, ce taux dépend directement de la longueur du réseau et du rapport entre les intensité de pompe et l'intensité de saturation du matériau. Il est donc possible d'étudier le comportement dynamique du réseau DFB en régime picoseconde. L'expérience suivante est ainsi basée sur une technique de l'optique non linéaire : la méthode du réseau induit par laser.

### 4.2.1. Principe de la technique de réseau induit par laser

La technique de réseau induit par laser\* est une appellation générale pour l'interaction suivante : deux faisceaux interfèrent avec un milieu optique, et un troisième faisceau permet de sonder le système choisi par diffraction sur le réseau induit. Cette technique permet connaître le comportement du milieu optique avant, pendant et après l'interaction principale.

Les observations permettent généralement d'en déduire les différentes constantes

---

\* En anglais, cette méthode porte deux noms similaires : *laser-induced dynamic grating technique* (LITG) et *transient grating technique* (TG).

de temps des processus de relaxation engagés dans la désexcitation du matériau. La première application de cette technique est fondée sur la détermination du taux de relaxation radiative spontanée [61]. Une augmentation du trajet optique sur le troisième faisceau permet de constater l'évolution de l'intensité diffractée en fonction du délai temporel entre la présence du réseau et celle de la sonde.

Une excitation au maximum de la bande d'absorption permet d'en déduire ainsi le temps de fluorescence d'un milieu. Les premières expériences de ce type sont apparues après la réalisation de lasers à impulsions stables, aux environs des années 70. A.E. Siegmann et son équipe de Stanford ont développé activement ce procédé pour connaître les différentes interactions physiques que peuvent subir les milieux matériels après une excitation lumineuse [62].

De nos jours, ces techniques sont très développées et permettent d'obtenir des renseignements sur le milieu étudié à toutes les fréquences possibles [63]. Une étude temporelle de processus ultra-rapides est également possible avec les nouveaux lasers pulsés femtosecondes [64]. Dans notre cas, le mélange à quatre ondes dégénérées utilisé permet ce type d'étude expérimentale en régime picoseconde.

#### 4.2.1.1. Description du montage expérimental

Le montage utilisé pour accéder à la relaxation temporelle du réseau DFB dans les films minces polymères est décrit sur la figure 4.3. La configuration du dispositif est différente de la technique de mélange à quatre ondes classique. Dans cette dernière, les faisceaux pompe sont contrapropagatifs (figure 4.1). Cette géométrie est utilisée car la théorie correspondante est plus accessible. En effet, les équations couplées sur les quatre amplitudes de champ deviennent alors scalaires car tous les faisceaux, de polarisation identique, sont considérés comme colinéaires. Néanmoins, le mélange à quatre ondes tel qu'il est utilisé dans notre configuration est également possible [50]. D'autre part, il existe une différence réelle entre les deux configurations car la méthode classique correspond à une méthode en réflexion tandis que le montage expérimental de la figure 4.3 correspond à une conjugaison de phase en transmission.

La source optique est un laser Nd :YAG identique aux expériences spectrales. Les éléments d'un montage de mélange à quatre ondes dégénérés sont adaptés pour obtenir l'effet laser dans le film mince. Les faisceaux de forte intensité deviennent orthogonaux, ou presque. La couche mince est montée sur un support pivotant gradué toutes les dix minutes d'arc. Le miroir de renvoi de la pompe n°1 est monté sur une platine de translation micrométrique et dans un support rotatif. Les deux pompes permettent ainsi de générer l'effet laser à différentes longueurs d'onde.

Pour permettre un contrôle précis des puissances de chaque faisceau, deux régulateurs d'intensité, composés d'une lame  $\lambda/2$  et d'un polariseur de Glan Taylor (G.T.) sont introduits sur le montage : le premier permet de contrôler la puissance générale du montage et le second permet de fixer la puissance de la pompe 2, par rapport à la pompe 1. Des filtres neutres sont placés sur le chemin optique de la sonde, après la ligne à retard, pour diminuer son intensité (elle est de deux ordres de grandeur inférieure aux intensités de pompe).

Les lignes à retard des pompes 1 et 2 permettent d'optimiser le rendement laser et la diffraction du troisième faisceau sur le réseau induit. On considère à ce propos que le maximum de diffraction et de rendement laser (ils sont identiques au incertitudes près) équivaut au maximum de recouvrement temporel des deux faisceaux intenses. La ligne à retard installée sur le trajet de la sonde est l'élément clé de cette expérience car elle permet de constater l'évolution temporelle de la diffraction sur le réseau DFB. En augmentant le trajet optique de la sonde, celle-ci est en retard au niveau de l'échantillon, par rapport au réseau d'illumination imposé par les pompes.

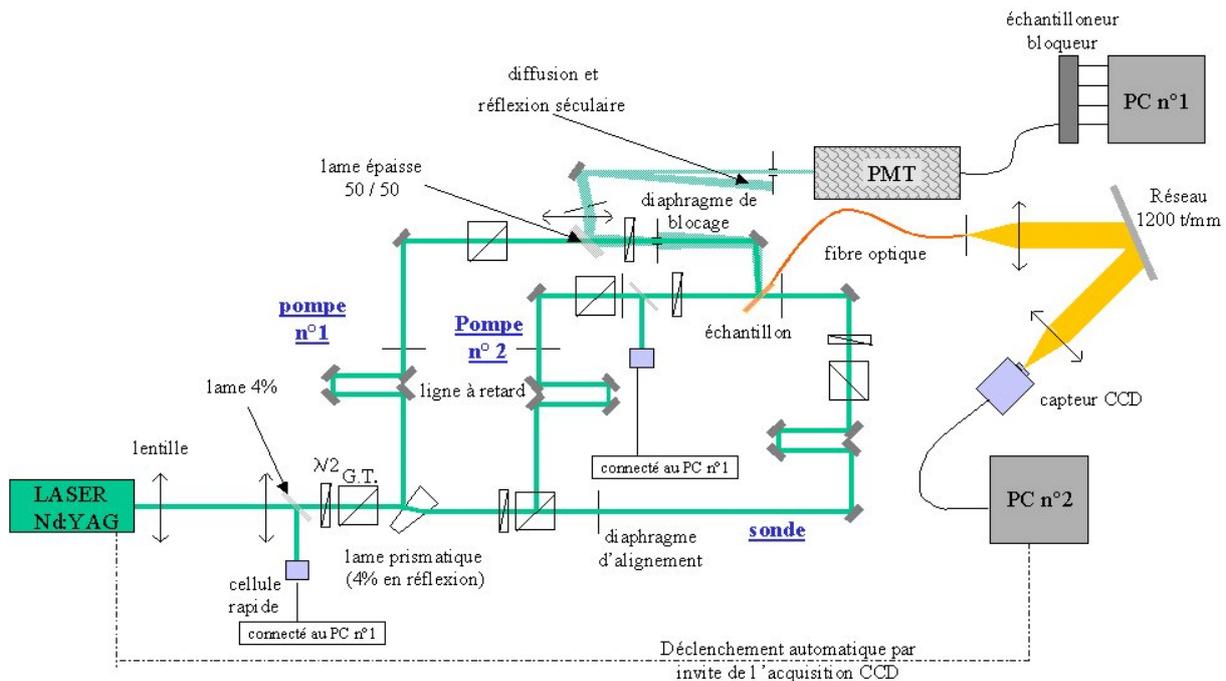


Figure 4.3 schéma du montage expérimental. Chaque élément est décrit une seule fois. Les bras des faisceaux pompe sont orthogonaux entre eux pour générer l'émission laser DFB contrôlée spectralement. L'échantillonneur-bloqueur ouvre une porte électronique de 1 ns sur le signal en tension du photomultiplicateur (PMT).

Ensuite, les polariseurs de Glan et les lames demi-ondes permettent un contrôle de la polarisation de chacune des ondes interagissant sur le milieu. La nouvelle configuration orthogonale des faisceaux ne permet pas d'éviter la déviation de la polarisation de la pompe 1 lors de la réflexion sur le miroir précédant l'échantillon. Néanmoins, le rendement laser est optimisé pour des champs électriques à polarisation linéaire verticale, et une vérification du réglage par ce rendement permet une légère correction de la position de la lame demi-onde.

Enfin, la diffraction de la sonde sur le réseau est attendu, par accord de Bragg, ou accord de phase, dans la même direction que la pompe 1, mais en sens inverse. De ce fait, la lame épaisse 50/50 placée sur le chemin optique permet de séparer l'onde incidente de l'onde diffractée. Ce champ lumineux diffracté est détecté après une sélection en longueur d'onde par un filtre interférentiel (Melles Griot à 534 nm et 10 nm de largeur totale à mi-hauteur) par un photomultiplicateur, protégé par des filtres neutres internes.

