50376 2003 933

## UNIVERSITÉ DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES DE LILLE

U.F.R. de Physique

THÈSE



## présentée par Andrée De Backer

réalisée à

École Doctorale des Sciences de la Matière, du RAYONNEMENT ET DE L'ENVIRONNEMENT

# ETUDE D'UN NOUVEAU CRISTAL LASER. ET DÉVELOPPEMENT D'UN LASER **DE PUISSANCE** DANS LE PROCHE INFRAROUGE POMPÉ PAR DIODE LASER

Soutenue le 4 décembre 2003 devant le jury composé de :

François Balembois Jean-Jacques Zondy Jean-Claude Garreau Université de Lille I Igor Razdobreev Philippe Emplit Jean-Michel Robbe

Institut d'Optique d'Orsay Observatoire de Paris Université de Lille I Université Libre de Bruxelles Examinateur Université de Lille I

SCD LILLE 1 D 030 215257 8

Rapporteur Rapporteur Directeur de thèse Co-Directeur de thès Examinateur

1

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>These disponible, en texte intégral et en couleur, sur http://www.univ-lille1.fr/bustl (cherchez "grisemine" ou "littérature grise en texte intégral")

# Table des matières

1	$\mathbf{Un}$	nouve	au cristal laser : $Cr^{3+}$ :CSB	11
	1.1	Introd	luction	11
	1.2	Le cri	stal CSB	11
	1.3	Le do	pant, $Cr^{3+}$	14
		1.3.1	Les niveaux d'énergie de l'ion $Cr^{3+}$ , en général	15
		1.3.2	Les niveaux d'énergie de l'ion $Cr^{3+}$ , dans le CSB	20
	1.4	Effet l	aser dans le $Cr^{3+}$ :CSB	22
	1.5	Concl	usion	23
2	$\mathbf{Etu}$	de du	temps de vie du niveau excité en fonction de la tempéra-	
	$\operatorname{ture}$	e ou m	ise en évidence du phénomène de "Thermal Quenching"	<b>25</b>
	2.1	Introd	luction	25
	2.2	Qu'est	-ce que le "Thermal Quenching"?	26
	2.3	Princi	pe de l'expérience	28
	2.4	Monta	ge expérimental	29
	2.5	Résult	ats	30
		2.5.1	Durée de l'impulsion de pompe	30
		2.5.2	Temps de montée	31
		2.5.3	Mesure du temps de vie en fonction de la température	36
		2.5.4	Remarques	40
	2.6	Comp	araisons	41
	2.7	Conclu	usion	45
3	Me	sure di	1 spectre d'absorption par les états excités	47
	3.1	Premi	ère Introduction	47
	3.2	Deuxi	ème introduction	48
	3.3	Quelle	s prévisions peut-on faire?	49
		3.3.1	Rappel sur les niveaux d'énergie de l'ion $Cr^{3+}$ dans le cristal	
			de CSB	49
		3.3.2	Prédictions préliminaires du spectre d'absorption par les états	
			excités	49
		3.3.3	Remarque	51
	3.4	Métho	de de mesure de l'absorption par les états excités	53
		3.4.1	Petit calcul	53
		3.4.2	Quel est l'ordre de grandeur du gain apparent à mesurer?	55
		3.4.3	Comment mesurer le gain apparent, $\Delta I/I$ ?	56

		3.4.4	Montag	e expérimental.	59					
	3.5	Effets	thermiqu	$\mathbf{les}  \dots  \dots  \dots  \dots  \dots  \dots  \dots  \dots  \dots  $	62					
		3.5.1	Effets tl	nermiques dans un filtre coloré	64					
		3.5.2	Effets tl	nermiques sur le cristal	66					
	3.6	Quelle	es sont les	s limites de la détection synchrone?	78					
		3.6.1	Mais au	fait, qu'est-ce que la réserve dynamique?	78					
	3.7	Où il a	apparaît (	que le cristal est mal taillé?	82					
		3.7.1	Le "Wal	lk Off"	84					
		3.7.2	Détermi	nation de la direction de l'axe optique dans le cristal	. 89					
			3.7.2.1	Détermination de la projection de l'axe c sur les face	s					
				polies du cristal	90					
			3.7.2.2	Détermination de la projection de l'axe c sur une de	5					
				faces latérales non polie du cristal	91					
		3.7.3	Simulati	ion de l'effet du walk-off sur le gain apparent $\ldots$ .	91					
	3.8	Résult	at : gain	apparent	97					
	3.9	Conclu	usion		. 101					
4	Aut	res pro	opriétés	optiques du cristal $Cr^{3+}$ :CSB	103					
	4.1	Mesur	e de l'abs	porption par les états excités entre 600 nm et 700 nm	103					
		4.1.1	Introduc	tion	103					
		4.1.2	Principe	e de l'expérience	104					
		4.1.3	Disposit	if expérimental.	106					
			4.1.3.1	Dispositif général.	. 106					
			4.1.3.2	Conditions de focalisation.	. 110					
		4.1.4	Résultat	·s	. 113					
		4.1.5	Conclusi	$ on \dots \dots$	. 118					
	4.2	Mesure	e par la t	echnique de Z-scan de l'indice non linéaire du CSB .	. 119					
		4.2.1	Introduc	$\overline{tion}$	. 119					
		4.2.2	Qu'est-c	e que l'indice non linéaire?	. 119					
		4.2.3	Principe	de l'expérience	. 122					
			4.2.3.1	Comment atteindre une telle intensité?	. 122					
			4.2.3.2	Principe de l'expérience : lentille non linéaire et Z-se	an 123					
			4.2.3.3	Deux effets supplémentaires : l'absorption non li-	-					
				néaire et les défauts du cristal	. 129					
		4.2.4	Montage	e expérimental	. 129					
		4.2.5	Mesures		. 131					
		4.2.6	Conclusi	on	. 133					
5	Gén	ératio	n laser o	lans le cristal Cr <sup>3+</sup> :CSB pompé par un laser	à					
	colo	orant pulsé 135								
	5.1	Introd	uction		. 135					
	5.2	Dispos	itif expér	imental	. 135					
	5.3	Résult	ats		. 137					
	5.4	Etude	du seuil .		. 141					
	5.5	Conclu	sion		. 142					

6	Dév	eloppe	ement d'un laser à état solide dans le proche infrarouge	
	pom	ipé par	r diode laser 14	15
	6.1	Introd	uction $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $1^4$	45
	6.2	Généra	alités	<b>4</b> 5
		6.2.1	Milieu à gain	45
		6.2.2	Le dispositif de pompage	46
		6.2.3	La cavité	48
		6.2.4	Conclusion, dispositif	49
	6.3	Laser 1	LiSAF	51
		6.3.1	Introduction	51
		6.3.2	Profil thermique et efficacité quantique	51
		6.3.3	Caractéristique en puissance	56
		6.3.4	Effet du "thermal quenching"	56
		6.3.5	Conclusion	58
	6.4	Laser 1	LiCAF	59
		6.4.1	Introduction	59
		6.4.2	Caractéristique du laser	59
		6.4.3	Caractéristique de la cavité plan-plan	59
		6.4.4	Caractéristiques spectrales	36
		6.4.5	Conclusion	70

••• . ••

# Introduction

Cette thèse s'incrit dans le cadre des travaux de recherche et développement de nouveaux cristaux lasers et de nouveaux lasers. L'usage de lasers s'est étendu dans de nombreux domaines, la médecine, l'industrie, la science, les télécommunications, l'armée, ... Ces applications nécessitent des propriétés variables, quant à la longueur d'onde (de l'UV à l'infrarouge), l'accordabilité, la puissance, le régime (continu ou pulsé), ... Depuis la découverte du laser à rubis, un des axes de la recherche, lié à ces attentes technologiques, est la synthèse de nouveaux cristaux actifs et la compréhension des liens entre leurs propriétés lasers, leurs composition chimique et propriétés cristallographiques.

Dans le cadre de ce travail, nous avons étudié un nouveau cristal synthétisé par des chercheurs russes, et développé un laser de puissance dans le proche infrarouge. Par ailleurs, ce travail avait un intérêt propre au laboratoire où le dispositif laser utilisé pour piéger et refroidir des atomes de césium est limité à une puissance de quelques centaines de milliwatts. Celui-ci est constitué de diodes amplifiées (par un MOPA) et injectées dans une fibre, or, grâce à l'acquisition d'un ensemble fibré de 6 diodes lasers, de 2,3 W à 660 nm, nous pouvons pomper un cristal laser et espérer obtenir un laser à état solide compact fibré plus puissant.

Bien qu'il ne soit pas d'usage de s'exprimer personnellement dans une thèse, permettons-le moi dans cette introduction. En effet, ce serait se leurrer que de croire à une trop grande importance et utilité de ce travail sur le plan de la recherche, tant il est vrai qu'il sera à jamais noyé dans la vaste production scientifique qui caractérise cette époque. Et pourtant il n'est pas de limite à son sens sur le plan du développement personnel ou sur le plan du tranfert des connaissances entre générations, tant que celui-ci se fera par la communication entre êtres humains.

Quand j'ai commencé ma thèse, de l'effet laser, j'en connaissais le concept des transitions entre niveaux d'énergie appelés 1, 2, 3 ou 4 suivant les points de vue développés. Mais à propos de ce fameux petit cristal vert, que j'ai étudié, je me suis longtemps demandé "qu'est-ce que ces niveaux", "qu'est-ce qui absorbe et qu'est-ce qui émet".

Comble de l'image (par conséquent irréaliste) que j'avais du chercheur, la logique des différentes étapes de ma compréhension a été inversée par rapport à l'historique des concepts scientifiques. Par exemple, partant d'un diagramme compliqué de niveaux d'énergie, je n'ai compris qu'après qu'il s'agissait des niveaux d'énergie d'ions  $Cr^{3+}$ , dopant ou impuretés du cristal.

Mais d'où vient ce diagramme de niveaux d'énergie dits "vibroniques" avec ses paraboles et ses noms incompréhensibles comme  ${}^{4}A_{2}$ ,  ${}^{4}T_{2}$ , ...? Une partie de mon

travail a donc consisté à m'approprier autant que possible, l'architecture de concepts développée depuis deux siècles (et plus) et qui constitue aujourd'hui la compréhension de ce qu'est un cristal, un cristal laser et un laser. Etant donné le nombre de choses qu'il aurait fallu assimiler, je n'en ai pas fait le "tour complet" et ce travail ne répond pas à toutes les questions qu'on pourrait se poser, mais, j'espère qu'il gardera malgré cela, un certain intérêt pour le lecteur.

#### Laser et cristal laser

Le principe d'un laser continu est de générer une espèce de "larsen" optique qui repose sur deux ingrédients : un milieu amplificateur optique et une boucle de rétroaction optique (cavité constituée, au minimum, par deux miroirs).

A ce jour, de nombreux milieux amplificateurs de type différents sont utilisés : les cristaux dopés, les gaz, les verres dopés, les fibres optiques, les semi-conducteurs, les colorants (liquides), ... Grâce, en plus, aux matériaux nonlinéaires, des sources lasers ont été développées de l'infrarouge à l'UV. Chacun de ces milieux amplificateurs présentent ses avantages et inconvénients et un des buts de la recherche actuelle consiste à améliorer la puissance des lasers ou le rendement global de ces dispositifs.

Un cristal laser est un cristal dans lequel, lors de sa synthèse, une impureté ionique (appellée "dopant") est incorporée avec une certaine concentration. Les propriétés optiques du cristal laser sont fonction du cristal (ou matrice cristalline) et du dopant.

Depuis la découverte de l'effet laser, par Maiman en 1960, dans le rubis (saphir ou alumine cristallisée, dopée au chrome,  $Cr^{3+}$  :Al<sub>2</sub>0<sub>3</sub>), de très nombreuses expériences ont été réalisées, en variant aussi bien la matrice cristalline que le dopant et rendues possibles par le développement des techniques de synthèse de cristaux artificiels. Je ne peux pas citer la liste des cristaux développés, depuis le saphir nommé ci-dessus, l'émeraude (silicates dopée au  $Cr^{3+}$ ), le YAG et autres grenats (GGG, GSGG,...), l'alexandrite, les colquiriites (LiSAF, LiCAF, LiSGAF, LiBAF,...), les borates (SBO, LSB, ...), LMA, LYF, YAP, YVO, MgF<sub>2</sub>, K<sub>2</sub>NaAlF<sub>6</sub>...

Tous ces cristaux sont des cristaux diélectriques, transparents en l'absence de dopant, et à la composition chimique plus ou moins complexe. On classe ceux-ci en deux familles : les fluorides et les oxydes, eu égard à certaines ressemblance entre leurs propriétés chimiques, thermiques, mécanique, ... Parmis les oxydes, on distingue les silicates, les borates, les phosphates, ...

Quant au dopant, il est choisi dans deux grandes familles chimiques : les ions de transitions (Ti<sup>3+</sup>, Cr<sup>3+</sup>, Cr<sup>4+</sup>, Mn<sup>5+</sup>, Fe<sup>3+</sup>, Cu<sup>3+</sup>, Ge<sup>3+</sup>, ...) et les ions terres rares (Nd<sup>3+</sup>, Er<sup>3+</sup>, Ce<sup>+</sup>, Yb<sup>3+</sup>, ...). Les caractéristiques spectrales sont fondamentalement différentes entre ces deux familles de dopant à cause de leur structure électronique : les ions de transitions possèdent un ou plusieurs électrons dans une dernière couche incomplète de tyde 3d tandis que les ions terres rares ont un ou plusieurs électrons dans une couche incomplète de type 4f interne au nuage électronique (les couches 5s, 5p, ... sont complètes).

A la lueur du nombres de dopant et de matice cristalline possible, le lecteur peut d'ores et déjà avoir une idée de l'infinité des possibilités! Ainsi, un autre des but de la recherche consiste à mieux comprendre le lien entre la structure électronique du dopant, la composition chimique et les propriétés cristallographiques de la matrice cristalline et les propriétés du cristal laser.

Par ailleurs, nous pourrions faire le lien entre ce travail et les recherches conséquentes, réalisées à propos de la synthèse des cristaux luminophores (pour les écrans à plasma<sup>2</sup>), ainsi que les travaux de minéralogistes liés à la découverte, l'analyse et la synthèse des cristaux "naturels".<sup>3</sup>

Cependant, dans le cadre de ce travail, nous avons observé trois cristaux, tous trois dopés au  $Cr^{3+}$ , le premier est un borate ou CSB (le fameux cristal russe que nous avons étudié), les deux suivants sont des colquiriites LiSAF et LiCAF (fluorides découverts en Bolivie, dans les mines de cuivre de Colquirii et synthétisés artificiellement depuis avec succès) et sur base desquels nous avons développé le laser infrarouge pompé par diode laser.

L'exposé est divisé en six chapitres, les chapitres de 1 à 5 concernent l'étude du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB et le dernier chapitre décrit les lasers  $Cr^{3+}$  :LiSAF et  $Cr^{3+}$  :LiCAF. Plus particulièrement :

#### - Chapitre 1, description du nouveau cristal laser : Cr<sup>3+</sup> :CSB

Succintement, différents concepts associés à la modélisation de l'interaction entre le dopant et la matrice cristalline sont décrits et en découlent, la description des niveaux d'énergie du  $Cr^{3+}$  dans un cristal et les transitions entre ces niveaux d'énergie (par absorption ou émission de photons). Ensuite, nous avons présenté le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB et ses propriétés fondamentales.

#### - Chapitre 2, Etude du temps de vie du niveau excité en fonction de la température ou mise en évidence du phénomène de "Thermal Quenching"

Nous avons exposé l'expérience caractérisant l'efficacité quantique du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB, en fonction de la température ainsi que le phénomène appelé "thermal quenching" qui explique l'extinction de la luminescence du cristal au délà d'une température caractéristique du cristal laser.

#### - Chapitre 3, Mesure du spectre d'absorption par les états excités

Ce chapitre expose une expérience permettant de mesurer le spectre d'absorption par les états excités. Cette étude permet de comprendre pourquoi certains cristaux luminescents sont impropres au développement de laser et discute le cas du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB.

### - Chapitre 4, Autres propriétés optiques du cristal $Cr^{3+}$ :CSB

Ici, nous avons décrit le principe et les travaux réalisés dans deux expériences non abouties, visant à déterminer avec nuance la longueur d'onde de pompage la

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>voir par exemple, http://hydre.auteuil.cnrs-dir.fr/dae/competences/cnrs/consultation/description.asp?j <sup>3</sup>voir par exemple : http://un2sg4.unige.ch/athena/mineral/mineral.html

plus efficace et à déterminer l'indice non linéaire du cristal Cr<sup>3+</sup> :CSB.

#### - Chapitre 5, Génération las er dans le cristal $\mathbf{Cr}^{3+}:\mathbf{CSB}$ pompé par un las er à colorant pulsé

Nous avons réalisé un laser à partir du  $Cr^{3+}$  :CSB pompé par un laser à colorant pulsé, nous en décrivons succintement les caractéristiques dans ce chapitre.

#### - Chapitre 6, Développement d'un laser à état solide dans le proche infrarouge pompé par diode laser

Le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB, n'ayant pas permis le développement d'un laser infrarouge de puissance, nous l'avons développé sur base des cristaux  $Cr^{3+}$  :LiSAF et  $Cr^{3+}$  :Li-CAF, quelques caractéristiques de ces lasers, sont décrites dans ce chapitre.

# Chapitre 1

# Un nouveau cristal laser : Cr<sup>3+</sup> :CSB

### **1.1** Introduction.

Nous allons étudier les propriétés d'un nouveau cristal laser, le  $Cr^{3+}$  :(Ce,Gd)Sc<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> ou  $Cr^{3+}$  :CSB.

Il s'agit d'un borate développé dans la suite des autres borates (SBO, LSB) en vue d'en surpasser les performances. Celui-ci a été dopé au Cr<sup>3+</sup>, ion de transition connu pour, dans d'autres cristaux, permettre le développement des lasers accordables dans le proche infrarouge.

Comme les propriétés de l'ion  $Cr^{3+}$  dépendent du cristal qu'il dope, nous commencerons par décrire le cristal, le dopant et leur interaction. Ces éléments nous permettront ensuite d'interpréter les caractéritiques spectrales du  $Cr^{3+}$  :CSB, en particulier.

Les résultats décrits dans ce chapitre sont décrites par l'équipe de Valery Lebedev de l'université de Krasnodar [46], où ont été synthétisés tous les cristaux de  $Cr^{3+}$  :CSB que nous avons utilisés pour nos expériences.

### 1.2 Le cristal CSB

Le cristal CSB est obtenu par la technique de Czochralski à une température de 1500 °C, c'est une solution solide dont la composition précise est

$$(\operatorname{Ce}_{1-x}\operatorname{Gd}_x)_{1+y}\operatorname{Sc}_{3-y-z}\operatorname{Cr}_z(\operatorname{BO}_3)_4$$

où x est choisi entre 0,16 et 0,25, y entre 0,001 et 0,0025 et z, qui correspond à un taux de dopant  $Cr^{3+}$ , entre 0,01 et 0,02. L'analyse au rayons X (par la méthode des poudres) a montré une composition en

 $(Ce_{0,82}Gd_{0,18})_{1,002}Sc_{2,988}Cr_{0,01}(BO_3)_4$ 

(x = 0, 18, y = 0, 002 et z = 0, 01) appartenant au groupe d'espace R32 (donc

au système cristallin rhomboédrique, voir figure 1.1) [11].



FIG. 1.1 – La maille primitive du groupe d'espace R32 est un rhomboèdre, obtenu à partir d'un cube aplati ou étiré selon une diagonale 1-6, de sorte que les 6 faces sont des losanges égaux. La symétrie trigonale est caractérisée par un axe d'ordre 3 et 3 axes d'ordre 2 orthogonaux à l'axe d'ordre 3, (1), (2), (3). L'axe d'ordre 3 est aussi l'axe de biréringence du cristal, ou axe c.

De même que la formule chimique donnée ci-dessus, la représentation spatiale de la maille primitive du  $Cr^{3+}$  :CSB est complexe (voir figure 1.2, description du motif répliqué par le système cristallin). Cependant, on peut en donner certains éléments : chaque ion  $Sc^{3+}$  se trouve dans un octaèdre (sorte de "cage") aux sommets duquel se trouve un oxygène, chacun de ces oxygènes appartient par ailleurs à un complexe  $BO_3^{3-}$  (complexe plan : les 3 oxygènes forment un triangle autour du bore) et à un autre octaèdre voisin. Ainsi est rétabli l'équilibre électronique :  $Sc^{3+}$  donnent 6/2 électrons aux 6 oxygènes de l'octaèdre des plus proches voisins, chacun de ces oxygènes ( $O^{2-}$ ) reçoit également un électron d'un  $B^3+$  et un 1/2 dans un autre octaèdre accolé.

Les ions  $Ce^{3+}$  et  $Gd^{3+}$ , isoélectronique à l'ion  $Sc^{3+}$  (mais de rayon atomique différent) se répartissent dans des cages octaédriques, selon les coefficients x et y, en provoquant des déformations complexes des octaèdres. Finalement, les ions  $Cr^{3+}$ , appelés "dopants" (pour les propriétés décrites ci-dessous), en faible concentration, substituent des ions  $Sc^{3+}$  mais dans un seul type d'octaèdre déformé. La déformation de cet octaèdre abaisse la symétrie locale, de la symétrie du groupe octaédral O, à celle du groupe  $C_2$  (avec les axes  $C_2$  parallèles aux axes d'ordre 2 du cristal, donc orthogonaux à l'axe c (axe trigonal)).

Le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB est développé sur la base du scandium orthoborate ScBO<sub>3</sub> dopé au  $Cr^{3+}(Cr^{3+}:SBO)$ , connu pour ses propriétés laser. Nous nous attendons à ce que l'ajout des ions  $Ce^{3+}$  et  $Gd^{3+}$  dans le CSB, en abaissant la symétrie locale de l'octaèdre d'oxygène, modifie et améliore les propriétés laser du  $Cr^{3+}:CSB$ .



FIG. 1.2 – Structure partielle<sup>\*</sup> de la maille primitive du  $Cr^{3+}$  :CSB, surlaquelle sont mis en évidence les "cages" octaédriques formées par les ions borates dans lesquelles se trouvent les ions  $Sc^{3+}$ ,  $Ce^{3+}$ ,  $Gd^{3+}$  où le dopant  $Cr^{3+}$  (qui substitue uniquement les ions  $Sc^{3+}$ ).

\* J'ai dit structure "partielle" parce que nous venons de voir que la maille primitive d'un cristal rhomboédrique est un rhomboèdre ... ce que nous avons ici ne peut donc être qu'une partie de la maille primitive ... mystère non encore éclairci ! Le cristal CSB est un cristal diélectrique transparent dans tout le visible. C'est aussi un cristal biréfringent négatif  $(n_o > n_e)$ , d'indice ordinaire,  $n_o$  et extraordinaire  $n_e$  élevés et dont la relation de dispersion est (relation de Sellmeier)

$$n_o^2 = 1 + \frac{2,317\lambda^2}{\lambda^2 - 0,124^2}$$

$$n_e^2 = 1 + \frac{2,050\lambda^2}{\lambda^2 - 0,112^2}$$
(1.1)

où  $\lambda$  est la longueur d'onde donnée en  $\mu$ m. La dispersion du cristal dans le visible, est donnée à la figure 1.3.