#### 4.2.1.2. Le système de détection

Quatre interactions principales se produisent dans l'expérience. La première, et celle recherchée, est la diffraction du faisceau sonde par la structure DFB imposée par les pompes. Elle s'opère à la longueur d'onde incidente, soit 532 *nm*. Elle dépend des caractéristiques spatiales du milieu, qui évoluent par la présence des interférences dans le milieu. La seconde est la photoluminescence des molécules excités de colorant qui composent le matériau. Cette émission n'est pas directive : le milieu absorbant rayonne sur  $4\pi$  d'angle solide et la puissance reste négligeable devant l'intensité de la sonde. Ensuite, la réflexion séculaire (ou réflexion de Fresnel) de la pompe 2 sur la couche mince peut emprunter le trajet du faisceau diffracté car l'angle entre des deux pompes est proche de  $90^\circ$ . La longueur d'onde de cette réflexion est également 532 *nm*. Enfin la diffusion des trois faisceaux sur l'échantillon possède une énergie faible au regard de la puissance de pompe mais peut devenir prépondérante pour le seuil de sensibilité de la détection.

La présence du filtre interférentiel et du diaphragme de blocage sur le trajet de pompe permettent d'éviter une détection de ces processus physiques. Un filtre spatial à l'aide d'une lentille convergente décentrée et d'un second diaphragme de blocage permettent de séparer complètement ces interaction du phénomène de diffraction recherchée.

Par ailleurs, le système de contrôle de l'émission laser est identique aux expériences menées lors de l'étude spectrale. L'angle d'interférence n'est pas correctement maîtrisé du fait de la géométrie du montage et une vérification du spectre d'émission est primordiale pour la validation de l'expérience. Il permet d'autre part de contrôler les réglages des différents éléments du montage, tant du point de vue de la polarisation que de la position temporelle et spatiale relatives des pompes. Enfin, le nombre de mesures est important et la dégradation des couches est accessible car les mesures sont effectuées pour un pas de réseau constant.

Enfin, le détecteur qui mesure l'énergie de l'onde diffractée est un photomultiplicateur (PMT) Hamamatsu H1949 (tube R1828-01), relié à un échantillonneur-bloqueur Stanford Research System de type SR 255. Ce dispositif permet de sélectionner par une porte temporelle électronique le signal fourni par le PM sur 1 *ns*. Rappelons ici que les mesures sont effectués avec des champs optiques d'une durée moyenne de 35 *ps*. La position temporelle de la fenêtre temporelle par rapport au signal détecté est ajusté par un potentiomètre précis à 0,01 *V*. Ce réglage permet ainsi d'éviter la juxtaposition des réflexions secondaires sur les différents éléments du montage et du signal effectif. La porte se trouve être trop large pour évincer tous les processus de diffusion et de réflexion séculaire de la pompe 2 et c'est pourquoi les techniques de filtrages sont employées.

#### 4.2.1.3. Acquisition des mesures

Le nombre d'acquisitions pour la mesure du signal diffracté est important. Les photodiodes du montage et le photomultiplicateur sont reliés à une centrale d'acquisition qui permet d'obtenir l'évolution du signal diffracté en fonction de l'énergie détectée par la photodiode de contrôle située sur le faisceau n°1 (figure 4.1). Le nombre de tirs laser pour chaque délai temporel est fixé à 250 en moyenne. En effet, il est possible de régler la puissance de l'énergie lumineuse en entrée de montage et de la faire varier tous les 50 tirs environ. Malheureusement, les énergies atteintes peuvent être très importantes et la photodégradation des films polymères est accélérée. L'énergie d'entrée est donc fixée une fois pour toute. De ce fait, la dynamique de puissance du signal détecté reste faible. Le PMT possède une réponse en tension sur 5 V. Elle est réduite par la présence de l'échantillonneur-bloqueur à 1,4 V.

Par ailleurs, la diffraction mesurée s'étale sur toute cette dynamique pour une faible gamme de puissance d'entrée. En effet, l'évolution en intensité du signal diffracté apparaît uniquement par la variation de la puissance du laser d'excitation. Celle-ci dépend essentiellement du découpage temporel de son train d'impulsions par la cellule de Pockels du laser. Cette sélection peut fluctuer et générer une dispersion de l'énergie à chaque tir, suffisante pour observer le signal attendu. Nous avons ainsi accès rapidement au comportement qualitatif du signal diffracté en fonction de l'énergie des faisceaux pompe. Néanmoins, la dispersion reste importante car une fluctuation de la durée temporelle de l'impulsion excitatrice est également présente. Aucune mesure quantitative sur cette fluctuation n'a été réalisée dans le cas présent. Seule une estimation de 10 % a été déterminée au sein du laboratoire avant le début de ces travaux.

Toute cette dispersion dans les résultats imposent une étude statistique sur le signal analysé.

En outre, une mesure de bruit est établie sans la présence du faisceau sonde. Des observations sur les différentes sources de bruit possibles ont été préalablement effectuées pour constater que l'élément critique est la lame semi-transparente qui permet de recueillir le signal diffracté et le diriger vers le photomultiplicateur. En effet, le signal de faible énergie se propage sur le même axe que la pompe n°1, en sens inverse. Ce faisceau est 50 fois supérieur en énergie à la sonde, elle-même 100 fois supérieure au signal détecté. Il est donc nécessaire de prendre toutes les précautions nécessaires pour séparer un signal de faible intensité d'une réflexion secondaire de ce faisceau intense. D'autre part, la diffusion des faisceaux pompes sur l'échantillon est également importante. La sonde impose quant à elle un bruit optique inférieur de deux ordres de grandeur. Il est donc concevable de mesurer le bruit présent dans le signal sans le faisceau sonde. Cette mesure est soustraite au signal recherché. Elle varie au cours de l'expérience mais reste suffisamment constante pour contrôler son énergie toutes les cinq acquisitions.

Pour finir, une statistique est employée pour parer au problème de la dispersion. Les 250 points d'acquisitions sont séparés en 7 classes d'énergie incidente<sup>†</sup> (la

---

<sup>†</sup> Le nombre de classe est déterminé de telle façon que le nombre des points compris dans chaque classe soit à peu près constant, hormis pour les deux classes de très faible et très forte puissance d'entrée. (le nombre de classes n'est pas critique : 6,7, ou 8 classes donnent le même résultat).

moyenne des points dans chaque classe est égale à 30 tirs environ). La moyenne et l'écart quadratique moyen de chacune des classe permettent d'obtenir l'évolution moyenne du signal diffracté avec la puissance totale d'excitation. Ensuite, le retard temporel est introduit pour obtenir finalement la dépendance temporelle du signal diffracté. Seule la classe d'énergie centrale des acquisitions est étudié, car elle offre une assurance de la meilleure reproductibilité possible.

#### 4.2.2. Evolution temporelle de la diffraction

Les mesures expérimentales apportent un renseignement sur l'évolution du réseau de gain en régime laser. La couche mince de polymère est composée de PMMA (poly(méthyl-métacrylate)) et de rhodamine 6G. Ce film possède les mêmes caractéristiques que celles énoncées au chapitre 2 : l'épaisseur est de 1,9  $\mu\text{m}$  et la densité optique est toujours de 0,51. Les expériences possèdent un inconvénient majeur. Les trois faisceaux sont dégénérés en fréquence. Autrement dit, ils possèdent une cohérence temporelle sur toute la durée de l'impulsion laser. Le colorant laser est très absorbant à la longueur d'onde de travail. De ce fait, un artéfact de cohérence apparaît dans le signal diffracté : il correspond à la génération de l'onde conjuguée en phase du mélange à quatre ondes. Si le faisceau sonde se trouvait à une longueur d'onde transparente pour le milieu, il ne pourrait interagir autant avec le réseau DFB.

Le signal est ici analysé dans tout son ensemble, de ce pic de cohérence, jusqu'à l'observation et l'analyse de la décroissance sur un intervalle de 1  $\text{ns}$  : ce délai correspond au maximum de la détection du signal. Au delà, aucune mesure n'a été possible du fait de la présence du bruit optique.

##### 4.2.2.1. L'artéfact de cohérence

Le pic de cohérence nous renseigne sur le degré de saturation du gain laser [65]. En effet, le signal diffracté par un absorbant saturable, comme la rhodamine 6G, présente un pic de cohérence d'autant plus important que le gain est saturé. Si aucun pic de cohérence n'est observé, l'intensité excitatrice est inférieure à l'intensité de saturation de la transition laser. De plus, il permet de constater l'interaction des trois faisceaux pour un délai de sonde de l'ordre de grandeur de la durée temporelle de l'excitation.

Cet artéfact a été obtenu pour différents angles entre le faisceau n°1 et le faisceau n°2 (figure 4.4). Le filtrage spatial n'est pas utilisé car l'énergie diffractée est suffisamment intense pour la séparer du bruit optique environnant. La réflexion séculaire est stoppée par le diaphragme de bloquage.

Les angles d'interaction sont contrôlés par réflexion séculaire des ondes sur la couche mince. Ces trois acquisitions recouvrent une partie de l'accordabilité laser. Les spectres de l'émission laser montre un dédoublement de la raie, indiquant la présence du mode d'ordre supérieur. La décroissance du signal conjugué en phase est identique pour les trois longueurs d'ondes émises et égale à  $46 \pm 5 \text{ ps}$ . Cette décroissance correspond à la disparition du signal conjugué en phase avec le temps. A 583,4  $\text{nm}$ , la décroissance semble stable et suivre une chute exponentielle classique. Pour les autres longueurs d'onde laser (580,6  $\text{nm}$  et 577,1  $\text{nm}$ ), des

oscillations apparaissent. La première courbe possède en fait un sursaut à 66,6 ps tandis que la seconde présente une légère oscillation sur toute la décroissance. D'autres courbes confirment ces fluctuations cependant non reproductibles à chaque expérience.