FIG. 1.3 – Indice de réfraction du cristal CSB en fonction de la longueur d'onde, l'augmentation de l'indice dans l'UV trahit la bande d'absorption du cristal à ces longueurs d'onde, par ailleurs, en l'absence de dopant  $Cr^{3+}$ , le cristal est transparent dans le visible.

# 1.3 Le dopant, $Cr^{3+}$

La spectroscopie du  $Cr^{3+}$  pris dans un site octaédrique a été étudiée dans de nombreux cristaux. Ainsi, c'est le  $Cr^{3+}$  qui donne sa teinte rouge au rubis et verte

à l'émeraude qui sont également connus pour être fluorescents. Les expériences permettant de caractériser ces propriétés sont la mesure du spectre d'absorption et la mesure du spectre de luminescence suite à l'excitation du  $Cr^{3+}$  par absorption d'un rayonnement dit de "pompage".

Le spectre d'absorption du CSB a été mesuré pour deux polarisations de la lumière, respectivement parallèle et perpendiculaire à l'axe c d'un cristal de 3 mm de long et de concentration de  $Cr^{3+}$  égale à  $0.51 \ 10^{-20} \ cm^{-3}$ . Le spectre d'absorption est polarisé et présentent deux larges bandes dans le rouge (650 nm) et dans le bleu (471 nm) ainsi qu'une forte bande d'absorption dans l'UV correspondant à l'absorption de la matrice cristalline. L'absorption du cristal peut être reliée à la section efficace d'absorption, la concentration en ions  $Cr^{3+}$  et la longueur du cristal par

$$A_{\alpha}(\lambda) = 1 - \exp(-\sigma_{GSA\alpha}(\lambda)N_0L) \tag{1.2}$$

où  $A_{\alpha}$  est l'absorption,  $\alpha$  est la polarisation :  $\pi$  pour la polarisation parallèle à l'axe c et  $\sigma$  pour la polarisation perpendiculaire,  $\sigma_{GSA\alpha}(\lambda)$  est la section efficace d'absorption,  $N_0$  est la concentration en ions  $\operatorname{Cr}^{3+}$  et L est la longueur du cristal. La section efficace d'absorption mesurée en fonction de la longueur d'onde est donnée figure 1.4.

Ensuite en pompant le cristal au moyen d'un laser à 511 nm, la luminescence du  $Cr^{3+}$  :CSB a été détectée et son spectre en fonction de la longueur d'onde a été mesuré. Ce spectre également polarisé, est normalisé par l'équation de Fuechtbauer-Landenburg [34] afin d'en extraire la section efficace d'émission donnée à la figure 1.4.

L'absorption d'un rayonnement (rouge ou bleu) par le cristal correspond à la transition d'ions  $Cr^{3+}$  vers des états excités et l'émission correspond à une transition désexcitatrice d'ions  $Cr^{3+}$ . Les larges bandes d'absorption respectivement dans le rouge et le bleu correspondent aux transitions  ${}^{4}A_{2} \rightarrow {}^{4}T_{2}$  et  ${}^{4}A_{2} \rightarrow {}^{4}T_{1}$  et la bande d'émission à la transition  ${}^{4}A_{2} \leftarrow {}^{4}T_{2}$  [51]. Dans la section suivante, nous allons essayer de décrire les éléments qualitatifs permettant d'interpréter cette nomenclature.

### 1.3.1 Les niveaux d'énergie de l'ion $Cr^{3+}$ , en général

Dans le cas où l'effet du cristal sur l'ion  $Cr^{3+}$ est négligeable, le spectre est un spectre atomique (ou plutôt ionique) qui prend toute sa dimension dans la physique quantique dont certains concepts sont devenus très familliés. Ainsi, l'ion  $Cr^{3+}$ , est vu comme composé d'un noyau de 24 protons et neutrons, et de 21 électrons. Ces électrons sont vus, en première approximation, comme remplissant des orbitales hydrogénoïdes, et sont caractérisés par les nombres quantiques n,l,m et s. On distingue les 3 derniers électrons, sur les orbitales 3d parce qu'ils ne forment pas une couche complète. Tout ceci est un résultat de la physique quantique.

Mais plus encore, on sait que le remplissage des 5 orbitales 3d par les 3 électrons n'est pas dégénéré, et que la levée de dégénérescence est expliquée par différents couplages dont la répulsion interélectronique et le couplage LS. Ceux-ci impliquent que les configurations atomiques sont caractérisées par deux nombres quantiques L



FIG. 1.4 – Sections efficaces d'absorption (à droite) et d'émission (à gauche) en fonction de la longueur d'onde pour les polarisation respectivement parallèle et perpendiculaire à l'axe c. Les deux bandes d'absorption polarisée, dans le rouge et le bleu sont dûes à la présence de  $Cr^{3+}$  tandis que la forte absorption dans l'UV est due à la matrice cristalline. La bande d'émission du cristal est également large et polarisée et se trouve dans le proche infrarouge.

et S, respectivement le moment orbital total et le spin total et en procédant par analogie avec le cas à un électron, on définit les nombres quantiques  $M_S$  et  $M_L$ , projection de L et S sur l'axe z.

En pratique on utilise la nomenclature suivante : le moment orbital total est associé à une lettre majuscule :  $L = 0 \rightarrow S$ ,  $L = 1 \rightarrow P$ ,  $L = 2 \rightarrow D$ ,  $L = 3 \rightarrow F$ , ... et le spin total à la multiplicité 2S + 1 écrite en haut à gauche (ex L = 0 et  $S = 0 \rightarrow {}^{1}S$ ).

Dans le cas du  $\operatorname{Cr}^{3+}$ , avec ses 3 électrons périphériques, on peut définir les configurations  ${}^4F$ ,  ${}^4P$ ,  ${}^2G$ ,  ${}^2H$ , ... d'énergies différentes suite à la répulsion interélectronique et au couplage spin-orbite [5] et ces niveaux d'énergie correspondent au cas où l'interaction de l'ion  $\operatorname{Cr}^{3+}$  avec la matrice cristalline est faible.

Pour tenir compte de l'interaction avec le cristal, la théorie du champ cristallin modélise les plus proches voisins par des charges locales introduisant des termes coulombiens supplémentaires à l'hamiltonien du système.

Si l'interaction entre le cristal et l'ion  $Cr^{3+}$  est très forte la levée de dégénérescence des niveaux d'énergie décrite ci-dessus est négligeable par rapport à l'interaction des électrons avec les ions plus proches voisins (ou ligandes). Les niveaux d'énergie résultant sont fonction de la symétrie que respectent les ligandes et le problème doit être traité dans la théorie du groupe octaédrique.

En champ fort, comme le couplage LS et la répulsion intercoulombienne sont négligeables, on peut reprendre la représentation en cinq orbitales 3d qu'on sépare en deux groupes : les 3 orbitales t(xy, yz et zx) dont les lobes pointent entre les ligandes et les 2 orbitales  $e(z^2 \text{ et } x^2 - y^2)$  dont les lobes pointent vers les ligandes. L'intérêt de cette représentation est de montrer que le champ cristallin lève partiellement la dégénérescence des orbitales d : comme les ligandes sont chargés négativement, ils repoussent les électrons des orbitales e, augmentant ainsi l'énergie de ces orbitales par rapport aux orbitales t.

Par énergie croissante, pour l'ion  $Cr^{3+}$ , avec trois électrons sur les orbitales d $(d^3)$ , nous avons donc les configurations  $t^3$ ,  $t^2e$ ,  $te^2$ , où la configuration  $t^3$  (trois électrons sur les orbitales t) est la configuration fondamentale et la configuration  $t^2e$ (deux électrons sur les orbitales t et un électron sur une orbitale e) est la première configuration excitée. Une fois qu'on a tenu compte de cette interaction, on peut incorporer la répulsion intercoulombienne et le couplage LS.

Qu'en est-il des cas intermédiaires, entre configuration en champ faible et en champ fort? A cette question, est associé le résultat décrit par Tanabe et Sugano qui est un des deux éléments fondamentaux sur lesquels reposent toute l'interprétation des spectres du  $Cr^{3+}$ , dopant d'un cristal.

Le champ cristallin lève partiellement la dégénérescence des configurations en champ faible (configuration ionique) et les niveaux d'énergie résultant prennent le nom des représentations irréductibles associées au groupe de symétrie octaédrique :  $A_2, E, T_1, T_2, T_1, \dots$  auquel on ajoute la multiplicité (2S+1) en haut à gauche [5], [11]

Ce résultat est donné sous la forme d'un diagramme des niveaux d'énergie en fonction de 3 paramètres Dq, B et C décrivant l'interaction avec le cristal. Ce diagramme est donné figure 1.5 et relie les niveaux d'énergie à faible interaction (Dq/B << 1) aux niveaux d'énergie à interaction forte (Dq >> 1) [12].

C'est avec ce modèle qu'on interprète le spectre d'absorption et d'émission du  $Cr^{3+}$  dans le cristal CSB, donné à la figure 1.4. Mais avant cela, il nous faut le deuxième élément sur lequel repose toute l'interprétation spectral. Il s'agit du couplage des niveaux d'énergie décrits ci-dessus avec les vibrations collectives des ligandes autour du  $Cr^{3+}$ . Dès lors, les niveaux sont appelés "vibroniques".

On considère l'ion dans un potentiel parabolique qui décrit son énergie en fonction de "l'amplitude" de vibration négligeant l'aspect des niveaux discrets. Les modes de vibrations sont également définis par la théorie des groupes mais on utilise une seule coordonnée dite "configurationelle"<sup>1</sup>. Ce nouveau diagramme est donné figure 1.6.

Sur celui-ci, nous voyons que les niveaux  ${}^{4}T_{2}$  et  ${}^{4}T_{1}$  sont décentrés, c'est l'effet Jhan-Teller qui a pour conséquence que les niveaux d'énergie dégénérés ne sont pas stables (sauf dégénérescence de spin) et qu'un minimum d'énergie peut être atteint pour une configuration des ligandes déformée.

La conséquence fondamentale du couplage vibronique est un élargissement des transitions dû à l'absorption ou l'émission d'un ou plusieurs phonons lors de la transition entre niveaux d'énergie, par absorption ou émission d'un photon.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> "ne me demandez pas à quoi elle correspond, plus précisément, j'aurais bien aimé le savoir mais je ne suis pas arrivée jusque là"



FIG. 1.5 – Diagramme de Tanabe Sugano pour l'ion  $Cr^{3+}$  substitué dans un site octaédrique [27]. En abscisse, le paramètre Dq décrit l'intensité du champ cristallin et en ordonnée se trouvent les niveaux d'énergie. Pour Dq = 0, on retrouve les niveaux d'énergie de l'ion isolé (champ faible) et à droite, le "nom" des niveaux associés aux représentations irréductibles avec leur multiplicité (2S+1) ainsi que, entre parenthèse, les configurations en champ fort associées  $(t^3, t^2e \text{ et } te^2)$ .



FIG. 1.6 – Diagramme des niveaux vibroniques du  $Cr^{3+}$  dans un site octaédrique en fonction de la coordonnée configurationelle, décrivant le couplage des niveaux d'énergie avec les vibrations de la molécule de ligandes. Le décentrage des niveaux  ${}^{4}T_{2}$  et  ${}^{4}T_{1}$  est dû à l'effet Jhan-Teller.

#### 1.3.2 Les niveaux d'énergie de l'ion $Cr^{3+}$ , dans le CSB

Nous avons vu que le site octaédrique dans lequel se trouve le  $Cr^{3+}$  est déformé (cf section 1.2). Cette déformation entraîne une certaine levée de dégénérescence des niveaux d'énergie du diagramme de Tanabe-Sugano. Sur le spectre d'absorption, les bandes d'absorption sont modélisées par des gaussiennes et l'ensemble du spectre est "ajusté" sur le diagramme de Tanabe-Sugano, permettant de définir les paramètres d'interaction avec le champ cristallin. Le résultat est donné figure 1.7. Les valeurs de paramètres résultant de la comparaison avec le diagramme de Tanabe-Sugano sont donnés au tableau 1.1.

${}^{4}\mathrm{T}_{2}$ cm <sup>-1</sup>	${}^{4}T_{1}(a)$ cm <sup>-1</sup>	${^2}_{\rm E}$ cm <sup>-1</sup>	$Dq cm^{-1}$	<b>B</b> ?	C/B ?
15544	21807	14620	1554	516	6.4

TAB. 1.1 – Paramètres donnés par la comparaison des centres de symétrie des bandes d'absorption du spectre d'absorption et du diagramme de Tanabe-Sugano.

Sur le spectre d'absorption, les transtions  ${}^{4}A_{2} \rightarrow {}^{4}T_{2}$  et  ${}^{4}A_{2} \rightarrow {}^{4}T_{1}$  sont des bandes plus larges et plus intenses que les transitions  ${}^{4}A_{2} \rightarrow {}^{2}E$  et  ${}^{4}A_{2} \rightarrow {}^{2}T_{1}$ , comme le spectre d'émission est de large, on en déduit qu'il est le résultat de transitions vibroniques  ${}^{4}A_{2} \leftarrow {}^{4}T_{2}$ , lui même modélisé par la méthode de McCumber [30] par

$$\sigma_e = \sigma_a \exp((h\nu - \hbar\Omega_0)/kT) \tag{1.3}$$

où  $\nu$  est la fréquence optique,  $\hbar$  est l'énergie de la transition à zéro-phonon (voir figure 1.8), k est la constante de Boltzmann et T est la température. Avec tous ces éléments, on peut représenter le diagramme des niveaux vibroniques, figure 1.8 et donner les caractéristiques des transitions du tableau 1.2.

	<sup>4</sup> T <sub>1</sub>	$({}^4F)$		<sup>4</sup> T <sub>2</sub>	$(^4F)$		${}^{2}T_{1}$	$(^{2}G)$		<sup>2</sup> E	$(^2G)$
	1	2	3	A	A	B	1	2	3	1	2
λmax FMHM σ <sub>GSAπ</sub> σ <sub>GSAσ</sub>	425 2121 0.7 0.7	$     461 \\     2092 \\     2.6 \\     3.2     $	495 2064 1.4 1.75	615 1908 1.2 0.8	640 1131 1.4 0.9	678 1837 2.5 2	$\begin{array}{r} 656.5 \\ 212 \\ 0.5 \\ 0.2 \end{array}$	667 254 0.3 0.25	$698 \\ 254 \\ 0.5 \\ 0.55$	685 212 1 0.6	710 282 0.5 0.3

TAB. 1.2 – Valeur extraite du spectres d'absorption et identification des transitions correspondante sur le diagramme de Tanabe-Sugano. Les longueurs d'onde sont données en nm, la largeur des bandes en cm<sup>-1</sup> et les sections eficaces d'absorption en  $10^{-20}$  cm<sup>2</sup>.



FIG. 1.7 – Décomposition du spectre d'absorption par identification des transitions et "fit" avec le diagramme de Tanabe-Sugano. La transition  ${}^{4}A_{2} \rightarrow$  ${}^{4}T_{1}$  attendue entre 280-320 nm est masquée par l'absorption de la matrice cristalline.



FIG. 1.8 – Diagramme des niveaux vibroniques du  $Cr^{3+}$  :CSB avec les transitions associées aux spectres d'absorption et d'émission mesurés (figure 1.4).

# **1.4** Effet laser dans le Cr<sup>3+</sup> :CSB

Le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB permet, par ses propriétés d'absorption et d'émission mesurées jusqu'à présent, de développer un laser sur la base d'un cycle à quatre niveaux. Celui-ci est décrit figure 1.9 sur le diagramme des niveaux vibroniques. Il est décomposé en quatre temps :

1 - l'absorption d'un photon (dit "de pompe") amène un ion  $\rm Cr^{3+}\,$  sur un niveau excité  $\rm ^4T_2$ 

2 - une désexcitation non radiative, par émission de phonons, vers la configuration métastable  ${}^{4}T_{2}$  (molécule déformée par l'effet Jhan-Teller)

3 - la transition radiative  ${}^{4}A_{2} \leftarrow {}^{4}T_{2}$  par émission d'un photon (spontané dans le cas de la luminescence, stimulé dans le cas de l'effet laser)

4 - une désexcitation non radiative, par émission de phonons, vers le retour à la position d'énergie minimum du niveau vibronique  ${}^{4}A_{2}$ .

Par ailleurs, les probabilités de désexcitation non radiatives sont beaucoup plus élevées que les probabilités de transitions radiative (absorption ou émission). Par conséquent, dans le cristal pompé, les ions  $Cr^{3+}$  se trouveront essentiellement sur les niveaux 1 et 3. Le chapitre suivant, nous permettra de déterminer le temps de vie de l'ion  $Cr^{3+}$  excité sur le niveau 3.



FIG. 1.9 – Cycle à quatre niveaux permettant l'effet laser dans le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB pompé, réprésenté sur le diagramme des niveaux vibroniques et schématiquement.

### 1.5 Conclusion.

Nous avons décrit les éléments de base (interaction de l'ion  $Cr^{3+}$  avec les ligandes) permettant l'interprétation des spectres d'absorption et d'émission de l'ion  $Cr^{3+}$ dopant le cristal CSB : l'interprétation en champ faible ou fort, le diagramme de Tanabe-Sugano et le diagramme des niveaux vibroniques.<sup>2</sup>

Ce nouveau cristal montre une bande d'absorption autour de 650 nm et 470 nm ainsi qu'une bande d'émission large dans le proche infrarouge ( ${}^{4}A_{2} \leftarrow {}^{4}T_{2}$ ). Toutes ces propriétés sont typiques d'un cristal dans lequel l'ion  $Cr^{3+}$  se trouve dans un site octaédrique et dans un champ cristallin faible.

Nous avons décrit le cycle laser à quatre niveaux permettant l'hypothèse d'un laser accordable dans le proche infrarouge. Cependant, les propriétés d'absorption et de luminescence du cristal ne garantissent pas l'effet laser et son efficacité, c'est ce que nous allons voir dans les deux chapitres suivants.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Si j'avais eu plus de temps, j'aurais voulu creuser la question des règles de sélection des transitions (dipolaires électriques et magnétiques). En effet, celles-ci ont des conséquences fondamentales sur l'intensité des raies d'absorption. Cependant, la complexité de la description des niveaux d'énergie se reporte sur l'énoncé des règles de sélection et celles-ci sont donc différentes en champ faible et en champ fort et non triviales en champ moyen !

# Chapitre 2

# Etude du temps de vie du niveau excité en fonction de la température ou mise en évidence du phénomène de "Thermal Quenching"

### 2.1 Introduction

Les spectres d'absorpion et d'émission du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB, donnés au chapitre 1 ont mis en évidence un cycle laser schématique à quatre niveaux. L'absorption d'un rayonnement dans le rouge amène des ions  $Cr^{3+}$  (via la transition  ${}^{4}A_{2} \rightarrow {}^{4}T_{2}$ ) sur un niveau métastable dont la désexcitation radiative ( ${}^{4}A_{2} \leftarrow {}^{4}T_{2}$ ), peut être spontanée ou stimulée par un rayonnement incident dans le procheinfrarouge. On parle de luminescence dans le premier cas et de gain ou d'amplification du rayonnement incident dans le deuxième cas.

Cependant, certains cristaux laser n'émettent plus la moindre luminescence (et ne sont plus amplificateurs) au-delà d'une certaine température, tout en retrouvant leurs propriétés laser dès que la température baisse. C'est ce qu'on appelle l'extinction thermique (ou "thermal quenching") dont l'interprétation est la suivante : l'ion excité métastable a, non seulement une probabilité de désexcitation radiative (à la base des propriétés laser), mais aussi une probabilité de désexcitation non-radiative qui dépend fortement de la température. Ainsi, il existe une compétition entre les deux processus de désexcitation qui à haute température favorise les transitions non-radiatives. Autrement dit, pour ces cristaux, à température élevée, le processus non-radiatif évince toutes propriétés laser.

Evidemment, l'expression "température élevée" doit être précisée : en réalité, les cristaux laser ne sont pas égaux devant le "thermal quenching". Dans ce chapitre, nous allons décrire l'expérience caractérisant le processus d'extinction thermique du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB. Cette expérience permet de déterminer le domaine de tempé-

rature pour lequel le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB conserve ses propriétés de luminescence et d'estimer le dispositif de refroidissement nécessaire à son efficacité. Par ailleurs la compréhension du rapport entre les propriétés chimiques et cristallographiques et la résistance à l'extinction thermique, développe les arguments guidant l'élaboration de nouveaux cristaux laser efficaces.

Enfin, les résultats décrits dans ce chapitre font l'objet d'un article publié en collaboration avec l'équipe de Valéry Lebedev de l'université de Krasnodar [46].

### 2.2 Qu'est-ce que le "Thermal Quenching"?

Le "thermal quenching" est l'extinction progressive (mais réversible) des propriétés d'amplification ou de luminescence d'un cristal avec l'élévation de sa température. Voyons quel lien nous pouvons faire avec les propriétés microscopiques du cristal : phénomènes d'excitation et désexcitation des ions  $Cr^{3+}$  par interaction avec les photons (processus radiatif) ou avec les phonons (processus non radiatif).

Le diagramme des niveaux d'énergie vibroniques de l'ion  $Cr^{3+}$  dans le cristal CSB, est rappelé à la figure 2.1, ainsi que le cycle laser à quatre niveaux (cf section 1.3.2). Etant donné le terme parabolique de l'énergie des niveaux vibroniques, les niveaux  ${}^{4}A_{2}$  et  ${}^{4}T_{2}$  "se croisent" pour une certaine valeur de l'amplitude de vibration et un processus de désexcitation non radiatif est possible par franchissement de la barrière de potentiel entre le niveau métastable (au minimum de la parabole  ${}^{4}T_{2}$ ) et cet état "de croisement". Comme le franchissement de la barrière de potentiel est un processus assisté par l'absorption d'un ou plusieurs phonons, sa probabilité dépend de la température.

Lors de cette transition l'ion  $Cr^{3+}$  passe par un état transitoire d'énergie plus élevée, grâce à l'absorption de plusieurs phonons et la probabilité du processus global est décomposé en trois facteurs : les probabilités des transitions  ${}^{4}T_{2} \rightarrow {}^{4}T_{2}^{*}$ ,  ${}^{4}T_{2}^{*} \leftrightarrow {}^{4}A_{2}^{*}$  et  ${}^{4}A_{2} \leftarrow {}^{4}A_{2}^{*}$  (où \* indique l'état excité au croisement des niveaux  ${}^{4}A_{2}$  et  ${}^{4}T_{2}$ ). Cependant, dans le modèle de Mott [33], la probabilité globale de transition non radiative est donnée par une relation d'Arrhénius à deux facteurs : le facteur de fréquence (indépendant de la température et égal à la probabilité de transition à température élevée) et un facteur exponentiel (fonction de l'énergie de la barrière de potentiel et de la température),

$$W_{nr} = \omega_0 \,\mathrm{e}^{-\frac{E_g}{kT}} \tag{2.1}$$

Où  $W_{nr}$  est la probabilité de transition non radiative,  $\omega_0$  est le facteur de fréquence,  $E_g$  est l'énergie de la barrière de potentiel mais aussi l'énergie d'activation de la transition non radiative (ou énergie transitoire nécessaire à l'ion  $\operatorname{Cr}^{3+}$  pour franchir la barrière de potentiel), k est la constante de Boltzmann et T est la température en Kelvin.

Par ailleurs, la probabilité de désexcitation **radiative**  ${}^{4}A_{2} \leftarrow {}^{4}T_{2}$  est donnée par l'inverse du temps de vie radiatif. Avec les probabilités de désexcitation radiative et



FIG. 2.1 – Diagramme des niveaux d'énergie vibroniques de l'ion  $Cr^{3+}$ en fonction de l'amplitude de vibration, complété, par rapport à la figure 1.9, par le processus de désexcitation non radiatif de l'état métastable de la branche  ${}^{4}T_{2}$  (niveau 3). Celui-ci est lié à une probabilité, dépendant fortement de la température, que l'ion  $Cr^{3+}$ rejoigne la branche  ${}^{4}A_{2}$  en franchissant la barrière de potentiel d'énergie  $E_{g}$  et relaxe jusqu'à l'état fondamental (niveau 1) par émission de phonons. Le franchissement de la barrière de potentiel étant un processus catalysé par l'absorption de phonons, sa probabilité augmente avec la température. On peut dès lors pressentir qu'au delà d'une certaine température, la désexcitation non radiative prend le pas sur la désexcitation radiative et évince tout propriété laser.

non radiative, on peut modéliser l'évolution de la densité d'ions excités en fonction du temps (équation (2.2a)) et définir le temps de vie total du niveau excité,  $\tau$  (2.2b) et (2.2c).

$$\frac{dN_e}{dt} = -\frac{N_e}{\tau_r} - W_{nr} N_e \tag{2.2a}$$

donc

$$\frac{dN_e}{dt} = -\frac{N_e}{\tau_r} - \frac{N_e}{\tau_{nr}} \quad \text{avec} \quad W_{nr} = \frac{1}{\tau_{nr}} \tag{2.2b}$$

 $\operatorname{et}$ 

$$\frac{dN_e}{dt} = -\frac{N_e}{\tau} \quad \text{avec} \quad \frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{nr}} \tag{2.2c}$$

Où  $N_e$  est la densité d'ions excités, t est le temps,  $\tau_r$  et  $\tau_{nr}$  sont les temps de vie radiatif et non radiatif, enfin,  $\tau$  est le temps de vie total du niveau excité.

La probabilité de transition radiative est augmentée par l'interaction avec les phonons, par la composante dynamique de la levée de l'interdiction de cette transition et l'expérience montre que le temps de vie radiatif décroît exponentiellement avec la température selon la relation

$$\tau_r = \tau_{r0} \,\mathrm{e}^{-\alpha T} \tag{2.3}$$

où  $\tau_r$  est le temps de vie radiatif,  $\tau_{r0}$  est le temps de vie radiatif à 0 K,  $\alpha$  est un facteur de décroissance exponentiel dépendant du cristal et ajusté expérimentalement, enfin, T est la température en Kelvin.

Grâce aux équations (2.1), (2.2) et (2.3) nous avons un modèle décrivant le temps de vie total du niveau excité en fonction de la température. Et, il en découle que lorsque la température dépasse une température caractéristique donnée par

$$T^* = \frac{E_g}{k \ln(\omega_0 \tau_{r0})} \tag{2.4}$$

la désexcitation non radiative des ions excités est plus probable que la désexcitation radiative et dégrade l'efficacité des processus de luminescence et d'amplification du cristal (de manière réversible, car il suffit de réduire la température pour retrouver l'efficacité initiale).

### 2.3 Principe de l'expérience

Outre le "thermal quenching", il découle des équations (2.1), (2.2) et (2.3) que le temps de vie total du niveau excité décroit quand on augmente la température : à basse température, à cause de la décroissance du temps de vie radiatif et autour de la température  $T^*$  à cause de la décroissance du temps de vie non radiatif. Or, il existe une expérience simple pour mesurer le temps de vie : elle consiste à exciter le cristal par absorption d'une impulsion de pompe et à observer la décroissance en fonction du temps, de la luminescence émise par le cristal. En effet, en l'absence d'émission stimulée, la luminescence spontanée est proportionnelle au taux de transition radiatif qui est lui-même proportionnel à la densité d'ions excités. Par conséquent, suite à l'absorption d'une impulsion de pompage, la densité d'ions excités suit l'évolution  $N_e(t) = N_e(0) \exp(-t/\tau)$  où  $N_e(0)$  est la densité d'ions excités à la fin de l'impulsion de pompe et l'intensité de la luminescence émise répond à l'équation  $I(t) = I(0) \exp(-t/\tau)$  où I(0) est l'intensité de luminescence maximum, à la fin de l'impulsion de pompe.

Ainsi, le principe de l'expérience est de pomper le niveau excité par absorption d'une impulsion plus courte que le temps de vie de l'état excité et de détecter la décroissance au cours du temps de la luminescence émise par désexcitation radiative des ions excités. Le temps de vie du niveau excité peut être extrait de l'analyse de la décroissance de la luminescence et ce à différentes températures du cristal, contrôlée soit au moyen d'un four (pour les températures supérieures à la température ambiante) soit au moyen d'un cryostat (pour les températures inférieures à la température ambiante).

Une fois que nous avons la dépendance du temps de vie en fonction de la température, on compare cette dépendance avec le modèle donné par les équations (2.1), (2.2) et (2.3) pour ajuster les paramètres  $\omega_0$ ,  $E_g$ ,  $\tau_{r0}$  et  $\alpha$ . Enfin, le rapport des probabilités de transition radiative et non radiative ou le rapport des temps de vie non radiatif et radiatif, donne l'efficacité quantique des propriétés radiatives et met en évidence l'extinction thermique (2.5).

$$Q = \frac{W_r}{W_r + W_{nr}} = \frac{\tau}{\tau_r} = \frac{\frac{\exp(\alpha T)}{\tau_{r0}}}{\frac{\exp(\alpha T)}{\tau_{r0}} + \omega_0 \exp(-\frac{E_g}{kT})}$$
(2.5)

où Q est l'efficacité quantique de la luminescence en fonction de la température, T,  $W_r$  et  $W_{nr}$  sont les probabilités de transition radiative et non radiative,  $\tau_r$ ,  $\tau_{nr}$  et  $\tau$  sont les temps de vie radiatif, non radiatif et total, et où  $\omega_0$ ,  $E_g$ ,  $\tau_{r0}$  et  $\alpha$  ont été définit par les équations (2.1), (2.2) et (2.3).

### 2.4 Montage expérimental

La densité d'ions excités est obtenue par absorption du rayonnement, à 665 nm, d'une diode semi-conducteur modulée en courant pour générer des impulsions de 10 à 100 ns avec un taux de répétition de l'ordre de 1 kHz.

Le cristal est placé dans un four afin d'augmenter sa température jusqu'à 500 K et dans un cryostat permettant de réaliser l'expérience pour une température de 77 K.

Il est essentiel, pour l'expérience, de séparer complètement la luminescence du rayonnement de pompe non absorbé par le cristal. Pour cela, la luminescence est détectée par un photomultiplicateur orienté à 90° par rapport à la direction de propagation de la pompe et un filtre interférentiel à 850 nm est ajouté devant le détecteur.

Les impulsions n'étant pas très puissantes, la luminescence ne l'est pas plus et un amplificateur a été ajouté entre le photomultiplicateur et l'oscilloscope ainsi qu'une impédance de 50  $\Omega$  à l'entrée de l'oscilloscope pour maintenir la bande passante du dispositif de détection, supérieure à 100 MHz.

Le schéma expérimental est illustré à la figure 2.2 et une photographie à la figure 2.3.



FIG. 2.2 – Schéma expérimental permettant la mise en évidence du phénomène de "thermal quenching" dans le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB. L'expérience consiste à mesurer le temps de vie des ions excités en fonction de la température. Pour cela, la luminescence émise par le cristal, suite à l'absorption d'une impulsion de pompe est détectée en fonction du temps, pour différentes températures du cristal. Pour faciliter la séparation des rayonnements de pompe et de sonde, la luminescence est détectée à 90 ° de la direction du faisceau de pompe et sa décroissance au cours du temps est enregistrée, au moyen d'un photomultiplicateur, sur l'oscilloscope, après amplification. L'oscilloscope est déclenché sur l'impulsion de pompe au taux de répétition de la diode de pompe. Le cristal est placé dans un four dont la température est ajustable entre 20 °C et 200 °C.

### 2.5 Résultats

#### 2.5.1 Durée de l'impulsion de pompe

Le dispositif de contrôle de la diode laser de pompe permet de contrôler la durée des impulsions entre 10 ns et 100 ns. En l'occurence, allonger la durée de l'impulsion permet d'augmenter l'énergie absorbée, et ainsi, la luminescence détectée ou du moins, son rapport signal sur bruit. Nous avons vérifié qu'une durée de 100 ns



FIG. 2.3 – Photographie de la partie optique du schéma expérimental, décrit à la figure 2.2, permettant de mesurer le temps de vie du niveau excité, en fonction de la température et de mettre en évidence l'extinction thermique du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB. Sur cette photo, la détection de la luminescence à 90° est mise en évidence, celle-ci permet d'éviter au maximum toute détection parasite de la pompe.

ne modifiait pas la durée de vie apparente de l'état excité. La figure 2.4 montre la puissance instantanée des impulsions de pompe de respectivement 10 et 100 ns et la luminescence détectée dans les deux cas, en fonction du temps (sur une échelle logarithmique). Le signal de la luminescence correspondant aux impulsions de 100 ns est bien supérieur à celui correspondant aux impulsions de 10 ns, tandis que, dans les deux cas, le temps de décroissance exponentielle de la luminescence est le même.

#### 2.5.2 Temps de montée

Sur la figure 2.4 où sont représentés les sign**an** proportionnels à la luminescence qui suit les impulsions de pompage, on peut voir que le temps de montée du signal est de l'ordre de 0,5  $\mu$ s. Ce temps est supérieur au temps de montée de la chaîne de détection et à la durée de l'impulsion de pompe, ce qui pourrait indiquer que la luminescence n'est pas instantanément émise suite à l'impulsion de pompage. Quelle en peut bien être la raison?

En fait, si on observe à la fois la section efficace d'absorption autour de 665 nm et sa décomposition sur les différents niveaux d'énergie, on voit que l'absorption d'un rayonnement à 665 nm excite plusieurs niveaux excités différents (voir figure 1.7) : d'une part, les niveaux  ${}^{2}E$  et  ${}^{2}T_{1}$  et d'autre part les 2 niveaux  $A({}^{4}T_{2})$  et le niveau  $B({}^{4}T_{2})$ .

Le diagramme des niveaux d'énergie de la figure 2.1 est donc plus complexe et nous l'avons complèté sur la figure 2.5. Le niveau métastable susceptible d'émettre la luminescence est le minimum du niveau vibronique  $B({}^{4}T_{2})$ . Comme, il existe



FIG. 2.4 – Puissance instantanée, en fonction du temps, des impulsions de pompe de respectivement 10 et 100 ns et de la luminescence correspondante. La puissance des impulsions de pompe (en échelle arbitraire) est détectée par une photodiode rapide placée sur le faisceau de pompe transmis par le cristal, et enregistrée sur l'oscilloscope. La luminescence a été mesurée grâce à la chaîne de détection représentée à la figure 2.2. Le temps est représenté en échelle logarithmique afin d'observer sur la même figure, les impulsions de pompe et de luminescence. Les temps de vie correspondant aux deux signaux de luminescence étant les mêmes, rien n'empêche d'utiliser les impulsions de pompe de 100 ns qui augmentent le rapport signal sur bruit.

une faible barrière de potentiel entre les niveaux <sup>2</sup>E et B(<sup>4</sup>T<sub>2</sub>), la relaxation des ions excités du niveau <sup>2</sup>E vers le niveau B(<sup>4</sup>T<sub>2</sub>) pourrait être ralentie, de plus, cette dynamique concernerait les ions excités sur les niveaux A1(<sup>4</sup>T<sub>2</sub>) et A2(<sup>4</sup>T<sub>2</sub>) qui, selon le diagramme de la figure 2.5 relaxeraient d'abord vers le niveau <sup>2</sup>E.

Les proportions d'ions excités sur les différents niveaux sont données par le rapport entre la section efficace d'absorption correspondant à chaque niveau et la section efficace d'absorption totale (voir chapitre 1), valeurs données, au tableau 2.1 à une longueur d'onde de 665 nm. Ainsi, apparemment, pour une impulsion de pompe à 665 nm, dès relaxation des niveaux A1( ${}^{4}T_{2}$ ), A2( ${}^{4}T_{2}$ ) et  ${}^{2}T_{1}$ , on a 54 % des ions sur le niveau  ${}^{2}E$  pour 46 % sur le niveau B( ${}^{4}T_{2}$ ).

$ \begin{array}{c} \sigma_{GSA}(\mathrm{A1}(^{4}\mathrm{T_{2}})) \\ \sigma_{GSA}(\mathrm{A2}(^{4}\mathrm{T_{2}})) \\ \sigma_{GSA}(\mathrm{B}(^{4}\mathrm{T_{2}})) \end{array} $	$= 1,8 \ 10^{-20} \\= 2,7 \ 10^{-20} \\= 4,2 \ 10^{-20}$	${cm^2 \over cm^2} {cm^2}$	$\sigma_{GSA}(^2\mathrm{T_1}) \ \sigma_{GSA}(^2\mathrm{E})$	$= 0,3 \ 10^{-20} \\= 0,0 \ 10^{-20}$	${ m cm}^2$ cm <sup>2</sup>
$\sigma_{GSA_{ ext{total}}}$	$= 9,1 \ 10^{-20}$	cm <sup>2</sup>			
$N_e(A1(^4T_2))$ $N_e(A2(^4T_2))$ $N_e(B(^4T_2))$	= 20 = 30 = 46	% % %	N <sub>e</sub> ( <sup>2</sup> T <sub>1</sub> ) N <sub>e</sub> ( <sup>2</sup> E)*	= 4 = 54	% %

 $^{*}$  valeur calculée sachant que ce niveau n'est pas peuplé par le pompage direct mais bien par la relaxation rapide des trois niveaux A1( $^{4}\mathrm{T}_{2}$ ), A2( $^{4}\mathrm{T}_{2}$ ) et  $^{2}\mathrm{T}_{1}$ .

TAB. 2.1 - Détail et total des sections efficaces d'absorption à 665 nm en fonction des niveaux excités ; ainsi que la répartition de la densité d'ions excités sur les différents niveaux vibroniques suite à l'absorption d'une impulsion à 665 nm.

Le niveau  $B({}^{4}T_{2})$  est donc instantanément émetteur mais sa population continue, dans un premier temps, à croître par désexcitation des ions excités du niveau <sup>2</sup>E. Les équations régissant l'évolution des populations  $n_{1}$  et  $n_{2}$ , respectivement sur les niveaux <sup>2</sup>E et  $B({}^{4}T_{2})$  sont données par le système

$$\frac{dn_1}{dt} = \kappa g(t) - \frac{n_1}{\tau_1} - W_d n_1 + W_b n_2$$
(2.6a)

$$\frac{dn_2}{dt} = (1 - \kappa)g(t) - \frac{n_2}{\tau_2} + W_d n_1 - W_b n_2 - W_{rn} n_2$$
(2.6b)

1

$$W_d = \omega_{0d} \exp(-E_d/kT) \tag{2.6c}$$

$$W_b = \omega_{0b} \exp(-E_b/kT) \tag{2.6d}$$

$$W_{nr} = \omega_{0nr} \exp(-E_g/kT) \tag{2.6e}$$

où  $\kappa$  ( $0 \leq \kappa \leq 1$ ) est le pourcentage d'ions excités peuplant le niveau <sup>2</sup>E (tandis que  $1-\kappa$  correspond au niveau B( ${}^{4}T_{2}$ )), g(t) est l'intensité instantanée de l'impulsion de pompe,  $W_{d}(E_{d}, \omega_{0d}), W_{b}(E_{b}, \omega_{0b}), W_{nr}(E_{g}, \omega_{0nr})$  sont les probabilités de transition non radiative (par franchissement de barrière de potentiel) entre les états excités



FIG. 2.5 – Diagramme des niveaux d'énergie de l'ion  $Cr^{3+}$  dans le cristal de CSB, complété par rapport à la figure 2.1 de la levée de dégénérescence du niveau  ${}^{4}T_{2}$ , donnant trois niveaux  $A1({}^{4}T_{2})$ ,  $A2({}^{4}T_{2})$  et  $B({}^{4}T_{2})$ . Sur ce diagramme, l'existence d'une petite barrière de potentiel, d'énergie  $E_{d}$ , est mise en évidence, celle-ci ralentit la dynamique de la transition  $B({}^{4}T_{2}) \leftarrow {}^{2}E$ . Par ailleurs, nous savons que l'absorption d'un rayonnement de pompe à 665 nm excite des ions d'une part, sur les niveaux  $A1({}^{4}T_{2})$ ,  $A2({}^{4}T_{2})$  et  $B({}^{4}T_{2})$  et d'autre part sur les niveaux  ${}^{2}E$  et  ${}^{2}T_{1}$  (en proportions données au tableau 2.1). Par conséquent, comme les niveaux  $A1({}^{4}T_{2})$  et  $A2({}^{4}T_{2})$  relaxent d'abord vers le niveau  ${}^{2}E$ , la relaxation entre les niveaux  ${}^{2}E$  et  ${}^{4}T_{2}$ , ralentie par la petite barrière de potentiel, concerne environ 54 % des ions. Enfin, il existe aussi une probabilité de franchissement inverse de la barrière de potentiel, dont l'énergie caractéristique est  $E_{b}$ .

 $B({}^{4}T_{2}) \leftarrow {}^{2}E$ ,  $B({}^{4}T_{2}) \rightarrow {}^{2}E$  et  $B({}^{4}T_{2}) \rightarrow {}^{4}A_{2}$ ;  $\tau_{1}$  et  $\tau_{2}$  sont les temps de vie radiatifs des niveaux  ${}^{2}E$  et  $B({}^{4}T_{2})$ . Les conditions initiales sont  $n_{1} = n_{2} = 0$  à t = 0.

Les populations  $n_1$  et  $n_2$  au cours du temps, résultant de l'intégration du système (2.6), sont représentées à la figure 2.6, pour une impulsion de pompe de profil temporel super gaussien,  $g \sim \exp(-(\frac{t}{\Delta t})^4)$  et pour les paramètres du tableau 2.2.



TAB. 2.2 – Paramètres utilisés pour intégrer le système (2.6). L'évolution des populations  $n_1$  et  $n_2$  au cours du temps sont représentées à la figure 2.6.



FIG. 2.6 – Densités d'ions excités en fonction du temps, suite à l'absorption d'une impulsion de pompe de 100 ns, à 665 nm; respectivement sur le niveau <sup>2</sup>E (haut) et B(<sup>4</sup>T<sub>2</sub>) (bas). Sur les deux graphes, les densités d'ions ont été calculées selon le modèle donné par les équations (2.6) avec les paramètres du tableau 2.2 pour cinq valeurs du paramètre  $\kappa$ , décrivant le rapport des taux de pompage sur les niveaux <sup>2</sup>E et <sup>4</sup>T<sub>2</sub> (rappelons que le tableau 2.1 donne  $\kappa = 56\%$  pour un rayonnement de pompe à 665 nm). Par ailleurs, rappelons, que l'intensité de la luminescence est proportionnelle à la densité d'ions dans l'état excité B(<sup>4</sup>T<sub>2</sub>) (droite).

Comparons ce résultat théorique avec l'expérience : sur la figure 2.7, les signaux expérimentaux correspondant à la "montée" de la luminescence en fonction du temps ont été enregistrés pour différentes températures du cristal. Ces signaux correspondent à ceux représentés figure 2.10 pour étudier le temps de vie du niveau excité en fonction de la température à la section suivante. Il apparaît que seuls les signaux correspondant aux températures entre 120°C et 200°C ont suffisamment de points pour déduire le temps de montée avec une certaine fiabilité, cependant, ils donnent l'impression d'une dépendance du temps de montée avec la température. Sachant que celui-ci est lié au taux de transition non radiatif,  $W_d$ , entre les niveaux <sup>2</sup>E et <sup>4</sup>T<sub>2</sub>, nous avons extrait l'évolution du taux de transition avec la température. Celle-ci est représentée à la figure 2.8.

Cependant, d'une part, l'incertitude sur le taux de transition,  $W_d$ , est grande à cause de l'incertitude sur  $\kappa$ , le rapport de pompage des niveaux B( ${}^4T_2$ ) et  ${}^2E$  (dont le temps de montée de la luminescence dépend fortement, voir figure 2.6). D'autre part, des signaux enregistrés par hasard et représentés à la figure 2.9, semblent remettre en cause l'exclusion d'un temps de montée d'origine électronique. En effet, ces signaux correspondent à la lumière détectée par le photomultiplicateur suite aux impulsions de pompe quand celles-ci sont fortement diffusées par le cristal (elles sont incidentes au cristal très près de la surface depuis laquelle est détectée la luminescence). A la luminescence, s'ajoute un peu de pompe diffusée avec ceci d'intriguant que l'impulsion de pompe a une largeur apparente de 600 ns (peut-être dû au moyennage du signal sur un grand nombre d'impulsions). Ces deux éléments demandent de prendre la confirmation expérimentale quantitative du taux de transition B( ${}^4T_2$ )  $\leftarrow {}^2E$  avec beaucoup de prudence<sup>1</sup>.

#### 2.5.3 Mesure du temps de vie en fonction de la température

La décroissance de la luminescence émise par le cristal, au cours du temps, suite à une impulsions de pompe de 100 ns à été mesurée pour une température du cristal variant, par pas de 15 °C entre 20 °C et 200 °C, grâce au dispositif décrit à la figure 2.2. Quelques signaux sont donnés à la figure 2.10, correspondant aux températures de 20, 65, 110, 155 et 200 °C.

Le temps de vie de l'état excité a été obtenu par correspondance de la partie décroissante de chaque signal avec une fonction de type  $I(t) = I(t_0) \exp(-\frac{t-t_0}{\tau})$  où  $I(t_0)$  est l'intensité du signal en  $t_0$ , t est le temps et  $\tau$  est le temps de vie de l'état excité; et ce pour chaque température. Le temps de vie en fonction de la température est donné figure 2.11, ainsi que les résultats obtenus sur un montage expérimental indépendant, à Krasnodar, par l'équipe de V.A. Lebedev<sup>2</sup>.

La séparation des contributions radiative et non radiative au temps de vie du niveau excité, se base sur le principe que le temps de vie non radiatif est négligeable à basse température et ne devient prépondérant qu'à partir de la décroissance rapide observée autour de 370 K. Ainsi, la décroissance du temps de vie à basse tem-

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Certains diront, pourquoi dès lors en faire tout un paragraphe  $\dots$  allez voir ce que ça devient dans l'article [46]!

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>E.V. Stroganova, V.A. Lebedev, I.V. Voroshilov, Department of Physics, Kuban State University, Krasnodar, Russia


FIG. 2.7 – Croissance de la luminescence en fonction du temps, suite à l'absorption d'une impulsion de pompe à 665 nm de 100 ns. Ces signaux correspondent à un zoom sur la première microseconde des signaux représentés à la figure 2.10. Le temps de montée de la luminescence est de l'ordre de 300 ns, apparemment plus long que le temps de réponse de la chaîne de détection et que la largeur de l'impulsion de pompe, laissant croire que le taux de transition correspondant à la transition  $B({}^{4}T_{2}) \leftarrow {}^{2}E$  est faible à cause d'une petite barrière de potentiel (voir figure 2.6).