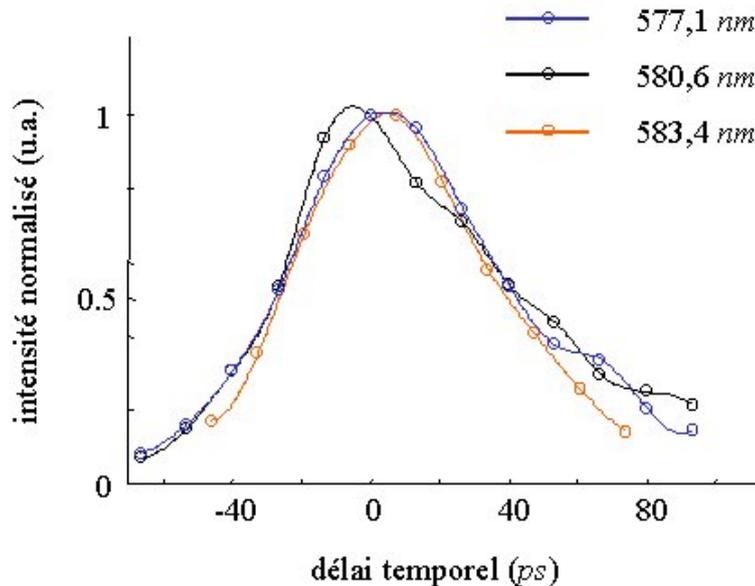


Figure 4.4 artefact de cohérence de la conjugaison de phase en régime d'émission laser. Les courbes sont obtenues par une fonction d'ajustement *spline*. Trois longueurs d'onde laser permettent de confirmer la saturation de gain des molécules de rhodamine 6G.

Le délai temporel entre les deux faisceaux intenses est fixé avant toutes les expériences. L'angle mesuré entre ces deux faisceaux est respectivement pour chaque longueur d'onde de 42° 50min, 43° 15min, et 43° 40min. La variation totale d'angle mesuré entre les trois acquisitions est de 0,8°. La valeur théorique de cette variation est de 0,55° avec des angles théoriques pour l'émission laser de 41°25, 41°40 et 41°56 (équation 1.11). Les valeurs d'angle sont donc mauvaises et restent très approximatives. Néanmoins, elles donnent une idée de la variation globale sur le délai temporel introduit entre les pompes. Le délai maximum entre les deux faisceaux est donc de 4,7 ps (pour 0,8°). Ce délai est faible au regard de la durée de la pompe. Il ne peut être à l'origine du sursaut de la diffraction aux alentours de 50 ps de retard pour la sonde.

Enfin, la porte temporelle électronique de l'échantillonneur-bloqueur est suffisamment large pour ne pas obstruer le signal détecté. Enfin, le filtre interférentiel permet de ne sélectionner que la longueur d'onde diffractée, laissant ainsi l'émission stimulée de la couche mince en dehors de la zone de détection.

#### 4.2.2.2. Relaxation temporelle du réseau

La présence du pic de cohérence montre que la saturation de gain est atteinte. L'intérêt de l'expérience porte également sur l'évolution de l'efficacité de diffraction sur une échelle de temps plus importante. Elle donne accès ainsi à l'existence ou non d'un réseau de diffraction au-delà de la cohérence temporelle du laser Nd: YAG. En effet, l'émission laser DFB est auto-déclenchée par inversion des pertes dans la cavité résonante (§ 4.1.1.2). Mais il est difficile de connaître l'importance du bruit de l'émission spontanée dans son apparition. Un laser *Q-switché* classique génère des impulsions à partir de l'émission spontanée. Ce bruit est nécessaire pour la création de l'émission stimulée dans le milieu actif. Cependant, le délai entre l'excitation et l'émission laser dépend de l'intensité d'excitation et de l'efficacité de l'inversion des pertes. Dans notre cas, aucune mesure de ce délai n'a été réalisée, à notre connaissance, dans les lasers DFB polymères.

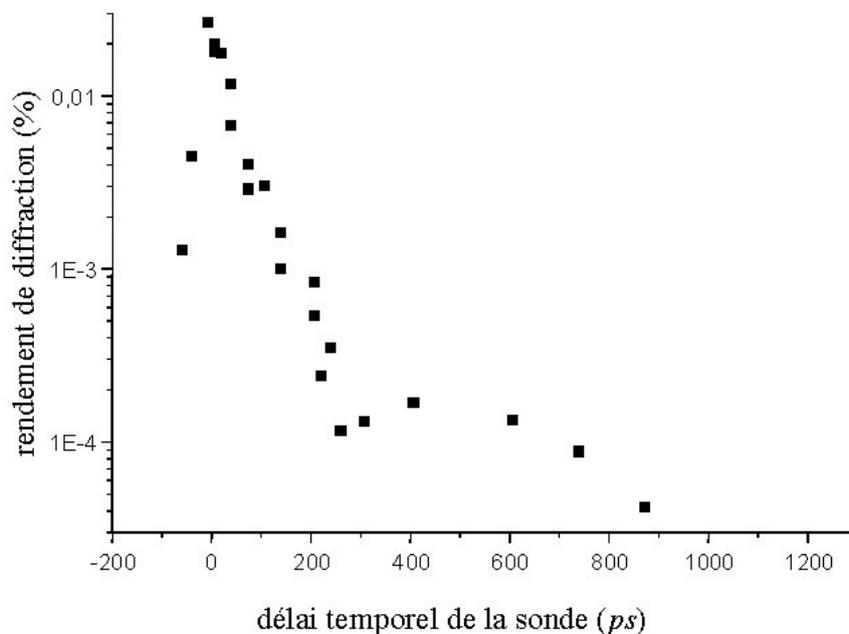


Figure 4.5 décroissance temporelle totale de la diffraction du faisceau sonde sur le réseau de gain dans la structure. L'échelle des ordonnées est logarithmique.

Les expériences sur le pic de cohérence n'ont révélé aucune augmentation ou diminution brutale de l'efficacité de diffraction. L'émission laser du réseau DFB n'est donc peut être pas encore réalisée sur l'intervalle de temps de 80 ps. C'est sur ce point délicat que les expériences présentes sont susceptibles d'apporter une réponse.

Nous avons réalisé ces acquisitions pour quelques longueurs d'onde laser. Il est néanmoins difficile d'obtenir un effet laser sur les bords de l'accordabilité car la surface d'interaction est de  $0,071 \text{ mm}^2$ . L'efficacité de couplage du réseau de gain est donc diminuée fortement. De ce fait, seules les longueurs d'ondes comprises dans l'intervalle de l'émission stimulée sont étudiées. Les présents résultats relatent du comportement du réseau pour une longueur d'onde de  $565 \text{ nm}$ . De plus, le filtrage spatial est introduit ici car les énergies détectées sont très faibles. Les énergies des deux faisceaux intenses sont identiques et égales à  $2,1 \mu\text{J}$  ( $100 \text{ MW/cm}^2$ ) et la sonde correspond à 2,1% du faisceau de pompe 1. Le rendement de diffraction est ici défini comme le rapport entre l'intensité du signal détecté sur l'énergie incidente de la sonde. Les délais temporels entre chaque faisceau sont déterminés à  $2 \text{ mm}$  près ( $6,66 \text{ ps}$ ).

La courbe du rendement de diffraction du réseau est représentée sur une échelle semi-logarithmique (figure 4.5). Elle met en évidence le changement de comportement au-delà de la durée du laser d'excitation. En effet, nous avons mesuré une décroissance exponentielle du second ordre entre  $0 \text{ ps}$  et  $1100 \text{ ps}$ . Les taux de décroissance mesurés sont respectivement pour le pic de cohérence et le signal diffracté de  $44 \text{ ps}$  et  $588 \text{ ps}$ . Mais, alors que le premier est déterminé statistiquement avec une erreur de  $\pm 6 \text{ ps}$ , le second présente un écart type trop important. Sur la courbe apparaît en effet une nonlinéarité à l'échelle semi-logarithmique de la dépendance temporelle. Les points sont répartis sur une courbe dont le maximum se trouve aux alentours de  $500 \text{ ps}$ . Mais il est difficile d'en déduire une largeur totale à mi-hauteur.

Néanmoins, le fait important est le creuset avant la reprise d'un rendement plus important. **Cette chute de la diffraction de la sonde indique que le réseau DFB diffracte très peu la sonde à  $200 \text{ ps}$ .**

#### 4.2.2.3. Interprétation des résultats

L'intérêt principal du pic de cohérence réside dans la partie décroissante du signal diffracté. L'interaction de la sonde avec le film est intéressante si celle-ci est en retard par rapport aux faisceaux pompe. Le réseau d'interférences créé par ces champs peut introduire plusieurs types de modulations périodiques. Dans l'intervalle de temps considéré, seuls les réseaux primaires sont accessibles. Les réseaux secondaires (les réseaux de température par exemple) ne peuvent justifier la courbe observée, car ils interviennent sur des échelles de temps beaucoup plus grandes.

La présence des oscillations sur la pente descendante du signal peut être traduit comme une fluctuation dans la décroissance de l'efficacité de diffraction du ou des réseaux induits par les faisceaux pompes. Cet efficacité de diffraction varie avec le temps car l'émission laser de la couche mince polymère, selon les expériences antérieures et la théorie, tend à détruire la modulation du gain. En revanche, le *spatial hole burning*, qui reste faible selon la théorie, est malgré tout présent au moment de l'émission. Cet effet doit être un facteur d'augmentation de l'efficacité de diffraction. Enfin, l'émission laser introduit des oscillations de relaxation qui sont dues à la fréquence de Rabi sur les variations des moments dipolaires de chaque état d'énergie de la transition laser.

Par contre, les résultats obtenus sur un intervalle plus grand permettent de conclure sur le fait que l'impulsion DFB disparaît totalement au delà de  $200 \text{ ps}$ .

Cette valeur est une mesure statistique maximale du délai entre l'excitation et l'émission DFB. La photodégradation limite les mesures à des intensités plus grandes et la sensibilité de détection ne permet pas d'effectuer des mesures à plus basse énergie.

Les mesures réalisées par Z. Bor [22] à partir d'une caméra à balayage de fente donnent un écart entre chaque impulsion de 200 à 250 *ps* pour une solution de rhodamine 6G excitée pendant 5,5 *ns*. Leurs simulations ont surestimé cet intervalle d'un facteur 3 et le délai temporel entre l'excitation et l'émission laser n'est mesurable qu'en fonction de la position de la raie laser dans l'impulsion d'excitation. Elle varie entre -1,5 *ns* et +2 *ns* par rapport au maximum de puissance de l'excitation. Par ailleurs, Duling III et Raymer [24] donnent un écart théorique excitation-émission d'environ 30 *ps* pour un pompage de 70 *ps*. Dans ce modèle, l'émission laser intervient toujours pendant l'excitation et à des intervalles différents suivant la puissance de pompe de -10 *ps* à +40 *ps*. La reconstruction de l'inversion de population dans la structure est donc impossible au-delà de 200 *ps* pour un pompage optique d'une durée de 35 *ps*.

De plus, la réorientation moléculaire ne peut être la cause de ce sursaut de diffraction car les molécules sont emprisonnées dans une matrice amorphe et dense. Ce processus, s'il existe dans la couche mince, est insignifiant car les molécules ne peuvent se mouvoir aisément. Un temps de relaxation moléculaire de plus de 500 *ps* n'est pas envisageable dans les films.

En revanche, le sursaut de diffraction au-delà de ce délai implique une difficulté supplémentaire d'interprétation. La première cause peut être la présence du pompage, même faible, juste après l'émission laser. Le cycle de l'oscillation laser ne finit pas particulièrement par une impulsion. Il peut laisser le milieu actif dans un état d'inversion de population. Dans ce cas, les molécules sont abandonnées par le pompage optique dans un état excité : l'émission spontanée et l'émission spontanée amplifiée peuvent avoir lieu. Celles-ci possèdent des temps de décroissance plus faibles que l'émission stimulée résonante et pourraient justifier la présence de ce rebond dans le rendement de la diffraction.

D'autre part, une modulation d'indice dans la couche peut avoir des temps de réponses différents dans la modulation de gain. Le deuxième chapitre a mis en exergue l'importance relative du couplage complexe dans le film polymère. La modulation d'indice peut être faible mais semble rester inférieure à la modulation de gain. Cette contribution pourrait se coupler au réseau de gain. Elles interfèrent de façon constructive entre elles à différents instants. Cette justification dépend uniquement de la différence entre le temps de réponse du matériau à une modulation de gain et à une modulation d'indice. Néanmoins, aucune comparaison qualitative ne permet d'infirmier ou de confirmer cet effet.

Néanmoins, les mesures effectuées sont statistiques et elles ne permettent de donner qu'un ordre de grandeur du délai maximum entre l'excitation et l'émission. La cohérence entre la sonde et les deux pompes voile les résultats sur l'émission laser à plus courte échelle de temps. Une sonde dans le domaine de transparence du matériau et de durée plus faible que l'excitation peut palier cet inconvénient. Malgré tout, la mesure maximale du délai reste statistiquement correcte et des mesures avec une caméra à balayage de fente pourraient confirmer ce résultat important.

## Conclusion

L'étude temporelle de l'émission laser à contre réaction répartie d'une couche mince polymère a été menée à partir de techniques expérimentales d'optique non linéaire. Après une analyse du système d'équations couplées, le principe d'auto-déclenchement du laser met en exergue l'importance du temps de transit des photons dans la cavité dépendant du temps. Les observations expérimentales antérieures apportent une confirmation de ce comportement attendu et permettent de déterminer un ordre de grandeur du taux de compression du laser réalisé.

Par ailleurs, les techniques de l'optique non linéaire sont utilisées pour accéder à la dynamique temporelle de l'émission laser. L'ellipsométrie Kerr, qui est une amélioration de la porte Kerr, a permis de conclure à un temps de réorientation moléculaire d'une solution de DCM mais les intensités de pompage indispensables à cette étude ne permettent pas une caractérisation des rotations des molécules en couche mince polymères. Par contre, une critique du mélange à quatre ondes dégénérées a permis de révéler l'intérêt que peut avoir ce dernier sur l'analyse de la dynamique du réseau DFB.

La diffraction d'un faisceau de faible intensité sur le réseau de susceptibilité induite est le principe général des techniques de réseaux induits par laser. Elle peut être étudiée sur le montage de mélange à quatre ondes, après une reconfiguration géométrique des différents faisceaux. Cette expérience impose par la dégénérescence des fréquences de chaque faisceau un pic de cohérence sur l'échelle de temps de l'impulsion excitatrice. Cet artéfact révèle des fluctuations dans sa décroissance exponentielle. L'analyse a mis en évidence l'influence de la longueur d'onde sur la présence d'oscillation. La justification de ce phénomène demande une étude complémentaire plus appropriée avec une observation à plus faible intensité.

Enfin, la diffraction est étudiée sur un intervalle temporel de plus d'1 ns. Elle a permis de mesurer le délai temporel maximum entre l'excitation et l'émission laser de 200 ps. Au delà un sursaut du signal diffracté peut être attribué à différents phénomènes. Une nouvelle inversion de population peut induire un réseau de gain et provoquer l'émission spontanée amplifiée de la couche.

Le laser à gain distribué en couche mince polymère possède donc des caractéristiques temporelles très originales. Un choix des paramètres structurels et d'excitation permet de générer et de contrôler une émission sous forme d'un train d'impulsions dont le nombre est déterminé par l'intensité de pompage. Néanmoins, la mauvaise reproductibilité des résultats impose une étude statistique. L'imprécision de ces résultats par effet de moyenne ainsi que le taux de compression important de ces lasers imposent l'utilisation d'une caméra à balayage de fentes d'une bonne résolution. Il serait alors intéressant de comprendre et d'analyser l'origine de ces fluctuations qui éloignent les possibilités d'utilisation dans des applications industriels.

- [52] S.R. Chinn, « *Relaxation oscillations in distributed feedback lasers* », Opt. Comm., vol. 19,(208-211), 1976
- [53] S. Stzamari, F.P. Schäfer, « *simple generation of high-power, picosecond, tunable excimer laser pulses* », Opt. Comm., vol. 48, n°4, (279-283), 1983
- [54] S. Szatmari, Z. Bor, « *Directional and wavelength sweep of distributed-feedback dye laser pulses* », Appl. Phys. B., vol. 34, (29-34), 1984
- [55] A.G. Weber, W. Ronghan, E. Holger Böttcher, M. Schell, D. Bimberg, « *Measurement of the turn-on delay time jitter in gain-switched semiconductor lasers* », IEEE J. Quant Elec., vol. QE-28, n°2, (441-445), 1981
- [56] R.L. Abrams, R.C. Lind, « *Degenerate four-wave mixing in absorbing media* », Opt. Lett., vol. 2, n°4, (94-96), 1978
- [57] B. Zel'dovich, N.F. Pilipetsky, V.V. Shkunov, « *principles of phase conjugation* », Springer Verlag, vol.42, 1985
- [58] D. Walbeck, A.J. Cross Jr., D.B. McDonald, G.R. Fleming, « *Picosecond pulse induced transient molecular birefringence and dichroism* », J. Chem. Phys., vol. 74, n°6, (3381-3387), 1981
- [59] N. Pfeffer, F. Charra, J-M. Nunzi, « *Phase and frequency resolution of picosecond optical Kerr non linearities* », Opt. Lett., vol. 16, n°24, (1987-1989), 1991 et références citées.
- [60] D.S. Alavi, R.S. Hartman, D.H. Waldeck, « *Optically heterodyned polarization spectroscopy. Measurement of the orientational correlation function* », J. Chem. Phys., vol. 92, n°7, (4055-4066), 1990
- [61] D.W. Phillion, D.J. Kuizenga, A.E. Siegman, « *Subnanosecond relaxation time measurements using a transient induced grating method* », Appl. Phys. Lett., vol. 27, n°2, (85-87), 1975
- [62] J.R. Salcedo, A.E. Siegman, D.D. Dlott, M.D. Fayer, « *dynamics of energy transport in molecular crystals : the picosecond transient-grating method* », Phys. Rev. Lett, vol.42, n°2, (131-134),1978, et références incluses.
- [63] L. Dhar, J. A. Rogers, « *High frequency one-dimensional phononic crystal characterized with a picosecond transient grating photoacoustic technique* »,Appl. Phys. Lett., vol. 77, n°29, (1402-1404), 2000
- [64] J.C. Gummy, O. Nicolet, and E. Vauthey , « *Investigation of the solvation dynamics of an organic dye in polar solvents using the femtosecond transient grating technique* », J. Phys. Chem. A, vol. 103, (10737-10743), 1999
- [65] Y. Silberberg, I. Bar-Joseph, « *Transient effects in degenerate four-wave mixing in saturable absorbers* », IEEE J. Quant Elec., vol. QE-17, n°9,(1967-1970) 1981