FIG. 2.8 – Taux de transition non radiatif  $B({}^{4}T_{2}) \leftarrow {}^{2}E$  en fonction de la température extrait des signaux représentés à la figure 2.7 pour un rapport de pompage,  $\kappa$  de l'ordre de 60%.



FIG. 2.9 – Lumière détectée par le photomultiplicateur en fonction du temps dans le cas d'une forte diffusion de la pompe, d'une faible diffusion et d'une très faible diffusion de la pompe. La diminution de la diffusion de la pompe est due à l'éloignement de la pompe de la surface (à 90°) par laquelle est détectée la luminescence. Ces signaux semblent remettre en cause l'exclusion d'un temps de montée d'origine électronique (peut-être dû au moyennage) parce que la largeur apparente de l'impulsion est de 600 ns. En l'absence de recherches supplémentaires, il semble donc que les conclusions quantitatives sur le taux de transition  $B({}^{4}T_{2}) \leftarrow {}^{2}E$  doivent être prises avec prudence.



FIG. 2.10 – Luminescence émise par le cristal en fonction du temps, suite à une impulsion de pompe de 100 ns. La température du cristal a été augmentée par pas de 15 °C entre 20 °C et 200 °C et les signaux représentés correspondent aux températures de 20, 65, 110, 155 et 200 °C. Ces signaux présentent un temps de montée inférieur à 1  $\mu$ s (voir figure 2.7) suivi d'une décroissance exponentielle d'autant plus rapide que la température est élevée.



FIG. 2.11 – Temps de vie du niveau excité  $B({}^{4}T_{2})$  du  $Cr^{3+}$  dans le cristal de CSB, en fonction de la température, extrait des signaux expérimentaux représentés à la figure 2.10 et obtenus, par ailleurs, indépendamment par le laboratoire de V.A. Lebedev, ainsi que le temps de vie du  $Cr^{3+}$  dans le cristal de LiSAF pour comparaison. Le temps de vie du  $Cr^{3+}$  dans le CSB présente deux types de décroissance : une décroissance lente à basse température, attribuable à la dépendance du temps de vie radiatif avec la température et une décroissance plus rapide, autour de 370 K, liée à la décroissance du temps de vie non radiatif avec la température (voir relations (2.1), (2.2) et (2.3)).

pérature est attribuée à la décroissance du temps de vie radiatif selon l'équation empirique  $\tau_r = \tau_{r0} \exp(-\alpha T)$ . Celle-ci est due à la dépendance en la température de la levée d'interdiction dynamique de la transition  ${}^{4}A_{2} \rightarrow {}^{4}T_{2}$ . Dès que la température augmente, par contre, le temps de vie répond à l'équation  $\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_r} + W_{nr}$ où  $W_{nr} = \omega_0 \exp(-E_g/kT)$  est la probabilité de désexcitation non radiative,  $\omega_0$  est le facteur de fréquence et  $E_g$  est l'énergie d'activation de la transition non radiative (voir figure 2.1), k est la constante de Boltzmann et T est la température absolue (voir équations (2.1), (2.2) et (2.3)). Les paramètres obtenus en appliquant le modèle de Mott aux résultats expérimentaux sont donnés au tableau 2.3 et la courbe optimisée correspondante est ajoutée à la figure 2.11.

$\tau_{r0}$ $\alpha$ $\omega_0$ $E_a$	= 66 = 1,3 10 <sup>-3</sup> = 50 10 <sup>6</sup> = 2050	$ \begin{array}{c} \mu s \\ K^{-1} \\ s^{-1} \\ cm^{-1} \end{array} $	temps de vie radiatif à 0 K paramètre de décroissance exponentielle du temps de vie ra- diatif en fonction de la température facteur de fréquence de la transition non radiative énergie d'activation de la transition non radiative égale à
$E_g$	= 2050	cm -	energie d'activation de la transition non radiative egale à l'énergie de la barrière de potentiel

TAB. 2.3 – Paramètres du modèle de Mott, ajustés sur les résultats expérimentaux représentés à la figure 2.11, obtenus au laboratoire et par l'équipe de Valéry Lébédev, avec qui nous avons collaboré.

Maintenant que nous avons les paramètres  $\omega_0$ ,  $E_g$ ,  $\tau_{r0}$  et  $\alpha$ , au moyen de l'équation (2.5), nous pouvons calculer le rendement quantique de la luminescence,

$$Q = \frac{W_r}{W_r + W_{nr}} = \frac{\frac{\exp(\alpha T)}{\tau_{r0}}}{\frac{\exp(\alpha T)}{\tau_{r0}} + \omega_0 \exp(-\frac{E_g}{kT})}$$
(2.7)

ou rapport entre la probabilité de transition radiative et la probabilité de désexcitation des ions  $Cr^{3+}$  du cristal. Le résultat de ce calcul est donné à la figure 2.12, ainsi que les temps de vie radiatif, non radiatif et total. Nous voyons, que le temps de vie total est proche du temps de vie radiatif à basse température et proche du temps de vie non radiatif à haute température. La transition apparaissant pour  $T = \frac{E_g}{k \ln(\omega_0 \tau_{r0})} = 365$  K; température pour laquelle la probabilité de transition non radiative est devenue égale à le probabilité de transition radiative à 0 K. Cette transition s'accompagne de la diminution rapide du temps de vie total et de l'efficacité quantique. Ainsi, à 365 K, l'efficacité quantique est tombée à 60 % (pas tout à fait 50 % par ce que la durée de vie radiative est passée de 66  $\mu$ s à 0 K à 45  $\mu$ s à 365 K).

#### 2.5.4 Remarques

Nous n'avons, à aucun moment, dans ce chapitre parlé de la polarisation de la luminescence Nous pouvons supposer que  $W_r = \frac{1}{\tau_r}$ , probabilité de transition radiative est une moyenne entre les probabilités de transition radiative parallèle et perpendiculaire à l'axe de symétrie du cristal :  $W_r = \frac{2W_{r\sigma}+W_{r\pi}}{3}$  où  $W_{r\sigma}$  et  $W_{r\pi}$  sont



FIG. 2.12 – Rendement quantique de luminescence en fonction de la température, ainsi que les temps de vie radiatif, non radiatif et total, en fonction de la température, obtenus, par calcul, à partir des paramètres déduits de l'expérience et montrés au tableau 2.3.

les probabilités de transition radiative par émission d'un photon de polarisation respectivement perpendiculaire et parallèle à l'axe du cristal.

### 2.6 Comparaisons

Etudions la durée de vie de l'ion  $Cr^{3+}$  excité dans différents borates respectivement  $Cr^{3+}$  :CSB ( $Cr^{3+}$  :(Ce,Gd)Sc<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub>),  $Cr^{3+}$  :SBO ( $Cr^{3+}$  :ScBO<sub>3</sub>) [25] et  $Cr^{3+}$  :LSB ( $Cr^{3+}$  :LaSc<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub>) [26]. Les durées de vie de l'ion  $Cr^{3+}$  excité, dans des matrices cristallines de la famille des borates, sont représentées sur la figure 2.13. Dans l'ordre SBO, LSB et CSB, la composition du cristal est de plus en plus complexe et les ions  $Cr^{3+}$  se substituent à des ions  $Sc^{3+}$  dans des sites octaédriques de plus en plus déformés (cf chapitre 1). Grâce à la baisse de la symétrie locale des ions  $Cr^{3+}$ , la levée statique de l'interdiction de la transition  ${}^{4}A_{2} \leftarrow {}^{4}T_{2}$  est plus forte et la durée de vie à basse température passe respectivement de 220  $\mu$ s à 100  $\mu$ s et 66  $\mu$ s (traduisant l'augmentation de la probabilité de désexcitation radiative).

Par ailleurs, on observe dans les trois cristaux, une diminution de la durée de vie radiative quand la température augmente (et ce avant que la probabilité de désexcitation non radiative devienne non négligeable). Cette diminution est due à la levée dynamique de l'interdiction de la transition radiative  ${}^{4}A_{2} \leftarrow {}^{4}T_{2}$  et le paramètre  $\alpha$ est du même ordre pour les trois cristaux, respectivement égal à 1,3 10<sup>-3</sup> K<sup>-1</sup>, 1,3 10<sup>-3</sup> K<sup>-1</sup> et 1,9 10<sup>-3</sup> K<sup>-1</sup>.

Le troisième paramètre comparé est l'énergie d'activation,  $E_{nr}$ , égal respectivement à 2100 cm<sup>-1</sup>, 650 cm<sup>-1</sup>, 2050 cm<sup>-1</sup>. Le cristal Cr<sup>3+</sup> :CSB présente un taux de radiation plus élevé que le Cr<sup>3+</sup> :SBO et l'extinction thermique apparaît à plus haute température dans le  $\mathrm{Cr}^{3+}$  : CSB que dans  $\mathrm{Cr}^{3+}$  : LSB.



FIG. 2.13 – Rendement quantique en fonction de la température de l'ion  $Cr^{3+}$  dans des borates,  $Cr^{3+}$  :SBO,  $Cr^{3+}$  :LSB et  $Cr^{3+}$  :CSB. La différence des durées de vie (à basse température) de l'ion  $Cr^{3+}$  excité dans les différentes matrices cristallines, trahit la baisse de la symétrie locale autour des ions  $Cr^{3+}$  qui augmente la levée statique de l'interdiction de la transition radiative. La baisse de la symétrie est la conséquence de l'augmentation de la complexité de la maille primitive du cristal par l'introduction d'ions différents dans la composition des cristaux entre le SBO et le LSB ou le CSB (plus complexe encore). Par ailleurs, les trois borates montrent une décroissance du même ordre du temps de vie radiatif à basse température, due à la levée dynamique de l'interdiction de la transition radiative (liée à la température d'extinction thermique) qui est un inconvénient majeur du  $Cr^{3+}$  :LSB, est plus élevée pour le  $Cr^{3+}$  :CSB.

Comparons les efficacités quantiques des borates, des colquiriites, de l'émeraude et de deux fluorides, dopés au  $Cr^{3+}$  qui sont représentées sur la figure 2.14.

Rappelons que l'efficacité quantique est donnée par le rapport entre le temps de vie total et le temps de vie radiatif, ou encore par le rapport entre la probabilité de transition radiative et la probabilité de transition totale (somme des probabilités de transition radiative et non radiative).

Rappelons également que les probabilités de transition radiative et non radiative sont données, dans le modèle de Mott, par



FIG. 2.14 – Temps de vie de l'ion  $Cr^{3+}$  excité en fonction de la température pour des borates ( $Cr^{3+}$  :CSB,  $Cr^{3+}$  : $ScBO_3$  et  $Cr^{3+}$  :LSB), l'émeraude ( $Cr^{3+}$  : $Be_3Al_2(SiO_3)_6$ ), des colquiriites ( $Cr^{3+}$  :LiSAF,  $Cr^{3+}$  :LiCAF,  $Cr^{3+}$  :Li-BAF) et deux autres fluorides ( $Cr^{3+}$  : $K_2NaScF_6$  et  $Cr^{3+}$  : $K_2NaGaF_6$ ). On observe que la température de transition pour laquelle la désexcitation radiative est supplantée par la désexcitation non radiative varie fortement dans chaque famille de cristaux (celle-ci dépendant de l'énergie de la barrière de potentiel,  $E_{nr}$ ). Par contre, concernant la pente de la transition, il semble que les fluorides soient systématiquement caractérisés par une variation plus rapide que les borates et l'émeraude (la pente est liée au facteur de fréquence,  $\omega_0$ ).

$$W_r(T) = \frac{1}{\tau_r(T)} = \frac{1}{\tau_{r0} \exp -\alpha T}$$

$$W_{nr}(T) = \omega_0 \exp(-\frac{E_{nr}}{kT})$$
(2.8)

où  $W_r(T)$  et  $W_{nr}(T)$  sont les probabilités de désexcitation radiative et non radiative;  $\tau_r(T)$  et  $\tau_{r0}$  sont les temps de vie radiatifs à température T et à 0 K;  $\alpha$  décrit la diminution du temps de vie radiatif due à la levée d'interdiction dynamique de la transition radiative;  $\omega_0$  est le facteur de fréquence;  $E_{nr}$  est l'énergie de la barrière de potentiel entre le niveau métastable émetteur et l'état de croisement des niveaux <sup>4</sup>A<sub>2</sub> et <sup>4</sup>T<sub>2</sub>; k est la constante de Boltzmann et T est la température en Kelvin.

Ainsi, sur la figure 2.14, la température à partir de laquelle les transitions non radiatives dominent, varie fortement dans chaque famille de cristaux, celle-ci étant liée à l'énergie de la barrière de potentiel,  $E_{nr}$ . Par contre, l'efficacité quantique chute plus rapidement pour les fluorides, dont les colquiriites, que pour les borates et l'émeraude, la pente étant liée au facteur de fréquence,  $\omega_0$ . Ces aspects sont aussi visibles au tableau 2.4

Cristal	CSB	ScBO3	LSB	émeraude	
$\omega_0,  \mu \mathrm{s}^{-1}$	50	25	1,2	$3,5 \ 10^3$	
$E_{nr},  {\rm cm}^{-1}$	2050	2100	650	6200	
ļ					
Cristal	LiSAF	LiCAF	LiBAF	$K_2NaScF_6$	$K_2NaGaF_6$
$\omega_0,  \mu s^{-1}$	$42  10^6$	$77 \ 10^{6}$	$0,44 \ 10^{6}$	12 10 <sup>6</sup>	53 10 <sup>6</sup>
$E_{nr},  {\rm cm}^{-1}$	5125	8532	2152	7270	9240

TAB. 2.4 – Tableau récapitulatif des paramètres dans le modèle de Mott (équations (2.8)) caractérisant la probabilité de transition non radiative pour les cristaux représentés à la figure 2.14.

Dans une vue plus complexe de la transition non radiative, on distingue trois processus. Le premier est le processus, activé par la température, de franchissement de la barrière de potentiel (qui donne le facteur  $\exp(-\frac{E_{nr}}{kT})$ ). Le deuxième processus concerne l'interaction de l'ion excité avec des vibrations de symétrie spécifique qui couplent les niveaux  ${}^{4}T_{2}$  et  ${}^{4}A_{2}$ . Le troisième processus est l'interaction de l'ion excité, sur le niveau  ${}^{4}A_{2}$ , avec le cristal, afin de le ramener à l'état fondamental par émission de phonons. Les deux derniers processus sont pris en compte par le facteur de fréquence,  $\omega_{0}$ .

Au sein de chaque famille, les variations du facteur de fréquence peuvent être attribuées à une variation d'énergie des phonons (due aux variations de masse des ions). Mais entre familles, il existe une différence de plusieurs ordre de grandeur (de 1 - 50  $\mu$ s<sup>-1</sup> pour les borates et de 1 - 100 10<sup>6</sup>  $\mu$ s<sup>-1</sup> pour les fluorides) et le faible facteur de fréquence des borates et de l'émeraude pourrait être attribué à une faible probabilité d'interaction des vibrations nécessaires au couplage des niveaux

 $^4\mathrm{A}_2$  \* et  $^4\mathrm{T}_2$  \*, avec des ions excités. Cette probabilité pour rait être faible à cause de l'existence de groupes covalants (bore - oxygène ou silicium - oxygène). Ceux-ci isolerai ent l'ion  $\mathrm{Cr}^{3+}$  des vibrations du cristal qui introduis ent le couplage entre les niveaux  $^4\mathrm{A}_2$  et  $^4\mathrm{T}_2$ , nécessaire aux transitions non radiatives.

# 2.7 Conclusion

Nous avons mesuré le temps de vie de l'ion  $Cr^{3+}$  excité dans le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB, en fonction de la température entre 100 K et 600 K. Nous l'avons caractérisé, dans le modèle de Mott, en termes de probabilités de transition radiative et non radiative, permettant de mettre en évidence l'efficacité quantique en fonction de la température.

Par comparaison avec les autres borates, la complexité de la composition du CSB, a permis d'augmenter la probabilité de désexcitation radiative tandis que la comparaison entre les borates met en évidence les qualité du  $Cr^{3+}$  :CSB en termes de probabilité de transition radiative et de résistance à l'extinction thermique.

Par ailleurs la comparaison entre borates et fluorides met en évidence une plus grande résistance des borates face à l'extinction thermique des propriétés d'émission. Il semble en effet que les groupes covalents qui entrent dans la composition des borates (ou des silicates) défavorisent les règles de sélections de la transition non radiative  ${}^{4}A_{2} * \leftrightarrow {}^{4}T_{2} *$ .

Ainsi, comme seuls l'émeraude, l'alexandrite et les colquiriites surpassent l'éfficacité du borate  $Cr^{3+}$  :SBO, les propriétés spectroscopiques et la résistance au "thermal quenching" du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB font de lui un concurrent potentiel des meilleurs cristaux lasers accordables dans le proche infrarouge.

.

# Chapitre 3

# Mesure du spectre d'absorption par les états excités

## 3.1 Première Introduction

Il existe au moins deux points de vue à propos de la mesure du spectre d'absorption par les états excités. Un point de vue spectroscopique et un point de vue laseriste. D'un point de vue spectroscopique, l'objectif est de trouver les concepts et modèles décrivant non seulement les niveaux d'énergie du  $Cr^{3+}$  (dopant d'un cristal) mais aussi les règles de sélection qui conditionnent l'intensité et la largeur des bandes d'absorption ou d'émission. Dans cet objectif, le spectre d'absorption par les états excités est une mesure complémentaire aux analyses spectrales décrites au chapitre 1.

D'un point de vue laseriste, à la limite, on s'en fout de comprendre tout ça, le cristal est vu comme un milieu amplificateur, le dopant est décrit par un modèle simple (à 2, 3, 4, ... niveaux suivant les cas) et par des paramètres; l'objectif est de comprendre l'intrication de ces paramètres avec les caractéristiques et l'efficacité du laser.

Dans le point de vue spectrosopique, dans cette thèse, nous ne parlerons que de deux spectres : le spectre d'absorption (ou spectre d'absorption par le niveau fondamental du  $Cr^{3+}$ , cf chapitre 1) et le spectre d'absorption par les états excités du  $Cr^{3+}$ , dont l'étude est rapportée dans ce chapitre. En fait, comme le nom l'indique, le spectre d'absorption par les états excités du  $Cr^{3+}$  (dans le CSB) se différencie du spectre d'absorption ("tout court") lorsque les transitions détectées "partent" non pas d'un  $Cr^{3+}$  sur le niveau d'énergie fondamental mais bien d'un  $Cr^{3+}$  excité.

Plus précisément, parmis les états excités, cette étude concerne le niveau excité métastable dont la désexcitation radiative émet la luminescence du cristal. Une certaine concentration du dopant est amenée sur ce niveau d'énergie par absorption d'un rayonnement "de pompage" dont la longueur d'onde est définie par le spectre d'absorption "tout court" (figure 1.7).

Dans le point de vue laseriste, le spectre d'absorption par les états excités entre dans le cadre de l'étude de l'amplification effective du cristal pompé (et des mécanismes de réduction responsables) ou de l'efficacité du pompage . On distingue deux cas : l'absorption par un ion excité d'un photon de pompe ou l'absorption par un ion excité d'un photon dans le domaine de longueur d'onde de la luminescence du cristal.

Dans le deuxième cas, auquel est consacré ce chapitre, le point de vue adopté est celui d'une compétition entre l'amplification et l'absorption du champ laser par interaction avec le cristal pompé, elle est traduite par la différence entre les probabilités d'émission stimulée et d'absorption par les états excités.

L'absorption par les états excités introduit dans le laser des pertes proportionnelles au taux de pompage et si elles sont supérieures au gain par émission stimulée, elles excluent définitivement tout effet laser. En pratique, certains cristaux n'ont aucun recouvrement entre le spectre d'absorption par les états excités et le spectre d'émission, pour d'autres, le recouvrement est faible ou partiel, et enfin, pour d'autres encore, le recouvrement total explique l'absence d'effet laser malgré la détection de luminescence.

L'absorption par les états excités du  $Cr^{3+}$  a été étudié dans de nombreuses matrices cristallines (LiCAF [27], LiSAF [41] [6], GSGG, GSAG et K<sub>2</sub>NaSCF<sub>6</sub> [2], YAB [48], Na<sub>3</sub>Ga<sub>2</sub>Li<sub>3</sub>F<sub>1</sub>2 [10] ainsi que l'ion  $Cr^{4+}$  dans la fosterite [54]. Des études ont également été réalisées pour d'autres ions, dans d'autres cristaux (V<sup>2+</sup> :MgF<sub>2</sub>, V<sup>2+</sup> :KMgF<sub>3</sub> [31], [36], Er<sup>3+</sup> :Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> [21], Mn<sup>5+</sup> :Sr<sub>5</sub>(VO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>F [18], Nd<sup>3+</sup> :YAG, YAP, YO, ... [16], [17], Ti<sup>3+</sup> :YAlO<sub>3</sub> [50]) ou des verres (Nd<sup>3+</sup> [32]). C'est sur base de ces références que nous avons développé le montage expérimental décrit dans ce chapitre.

### 3.2 Deuxième introduction

Sur un tout autre plan, par curiosité, évaluons ce concept sur le point de vue de la couleur du cristal.

La première couleur du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB est celle perçue sous un éclairage naturel : c'est alors un cristal transparent de couleur verte.

Nous pouvons associer cette perception au spectre d'absorption du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB qui montre deux bandes d'absorption respectivement dans le rouge et dans le bleu. Ainsi, la lumière blanche incidente sur le cristal, nous parvient avec une dominance verte.

Comme le cristal CSB, en l'absence du dopant,  $Cr^{3+}$ , est parfaitement transparent pour la lumière visible, les bandes d'absorption dans le rouge et le bleu sont associées aux excitations possibles du  $Cr^{3+}$  sur des niveaux d'énergie supérieurs.

Lorsque le cristal est pompé, à la lumière naturelle, s'ajoute la luminescence du cristal qui lui donne une nuance infrarouge. Si, placé dans le noir, le cristal était excité par absorption d'ultraviolet, il deviendrait comme une petite lampe infrarouge. C'est donc une deuxième couleur.

Mais quelle est la couleur du cristal lorsqu'il est soumis à une intense excitation ? Le pompage optique tend à dépeupler le niveau fondamental de l'ion chrome, en faveur des niveaux excités et à lui faire perdre sa couleur verte car les ions chrome sur le niveau fondamental, succeptibles d'absorber le rouge et le bleu sont de plus en plus rares. Mais il n'en devient pas pour autant parfaitement transparent car sa couleur prend le reflet des bandes d'absorption liées aux transitions des ions  $Cr^{3+}$ entre le niveau excité métastable et les niveaux excités d'énergie supérieure. En quelque sorte, ce chapitre s'interroge sur cette troisième couleur du cristal (mais plus particulièrement dans l'infrarouge proche).

## **3.3 Quelles prévisions peut-on faire ?**

# 3.3.1 Rappel sur les niveaux d'énergie de l'ion Cr<sup>3+</sup> dans le cristal de CSB

Le paragraphe ci-dessous, n'a pas la prétention d'être exhaustif concernant l'interprétation des niveaux d'énergie de l'ion  $Cr^{3+}$ dopant le cristal CSB (décrit plus complètement au chapitre 1). Il tente de rappeler la complexité de la modélisation dont on exploite allègrement les résultats, non seulement le diagramme des niveaux d'énergie mais aussi les règles de sélection et d'interdiction des transitions par absorption ou émission de rayonnement. En optique des lasers, il est d'usage de nommer les niveaux par ordre croissant d'énergie par les nombres 1, 2, 3, 4, ... Cependant, dans cette partie, il est impossible de se passer des notations "spectroscopiques" sans se priver de toute compréhension microscopique (suivant les concepts, nous avons tenté de n'utiliser que les notations indipensables).

Quand le cristal CSB ((Ce,Gd)Sc<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub>) est dopé par des ions Cr<sup>3+</sup>, chaque ion substitue un ion de scandium dans un octaèdre quasi parfait, au sommet duquel se trouvent des ions d'oxygène. Les trois électrons de la dernière couche incomplète de l'ion Cr<sup>3+</sup> sont sur 3 des 5 orbitales 3d. Dans une première interprétation, la présence des ions d'oxygène avec la symétrie de l'octaèdre lève la dégénérescence des configurations de l'ion Cr<sup>3+</sup> isolé et introduit ainsi un niveau fondamental,  $^{4}A_{2}$ , et un niveau excité métastable,  $^{4}T_{2}$ . De plus, la déformation de l'octaèdre des ligandes amène la levée de dégénérescence du niveau  $^{4}T_{2}$  en deux A( $^{4}T_{2}$ ) et un niveau B( $^{4}T_{2}$ ). Dans un modèle plus développé encore, l'ion Cr<sup>3+</sup> forme, avec les ions d'oxygène une impureté complexe et les orbitales électroniques sont complétées par des orbitales moléculaires dont les énergies s'agencent en un diagramme complexe (théorie du champ ligand [5]). A ceci, s'ajoute l'interaction des niveaux électroniques avec les vibrations de la molécule complexe. Cette interaction est modélisée par un potentiel parabolique en fonction de l'amplitude de vibration (ou nombre de phonons absorbés).

# 3.3.2 Prédictions préliminaires du spectre d'absorption par les états excités.

Le spectre d'absorption par l'état fondamental, mesuré au chapitre 1.7, présente deux larges bandes d'absorption centrées respectivement autour de 660 nm et 470



FIG. 3.1 – Diagramme des niveaux d'énergie vibroniques de l'ion  $Cr^{3+}$ , dans la matrice de CSB, en fonction de son amplitude de vibration dans la molécule complexe qu'il forme avec 6 ions d'oxygène (au sommet d'un octaèdre). Sont représentés le niveau vibronique fondamental  ${}^{4}A_{2}$  et les niveaux vibroniques excités  ${}^{4}T_{2}$ ,  ${}^{2}E$  et  ${}^{4}T_{1}$ . Nous avons ajouté la transition entre niveaux excités que l'on cherche à détecter par la mesure du spectre d'absorption par les états excités et le diagramme schématique utilisé en optique des lasers.

nm. L'inverse de ces longueurs d'onde correspond respectivement à l'énergie des transitions  ${}^{4}A_{2} \rightarrow {}^{4}T_{2}$  et  ${}^{4}A_{2} \rightarrow {}^{4}T_{1}$ . Supposons dans un premier temps que l'énergie de la transition entre niveaux excités,  ${}^{4}T_{2} \rightarrow {}^{4}T_{1}$ , est proche de la différence entre les énergies des transitions entre le niveau fondamental et les niveaux excités, par conséquent, une bande d'absorption par les états excités pourrait être observée autour de la longueur d'onde donnée par la relation

$$\lambda_{4_{T_{2}} \to 4_{T_{1}}} = \frac{1}{\frac{1}{\lambda_{4_{A_{2}} \to 4_{T_{1}}}} - \frac{1}{\lambda_{4_{A_{2}} \to 4_{T_{2}}}}} = \frac{1}{\frac{1}{470 \text{ nm}} - \frac{1}{650 \text{ nm}}} = 1600 \text{ nm}$$
(3.1)

Cependant, nous avons vu (chapitre 1) que le niveau  ${}^{4}T_{2}$  n'est pas dégénéré parce que la symétrie locale de l'ion  $Cr^{3+}$ n'est pas parfaitement octaédrique et qu'il est, en fait, composé de trois niveaux  $A1({}^{4}T_{2})$ ,  $A2({}^{4}T_{2})$  et  $B({}^{4}T_{2})$ . De plus si lorsque le cristal est pompé, ces trois niveaux sont peuplés, les populations des deux niveaux  $A1({}^{4}T_{2})$  et  $A2({}^{4}T_{2})$  relaxent rapidement vers le niveau  $B({}^{4}T_{2})$  d'énergie la plus basse (par émission de phonons). Par conséquent, l'énergie des états excités est plus faible que celle de la transition moyenne  ${}^{4}A_{2} \rightarrow {}^{4}T_{2}$  utilisée ci-dessus.

Par contre le spectre d'émission correspond à la transition radiative  ${}^{4}A_{2} \leftarrow B({}^{4}T_{2})$  et est plus proche de l'énergie des ions excités et plus précisément, l'énergie de la transition à zéro phonon obtenue sur le spectre d'émission (voir section 1.3.2).

Par le même calcul avec la nouvelle valeur de l'énergie du niveau excité  $B({}^{4}T_{2})$ , nous trouvons

$$\lambda_{B({}^{4}T_{2}) \to {}^{4}T_{1}} = \frac{1}{\frac{1}{\lambda_{4}_{A_{2}} \to {}^{4}T_{1}} - \frac{1}{\lambda_{4}_{A_{2}} \to B({}^{4}T_{2})}} = \frac{1}{\frac{1}{470 \text{ nm}} - \frac{1}{770 \text{ nm}}} = 1200 \text{ nm}$$
(3.2)

Il existe une représentation graphique simple de ce calcul, qui consiste à représenter le spectre d'absorption par l'état fondamental en fonction du nombre d'onde (proportionnel à l'énergie de transition) et d'en décaler l'axe des nombres d'onde, du nombre d'onde de la transition à zéro phonon mentionnée ci-dessus. Cette représentation graphique est donnée à la figure 3.2.

Ainsi, nous pouvons tenir compte de la levée de dégénérescence du niveau  ${}^{4}T_{1}$  sur la figure 3.2 et on observe trois transitions dans l'infrarouge dont une dans le domaine d'émission de l'état excité (qui, pour rappel, s'étend de 800 nm à 1200 nm). Voici justifié dans le point de vue laseriste, la mesure du spectre d'absorption par les états excités dans le proche infrarouge car suivant la position exacte de la bande d'absorption, de sa largeur et de son intensité, elle peut supprimer le gain laser effectif du cristal.

#### 3.3.3 Remarque

Nous avons développé les arguments qualitatifs permettant de craindre une bande d'absorption par l'état excité vers 1000 nm due à la transition  $B({}^{4}T_{2}) \rightarrow 3({}^{4}T_{1})$ .

Mais il nous faut préciser que, sur le diagramme des niveaux d'énergie de l'ion  $Cr^{3+}$ , le décentrage du niveau moyen  ${}^{4}T_{1}$  qui correspond à un effet Jhan-Teller [11] sur l'ion complexe excité, a été choisi au hasard parce qu'on ne le connait pas. Or, ce paramètre joue fortement sur l'énergie de la transition  $B({}^{4}T_{2}) \rightarrow {}^{4}T_{1}$ .



FIG. 3.2 – Prévision approximative du spectre d'aborption par les états excités, obtenue en décalant le spectre d'absorption par l'état fondamental de l'énergie (en nombre d'onde) des états excités. Celle-ci est suposée proche de l'énergie de la transition à zéro phonon,  ${}^{4}A_{2} \leftarrow B({}^{4}T_{2})$ , (voir section (1.3.2)) et qui vaut 13000 cm<sup>-1</sup>. A gauche de la figure, est représenté le spectre d'absorption par l'état fondamental en fonction du nombre d'onde, k, auquel est ajouté une échelle (non linéaire) de la longueur d'onde correspondante. Le décalage correspond, ici, à soustraire l'énergie du niveau excité de l'énergie des transitions de l'état fondamental vers les états excités. Le spectre d'absorption a été tourné de 90° par rapport à sa représentation habituelle pour comparer aisément l'énergie des transitions avec l'énergie des niveaux vibroniques sur le diagramme des niveaux d'énergie de l'ion  $Cr^{3+}$ , rappelé à droite de la figure. Le résultat de cette opération graphique justifie le soupçon d'une bande d'absorption par les états excités, correspondant à la transition  $B({}^{4}T_{2})$  $\rightarrow$  <sup>4</sup>T<sub>1</sub> à environ 1000 nm dans le domaine spectral d'émission, qui pourrait altérer l'efficacité des propriétés laser du cristal Cr<sup>3+</sup> :CSB.

Par ailleurs, nous avons négligé la dépendance des spectres en fonction de la polarisation du rayonnement absorbé par rapport à l'axe optique du cristal, alors qu'une dépendance de ce type a été observée concernant l'absorption par l'état fondamental pour le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB et concernant le spectre d'absorption par les états excités pour d'autres cristaux ([41], [2]).

Ainsi, la suite de ce chapitre, expose une expérience de mesure quantitative du spectre d'absorption par les états excités qui permet de déterminer le niveau de compétiton entre l'émission stimulée, facteur du gain dans un laser, et l'absorption par les états excités dans le proche infrarouge, entre 800 et 1200 nm.

# 3.4 Méthode de mesure de l'absorption par les états excités

La méthode que nous avons appliquée pour mesurer l'absorption par les états excités est appelée "expérience pompe-sonde". Elle consiste à superposer dans le cristal, un rayonnement de pompage, afin de peupler le niveau excité, et un rayonnement de sonde (de longueur d'onde accordable) dont on mesure la transmission. Nous avons utilisé une diode laser de puissance à 670 nm comme rayonnement de pompage et comme sonde, la lumière d'une lampe halogène blanche analysée, en sortie du cristal, par un monochromateur.

Comme nous souhaitons mesurer le spectre d'absorption par les états excités dans le domaine de longueur d'onde de la luminescence du cristal, on ne peut séparer l'amplification de la sonde (par émission stimulée) de son absorption par les états excités et il nous faut séparer la luminescence du cristal de la sonde transmise. De plus, comme, quelque soit le niveau de pompage, tous les ions ne sont pas excités, il est impossible d'éviter la superposition d'absorption par l'état fondamental et d'absorption par les états excités.

Justifiée par le modèle théorique exposé à la section suivante, l'expérience consiste, donc, non pas à mesurer directement le spectre d'absorption par les états excités, mais à l'extraire de la différence de transmission de la sonde par le cristal pompé et non pompé.

#### 3.4.1 Petit calcul

Pour faire le lien entre les propriétés qui nous intéressent et cette mesure, calculons l'intensité de sonde transmise par le cristal pompé et non pompé.

$$I_{p}(\lambda) = I_{0}(\lambda) T^{2} \exp\left(\left(-\sigma_{GSA}(\lambda) \left(N - N_{e}\right) + \sigma_{em}(\lambda) N_{e} - \sigma_{ESA}(\lambda) N_{e}\right) L\right)$$
(3.3)

$$I_u(\lambda) = I_0(\lambda) T^2 \exp\left(-\sigma_{GSA}(\lambda) N L\right)$$
(3.4)

où  $I_p(\lambda)$  et  $I_u(\lambda)$  sont les intensités de sonde transmises par le cristal respectivement pompé et non pompé;  $I_0(\lambda)$  est l'intensité incidente;  $\sigma_{GSA}(\lambda)$ ,  $\sigma_{em}(\lambda)$  et  $\sigma_{ESA}(\lambda)$  sont respectivement les sections efficaces d'absorption par l'état fondamental, d'émission stimulée et d'absorption par les états excités; N et  $N_e$  sont respectivement la densité d'ions  $Cr^{3+}$  totale et la densité d'ions  $Cr^{3+}$  sur le niveau excité; L est la longueur du cristal et T est la transmission des surfaces d'entrée de de sortie du cristal. Remarquons en passant que dans l'expression (3.3), dans le terme en  $\sigma_{GSA}$ , c'est la population effectivement dans l'état fondamental qui compte, égale à la différence entre la densité totale d'ions  $Cr^{3+}$  et la densité d'états excités.

En combinant (3.4) et (3.3), on obtient

$$\ln\left(1 + \frac{I_{p(\lambda)} - I_{u(\lambda)}}{I_{u(\lambda)}}\right) = N_e L\left(\sigma_{GSA(\lambda)} + \sigma_{em(\lambda)} - \sigma_{ESA(\lambda)}\right)$$
(3.5)

Nous verrons que dans notre cas,  $I_p(\lambda)$  est très proche de  $I_u(\lambda)$ , dès lors,  $I_p(\lambda) - I_u(\lambda) = \Delta I(\lambda)$  est très petit, et  $I_u(\lambda) \simeq I_p(\lambda) \simeq I(\lambda)$ . On a finalement

$$\frac{\Delta I(\lambda)}{I(\lambda)} \simeq \ln\left(1 + \frac{\Delta I(\lambda)}{I(\lambda)}\right) = N_e L\left(\sigma_{GSA}(\lambda) + \sigma_{em}(\lambda) - \sigma_{ESA}(\lambda)\right)$$
(3.6a)

ou, si on pose  $F = N_e L$  et  $\sigma_{eff}(\lambda) = \sigma_{em}(\lambda) - \sigma_{ESA}(\lambda)$ ,

$$\frac{\Delta I_{(\lambda)}}{I_{(\lambda)}} = F(\sigma_{GSA}(\lambda) + \sigma_{eff}(\lambda))$$
(3.6b)

Où F est le facteur entre la variation relative de l'intensité transmise et les sections efficaces du cristal et où  $\sigma_{eff}(\lambda)$  est la section efficace de gain effectif, décrivant par une simple différence, la compétition entre le gain et l'absorption par les états excités.

La relation (3.6a) met en évidence la superposition des trois phénomènes (respectivement l'absorption par le niveau fondamental, l'émission stimulée et l'absorption par les états excités) et relie la variation relative d'intensité de sonde transmise, par le cristal pompé et non pompé, aux propriétés du cristal grâce aux trois sections efficaces (respectivement  $\sigma_{GSA}(\lambda)$ ,  $\sigma_{em}(\lambda)$  et  $\sigma_{ESA}(\lambda)$ ). Rappellons, que chacune de ces trois sections efficaces dépend de la longueur d'onde sonde analysée.

Dans (3.6b),  $\sigma_{eff}$ , (=  $\sigma_{em}(\lambda) - \sigma_{ESA}(\lambda)$ ), est la section efficace de gain effectif : si elle est positive alors que  $\sigma_{GSA}(\lambda)$  est négligeable,  $\Delta I(\lambda)$  est positif et le faisceau sonde est bien amplifié par le cristal pompé (signature du gain du cristal). Si  $\sigma_{GSA}(\lambda)$ n'est pas négligeable, sa contribution apparaît comme un gain supplémentaire mais c'est un défaut d'absorption de l'état fondamental, dépeuplé par le pompage (ce phénomène est connu sous le mot anglais "bleaching").

Comment augmenter la variation relative de l'intensité de sonde transmise, à mesurer,  $\frac{\Delta I}{I}(\lambda)$ ? Comme les sections efficaces sont des propriétés du cristal et que sa longueur est limitée à quelques millimètres, le facteur variable de l'expérience est la densité d'ions excités,  $N_e$ , qui est, en première approximation, proportionnelle à la puissance de pompe absorbée par le cristal et inversément proportionnelle au carré du diamètre du faisceau de pompe. Autrement dit, plus la pompe est puissante et

focalisée plus le signal,  $\Delta I_{(\lambda)}/I_{(\lambda)}$  sera élevé.

Comment connaître F, le facteur d'échelle entre la variation relative d'intensité de sonde transmise et les sections efficaces du cristal? F est lié à la longueur du cristal et à la densité d'ions excités, cependant, un calcul précis exige qu'on tienne compte du profil transverse de la pompe, de son absorption (en cours de propagation), de la diffraction du faisceau dans le cristal et de l'effet de la température sur la densité d'ions excités (cf "thermal quenching", chapitre 2).

Il est possible d'éviter ce calcul grâce à une mesure expérimentale. En effet, sur tout le domaine de longueur d'onde où l'absorption par les états excités est négligeable,  $\Delta I/I$  est proportionnel à la somme de l'absorption par l'état fondamental et l'émission stimulée que nous avons mesurée au chapitre 1 par une méthode indépendante. Nous pouvons, en réalisant l'expérience "pompe-sonde" sur ce domaine de longueur d'onde, estimer le facteur d'échelle et l'appliquer au domaine de longueur d'onde où l'absorption par les états excités n'est plus négligeable.

#### 3.4.2 Quel est l'ordre de grandeur du gain apparent à mesurer ?

Pour cette estimation nous moyennerons la puissance de pompe absorbée sur un volume de cristal cylindrique de rayon  $\omega$  et de longueur L. Ces hypothèses nous donnant un ordre de grandeur pour la densité d'ions excités, nous prendrons le maximum de la section efficace d'émission stimulée comme valeur de la section efficace effective. Les paramètres pertinents sont donnés par le tableau 3.1.

$$N_e \simeq \frac{A P_p}{h \nu_p} \frac{\tau}{\pi \omega^2 L} \simeq 3,3 \, 10^{17} \, \mathrm{cm}^{-3}$$
 (3.7)

$$\frac{\Delta I}{I} = G \simeq \exp(\sigma_{em} N_e L) \simeq 0, 2\%$$
(3.8)

$P_p$	= 0,5	W	puissance de pompe	
$\nu_p$	$= c/\lambda_p = 445$	THz	fréquence optique de la pompe	
ω	= 0,1	mm	rayon transverse de la pompe	
P <sub>s</sub>	= 0,5	mW	puissance de sonde	
$\nu_s$	$= c/\lambda_s = 333$	THz	fréquence optique de la sonde	
ω	= 0,1	mm	rayon transverse de la sonde	
Α	= 0.8		coefficient d'absorption de la pompe	
au	= 10	$\mu s$	temps de vie du niveau excité	
L	= 5	mm	longueur du cristal	
$\sigma_{em}$	$= 3  10^{-20}$	$cm^{-2}$	section efficace d'émission stimulée	
h	$= 6,62610^{-34}$	$\mathbf{Js}$	constante de Planck	

TAB. 3.1 – Paramètres de la pompe, de la sonde et du cristal pour l'estimation de  $N_e$  (3.7),  $\frac{\Delta I}{I}$  (3.8) et  $P_{sat}$  (3.9).

L'équation 3.7 comprend deux facteurs : le premier exprime le nombre de photons absorbés par seconde et le deuxième l'efficacité en termes de temps de vie moyen et de volume effectivement pompé. Par ailleurs, la concentration totale d'ions  $Cr^{3+}$  est de 0,51  $10^{20}$  cm<sup>-3</sup>, ce qui implique que moins de 1% des ions sont excités et indique que le pompage est loin de la saturation.

De plus la puissance de sonde est loin de la puissance de saturation du gain qui s'interprète comme la puissance pour laquelle le gain est réduit de moitié et vaut :

$$P_{sat} \simeq I_{sat} \,\pi w^2 \simeq \frac{h\nu_s}{\sigma_{em} \,\tau} \,\pi w^2 \simeq 25 \,mW \tag{3.9}$$

Où  $P_{sat}$  et  $I_{sat}$  sont respectivement la puissance et l'intensité de saturation dans le cristal.

Mais le plus contraignant dans tout ça, c'est la petitesse du gain apparent à mesurer :  $G\simeq 0,2\%$  ...

#### **3.4.3** Comment mesurer le gain apparent, $\Delta I/I$ ?

Une technique de mesure de spectres d'absorption par les états excités, permet de mesurer un gain très faible, c'est la technique pompe-sonde avec double modulation et double détection synchrone. Elle est décrite en [38] et [21] où sont reportées des mesures de  $\sigma_{ESA}$  sur le domaine de luminescence : avec deux choppers, on module l'intensité de la sonde à une fréquence de l'ordre de 1,5 kHz et l'intensité de la pompe à une fréquence de l'ordre de 23 Hz, avant de les envoyer dans le cristal. Voyons comment mesurer le gain apparent grâce à cette double modulation. Rappellons que nous cherchons à mesurer la différence entre  $I_p$ , l'intensité de sonde transmise par le cristal pompé et  $I_u$ , l'intensité de la sonde transmise par le cristal non pompé (voir section (3.4.1)).

A la sortie du cristal la partie transmise de la pompe est éliminée grâce à un filtre tandis que la sonde et la luminescence sont injectées dans le monochromateur. La puissance de sonde après analyse du monochromateur est détectée par une photodiode de bande passante supérieure aux fréquences de modulation.

Un signal simulé est représenté à la figure 3.3; on y distingue la sonde modulée à haute fréquence et la luminescence simultanée à la pompe.

Les deux détections synchrones démodulent le signal en deux étapes représentées à la figure 3.4. Premièrement, la première détection synchrone, synchronisée sur la sonde, intégre le signal sur une dizaine de millisecondes. Le signal de sortie de cette détection synchrone est proportionnel à l'intensité de la sonde tandis que la luminescence et toute lumière parasite sont filtrées.

Deuxièmement, le signal de sortie de la première détection synchrone est mis en entrée de la deuxième détection synchrone. Ainsi, la légère variation du signal calculé par la première détection synchrone pendant le temps de pompage par rapport au temps de non pompage est obtenue en sortie de la deuxième détection synchrone, synchronisée sur la fréquence de modulation de la pompe, après intégration sur un temps de l'ordre de la seconde.

Pour mettre en évidence à la fois les temps longs et courts, l'échelle de temps sur la figure 3.4 est logarithmique et limitée à 500 ms, par conséquent, le transi-



FIG. 3.3 – Simulation du signal en fonction du temps détecté par une photodiode placée à la sortie du monochromateur, avec application la technique de double modulation de la pompe (basse fréquente, 23 Hz) et la sonde (haute fréquence, 1,5 kHz) avant de les injecter dans le cristal. Le signal détecté par la photodiode est une superposition de la sonde et de la luminescence qui synchrone à la pompe, est modulée à basse fréquence. Grâce à la modulation différente de la sonde et la luminescence détectée, nous allons pouvoir séparer les deux composantes et mesurer le gain apparent,  $\frac{\Delta I}{I}$ , à l'aide de deux détections synchrones.

toire du signal en sortie de la deuxième détection synchrone, qui n'atteint sa valeur stationnaire qu'après quelques secondes, n'est pas complètement représenté.

Autrement dit, la première détection synchrone donne alternativement  $I_p$  et  $I_u$  ( $\simeq I$ ), et filtre la luminescence, tandis que la deuxième détection synchrone mesure  $\Delta I$ . Il reste à faire le rapport  $\Delta I/I$ . L'avantage est que, non seulement nous avons éliminé le problème de la luminescence, mais qu'en jouant sur le temps d'intégration de la deuxième détection synchrone, on peut espérer mesurer le très faible gain.



FIG. 3.4 – Double étape de démodulation du signal détecté. Le signal détecté est mis en entrée de la première détection synchrone (synchronisée avec le signal de modulation, haute fréquence, de la sonde). Après intégration sur un temps de l'ordre de 10 ms, le signal de sortie est proportionnel à l'intensité de la sonde transmise respectivement par le cristal pompé,  $I_p$  (pendant la demi-période de pompage) et le cristal non pompé,  $I_u$  (pendant la demi-période d'extinction de la pompe). Ce signal est mis en entrée de la deuxième détection synchrone (synchronisée cette fois sur le signal de modulation, basse fréquence, de la pompe). Après un temps d'intégration de l'ordre de 500 ms, le deuxième signal de sortie est maintenant proportionnel à la variation d'intensité transmise ( $\Delta I$ ). Les deux signaux,  $I_p \simeq I_p$  et  $\Delta I$  sont enregistrés par l'ordinateur qui effectue également le rapport  $\frac{\Delta I}{I}$  égal au gain apparent. L'avantage de cette technique, outre celui d'éliminer la luminescence, est de réaliser des mesures très sensibles grâce aux intégrations effectuées par les détections synchrones.