# CONCLUSION GENERALE

L'effet laser à contre réaction répartie dans une couche mince polymère a été réalisé et caractérisé. Différents aspects de la physique des lasers ont été présentés. Les lasers possèdent des propriétés très particulières comme la cohérence et la directivité. L'introduction d'une modulation dans un milieu à gain permet d'améliorer la finesse spectrale de l'émission, au regard d'un dispositif à cavité fixe. Cependant, une modulation statique des caractéristiques du milieu actif induit principalement un réseau d'indice dans la structure. Celui-ci engendre une émission au seuil laser composée de deux modes fondamentaux répartis autour de la fréquence de Bragg imposée par la modulation. Par contre, une modulation de la susceptibilité diélectrique par pompage interférentiel permet de moduler essentiellement le gain, et non plus l'indice. Dans ce cas particulier, le spectre laser devient monomode près du seuil laser.

Les lasers à base de semi-conducteurs sont principalement réalisés à partir d'un couplage par l'indice des ondes contrepropageantes générées dans la structure. Pour ce type de laser, des décalages de phase sont introduits afin d'obtenir une émission monomode.

Par ailleurs, les matériaux souples font l'objet d'intenses recherches en optoélectronique car le procédé de fabrication et la diversité des constituants et des propriétés optiques associées semblent être très prometteurs pour les prochaines années.

Dans ce contexte, la théorie des modes couplés propre à l'effet de gain distribué sans cavité externe est développée à partir de l'équation d'onde scalaire. A partir de cette théorie, une expérience a permis de mettre en évidence l'existence d'un effet laser dans une couche de PMMA / rhodamine 6G. Le seuil en énergie dans la réponse de l'émission et le rétrécissement du spectre jusqu'à  $5\text{\AA}$  ont apporté une première confirmation de cet effet laser. L'accordabilité laser par variation du pas du réseau d'interférences sur  $35\text{ nm}$  dans la courbe de fluorescence du matériau a également été vérifié.

La théorie des modes couplés prévoit un seul mode laser au seuil pour une modulation du gain. Par contre, les modes longitudinaux d'ordre supérieur d'un laser DFB apparaissent par paire, quel que soit le type de couplage. L'étude en énergie a mis en exergue l'apparition d'une seconde raie laser à fort pompage. Cette raie est accordable comme le premier mode laser et apparaît à un seuil d'énergie 4 fois plus élevé que le seuil laser. Cette structure spectrale se justifie par la présence d'un couplage de type complexe (couplage par l'indice et couplage par le gain). L'existence d'un couplage par l'indice est à confirmer par une mesure de la partie réelle de la susceptibilité résonante. De plus, l'intervalle spectral entre les deux raies doit être appréhendé avec une résolution plus importante du spectromètre.

L'influence des modes transverses du guide d'onde sur le spectre d'émission laser est mise en évidence. La théorie linéaire du guide plan asymétrique est explicitée pour faire apparaître les équations de dispersion de la couche mince. Elles déterminent l'interfrange et la longueur d'onde d'émission laser, ainsi que le nombre de modes transverses que peut créer le milieu actif, si la matrice polymère dans laquelle il se trouve possède un indice de réfraction et une

épaisseur suffisants. Ces développements permettent de compléter la théorie des modes couplés dynamiques dans une situation de guide d'onde, pour comparer ainsi les différents paramètres des équations, comme les constantes de couplage par exemple.

L'expérience menée dans ce cadre théorique a fait appel à une seconde configuration de film (polymère / colorant), dont les propriétés sont en accord avec la propagation guidée. L'étude préalable sur différentes épaisseurs montre un décalage spectral de l'émission spontanée amplifiée vers les basses fréquences. La géométrie de la structure est mis en cause dans la génération de l'émission stimulée. D'autre part, l'accordabilité de sept modes laser est démontrée expérimentalement et une comparaison entre ces données et les simulations des équations de dispersion valident le caractère transverse des modes. Enfin, une étude à haute énergie montre l'évolution des différentes raies d'un même spectre. Elle offre un point de comparaison quant à l'influence relative de la courbe de gain du matériau et de la distribution transverse en énergie des modes transverses. Une confirmation de l'influence directe de l'épaisseur du guide d'onde sur la position spectrale de la bande d'émission spontanée amplifiée doit être effectuée pour un pas du réseau de Bragg donné. De plus, des mesures en énergie dans des conditions de faible émission spontanée amplifiée sont nécessaires pour évaluer l'importance relative de la courbe de gain et du recouvrement spatial en énergie de chaque mode transverse.

Concernant le comportement temporel de l'émission laser, les travaux théoriques relatent l'interdépendance entre inversion de population, temps de transit des photons dans la cavité et nombre d'impulsions dans le train émis. L'écart entre ces impulsions et leur durée respective sont évaluées par simulation. Par ailleurs, les études antérieures sur les lasers DFB à colorant en phase liquide ont mis en évidence une compression temporelle de l'émission au regard de la durée du pompage optique interférentiel. Le taux de compression est élevé lorsque la durée du pompage est de l'ordre de grandeur du temps caractéristique d'émission spontanée. En revanche, ce paramètre diminue fortement lorsque le régime picoseconde est employé.

Les techniques de l'optique non linéaire, principalement le mélange à quatre ondes dégénérées, permettent d'accéder à la relaxation temporelle du réseau induit dans le milieu actif. Après une mesure des différents paramètres relatifs à l'acquisition des mesures et au système de détection, les résultats expérimentaux sont présentés tout d'abord par le pic de cohérence de la conjugaison de phase. Il révèle le niveau de saturation de gain pour l'émission laser. Ensuite, la relaxation sur un intervalle de 1 ns après l'excitation permet de constater une chute brutale de l'efficacité de diffraction. La première observation constitue une mesure statistique du délai maximal de 250 ps de l'écart temporel entre l'excitation le matériau et la dernière impulsion émise.

Les mesures temporelles directes sont importantes pour la validation de la théorie semi-classique développée pour l'émission DFB. Une caméra à balayage de fente est actuellement utilisée et les résultats attendus avec ce dispositif devraient permettre de conclure sur la forme du train d'impulsions. Néanmoins, la structure temporelle du laser exciteur doit être parfaitement maîtrisée et le détecteur suffisamment résolvant.

La caractérisation spectrale et temporelle de l'émission laser DFB en couche mince polymère nécessite des études supplémentaires afin de mieux appréhender et contrôler cet effet particulier en vue d'applications futures. La première étape est l'excitation en continu pour évaluer l'importance de l'auto-déclenchement de l'effet laser. Les colorants ne sont pas adaptés à ce régime de pompage, de part leurs états triplets, néfastes au rendement de l'émission laser. D'autre part, l'introduction d'un réseau gravé dans le matériau, ou dans une couche adjacente au milieu actif, induit essentiellement un couplage par l'indice. La cavité devient fixe et ne permet plus de produire automatiquement un déclenchement par inversion des pertes. Le comportement temporel semble donc très différent. Néanmoins, les techniques de gravure actuelles permettent déjà d'observer l'émission laser dans un film mince polymère lorsque le réseau est permanent.

En revanche, l'étude temporelle reste prometteuse en ce qui concerne la compression temporelle. En effet, les applications d'un laser femtoseconde de taille réduite sont très importantes tant au niveau industriel que fondamental. Les recherches ultérieures se dirigent sur le contrôle de la durée temporelle de l'émission DFB. Le phénomène d'*auto-Q switch* est intéressant car il ne fait intervenir que le matériau lui-même. Ce dispositif en phase liquide est déjà mis en pratique dans des études de spectroscopie. L'intérêt maintenant réside dans le contrôle de la forme et du nombre d'impulsions créées par la couche mince.