#### **3.4.4** Montage expérimental.

Le schéma de l'expérience est représenté à la figure 3.5. Nous avons d'une part la diode de pompe de 2,3 W à 660 nm modulée par un obturateur mécanique (synchronisé sur un signal à 23 Hz) et la sonde constituée par une lampe halogène puissante, modulée par un chopper à 1,5 kHz.

Ces deux faisceaux sont injectés grâce à un miroir dichroïque dans une fibre multimode de diamètre égal à 115  $\mu$ m. En sortie de fibre, une lentille (de distance focale égale à 4,5 mm) est ajustée à une fois et demi sa distance focale afin de focaliser "le mélange" dans le cristal sur un diamètre de 230  $\mu$ m.

En sortie du cristal, outre un filtre (RG715) pour éliminer le reste de pompe transmise, un polariseur est placé avant le monochromateur afin de permettre aussi une analyse de la polarisation.

Une photodiode détecte la lumière séparée par le monochromateur et son signal est analysé par les deux détections synchrones comme décrit ci-dessus, leurs signaux de sortie étant enregistrés et traités par l'ordinateur qui, entre chaque mesure, pilote également le monochromateur.

Entre deux expériences, on tourne le cristal de 90 degrés pour analyser l'autre polarisation.

L'originalité de cette expérience consiste à réaliser un recouvrement optimal de la pompe et la sonde dans le cristal grâce à l'injection préalable des deux faisceaux dans une fibre multimode au lieu d'utiliser deux diaphragmes de part et d'autre du cristal (voir figure 3.6). Outre la plus grande uniformité du gain dans le cristal, ce montage a montré son intérêt dans la réduction de certains effets thermiques.

Pour être complète la mesure du spectre d'absorption par les états excités devrait s'étendre sur tout le visible et le proche infrarouge. Cependant, notre dispositif en l'état est limité entre 775 nm et 1200 nm à cause respectivement de la coupure du spectre de la sonde par le miroir dichroïque (injectant la pompe et la sonde dans la fibre multimode) et du spectre d'émission de la lampe halogène. Par ailleurs, en ce qui concerne le spectre visible au delà de la caractéristique de réflection du miroir dichroïque (longueur d'onde inférieure à 600 nm), le détecteur utilisé n'y est pas sensible.

Certaines des expériences rapportées ci-dessous ont été réalisée avec une lampe halogène moins puissante mais dont le spectre s'étend jusqu'à 1700 nm.

Avant de présenter les résultats obtenus, nous devons aborder trois points, à savoir :

- les effets thermiques dus à l'absorption de la pompe par le cristal et l'impact sur ses propriétés et les mesures

- la réserve dynamique des détections synchrones, concernant plus largement, les aspects électroniques du traitement du signal

- la biréfringence du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB ou le choix de polarisation de la sonde et de la conséquence sur l'observation des propriétés du cristal



FIG. 3.5 – Montage expérimental de mesure de l'absorption par les états excités sur le domaine spectral de la luminescence du cristal Cr<sup>3+</sup> :CSB. Il s'agit d'une expérience "pompe-sonde" complétée par la technique de double modulation de la pompe et de la sonde. L'expérience consiste à mesurer la différence relative de l'intensité de sonde transmise par le cristal alternativement pompé et non pompé, en fonction de la longueur d'onde et ce, pour les deux polarisations de la sonde, respectivement parallèle et perpendiculaire à l'axe de symétrie du cristal. L'excitation d'une densité d'ions  $Cr^{3+}$  dans le cristal est obtenue par absorption du rayonnement d'une diode laser de 2,3 W à 660 nm, modulée à 23 Hz grâce à un premier chopper. La sonde est une lampe halogène émettant également dans l'infrarouge et modulée à 1,5 kHz par un deuxième chopper. La pompe et la sonde, préalablement, spatialement superposées par injection dans une fibre multimode, sont focalisées dans le cristal Cr<sup>3+</sup> :CSB. L'intensité transmise, filtrée du reste de pompe transmise, est analysée par le polariseur et le monochromateur. Le gain apparent est mesuré par le double étage de démodulation et enregistré par l'ordinateur qui pilote également le monochromateur.



FIG. 3.6 – Photo du montage réalisé pour assurer un recouvrement optimal de la pompe et de la sonde dans le cristal, par injection préalable des deux faisceaux dans une fibre multimode. Ce dispositif ne permet pas de s'affranchir de la limite imposée par le miroir dichroïque qui coupe une partie de la sonde (ici, pour les longueurs d'onde inférieures à 775 nm) mais permet d'éviter l'essentiel, mais non moins délicat, alignement de la sonde sur la pompe qui, dans un premier dispositif, était réalisé avec deux diaphragmes placés de part et d'autre du cristal.

#### **3.5** Effets thermiques

Section (3.4.3), nous avons montré comment la double modulation de la sonde et la pompe permet de mesurer la différence d'intensité de sonde transmise par le cristal pompé et non pompé.

Si le dispositif de double modulation et double détection synchrone est particulièrement sensible, il ne permet pas de distinguer les effets d'absorption et d'émission stimulée dans le cristal des effets parasites, synchrones à la pompe, agissant sur la transmission de la sonde par le dispositif et ce, pour tout effet aussi petit qu'un dixième de pourcent.

Qu'en est-il des effets thermiques?

Le faisceau de pompe est intense ( $\simeq 1W$  dans le cristal) et absorbé à plus de 75 % sur 5mm, est-on sûr que la chaleur déposée dans le cristal lors de l'absorption n'a pas d'effet supérieur au dixième de pourcent sur la transmission de la sonde?

Les premiers effets thermiques non négligeables de la pompe sur la sonde ont été observés dans une configuration un peu différente que ce dont nous avons parlé jusqu'à présent : dans un premier temps, nous avions utilisé, comme pompe, le rayonnement d'un laser "Verdi" émettant 15 W à 532 nm. Cette source étant au moins 10 fois plus puissante, on pouvait espérer que malgré l'absorption plus faible du cristal à cette longueur d'onde (voir figure 1.4), on obtiendrait une densité d'ions excités supérieure. Avantage auquel on peut ajouter le fait que le miroir dichroïque à 532 nm est transparent dans le rouge et le proche infrarouge (permettant la mesure du spectre d'absorption par les états excités dans un domaine plus étendu). Par contre, la pompe n'étant qu'à 10 % absorbée, le filtre, ajouté en sortie du cristal, absorbe beaucoup plus de puissance.

Pour le reste, le dispositif est le même que celui représenté à la figure 3.5.

L'intensité de la sonde, transmise par le cristal (obtenue en sortie de la première détection synchrone), est représentée en fonction du temps à la figure 3.7. Constatant que l'évolution temporelle de la sonde transmise est qualitativement inchangée malgré le retrait du cristal mais qu'elle disparaît après retrait du filtre absorbant la pompe transmise, nous supposons qu'il s'agit de l'influence, sur la transmission du filtre, de la variation locale de sa température, lors de l'absorption de la pompe.

La figure 3.7, montre deux enregistrements, pour deux rapports cycliques différents du temps de pompage (20 % et 80 %), tous paramètres par ailleurs égaux. La différence entre les deux rapports cycliques est complétée par les signaux proportionnels à la luminescence enregistrés pour les mêmes paramètres.

On constate que l'intensité moyenne transmise dépend du rapport cyclique que nous supposons proportionnel à l'apport moyen de chaleur dans le filtre et donc à sa température moyenne. Cependant, nous n'avons pas déterminé le mécanisme exact qui affecte la transmission de la sonde par le dispositif expérimental.

Cet effet, en soit, est instructif sur les effets thermiques possibles, mais la variation stationnaire de la transmission n'est pas génante dans l'expérience. Par contre, on observe aussi un effet transitoire de l'ordre de 1% synchrone avec la pompe : juste après l'enclenchement de la pompe, l'intensité de sonde transmise diminue très lentement par rapport au temps d'intégration de la première détection synchrone



FIG. 3.7 - (a) Intensité de la sonde transmise par le montage sans le cristal (obtenue par la première démodulation) en fonction du temps, pour deux rapports cycliques du temps de pompage (20 % et 80 %) du laser "Verdi". (b) détection de la luminescence, correspondant aux deux expériences du (a), en fonction du temps. La luminescence permet de détecter l'enclenchement de la pompe et de constater que quasi instantanément, l'intensité de la sonde diminue lentement. On peut également constater qu'un rapport cyclique élevé (qui augmente la chaleur déposée dans le filtre et donc sa température) diminue l'intensité moyenne de la sonde. Si la variation stationnaire de l'intensité n'exclut pas l'expérience, la variation de transmission de la sonde, synchrone avec la pompe, est de l'ordre de 1% et masque donc le gain apparent du cristal (de l'ordre de 0,2 %).

( $\simeq 10$  ms). Cet effet là, l'expérience ne permet pas a priori de le séparer des effets propres au cristal et pour cette raison, nous avons écarté le choix du pompage avec ce laser pour revenir au pompage par diode laser.

#### **3.5.1** Effets thermiques dans un filtre coloré

Au paragraphe précédent, nous avons observé l'effet thermique désavantageux d'une pompe peu absorbée par le cristal et absorbée ultérieurement par un filtre. Le choix d'une diode de pompe de 2,3W @ 660nm absorbée à 80% par le cristal permet de s'affranchir de l'effet sur le filtre. Et pourtant, les premiers spectres observés montrent un terme de variation de la transmission de la sonde indépendant de la longueur d'onde et cela jusqu'à 1700 nm. Afin de séparer les effets thermiques des effets d'amplification, nous avons remplacé le cristal par un milieu passif, un des filtres colorés que nous utilisons justement pour absorber les 20% de pompe restant après le cristal. Il s'agit de deux filtres RG715 et RG780.

Puisqu' il n'y a pas de gain possible sur la sonde, nous avons considéré à nouveau que la pompe élève localement la température du filtre et en modifie la caractéristique de transmission. Les courbes relevées en plaçant successivement les filtres RG715 et RG780 à la place du cristal, c'est-à-dire au point de focalisation des faisceaux de pompe et de sonde, sont représentées à la figure 3.8. A ces deux courbes nous avons ajouté l'expérience sans cristal avec le filtre RG715 placé à sa place normale où le faisceau de pompe n'est pas focalisé (dans ce cas, les effets thermiques sont considérablement réduits).

Nous voyons qu'il y a un effet apparent uniquement quand le filtre est placé au point de focalisation des faisceaux de pompe et de sonde, probablement parce que c'est la configuration où les gradients thermiques sont les plus intenses. Qui plus est cet effet semble être composé de deux termes : un terme à variation lente en fonction de la longueur d'onde de l'ordre de 4 % et un terme qui augmente rapidement autour de la longueur d'onde de coupure du filtre (780 nm et 715 nm suivant le filtre) et atteint une variation de la transmission de 15 % à 800 nm pour le filtre RG780.

Comment faire un lien avec ce que nous connaissons sur les propriétés de ces filtres ? La fonction de transmission du filtre RG780 à température ambiante est donnée par le constructeur dans son catalogue commercial ainsi que le coefficient de dérive thermique de la longueur d'onde à mi-hauteur de la fonction de transmission,  $\Delta\lambda/\Delta T = 0, 22 \text{ nm/°C}$ . Ces éléments nous permettent de calculer la caractéristique de transmission pour une élévation de température de 10 °C par exemple et les deux courbes sont représentées à la figure 3.8. Nous pouvons voir que la dérive thermique de la longueur d'onde à mi-hauteur pour une variation uniforme de 4 °C explique en partie la variation rapide autour de la longueur d'onde de coupure mais n'explique pas le "palier" de 4 % que nous voyons aux longueurs d'onde plus élevées. L'hypothèse d'une lentille thermique transitoire pourrait par contre expliquer cet effet (un développement plus avancé de ce concept est présenté dans le cas du cristal à la section (3.5.2)). Cette expérience réalisée sur un milieu sans gain a permis de montrer qu'un effet thermique transitoire dû à la diode de pompe peut influencer la



FIG. 3.8 - (a) Expérience pompe sonde réalisée sur deux filtres colorés permettant de mettre en évidence des effets thermiques liés à l'absorption de la pompe focalisée dans le milieu très absorbant. Ajouté à cela, l'expérience réalisée sans cristal pour laquelle la pompe est absorbée par le filtre RG715 placé cette fois après le point de focalisation de la pompe, mettant en évidence que ces effets thermiques n'apparaissent plus quand la pompe non focalisée dans le milieu absorbant. Nous avons également ajouté, le résultat du calcul de la variation de transmission relative du filtre RG780 due à la dérive thermique de la longueur d'onde à mi-hauteur, obtenue pour une augmentation uniforme de 4 °C. Ainsi, une petite variation de température de 4 °C implique dans certaines conditions une variation mesurable de la transmission relative du filtre. Cette expérience montre aussi qu'un palier lentement variable d'environ 4 % peut-être attribué à un effet thermique transitoire dans le filtre (peut-être une lentille thermique).

(b) Caractéristique de transmission du filtre RG780 à température ambiante et pour une élévation de température de 10 °C. Celle-ci est obtenue par simple translation de la courbe à température ambiante, d'une longueur d'onde de translation égale à la dérive thermique de la longueur d'onde à mihauteur multipliée par la variation de température (ici, de 10 °C). A partir de ces deux courbes, nous avons calculé  $\frac{\Delta I}{I} = \frac{\Delta T}{T} = \frac{T(t_a+10^\circ C)-T(t_a)}{T(t_a)}$ , où  $\frac{\Delta T}{T}$ est la variation de transmission relative,  $t_a$  est la température ambiante. Le même calcul réalisé cette fois pour une élévation de température de 4°C entre 750 nm et 900 nm a été représenté au (a). transmission de la sonde. En conclusion, il est possible que certains effets thermiques parasites soient inévitables lors de l'expérience sur le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB. L'hypothèse d'une lentille thermique transitoire et synchronisée sur la pompe n'est pas à exclure sachant, qu'étant peu sensible à la longueur d'onde, elle apparaît dans l'expérience comme un palier quasi constant en fonction de la longueur d'onde.

#### 3.5.2 Effets thermiques sur le cristal

Afin d'avoir une idée concernant la distribution de température dans le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB lors de l'expérience pompe sonde, nous avons réalisé quelques simulations que nous présentons dans cette section, au moyen du logiciel "Pedease" (voir 6.3.2). Pour cela, nous considérons que la source de chaleur est proportionnelle à la puissance de pompe absorbée<sup>1</sup> mais, ne disposant pas de la conductibilité thermique du cristal CSB, nous avons pris celle du LiSAF.

Dans un premier temps, comparons le cas du cristal maintenu entre deux disques d'aluminium percés et le cas du cristal suspendu dans l'air ambiant. Ces deux simulations (dont les résultats sont présentés à la figure 3.9), ont été réalisées pour les conditions proches de l'expérience pompe sonde dont les paramètres sont donnés au tableau 3.2.

$\begin{array}{c} T_{air} \\ P_p \\ w \\ A \\ L \end{array}$	= 25 = 0,832 = 0,075 = 80 = 5	°C W mm %	température de l'air puissance de pompe rayon d'étranglement du faisceau de pompe absorption de la pompe par le cristal longueur du cristal
${R \atop \gamma}$	= 3 = 50	mm %	rayon moyen du cristal pourcentage de la puissance de pompe convertie en
k	$= \frac{0,003}{1 + \frac{t - 298K}{298K}}$	W/mm/K	conductibilité thermique du LiSAF où t est la tempé- rature en kelvin

TAB. 3.2 – Paramètres utilisés pour réaliser les simulations présentées aux figures 3.9, 3.12 et 3.11.

Nous constatons que la simple présence du contact thermique avec deux pièces d'aluminium réduit la température maximum de plus de 80 degrés (les températures maximales dans le cristal étant respectivement de  $53^{\circ}$ C et  $135^{\circ}$ C). Ceci est une information qui a son importance si nous avons à l'esprit que le gain du cristal dépend de la température. En effet, au chapitre 2, nous avons obtenu le rendement quantique en fonction de la température, qui décrit le rapport entre les probabilités de désexcitation radiative (processus à la base du gain) et non radiative (par émission de phonons ou chaleur), des ions Cr<sup>3+</sup> excités. Cette caractéristique est rappelée à la figure 3.10 où nous avons également reporté les températures maximales calculées ci-dessus (cristal en contact ou isolé de son support en aluminium). C'est ainsi

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>cette hypothèse n'est qu'une approximation étant donné que le "thermal quenching" exposé au chapitre 2 démontre au contraire que la probabilité de désexcitations non radiatives (par émission de phonons, donc de chaleur) augmente avec la température. De plus, cette hypothèse néglige le processus de reconversion Auger qui ajoute un terme à la source de chaleur mais dont nous ne connaissons pas l'ordre de grandeur dans le  $Cr^{3+}$  :CSB. [13]



FIG. 3.9 - Courbes iso température, en coordonnées cylindriques (R.Z), dans le cristal pompé par diode laser (avec la conductibilité thermique du LiSAF). (a) cristal maintenu entre deux disques d'aluminium percés (2 mm de diamètre). Au coeur du cristal, la température s'élève à 53 °C tandis que sur les faces avant et arrière, le contact thermique avec les disques d'aluminium percés (rayon = 1 mm) maintient la température proche de l'air ambiant (25 °C), ce phénomène est très visible sur la face avant du cristal où sur la surface du cristal en contact avec la pièce d'aluminium, on constate l'absence de gradient thermique radial et une température minimum uniforme. (b) Cristal suspendu dans l'air (proche du cas du cristal collé par un ruban adhésif double face). Dans ce cas, le refroidissement est dû à la convection de l'air sur la surface du cristal. Ce processus n'est plus suffisant pour maintenir ne fusse qu'une partie du cristal à température ambiante et la température du cristal subit une élévation quasi uniforme de 100 °C par rapport au cas (a). En effet, la température minimum n'est plus 28 °C mais bien 101 °C et la température maximum atteint 135 °C, au coeur du cristal. Cependant, la variation moyenne de la température est à peine plus élevée qu'au cas précédent.

qu'on voit qu'au coeur du cristal, là où le gain est sensé être le plus fort, le rendement quantique chute de 83% à 41% réduisant le gain de moitié. Ajoutons qu'un rendement quantique faible augmente le taux d'énergie convertie en chaleur ce qui tend à accentuer l'élévation de température et la chute du gain.



FIG. 3.10 – Rendement quantique de la transition radiative du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB en fonction de la température. Le rendement quantique étant un facteur direct dans le calcul du gain, cette figure nous permet d'argumenter l'importance d'un bon refroidissement du cristal. En effet, pour les cas du  $Cr^{3+}$  :CSB maintenu entre deux disques d'aluminium percés et isolé de ces disques, nous avons obtenu des températures maximales au coeur du cristal de respectivement 53 °C et 135 °C. Les rendements quantiques correspondant sont estimés, sur la figure, à respectivement 83 % et 41 % impliquant une chute du gain de 50 % si le cristal est isolé thermiquement de son support.

Les simulations montrées ci-dessus ont été obtenues pour une pompe de profil transverse gaussien. En réalité, le rayonnement de 6 diodes lasers est injecté dans une fibre multimode et, en sortie de celle-ci, une lentille focalise le faisceau dans le cristal. Le faisceau est donc composé de modes d'ordre élevé et son profil en intensité est supergaussien (décroissance de l'intensité plus abrupte sur les "bords" du faisceau). Comme nous ignorons les relations de phase entre les modes en sortie de fibres, nous ne pouvons ni simuler leur propagation exacte jusqu'au cristal, ni reconstruire le profil de la pompe dans le cristal (qui n'est certainement pas gaussien, [14] [4]). Cependant, nous pouvons vérifier que le profil de la pompe affecte peu le profil de température dans le cristal en observant les simulations pour les profils de pompe suivants :

$$I_{\text{gaussien}} = \frac{2 P_p}{\pi w^2} \exp(-2(r/w)^2)$$

$$I_{\text{supergaussien}} = \frac{\alpha P_p}{\pi w^2} \exp(-2(r/w)^{\gamma})$$

$$\text{avec} \quad \alpha \simeq 1 \quad \text{pour} \quad \gamma = 100$$
(3.10)

où le premier est un profil gaussien et le second super gaussien de même puissance.



FIG. 3.11 - Simulation des courbes isothermes au coeur du cristal chauffé (a) par une pompe de profil gaussien et (b) par une pompe de profil super gaussien (de même puissance), pour le même volume que la figure 3.12 où est représentée la densité de puissance absorbée, dans les deux cas. Les températures et gradients thermiques ne sont que très peu différents, étayant l'hypothèse selon laquelle, étant donné les paramètres thermiques du cristal, le profil exacte de la pompe dans le cristal affecte peu le profil de température stationnaire.

Sur la figure 3.11 sont représentés les courbes d'iso température au coeur du cristal là où se propagent la sonde et la pompe et à la figure (3.12), les sources



FIG. 3.12 – Simulation de la densité de chaleur déposée au coeur du cristal par absorption d'une pompe (a) de profil gaussien et (b) de profil super gaussien ( $\gamma$ =100) de même puissance. Les courbes isothermes correspondantes sont représentées à la figure 3.11.

de chaleur par absorption des pompes correspondantes. Ces deux figures ont été obtenues avec les paramètres décrits ci-dessus dans le cas d'un cristal maintenu entre deux disques d'aluminium percés.

Le volume représenté sur les figures 3.11 et 3.12, est celui qui supportera non seulement les températures les plus élevées mais aussi les gradients de température les plus forts. On retrouve la température maximale près de la face d'entrée du cristal là où la source de chaleur est maximale.

#### La lentille thermique

Chaque courbe d'iso température est également, au premier ordre, une courbe d'iso indice. En effet, nous pouvons appliquer la relation (3.11) :

$$n(t) = n(t_a) + \frac{dn}{dt} \times (t - t_a)$$
(3.11)

où n(t) et  $n(t_a)$  sont les indices aux températures t et  $t_a$  (température ambiante) et où  $\frac{dn}{dT}$  est le coefficient thermique de l'indice. Ce coefficient peut être positif ou négatif et dépend souvent de la polarisation de la lumière dans les milieux biréfringents. Il vaut -2,5  $10^{-6} \,^{\circ}\mathrm{C}^{-1}$  et -4,0  $10^{-6} \,^{\circ}\mathrm{C}^{-1}$  pour les polarisations perpendiculaire et parallèle, pour le LiSAF, 1,4  $10^{-6}$  pour le rubis et 7,3  $10^{-6}$  pour le grenat. Cependant, un coefficient thermique négatif est exceptionnel, et comme nous ignorons le coefficient thermique du CSB, nous supposerons qu'il est positif et de l'ordre de 5  $10^{-6} \,^{\circ}\mathrm{C}^{-1}$ .