Pour conclure sur l'importance démontrée des polymères dans l'optique de demain. Leurs diversités de propriétés optiques linéaires et non linéaires constituent des axes de recherches totalement nouveaux pour les années futures. Des modes de galeries par exemple peuvent être réalisés par la fabrication de disques subnanométriques polymères ; des modulateurs électrooptiques indispensables à la réalisation de réseaux communication sont déjà réalisés à base de polymères et une étude future sur les solitons dans les réseaux de Bragg à base de matériaux souples peut être envisageable si la rigidité et la tenue au flux de ces composants le permet. Ces exemples s'incrivent dans le cadre de recherches fondamentales nécessaires à l'évolution de l'optique et aux futures réalisations industrielles qui s'en suivront.

# ANNEXES

## A. STRUCTURES LASER

Cette partie reprend les différentes structures lasers DFB à base de semi-conducteurs. Elles sont énumérées suivant leur degré de complexité. La plupart des schéma proviennent de la référence [3].

### 1) Le laser DFB classique

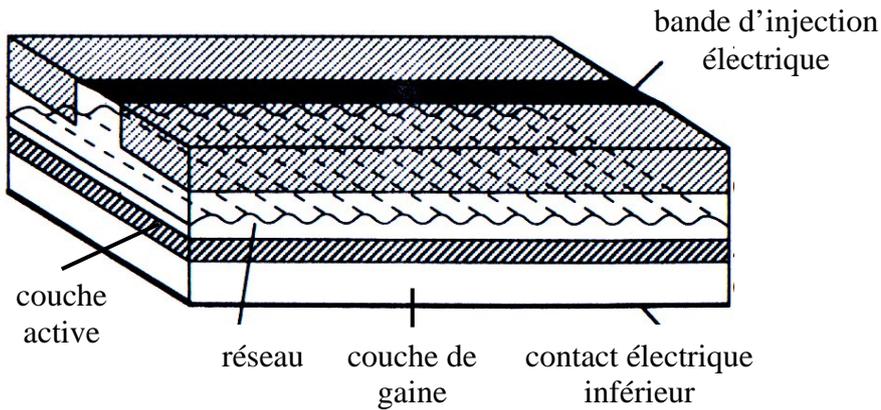


Figure A.1 structure d'un laser DFB à couplage d'indice. Le réseau continu est gravé dans la couche de gaine du guide d'onde. La bande d'injection est réduite pour permettre le confinement des charges électriques.

### 2) Le laser DBR classique

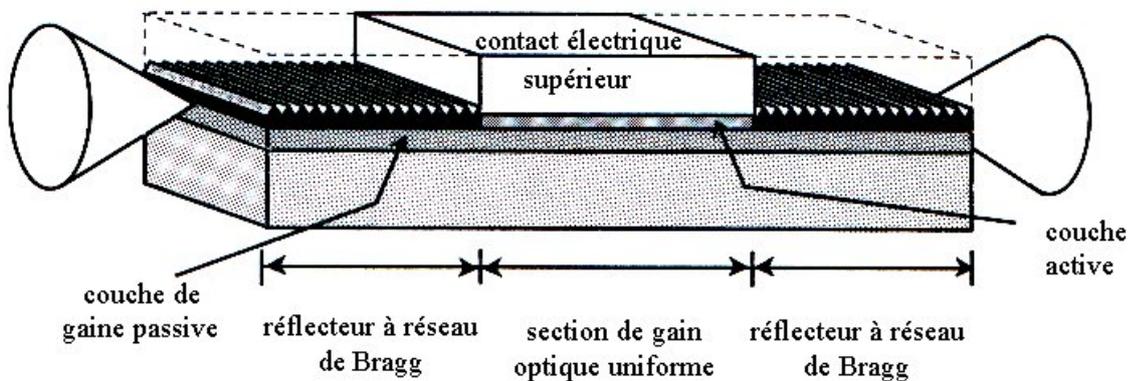


Figure A.2 schéma d'un laser DBR à injection électrique. La réflexion se fait indépendamment de de l'amplification par la présence des réseaux de Bragg.

3) Complexité des lasers pour les télécommunications optiques

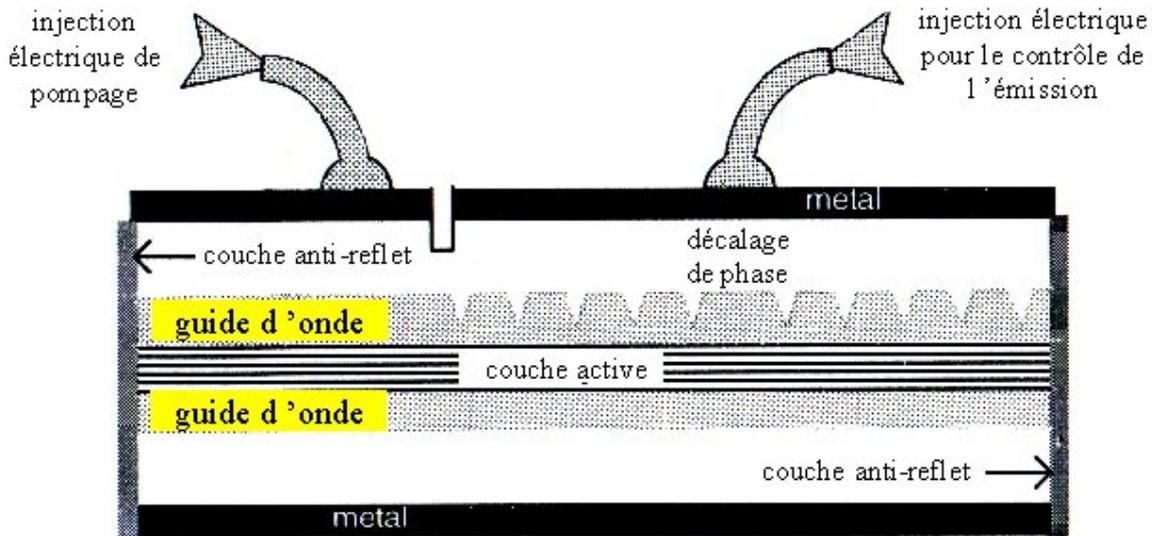


Figure A.3 schéma d'un laser DFB à décalage de phase de  $\pi/2$ . Le pompage électrique est représenté pour suggérer les possibilités exploitées de contrôle à volonté de l'émission laser. Les couches anti-reflet permettent d'éviter une rétroaction qui brise la symétrie du spectre.

4) Les VCSEL (laser à cavité vertical et émission par la surface)

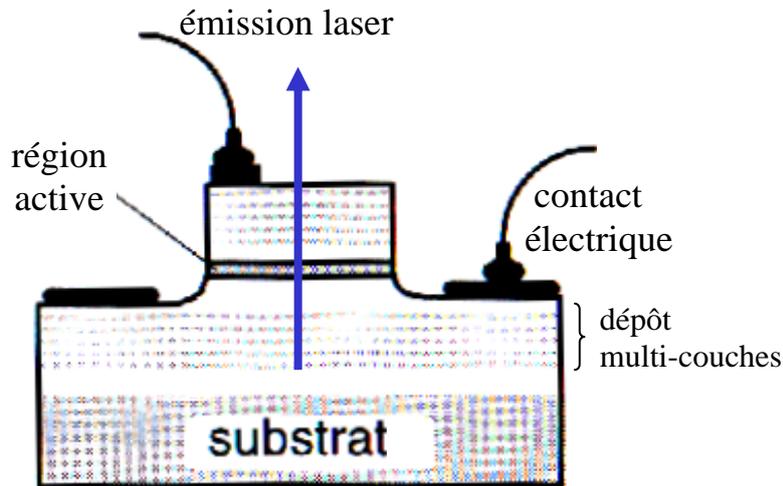


Figure A.4 schéma d'un laser VCSEL. Le confinement de l'émission est uniquement dû à la réflexion de l'onde générée dans la couche active par les réflecteurs de Bragg des nombreuses couches adjacentes.

tel-00114855, version 1 - 18 Nov 2006

## B. LES EQUATIONS GENERALES DES MODES COUPLES

Cet annexe permet d'exposer les calculs mathématiques relatifs à la théorie des modes couplés des lasers à contre réaction répartie. Elle est principalement axée sur une modulation du gain mais les parties imaginaires de la susceptibilité diélectrique sont explicitées pour permettre une adaptation dans le cadre d'un système à couplage complexe.

### B.1. Développement de la polarisation résonante

Le développement théorique générale est abordée dans le troisième chapitre. Il est argumenté à partir des équations de Maxwell, en particulier sur l'équation d'onde scalaire (équation 3.12) et sur la relation entre la susceptibilité, le champ électrique et la polarisation :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \chi_{res} \vec{E} \quad \text{Equation B.1}$$

Cette polarisation peut également s'exprimer comme le champ électrique  $\vec{E}$ . Il est composé de deux amplitudes contrapropagatives  $\vec{F}$  et  $\vec{R}$  qui décrivent les deux ondes qui s'alimentent en énergie l'une de l'autre par le biais du milieu actif. La polarisation induite du milieu suit sa dépendance temporelle car elle est à l'origine de ces ondes électromagnétiques. Les champs s'écrivent de ce fait :

$$\vec{E}(z,t) = \frac{1}{2} \sum_i E_{xy}(x,y) \left( \vec{F}_i(z) e^{j\beta_i z} + \vec{R}_i(z) e^{-j\beta_i z} \right) e^{-j\omega t} + c.c. \quad \text{Equation B.2}$$

$$\vec{P}(z,t) = \frac{1}{2} \sum_i E_{xy}(x,y) \left( \vec{P}_{Fi}(z) e^{j\beta_i z} + \vec{P}_{Ri}(z) e^{-j\beta_i z} \right) e^{-j\omega t} + c.c. \quad \text{Equation B.3}$$

L'introduction de la composante transverse n'influe pas sur le développement suivant de la susceptibilité diélectrique qui suit.

L'étape de résolution importante est le moyen d'exprimer les amplitudes de polarisation en fonction de la susceptibilité résonante. Reprenons l'écriture de ce paramètre :

$$\chi_{res}(z,t) = \frac{\Delta N_0(z,t) |\vec{\mu}|^2}{V \varepsilon_c \hbar} \left( \frac{(\omega_a - \omega) - j\Delta\omega_h}{\Delta\omega_h^2 + (\omega_a - \omega)^2} \right) \quad \text{Equation B.4}$$

Cette expression comprend la différence de population entre le niveau haut de la transition  $E_2$  et le niveau bas  $E_1$ . Elle dépend directement de l'excitation imposée au matériau. Pour le laser DFB polymère, le pompage est interférentiel : il soumet le milieu actif à une modulation sinusoïdale. Mais pour préciser son influence sur les populations, il est nécessaire de développer les équations de la matrice densité d'un système quantique à deux niveaux (figure B.1).

Il peut sembler malvenu de ne considérer que deux niveaux dans la transition laser car le colorant possède des continums d'états pour chaque niveau (généralement dénommés  $S_n$ ). Néanmoins, la transition a lieu entre la bande des états excités et la bande d'énergie fondamentale. De plus, sans présence de gain, les réseaux de Bragg sont connus pour leur efficacité dans le filtrage spectral. Il est donc envisageable de ne considérer que la transition laser en question.

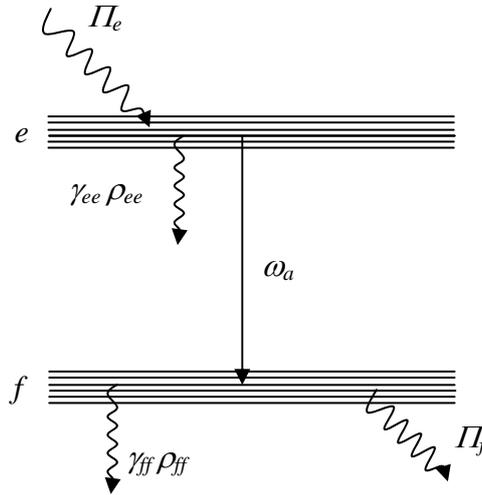


Figure B.1 schéma de la transition laser à deux niveaux. Les paramètres de cette transition sont détaillés à la suite du système d'équation de la matrice densité.

La matrice densité permet de connaître l'évolution statistique des densités de population  $\rho_{ee}$  du niveau excité et  $\rho_{ff}$  du niveau bas de la transition, et du dipôle induit par cette différence de population  $\rho_{ef}$ . Les équations dynamiques de la matrice densité s'écrivent :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_{ef}}{\partial t} &= (j\omega_a - \Delta\omega_h)\rho_{ef} + \frac{j}{\hbar} \mathcal{G}_{ef}(z,t)(\rho_{ee} - \rho_{ff}) \\ \frac{\partial \rho_{ee}}{\partial t} &= \Pi_e - \gamma_e \rho_{ee} + \frac{j}{\hbar} \mathcal{G}_{ef}(z,t)\rho_{ef} - \frac{j}{\hbar} \mathcal{G}_{fe}(z,t)\rho_{fe} \\ \frac{\partial \rho_{ff}}{\partial t} &= \Pi_f - \gamma_f \rho_{ff} - \frac{j}{\hbar} \mathcal{G}_{ef}(z,t)\rho_{fe} + \frac{j}{\hbar} \mathcal{G}_{fe}(z,t)\rho_{ef} \\ \rho_{fe} &= \rho_{ef}^* \end{aligned} \tag{Equations B.5}$$

avec l'énergie de perturbation dipolaire induite par le champ électrique dans l'approximation de l'onde rotative:

$$\mathcal{G}_{ef}(z,t) = \mathcal{G}_{fe}^*(z,t) = \frac{1}{2} \mu \left( F_i e^{j(\omega t - \beta_z z)} + R_i e^{j(\omega t + \beta_z z)} \right) \tag{Equation B.6}$$

Plusieurs paramètres apparaissent dans ces équations. La pulsation  $\omega_a$  représente la transition atomique considérée et  $\Delta\omega_h$  est l'élargissement homogène du niveau supérieur. Les taux d'excitation  $I_e$  et  $I_f$  de chaque niveau  $e$  et  $f$ . permettent de prendre en compte la désexcitation des niveaux du système triplet des molécules vers les niveaux fondamentaux.  $\gamma_e$  et  $\gamma_f$  sont les constantes de relaxation totales des niveaux. Elles incluent les relaxations non radiatives. La différence de densité de population  $\Delta N_0/V$  est déterminée après une intégration de l'équation sur la cohérence  $\rho_{ef}$ . L'expression de cette dernière est obtenue à l'aide d'une approximation importante : la cohérence varie beaucoup plus rapidement dans le temps que les populations des niveaux d'énergie ou que les amplitudes du champ électrique.

La substitution de  $\rho_{ef}$  dans les équations sur les densités de population permet, après une division par leur taux de relaxation respectif, d'obtenir l'équation de l'évolution de la différence de population. A l'état stationnaire, cette différence s'écrit :

$$\rho_{ff} - \rho_{ee} = - \frac{N(z)}{I_{inc} + I_{coh} \cos(2\beta_i^l z + \Psi)} \quad \text{Equation B.7}$$

Les termes du dénominateur  $I_{inc}$  et  $I_{coh}$  sont des termes dépendant des amplitudes du champ électrique. Le premier terme est incohérent au sens où il perd l'information sur la phase relative entre les deux amplitudes. Le terme cohérent est exprimé en fonction du produit croisé des normes de chaque amplitude :

$$I_{inc}(z) = 1 + \frac{1}{I_{sat}} \left( |F_i|^2 + |R_i|^2 \right) \frac{\Delta\omega_h^2}{(\omega_a - \omega)^2 + \Delta\omega_h^2} \quad \text{Equation B.8}$$

$$I_{coh}(z) = \frac{2|F_i||R_i|}{I_{sat}} \frac{\Delta\omega_h^2}{(\omega_a - \omega)^2 + \Delta\omega_h^2} \quad \text{Equation B.9}$$

L'intensité de saturation  $I_{sat}$  est défini dans le chapitre 2 (§ 2.1.1.2 ). La phase relative entre les deux amplitudes du champ électrique est défini par l'écriture du produit croisé  $F_i R_i^* = |F_i||R_i|e^{i\Psi}$ . Le terme  $N(z)$  représente la différence des rapports entre le taux d'excitation et le taux de relaxation de chaque niveau. Ce terme de pompage permet d'introduire le type de pompage utilisé. Pour une interférence optique, il devient égal à :

$$N(z) = \bar{N} \left[ 1 + C \cos(2\beta_i^l z) \right] \quad \text{Equation B.10}$$

$\bar{N}$  est la différence de population entre l'état excité et l'état fondamental pour l'intensité moyenne croisée  $|F_i||R_i|$  et  $C$  représente le contraste des franges d'interférences.