La variation radiale de l'indice implique une variation du chemin optique en fonction de la coordonnée radiale, r. Ainsi, un front d'onde plan à l'entrée du cristal se trouve déformé en sortie du cristal : une courbure négative (orientée vers les z négatifs) implique un effet divergent et inversément, une courbure positive implique un effet convergent. La variation du chemin optique en fonction de r et l'effet qui en résulte sur la diffraction du faisceau sont modélisés par une lentille équivalente, appelée "lentille thermique".

En réalité, la variation thermique de l'indice n'est pas la seule composante à la lentille thermique, pour être complet, il faut tenir compte des contraintes thermoélastiques dues à l'échauffement non-uniforme du cristal et de la dilatation thermique qui provoque la courbure des surfaces latérales du cristal [47], [19]. Gardant à l'esprit que cette simplification n'est probablement pas négligeable, nous allons nous contenter de la variation purement thermique de l'indice de réfraction.

Comme dans ce cas, la température décroît en fonction de r, le signe de la vergence de la lentille thermique est donné par le signe du coefficient thermique de l'indice,  $\frac{dn}{dT}$ .

Si le profil transverse de l'indice peut être donné par une relation du type :

$$n(r) = n_0 - \frac{n_2}{2}r^2, \qquad (3.12)$$

une formule simple pour la vergence de la lentille thermique est donnée par [47] :

$$\frac{1}{f} = \sqrt{n_2 n_0} \sin\left(\sqrt{\frac{n_2}{n_0}d}\right) \tag{3.13}$$

où f est la distance focale de la lentille thermique,  $n_0$  et  $n_2$  sont définis par (3.12) et d est l'épaisseur de cristal.

Pour estimer le terme  $n_2$ , il nous faut rechercher une approximation quadratique du profil transverse de la température, au centre du cristal (là où se propage le faisceau). A cette fin, celui-ci est représenté à la figure 3.13 en 6 positions sur l'axe du cristal. On peut y voir que si le profil transverse de la température n'est pas quadratique sur tout la largeur du cristal, il en est cependant proche pour les valeurs de r de l'ordre du rayon du faisceau (0,075 mm).



FIG. 3.13 – Profils transverses de la température du cristal pour 6 positions longitudinales (z) et en moyenne sur l'épaisseur du cristal; au coeur du cristal (en grand) et sur tout le cristal dans l'encadré. Si le profil n'est pas quadratique sur tout le cristal, il peut cependant être approché par une relation du type  $T = b + ar^2$  pour des valeurs de r de l'ordre du rayon du faisceau. Les paramètres a et b obtenus pour les 7 profils représentés sont donnés en haut de la figure respectivement en °C pour les b et en °C/mm<sup>2</sup> pour les a. Les températures et les gradients de température sont bien maxima à l'entrée du cristal et diminue en fonction de z.

Grâce à l'approximation quadratique de la moyenne sur toute l'épaisseur du cristal du profil transverse de la température, donnée à la figure 3.13,

$$T = b + ar^2$$
 avec  $a = -492 \text{ °C/mm}^2$  et  $b = 48 \text{ °C}$  (3.14)
et en utilisant (3.12) et (3.13), avec  $\frac{dn}{dT} = 5 \, 10^{-6} \, {}^{\circ}\mathrm{C}^{-1}$ , nous avons trouvé une lentille thermique de distance focale égale à 21 cm.

Dans le but de modéliser la diffraction du faisceau sonde par la lentille thermique, nous avons d'abord étudié les cas d'un faisceau gaussien focalisé sur l'entrée du cristal et à 1,75 mm à l'intérieur du cristal. Il apparaît que la modélisation de la lentille thermique en une seule lentille placée au milieu du cristal n'est pas valable car elle néglige la focalisation progressive du faisceau dès l'entrée du cristal. Nous avons représenté sur la figure 3.14 la focalisation du faisceau dans le cristal pour une lentille thermique épaisse répartie sur 1, 20 et 100 tranches du cristal. Pour remarque, si la focale de la lentille moyenne est de 20 cm, les focales de la représentation en 20 lentilles vont de 40 cm à 300 cm et pour 100 lentilles, elles vont de 90 à 600 cm (respectivement de l'entrée du cristal à la sortie du cristal).

Enfin l'effet de la lentille thermique est plus fort sur un faisceau dont le waist est attendu en l'absence de la lentille thermique à l'intérieur du cristal, que s'il est focalisé à l'entrée du cristal (comportement analogue à l'expérience de Z-scan décrite au chapitre 4). Nous avons représenté le cas d'un faisceau dont le waist est situé à l'entrée du cristal (trait plein) et d'un waist un peu avant le milieu du cristal (trait en pointillé), cas plus proche de l'expérience où on cherche à optimiser le gain et donc l'intensité de la pompe absorbée à l'entrée du cristal.

Dans le montage expérimental (figure 3.5), à 50 mm et 100 mm du cristal, sont placés deux lentilles de distance focale égale à 50 mm, afin de focaliser le faisceau sonde sur la fente du monochromateur. L'effet de la lentille thermique sur le faisceau propagé jusqu'à la fente d'entrée du monochromateur est montré à la figure 3.15. Nous voyons que la lentille thermique introduit une forte diffraction supplémentaire du faisceau et une variation non négligeable de la puissance transmise au-delà de la fente, dans le monochromateur.

Cependant, en pratique nous n'avons pas observé d'effet aussi important. Parce que les faisceaux de sonde et de pompe, issus d'une fibre fortement multimode, ne sont pas gaussiens mais supergaussien (c'est-à-dire que leur profil transverse est plus raide). En conséquence de quoi, la diffraction propre au faisceau lors de sa propagation est dominante sur les effets des lentilles. Nous avons donc, reproduit les mêmes simulations que dans le cas du faisceau gaussien pour un faisceau supergaussien caractérisé par un paramètre appelé  $M^2$  égal à 15. Ce M<sup>2</sup> est estimé à partir de la divergence du faisceau en sortie de la fibre (celle-ci étant de l'ordre de l'ouverture numérique, égale à 0,22) et du diamètre du coeur de la fibre égal à 0,115  $\mu$ m par la relation

$$M^2 = \frac{\pi w_0 \Theta}{\lambda} \tag{3.15}$$

où  $w_0$  est le rayon du coeur de la fibre,  $\Theta$  est la divergence du faisceau et  $\lambda$  est la longeur d'onde ( $\simeq 1 \mu m$ ).

Ainsi, figure 3.16, est représenté l'effet de la lentille thermique ramenée successivement à 0, 1, 20 et 100 lentilles sur la propagation du rayon supergaussien. Mais,



FIG. 3.14 – Propagation d'un faisceau gaussien dans le cristal sans lentille thermique et avec une lentille thermique moyenne placée au milieu du cristal ou répartie en 20 et 100 tranches dans le cristal. Deux cas de faisceau, respectivement focalisé sur l'entrée du cristal et à 1,75 mm de l'entrée (cas plus proche de l'expérience) sont représentés. Ainsi, on ne peut négliger la focalisation du faisceau gaussien dès l'entrée du cristal due à la lentille thermique. On ne peut également négliger que c'est une lentille épaisse. Enfin, la diffraction dépend également de la courbure du faisceau à l'entrée dans le cristal (ou position du "waist" attendu en l'absence de lentille thermique).



FIG. 3.15 – Rayon du faisceau gaussien propagé depuis le cristal (sans et avec la lentille thermique épaisse) jusqu'à la fente d'entrée du monochromateur. La diffraction du faisceau gaussien est fortement influencée par la lentille thermique et diminue la puissance de sonde transmise (ou l'augmente suivant la position exacte de la fente).

si, à la sortie du cristal, en l'absence de lentille thermique, le rayon du faisceau gaussien n'atteint pas 102  $\mu$ m (cf figure 3.14), le rayon du faisceau supergaussien est déjà de l'ordre de 250  $\mu$ m. En comparaison avec les effets observés à la figure 3.14, la diffraction du faisceau supergaussien, due à la lentille thermique, est beaucoup plus faible par rapport à la diffraction propre au faisceau.

Nous avons modélisé la propagation du faisceau supergaussien jusqu'à la fente du monochromateur, où nous observons néanmoins un effet non négligeable sur le rayon du faisceau et sur la puissance transmise par la fente (figure 3.17).



FIG. 3.16 – Propagation dans le cristal, d'un faisceau supergaussien de  $M^2$  de l'ordre de 15, sans lentille thermique et diffracté par une lentille thermique répartie dans 1, 20 ou 100 tranches du cristal. Deux faisceaux sont réprésentés, de position de waist, respectivement, à l'entrée du cristal et peu avant le milieu du cristal. L'effet de la lentille thermique, bien que visible n'est plus aussi spectaculaire que pour les faisceaux gaussiens (cf figure 3.14).

Il reste une remarque essentielle pour conclure cette section sur l'influence de la lentille thermique dans l'expérience pompe sonde : si nous avons mis en évidence l'effet de la lentille thermique sur la transmission du montage expérimental, nous savons que seuls les effets transitoires synchrones avec la pompe seront interprétés et indistingables du gain du cristal.

Si on n'enclenchait la pompe qu'une seule fois, la température dans le cristal évoluerait vers le profil de température simulés ci-dessus et la lentille thermique évoluerait depuis une vergence nulle jusqu'à une valeur stationnaire proche des simulations exposées ci-dessus.



FIG. 3.17 – Propagation du faisceau supergaussien avec et sans lentille thermique jusqu'à la fente d'entrée du monochromateur au moyen de deux lentilles placées à 50 mm et 100 mm du cristal et de distance focale égale à 50 mm. De même pour la figure 3.16, nous pouvons dire que l'effet n'est pas aussi spectaculaire que pour la figure 3.15. Cependant, en "zoomant" sur le waist au niveau de la fente, nous observons un effet non négligeable sur le rayon du faisceau et donc sur la transmission de la fente. Pour être plus proche des conditions d'expérience, nous avons simuler un faisceau de waist situé à 1 mm au delà de la face d'entrée du cristal.

Durant l'expérience pompe-sonde, les profils de température du cristal fluctuent de manière périodique avec l'intensité de la pompe et ne sont pas stationnaires. En conclusion, ce qui est un parasite inévitable de l'expérience pompe sonde, c'est la lentille thermique dynamique qui déforme le faisceau sonde et modifie la transmission de la sonde, en synchronisation avec la pompe. On peut supposer que cet effet dépend peu de la longueur d'onde<sup>2</sup> et apparaît sur le spectre mesuré comme un palier quasi constant, fonction de l'intensité de la pompe. Nous pouvons interpréter le palier observé à la figure 3.8 en ce sens tandis que dans le cas du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB, les paliers quasi constants en longueur d'onde seront simplement soustraits.

# **3.6 Quelles sont les limites de la détection synchrone ?**

Le dispositif d'expérience pompe-sonde permet de mesurer un gain inférieur au pourcent ... mais mesure en fait tout effet synchrone à la pompe sur l'amplitude du signal calculé par la première détection synchrone !

La première détection synchrone est fondamentale pour mesurer l'amplitude de la sonde noyée dans la luminescence émise par le cristal pompé (tandis que la deuxième détection mesure directement ce faible gain sur le signal sortant de la première détection (voir section (3.4.3)).

Ici encore, penchons-nous sur ce qui pourrait masquer ou déformer les résultats. Figure 3.18, nous avons les premières courbes ressemblant à un spectre de gain pour différents niveaux de pompe. Le phénomène de saturation qui apparaît ne s'explique pas par la physique du cristal et pour écarter une saturation du détecteur, nous avons vérifié qu'il restait inchangé par l'ajout d'une densité neutre devant celuici. Rappelons que nous cherchons à mesurer le gain effectif du cristal pompé et plus particulièrement, la différence entre le spectre de gain effectif et le spectre de luminescence : or nous allons voir qu'un mauvais choix de "réserve dynamique" peut introduire un gain apparent proportionnel à la luminescence émise par le cristal pompé (et masquer ainsi l'absorption par les états excités).

## 3.6.1 Mais au fait, qu'est-ce que la réserve dynamique?

La détection synchrone permet de mesurer l'amplitude d'une modulation présente dans un signal à une fréquence et une phase données. Cette mesure s'obtient en 5 étapes successives (voir diagramme à la figure 3.19).

- 1- première amplification du signal d'entrée
- 2- conversion analogique / numérique
- 3- multiplication avec un sinus à la fréquence et la phase de référence
- 4- intégration
- 5- deuxième amplification

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Ce qui compte, c'est la dépendance en la longueur d'onde de  $\frac{dn}{dT}$ .



FIG. 3.18 – Gain "apparent" en fonction de la longueur d'onde, pour différentes intensités de pompage optique. Le phénomène de saturation n'est pas dû à un phénomène physique dans le cristal ni à une saturation du détecteur, il est dû au choix de réserve dynamique pour les détections synchrones (ici "low noise", nous allons voir de quoi il s'agit).



FIG. 3.19 – Diagramme du fonctionnement de la détection synchrone, extrait de sa documentation sur lequel a été ajouté la position du convertisseur analogique/numérique. Le gain global de la détection synchrone est réparti sur un premier amplificateur avant le convertisseur et sur un deuxième juste avant la sortie du signal démodulé. Cette répartition permet, sur commande de l'utilisateur (sélection "high reserve", "normal"ou "low noise"), d'adapter l'amplitude du signal d'entrée à la tension de référence du convertisseur, en tenant compte de l'amplitude, éventuellement grande, du bruit, superposé au signal utile. En effet, si le bruit est élevé, l'option "high reserve" indique à la détection synchrone de limiter le premier facteur d'amplification pour éviter la saturation transitoire du convertisseur; tandis que si le signal est peu bruité, l'option "low noise" autorise la détection synchrone à amplifier au maximum le signal d'entrée, avant le convertisseur pour optimiser la résolution de la conversion.

Le premier étage d'amplification, placé avant le convertisseur analogique/numérique, permet d'adapter au mieux le signal d'entrée sur l'intervale de tension  $-U_{max} \rightarrow U_{max}$  où  $U_{max}$  (=5V) est la tension de référence du convertisseur Analogique/Numérique.

Le deuxième étage d'amplification adapte le signal intégré entre -5V et +5V (tension de référence du signal de sortie).

Le gain global est commandé par l'utilisateur par le choix du calibre sur la face avant de la détection synchrone. Mais la distribution du gain entre le premier et le deuxième étage est commandée implicitement, par l'utilisateur, au moyen du choix de réserve dynamique (trois positions : "high reserve", "normal" et "low noise").

A quoi sert la réserve dynamique?

Elle sert à informer la détection synchrone sur le type de signal en entrée, afin qu'elle s'adapte au mieux :

Si le signal d'entrée est peu parasité par d'autres signaux, l'utilisateur sélectionnera "low noise" et le premier étage d'amplification assurera quasiment tout le gain global, sans qu'il y ait de risque qu'une composante parasite transitoire ne provoque une saturation du convertisseur A/N. Si cela se produisait malgré tout, le signal calculé en serait rapidement dégradé.

Si le signal d'entrée est fortement parasité, l'utilisateur sélectionnera "high reserve" de telle sorte que le premier étage d'amplification soit faible et que le convertisseur A/N ne sature jamais. Le gain global est alors essentiellement assuré par le deuxième étage d'amplification. Cependant, il va de soi que l'utilisation de "high reserve" dégrade la qualité de la conversion A/N puisque qu'il réduit le rapport entre le signal utile et la tension de référence.

Enfin, il faut savoir que la détection synchrone ne signale que les saturations longues, ou permanentes, ainsi, il est laissé à l'utilisateur, le soin d'assurer la réserve dynamique suffisante pour qu'il n'y ait pas même de saturation transitoire surtout si elles sont systématiques.

Il y a deux aspects importants dans ce processus dont nous avons à tenir compte.

Le premier : si la luminescence, ou tout autre bruit, est trop important par rapport au signal de la sonde, il faut utiliser "high reserve" et le premier facteur d'amplification sera limité. L'amplitude de la sonde à l'entrée du convertisseur est alors moins amplifiée et sera convertie avec une moins bonne résolution. Or dans notre cas, cette limite est très contraignante puisque la sonde doit être suffisamment bien échantillonnée pour qu'on puisse détecter ultérieurement la faible modulation de son amplitude (rappellons que cette modulation est de l'ordre du dixième de pourcent).

Le deuxième aspect est le suivant, avant même d'atteindre la limite où la faible modulation de la sonde n'est plus convenablement codée par le convertisseur A/N, apparaissent les conséquences de sa non linéarité. En effet, lorsque le rapport signal sur bruit diminue (le bruit étant essentiellement la luminescence), en quelque sorte, le signal utile "surfe" sur l'alternance de la luminescence, et la faible modulation apparente du signal utile peut être due à la non linéarité de la conversion.

La figure 3.20 illustre ces deux aspects, dans le cas où le convertisseur A/N code sa sortie sur 4 "bits" et où les signaux temporels, analysés par la détection synchrone, sont ceux représentés figure 3.3. La figure se lit ainsi : le signal temporel est représenté à gauche. A droite, se trouve le diagramme de convertion : réponse codée sur 4 bits en fonction de la tension analysée, sauf que les axes sont inversés de sorte que la conversion soit aisée et visuelle. La conversion visuelle consiste à translater horizontalement un point du signal temporel jusqu'à ce qu'il rencontre le diagramme, puis à projeter cette intersection sur l'axe horizontal. On voit aisément que si le signal de sonde n'est pas assez amplifié, il est possible que sa variation d'amplitude passe inaperçue. De plus, si le convertisseur est non-linéaire (représenté par un diagramme d'allure courbée), le codage de l'amplitude de la sonde peut être différent si la luminescence s'ajoute au signal ou pas. Dans ce cas, cette différence n'est pas distingable du gain dans le cristal car elle est synchronisée sur la luminescence.

Tout ceci n'explique pas précisément les courbes représentées figure 3.18 mais donne des pistes d'interprétation du fait que les courbes résultantes sont comparables à la luminescence, dépendent de la puissance de pompe (avant saturation) et disparaissent complètement si on augmente la réserve dynamique.

Pour remédier à cela, il s'impose de maintenir une puissance de sonde de l'ordre de grandeur de la luminescence détectée : soit en augmentant la puissance de sonde soit en diminuant la puissance de pompe proportionnelle à la luminescence. Nous avons remarqué en plus qu'utiliser l'entrée AC des détections synchrones améliore la qualité des mesures, deux hypothèses peuvent être proposées à cela. Le signal alternant, non plus entre 0 et  $U_{max}$  mais entre  $-U_{max}/2$  et  $+U_{max}/2$ , le premier étage d'amplification peut être doublé; tandis que l'alternance autour de zéro peut compenser la nonlinéarité du convertisseur A/N si elle a la bonne idée d'être symétrique.

# 3.7 Où il apparaît que le cristal est mal taillé?

De même que le spectre d'absorption par l'état fondamental (cf figure 1.7), le spectre d'absorption par les états excités est susceptible de dépendre de la polarisation de la sonde, respectivement parallèle et perpendiculaire à l'axe de symétrie du cristal, ou axe c, parallèle à l'axe optique du cristal. Pour cela, il est nécessaire de tailler le cristal de sorte que l'axe optique soit parallèle aux faces polies du cristal.

Pour sélectionner la polarisation de la sonde, dans le montage représenté à la figure 3.5, nous avons placé un polariseur après le cristal et que nous réalisons systématiquement deux expériences en tournant le cristal de 90°.

Cependant, l'utilisation d'une fibre, en remplacement des deux diaphragmes (cf figure 3.6) a permis d'observer librement la propagation de la sonde et la pompe dans le cristal. Nous avons alors réalisé qu'à la sortie du cristal, il y avait séparation spatiale des faisceaux ordinaire et extraordinaire due au "walk-off" (voir figure 3.21).

Quelle que soit la position du cristal, l'effet de "walk-off" est visible aussi bien sur la sonde que sur la pompe, impliquant par là qu'à l'entrée du cristal, ni l'une ni l'autre n'est linéairement polarisée. Nous avons dès lors à nous poser deux questions.

Comment la séparation spatiale de la pompe et de la sonde affecte l'expérience



FIG. 3.20 – Cette figure schématise deux limites de la conversion analogique/numérique : deux signaux types (sonde+luminescence+parasite, voir figure 3.3) en fonction du temps sont représentés à gauche et deux représentations de la conversion A/N (avec codage sur 4 bits) sont représentés à droite (linéaire et non linéaire). pour visualiser l'opération de conversion, il suffit de suivre les flèches horizontales jusqu'à la caractéristique du convertisseur choisi puis projeter l'intersection sur l'axe horizontal pour y lire le résultat. Nous pouvons voir qu'un signal "noyé" dans la luminescence n'est pas bien analysé, rappelons d'ailleurs qu'il ne s'agit pas ici de coder uniquement l'amplitude du signal mais aussi sa faible variation entre le temps de pompage et de non pompage. Nous pouvons voir aussi qu'un convertisseur dont la caractéristique est non linéaire peut introduire une variation apparente de l'amplitude de la sonde entre les demi-périodes de pompage et de non pompage (superposée aux effets d'amplification du cristal) et ce d'autant plus que la luminescence est importante par rapport à la sonde.



FIG. 3.21 - (a) le "walk-off" du cristal est mis en évidence par la double image d'un simple trait, à travers le cristal. (b) Propagation du faisceau pompe non polarisé dans le cristal "mal taillé" (c'est-à-dire que l'axe de biréfringence n'est pas parallèle à la face d'entrée). La pompe se sépare au cours de sa propagation en un faisceau ordinaire (de polarisation perpendiculaire à l'axe c) et un faisceau extraordinaire (de polarisation non perpendiculaire à l'axe c). Sur cette photo, la diffusion des faisceaux se propageant dans le cristal permet d'observer la séparation spatiale des ondes ordinaires et extraordinaires, à la sortie du cristal, due au "walk-off".

pompe sonde décrite par le modèle donné à la section (3.4.1)?

D'autre part, la polarisation du faisceau extraordinaire n'étant plus parallèle à l'axe c, peut-on malgré cela mesurer le spectre d'absorption par les états excités pour une polarisation parallèle à l'axe c?<sup>3</sup>

#### 3.7.1 Le "Walk Off"

L'interaction d'une onde électromagnétique avec un milieu matériel peut être décrite par les équations de Maxwell couplées aux équations constitutives de la matière. Dans celles-ci, le champ électromagnétique induit une polarisation dans le milieu matériel. Cette polarisation, en retour, agit sur le champ électrique total et, au premier ordre, modifie la vitesse de propagation de l'onde électromagnétique.

Dans le cas le plus simple, le milieu est respectivement linéaire et isotrope et la polarisation induite est respectivement proportionnelle et parallèle au vecteur champ électrique. Le rapport entre le champ électrique et la polarisation du milieu matériel est donné par la permittivité scalaire et le rapport entre la vitesse de propagation dans le vide et dans le milieu matériel est donné par l'indice de réfraction du milieu matériel.

Mais les cristaux sont caractérisés par des propriétés de symétrie macroscopique spécifiques les classant parmi 7 systèmes cristallins (cubique, quadratique, hexagonal, orthorhombique, monoclinique, triclinique et rhomboédrique). Sans entrer dans le détail de chaque système cristallin, on peut montrer que leurs propriétés optiques

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Malheureusement, je n'ai pas eu le temps de creuser cette question !

ne sont pas systématiquement identiques dans toutes les directions de l'espace. Seul le système cubique est isotrope, les cristaux hexagonaux, quadratiques et othorhombiques sont uniaxes et les autres sont biaxes [40].