La susceptibilité diélectrique peut s'écrire maintenant en fonction des variables internes du système et des conditions de pompage:

$$\chi_{res}(z) = \frac{\bar{N}}{V} \frac{(1 + l \cos 2\beta_i^l z)}{I_{inc}(z) + I_{coh}(z) \cos(2\beta_i^l z + \psi)} \frac{|\bar{\mu}|^2}{\varepsilon_c \hbar} \left( \frac{(\omega_a - \omega) - i\Delta\omega_h}{\Delta\omega_h^2 + (\omega_a - \omega)^2} \right) \quad \text{Equation B.11}$$

Cette expression permet d'intégrer sur une période optique l'expression de la polarisation B.1. Pour sélectionner l'amplitude dont la propagation s'effectue dans le sens des  $z$  croissants, une multiplication préalable de cette relation par le terme  $e^{j\beta_i^l z}$  permet d'éliminer les composantes relatives à la propagation opposée. Nous obtenons ainsi la relation suivante :

$$\frac{\beta_i^l}{2\pi} \int_0^{2\pi} P_{F_i}(z) dz = \quad \text{Equation B.12}$$

$$\frac{\bar{N}}{V} \frac{\mu^2}{\varepsilon_c \hbar} \frac{(\omega_a - \omega) - j\Delta\omega_h}{\Delta\omega_h^2 + (\omega_a - \omega)^2} \frac{\beta_i^l}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{(1 + C \cos(2\beta_i^l z))}{I_{inc}(z) + I_{coh}(z) \cos(2\beta_i^l z + \psi)} (F_i + R_i e^{2j\beta_i^l z + j\psi}) dz$$

Cette équation se simplifie si on considère le fait que les amplitudes du champ et de la polarisation varient peu sur une période optique. En d'autres termes, la susceptibilité diélectrique impose une variation spatiale lente des amplitudes du champ électrique par rapport à sa propre modulation. L'expression de chaque amplitude de polarisation dépend ainsi des amplitudes du champ électrique et s'écrivent :

$$P_{F_i}(z) = \frac{j}{\hbar} \mu^2 \bar{N} \frac{(\omega - \omega_a) - j\Delta\omega_h}{(\omega - \omega_a)^2 + \Delta\omega_h^2} (F_i \langle d_{\alpha i} \rangle + R_i \langle d_{\kappa i} \rangle) \quad \text{Equation B.13}$$

$$P_{R_i}(z) = \frac{j}{\hbar} \mu^2 \bar{N} \frac{(\omega - \omega_a) - j\Delta\omega_h}{(\omega - \omega_a)^2 + \Delta\omega_h^2} (R_i \langle d_{\alpha i} \rangle + F_i \langle d_{\kappa i} \rangle^*) \quad \text{Equation B.14}$$

Les termes  $\langle d_{\alpha i} \rangle$  et  $\langle d_{\kappa i} \rangle$  correspondent aux moyennes sur une période optique des composantes de la différence de population attribuées à chaque sens de propagation. Ainsi, la notation en  $\alpha$  traduit l'évolution de l'amplitude par la présence de gain dans la structure et celle en  $\kappa$  correspond au couplage des ondes.

Les amplitudes de polarisation sont maintenant exprimées en fonction des variables internes du milieu actif. Il est donc possible d'explicitier l'équation de Maxwell scalaire sur chaque amplitudes. Mais le détail des intégrales relatives aux variables des équations B.13 et B.14 n'est pas développé ici [50], nous développons la théorie des modes couplés sur la série de Fourier de la susceptibilité (équation 3.16).

## B.2. Equations générales des modes couplés

Le troisième chapitre permet de se familiariser avec le développement analytique des équations couplées. L'insertion de la dépendance transverse du champ électrique permet de connaître les différents modes discrets du guide d'onde plan linéaire. La détermination des ces modes propres de propagation est régie par l'équation de Helmholtz sur l'axe orthogonal aux couches. Mais la présence de gain dans la structure impose une correction sur les constantes de propagation du champ. L'équation de Maxwell est donc dans un premier temps résolu sur les composantes transverses.

Ce développement préalable permet de simplifier le calcul qui suit si on considère l'approximation de l'enveloppe lentement variable\* sur les variables  $z$  et  $t$ . En insérant dans l'équation l'expression sur le champ électrique, l'équation peut se simplifier par la correction sur le vecteur d'onde d'une part, et les termes qui correspondent à l'équation de Helmholtz d'autre part:

$$\beta_i^l = \Delta\beta + \beta_g \quad \text{Equation B.15}$$

$$\frac{\partial^2}{\partial y^2} E_x(y) + \left( \frac{\omega_i^2 n(y,z)^2}{c^2} - \beta_g^2 n_c^2 \right) E_x(z) = 0 \quad \text{Equation B.16}$$

De plus, les approximations sur les grandeurs relatives des corrections de la constante de propagation ( $\Delta\beta \ll \beta_g$ ) et de l'indice de réfraction ( $n(y,z) \ll \chi(y,z)$ ) sont introduites pour simplifier le calcul.

L'équation de Maxwell possède ainsi beaucoup moins de termes et prend la forme suivante :

$$\sum_i E_x(y) \left[ \begin{aligned} & e^{-j\beta_i^l z} \frac{\partial}{\partial t} F_i(z,t) \left( \frac{\alpha_0}{2} + j[n(y,z)^2 \omega_i \varepsilon_0 + \beta_g \varepsilon_0 c^2] \right) + \\ & e^{j\beta_i^l z} \frac{\partial}{\partial t} R_i(z,t) \left( \frac{\alpha_0}{2} + j[n(y,z)^2 \omega_i \varepsilon_0 - \beta_g \varepsilon_0 c^2] \right) + \\ & \left( c^2 \varepsilon_0 \Delta\beta \beta_g + \frac{j}{2} \alpha_0 \varpi_i - \frac{\chi_{res}(y,z)}{2} \omega_i^2 \varepsilon_0 \right) \left( F_i(z,t) e^{-j\beta_i^l z} + R_i(z,t) e^{j\beta_i^l z} \right) \end{aligned} \right] = 0$$

Equation B.17

\* les variations spatio-temporelles des amplitudes de chaque variable, pour la polarisation comme pour le champ électrique, sont faibles au regard des termes exponentiels qui varient beaucoup plus rapidement.

L'expression doit être à nouveau développée en prenant compte de la susceptibilité sous la forme de série de Fourier :

$$\chi_{res} = \sum_{m \geq 1} \left( c_{res}^{p,m} e^{j \frac{2m\pi}{\Lambda_B}} + c_{res}^{n,m} e^{-j \frac{2m\pi}{\Lambda_B}} \right) \quad \text{Equation B.18}$$

La sommation sur les modes longitudinaux peut alors disparaître si une intégration sur quelques périodes du réseau. En outre, le réseau de Bragg intervient également sur la constante de propagation qui est ici explicitée avec l'ordre du réseau :

$$\beta_i^l = \frac{l\pi}{\Lambda_B} \quad \text{Equation B.19}$$

Il est maintenant possible d'intégrer sur une période du réseau l'équation B.17 multipliée par  $e^{j\beta_i^l z}$ . Les intégrales qui sont alors présentes après une simplification par la variation lente des amplitudes des champs sont respectivement pour  $F$  et  $R$  (elles proviennent du même raisonnement que celui du chapitre 2 qui aboutit aux équations 2.11 et 2.12) :

$$\omega_i^2 \varepsilon_0 \sum_m c_{res}^m \frac{\beta_B}{2\pi} \int_0^{2\pi} \left( c_{res}^{p,m} R_i(z+\zeta) e^{2j \frac{(l-m)\pi}{\Lambda_B} (z+\zeta)} + c_{res}^{n,m} F_i(z+\zeta) e^{2j \frac{m\pi}{\Lambda_B} (z+\zeta)} \right) d\zeta \quad \text{Equation B.20}$$

$$\omega_i^2 \varepsilon_0 \sum_m c_{res}^m \frac{\beta_B}{2\pi} \int_0^{2\pi} \left( c_{res}^{n,m} F_i(z+\zeta) e^{2j \frac{(l-m)\pi}{\Lambda_B} (z+\zeta)} + c_{res}^{p,m} R_i(z+\zeta) e^{2j \frac{m\pi}{\Lambda_B} (z+\zeta)} \right) d\zeta \quad \text{Equation B.21}$$

Ces deux intégrales ne s'annulent pas pour permettre l'existence d'un couplage entre les deux ondes. Et ce point est uniquement possible si les coefficients de Fourier  $c_{res}^{p,m}$  et  $c_{res}^{n,m}$  sont non nuls et si les exponentielles sont égales à 1. Ceci est vérifié si  $m=l$  et  $m=0$ . Dans ce cas, l'intégration est évidente car les amplitudes sont constantes sur une période optique.

Par ailleurs, tous les termes de l'équation explicitée sont proportionnels à l'amplitude transverse du champ électrique. Ainsi, une multiplication par le mode transverse puis une intégration dans la direction perpendiculaire au guide permet d'aboutir aux équations des modes couplés du chapitre 3 :

$$\frac{\partial F(z,t)}{\partial z} + \left( \frac{1}{v_{gr}} - j \frac{\alpha_0}{2\beta_{g,c} c^2} \right) \frac{\partial F(z,t)}{\partial t} = (\alpha_i - j\delta_i) F(z) - j\kappa_{FR} R(z) \quad \text{Equation B.22}$$

$$\frac{\partial R(z)}{\partial z} - \left( \frac{1}{v_{gr}} - j \frac{\alpha_0}{2\beta_{g,c} c^2} \right) \frac{\partial F(z,t)}{\partial t} = -(\alpha_i - j\delta_i) R(z) + j\kappa_{RF} F(z)$$

avec les mêmes paramètres :

$$\alpha_i = -\frac{\alpha_0 \omega_i}{2c^2 \beta_{g,c}} \quad \text{Equation B.24}$$

$$\delta_i = \beta_l^i - \beta_{g,c} \quad \text{Equation B.25}$$

$$\frac{1}{v_{gr}} = \frac{\omega_i}{2c^2 \beta_{g,c}} \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} n^2(y) E_x^r(y)^2 dy}{\int_{-\infty}^{+\infty} E_x^r(y)^2 dy} \quad \text{Equation B.23}$$