A cause de l'anisotropie du cristal, la polarisation induite n'est plus systématiquement parallèle à la polarisation du champ électrique et la relation entre la polarisation induite et le champ électrique est donnée par un tenseur de permittivité d'ordre trois. [53]

Quand le cristal, comme le  $Cr^{3+}$  :CSB, appartient au système rhomboédrique (avec un axe de symétrie d'ordre trois, voir chapitre 1), il est "uniaxe" au point de vue optique et cet axe est appelé axe de biréfringence ou axe optique (parallèle à l'axe de symétrie d'ordre trois du cristal). Dans ce cas, la polarisation induite par un champ électrique parallèle à l'axe de symétrie, ou axe optique, est parallèle à l'axe de symétrie et caractérisée par la permittivité extraordinaire; la polarisation induite par un champ électrique perpendiculaire à l'axe de symétrie reste parallèle au champ électrique (donc perpendiculaire à l'axe de symétrie) et est caractérisée par la permittivité ordinaire tandis que dans le cas général, un champ électrique ni parallèle ni perpendiculaire peut être décomposé en un champ ordinaire et extraordinaire.

Par la suite, nous parlerons de l'axe c en gardant à l'esprit qu'il est parallèle à l'axe de symétrie d'ordre trois du cristal et à l'axe optique. De plus, nous nous contenterons de décrire l'effet de la biréfringence sur un faisceau linéairement polarisé à incidence normale sur le cristal et nous retiendrons deux cas : le cristal est taillé de telle sorte que l'axe c est paralèlle à la face d'entrée du cristal ou le cristal est taillé de telle sorte que l'axe c présente un angle  $\alpha$  avec la face d'entrée du cristal.

L'anisotropie de la permittivité implique l'anisotropie de l'indice de réfraction, de même qu'on a défini la permittivité extraordinaire et ordinaire, on définit l'indice extraordinaire,  $n_e$  et ordinaire,  $n_o$ . Les équations de Maxwell couplées aux équations constitutives du milieu anisotrope montrent qu'il existe, en général, deux ondes planes possibles pour une direction de propagation donnée.

Pour décrire ces ondes planes ou pour définir les lois de la réfraction sur un dioptre séparant un milieu isotrope (air) et le milieu anisotrope, on définit trois "outils" : la surface des indices, l'ellipsoïde des indices et la surface radiale. La première permet de définir les deux vecteurs d'onde possibles pour toute direction, la deuxième permet de définir l'état de polarisation associé et la troisième, la direction de propagation de l'énergie (ou direction des rayons lumineux).

Dans le cas d'un cristal uniaxe, la surface des indices est une double nappe, l'une étant un sphère de rayon égal à  $n_o$  et l'autre un ellipsoïde de révolution autour de l'axe optique avec le demi-axe égal à  $n_o$  et les deux autres à  $n_e$ . Pour chaque direction de vecteur d'onde donnée, les deux valeur de k possible sont obtenues en multipliant les deux indices donnés par l'intersection entre la double nappe et la direction de k, par  $\frac{w}{c}$  où w est la pulsation optique et c, la célérité.

L'ellipsoïde des indices est, comme son nom l'indique, un ellipsoïde de demi-axe égal à  $n_e$  selon l'axe optique et égal  $n_o$  selon les deux autres directions. Il permet de déterminer la structure des deux ondes plane de vecteur d'onde k. On définit le plan d'onde comme le plan orthogonale à k, son intersection avec l'ellipsoïde est une ellipse, les demi-grands axes de cette ellipse définissent les directions du champ D(cf équations de Maxwell) et la normale au plan tangent à l'ellipsoïde aux sommets des demi-grands axes donnent la direction du champ électrique.

Enfin, la surface radiale est une surface à deux nappes : une sphère de rayon  $1/n_o$  et un ellipsoïde de révolution autour de l'axe optique avec les demi-grands axes en  $1/n_o$  selon l'axe optique et  $1/n_e$  pour les autres, il permet de constuire la direction des rayons ordinaire et extraordinaire.

Ces trois construtions sont données figure 3.22 dans un plan parallèle à l'axe optique.



FIG. 3.22 – Surface des indices, ellipsoïde des indices et surfaces radiales permettant la détemination des vecteurs d'onde, polarisation et direction de propagation des faisceaux ordinaire et extraordinaire dans un milieu anisotrope uniaxe. La surface des indices indique, pour chaque direction du vecteur d'onde, les deux vecteur d'onde possibles. L'éllipsoïde des indices détermine, pour une direction de vecteur d'onde donnée, la polarisation des ondes ordinaire et extraordinaire. Les surfaces radiales donnent les directions de propagation des faisceaux ordinaire et extraordinaire.

Pour déterminer la réfraction d'une onde plane sur un dioptre entre l'air et le cristal, nous allons utiliser les surfaces radiales, et le principe d'Huygens-Fresnel selon lequel une onde plane est constituée d'une infinitée d'ondelettes sphériques synchrones et alignées sur un plan; les plans parallèles décalés suivant la direction de propagation de  $\frac{c}{\nu n}$  sont isophases et sont le résultats de l'interférence des ondelettes sphériques sphériques synchrones (où c est la célérité,  $\nu$  est la fréquence optique et n est l'indice de réfraction).

On peut reconstruire l'onde plane réfractée par le dioptre à partir d'ondelettes

sphériques pour le faisceau ordinaire (correspondant à la surface radiale sphérique) et elliptiques pour le faisceau extraordinaire (correspondant à la surface radiale elliptique). Figure 3.23), nous l'avons appliqué au cas où l'axe c est parallèle au dioptre.



FIG. 3.23 – Réfraction d'une onde plane à incidence normale par un milieu biréfringent dont l'axe de biréfringence, c, est parallèle au dioptre. a) onde ordinaire, de polarisation perpendiculaire à c; b) onde extraordinaire, de polarisation parallèle à l'axe c.

Le cas où l'axe c n'est pas parallèle à la face d'entrée du cristal est plus compliqué dans le cas de l'onde extraordinaire. Sa polarisation présente une projection nonnulle sur l'axe c et se trouve dans le plan de la figure 3.24, tandis que la direction de propagation du faisceau est donné par les intersections des tangentes aux ellipses. Le vecteur d'onde reste parallèle au vecteur d'onde incident, soit normal au dioptre et on voit que le faisceau extraordinaire fait un angle  $\epsilon$  avec le vecteur d'onde, c'est l'angle de "walk-off". Finalement, comme cet angle est totalement compensé par la réfraction sur le dioptre de sortie du milieu biréfringent, au delà du milieu, il ne subsiste entre les deux faisceaux, outre le déphasage cumulé, qu'une faible séparation transverse.

Le "walk-off" s'observe ici quand l'axe du cristal n'est pas parallèle au dioptre et que le faisceau linéairement polarisé, à incidence normale, se décompose en une onde ordinaire et extraordinaire se propageant dans le cristal avec un angle  $\epsilon$ . C'est bien ce qu'on observe à la figure 3.21.

Si l'axe c est parallèle à la face d'entrée, une onde incidente non polarisée se décomposent en une onde ordinaire ("voyant" l'indice  $n_o$  et polarisée orthogonalement à l'axe c) et une onde extraordinaire ("voyant" l'indice  $n_e$  et polarisée parallèlement à l'axe c) se propageant dans le cristal à des vitesses différentes. La différence de vitesse introduit un déphasage entre les deux ondes c'est pourquoi la recomposition des deux ondes en sortie du cristal donne, en général, un état de polarisation diffé-



FIG. 3.24 - Réfraction d'une onde plane à incidence normale par un milieu biréfringent dont l'axe de biréfringence, c, présente un angle  $\alpha$  avec le dioptre. a) onde ordinaire, de polarisation perpendiculaire à c; b) onde extraordinaire, de polarisation coplanaire avec le vecteur d'onde et l'axe c.

rent de l'onde incidente.

Si l'axe c fait un angle  $\alpha \neq 0$  avec la face d'entrée, une onde incidente non polarisée se décomposent en une onde ordinaire (idem) et une onde extraordinaire ("voyant" un indice compris entre  $n_o$  et  $n_e$ , fonction de  $\alpha$ , et de polarisation coplanaire à l'axe c et la direction de propagation) se propageant dans le cristal non seulement à des vitesses différentes mais aussi, avec un angle  $\epsilon$ . A la sortie du cristal, la réfraction ramène les deux faisceaux parallèles entre eux.

#### Remarque sur l'ordre de grandeur de l'angle de "walk-off"

Si sur la figure 3.24, on modifie l'angle  $\alpha$  (angle entre l'axe c et le dioptre d'entrée) de 0° et 90°, on voit que l'un angle de walk-off,  $\epsilon$ , part d'une valeur nulle (axe c parallèle au dioptre), augmente et revient à un angle nul (pour l'axe c perpendiculaire au dioptre). Il existe donc une valeur de l'angle  $\alpha$  pour laquelle l'angle de walk-off est maximum. On peut obtenir cette valeur à partir de l'équation de la surface radiale elliptique (dans un plan r, z en coordonnée cylindrique) si on recherche le point pour lequel la tangente est verticale. L'équation de la surface d'onde est donnée par la relation (3.16) et la relation entre l'angle de walk-off et l'angle  $\alpha$  par la relation (3.17), représentée à la figure 3.25 pour les valeurs d'indice ordinaire et extraordinaire du cristal CSB (n<sub>o</sub> = 1,85 et n<sub>e</sub> = 1,76).

$$(z \, \cos \alpha - r \, \sin \alpha)^2 n_e^2 + (z \, \sin \alpha + r \, \cos \alpha)^2 n_o^2 = 1 \tag{3.16}$$

tono

$$\tan \epsilon = -\frac{\tan \alpha}{1 + \frac{n_e^2}{n_e^2 - n_e^2} (1 + \tan^2 \alpha)}$$
(3.17)



FIG. 3.25 – Angle de walk-off pour une incidence normale, en fonction de l'angle  $\alpha$  que fait l'axe de biréfringence avec la surface d'entrée du cristal. Application numérique obtenue pour les valeur d'indice ordinaire ( $n_o = 1,85$ ) et extraordinaire ( $n_e = 1,76$ ) du cristal de CSB. Les flèches sur la figure représentent la valeur de l'angle  $\alpha$  mesurée, voir figure 3.27. Un walk-off de 0,055 rad est donc attendu dans le cristal, introduisant une séparation spatiale de 0,250 mm à la sortie du cristal de 4,5 mm de long.

Figure 3.25, nous avons représenté l'angle de "walk-off" en fonction de l'angle  $\alpha$  et nous obtenons un angle de walk-off maximum de 3,5° (pour  $\alpha = 47^{\circ}$ ). Dans ce cas, les faisceaux ordinaire et extraordinaire seront décalés en sortie d'un cristal de 5 mm de long de 300  $\mu$ m. Cela signifie que pour peu que le rayon du faisceau soit de l'ordre de 100  $\mu$ m, nous pouvons observer la séparation spatiale due au "walk-off".

De plus, à la section suivante, (voir figure 3.27), nous mesurerons la position de l'axe c par rapport aux faces polies du cristal et nous obtiendrons un angle de 35° induisant un angle de "walk-off" quasi maximum. Voici donc exposés les éléments d'explication de la photographie montrée figure 3.21.

# 3.7.2 Détermination de la direction de l'axe optique dans le cristal

La section précédente, en décrivant le walk-off observé sur la figure 3.21, confirme que l'axe du cristal étudié n'est pas parallèle aux faces polies. Rappelons que l'objectif est de mesurer deux spectres pour une polarisation du faisceau de sonde respectivement parallèle et perpendiculaire à l'axe c, pour se rendre compte qu'il est donc impossible de mesurer le spectre correspondant à la polarisation parallèle à l'axe du cristal (si la sonde est à incidence normale aux faces du cristal).

Cependant, quel est l'angle entre l'axe du cristal et le dioptre d'entrée ou en d'autres mots de combien nous écartons-nous de la situation idéale?

Les cristaux de CSB sont taillés de sorte qu'ils présentent deux faces parallèles polies. C'est la propagation entre ces deux faces qui a été jusqu'à présent étudiée. Dans cette section, nous allons donc voir comment on peut déterminer la direction de l'axe optique du cristal en observant également la propagation d'un faisceau à travers les faces latérales non polies du cristal.

Ces faces sont le résultat de rupture par clivage de plans cristallins et elles ne sont pas parallèles. Un faisceau à incidence normale sur la face d'entrée n'est plus à incidence normale sur la face de sortie et y subit une réfraction dont l'angle dépend de l'indice et donc de la polarisation du faisceau. A la sortie du cristal, le faisceau se divise en deux et le faisceau extraordinaire est le moins dévié  $(n_e < n_o)$  La figure 3.26 représente la propagation de ce faisceau dans le cristal étudié pour le cas inverse où le faiceau est à une incidence d'environ 60°, ce qui permet d'observer la légère séparation spatiale (correspondant, ici à 2°) du faisceau ordinaire  $(n_o = 1,86)$  et extraordinaire (1, 76 < n < 1,85).



FIG. 3.26 – Réfraction des composantes ordinaire et extraordinaire d'un faisceau linéairement polarisé, dans le cristal CSB, d'indice ordinaire,  $n_o = 1,85$ et extraordinaire,  $n_e = 1,76$ .

# 3.7.2.1 Détermination de la projection de l'axe c sur les faces polies du cristal

La méthode utilisée pour déterminer la projection de l'axe c sur les faces polies du cristal est très simple. Il suffit d'utiliser le faisceau d'une diode laser naturellement linéairement polarisé (ou linéairement polarisé grâce à un premier polariseur), de placer un polariseur croisé afin d'obtenir l'extinction du faisceau sur l'écran placé juste après. Enfin, on tourne le cristal placé avant ce polariseur autour de la direction du faisceau laser et on obtient, sur un tour, quatre positions orthogonales correspondant à la projection de l'axe c sur les faces polies du cristal et la direction perpendiculaire.

Pour déterminer laquelle des deux correspond à la projection de l'axe c, nous avons utilisé le moyen annexe que nous donne le "walk-off" : en focalisant le faisceau, on peut observer la diffusion des faisceaux ordinaire et extraordinaire dans le cristal (voir figure 3.21) et associer la direction parallèle au plan de l'angle de walk-off à l'axe c.

#### 3.7.2.2 Détermination de la projection de l'axe c sur une des faces latérales non polie du cristal

Pour déterminer la projection de l'axe c sur une des faces latérales non polies du cristal, nous allons exploiter l'angle entre ces deux faces (de l'ordre de 30°). Le faisceau d'une diode laser (à incidence normale sur la face d'entrée) est séparé en deux par la réfraction sur la face de sortie (réfraction ordinaire et extraordinaire). Lorsqu'on tourne le cristal autour de la direction de propagation du laser, ces deux faisceaux dessinent deux cercles concentriques sur un écran placé en sortie du cristal (le moins dévié est lié à l'indice extraordinaire).

Pour quatre positions du cristal, on observe l'extinction (alternée) de l'un des deux faisceaux. En effet, le laser étant linéairement polarisé, quand cette polarisation est orthogonal à l'axe c du cristal, il n'y a pas de faisceau extraordinaire et réciproquement, si la polarisation du faisceau laser est coplanaire avec l'axe c et le vecteur d'onde, il n'y a pas de faisceau ordinaire. L'extinction de l'onde ordinaire donne donc la projection de l'axe c sur la face d'entrée et l'extinction du faisceau extraodinaire, la perpendiculaire à cette projection.



FIG. 3.27 - Détermination de la projection de l'axe c sur une des faces latérales non polies du cristal. Nous obtenons un angle de 35° entre l'axe du cristal et ses faces polies, ce qui intoduit un walk-off quasi maximum de 0,055 rad (voir figure 3.25).

## 3.7.3 Simulation de l'effet du walk-off sur le gain apparent

Comment le "walk-off" affecte-t-il l'amplification de la sonde?

A cause du "walk-off", les faisceaux de pompe et de sonde se séparent tous les deux en faisceaux ordinaires et extraordinaires ayant entre eux un angle  $\epsilon$ .

Nous avons simulé la propagation de la sonde et la pompe et leur interaction dans le cristal pour les paramètres donnés au tableau 3.3. Définissons l'axe x, perpendiculaire à la direction de propagation mais parallèle au plan définit par les directions de propagation des faisceaux ordinaire et extraordinaire, tandis que les axes z et ysont orientés respectivement selon la direction de propagation du faisceau ordinaire et orthogalement aux axes x et z (voir figure 3.28).

La propagation de la pompe compte tenu de son absorption et du "walk-off" est donnée à la figure 3.28, pour un rayon gaussien de 0,23 mm à l'entrée et un angle de "walk-off" de 0,025 radian. On observe la quasi séparation, en sortie du cristal des faisceaux ordinaire et extraordinaire mais aussi que l'essentiel de l'absorption de la pompe, à l'entrée du cristal, n'est que peu perturbé par le "walk-off". De même, l'essentiel du gain étant obtenu par interaction avec le cristal sur ses premiers millimètres, il est possible que le gain ne soit que peu affecté par le "walk-off".



FIG. 3.28 - (a) axes de référence choisis et (b) Propagation de la pompe (de diamètre égal à 0,23 mm), compte tenu de l'absorption du cristal et d'un walk-off de 0,025 radian. A la sortie du cristal (4 mm de long), on voit bien la quasi séparation des faisceaux ordinaire et extraordinaire. L'essentiel de la pompe étant absorbé au début, l'essentiel du gain de la sonde se fera par interaction avec le début du cristal et ne devrait pas être trop affecté par le "walk-off".

Pour vérifier cette hypothèse, nous avons simulé la propagation de la sonde et son interaction avec le cristal. Le gain étant très faible et invisible sur le profil de la sonde, nous avons représenté également le rapport des intensités de sonde en entrée et en sortie du cristal. Les simulations ont été réalisées avec les paramètres donnés au tableau 3.3.



TAB. 3.3 – Paramètres de la pompe, de la sonde et du cristal pour les simulations de la propagation et l'interaction de la pompe et la sonde dans le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB données aux figures 3.29, 3.30 et 3.31.

Les figures 3.29, 3.30 et 3.31 représentent les intensités de sonde en sortie du cristal, et la transmission en fonction de x pour différentes valeurs de y, et ce, sans "walk-off" et pour deux valeurs de "walk-off" différentes, respectivement 0,03 et 0,06 radian (le "walk-off" calculé à partir de la position de l'axe du cristal étant de l'ordre de 0,055 rad, voir figures 3.25 et 3.27).

Sur les intensités totales, étant donnée la petitesse du gain, on n'observe que la séparation des faisceaux ordinaire et extraordinaire, fonction du "walk-off". Par contre sur les transmissions, on voit que la sonde ordinaire et extraordinaire sont non seulement progressivement séparées mais aussi que le "gain" est distordu entre les deux faisceaux par l'amplification plus forte là où les deux faisceaux de pompe se superposent.

En intégrant la transmission sur tout le profil, nous avons obtenu une diminution du gain en fonction de l'angle de "walk-off" avec gain de 0,30 % sans walk-off, de 0,28 pour un angle de "walk-off" de 0,03 rad et de 0,24 un angle de "walk-off" de 0,06 rad. Ces résultats confirme l'hypothèse selon laquelle le du gain maximum étant au début du cristal, la séparation de la pompe en cours de propagation influence peu le gain.

Par contre, il pourrait être curieux d'interpréter la lentille thermique modélisée à la section précédente en fonction du walk-off!



FIG. 3.29 – Profil de la sonde en sortie du cristal pour y=0 mm (ordinaire et extraordinaire) et profil de transmission de la sonde pour différentes valeurs de y, en l'absence de walk-off.



FIG. 3.30 - Profil de la sonde en sortie du cristal pour <math>y=0 mm (ordinaire et extraordinaire) et profil de transmission de la sonde pour différentes valeurs de y, pour un angle de walk-off égal à 0,03 radian. On observe une diminution du gain maximum dû à la séparation de la pompe au fur et à mesure de sa propagation.



FIG. 3.31 - Profil de la sonde en sortie du cristal pour <math>y=0 mm (ordinaire et extraordinaire) et profil de transmission de la sonde pour différentes valeurs de y, pour un angle de walk-off égal à 0,06 radian. Si la diminution du gain est plus forte quand l'angle de walk-off augmente, on voit aussi apparaître une distorsion du gain sur l'aile centrale, amplifiée à la fois par la pompe ordinaire et extraordinaire.

# **3.8** Résultat : gain apparent

Cette dernière section expose les spectres mesurés, une fois qu'on a tenu compte des points précédemment expliqués. Sur la figure 3.32, sont représentés les points obtenus entre 730 nm et 1230 nm pour trois puissances de pompe et pour les deux polarisations respectivement parallèle et perpendiculaire à l'axe optique.

Sur ces figures, le signal obtenu ne tend pas vers zéro aux grandes longueurs d'onde. Section 3.5.2, nous avons étayé l'hypothèse selon laquelle, une lentille thermique dynamique, induite dans le cristal par l'absorption de la pompe, introduit un palier quasi constant en fonction de la longueur d'onde, dans l'expérience pompesonde. C'est pourquoi nous avons appelé les signaux représentés figure 3.32, "gain apparent". Pour obtenir le "gain réel", nous avons donc soustrait du gain apparent, la valeur du gain aux grandes longueurs d'onde, les points résultants sont donnés à la figure 3.33.



FIG. 3.32 – Gain apparent en  $\pi$  (gauche) et  $\sigma$  (droite) polarisation, en fonction de la longueur d'onde, avec le "palier" thermique, pour trois puissances de pompe.

Par comparaison du début de la courbe avec la somme des sections efficaces d'absorption par l'état fondamental et d'émission stimulée (en négligeant la section efficace d'absorption par les états excités), nous avons obtenus les deux facteurs d'échelle (voir équations (3.6a) et (3.6b)) respectivement  $F_{//}$  et  $F_{\perp}$  pour les polarisations parallèle et perpendiculaire. Nous pouvons dès lors appliquer le petit calcul suivant, estimant la densité moyenne d'ions excités (pour L = 0, 45 cm, la longueur du cristal).

$$F_{//} = 0,012\,10^{-20}$$
 et  $F_{\perp} = 0,008\,10^{-20}$  (3.18)

or

$$F = N_e L \tag{3.19}$$

 $\operatorname{donc}$ 

$$N_{ep} \simeq 0,026 \, 10^{20} \text{cm}^{-3} \quad \text{et} \quad N_{e\perp} \simeq 0,019 \, 10^{20} \text{cm}^{-3}$$
 (3.20)



FIG. 3.33 – Gain réel en fonction de la longueur d'onde pour les polarisations respectivement parallèle,  $\pi$  (haut) et perpendiculaire,  $\sigma$  (bas) à l'axe optique.

Ces deux densités d'ions excités sont bien de l'ordre de grandeur de ce qu'on a estimé. A la différence entre les deux facteurs il faut ajouter qu'en sortie de fibre, la pompe est légèrement polarisées verticalement et que nous avons choisi de tourner le cristal plutôt que le polariseur, pour enregistrer les deux spectres. Il peut donc y avoir une différence d'absorption de la pompe.

Finalement, la différence entre la section efficace d'émission stimulée et la section efficace de gain effectif donne la section efficace d'absorption par l'état excité. Le résultat de ces opérations effectuées sur les deux polarisations est présenté à la figure 3.34.

Il apparaît que l'absorption par l'état excité supprime en quasi totalité les propriétés d'émission stimulée, ne laissant la place qu'à un gain effectif maximum de  $0,510^{-20}$ cm<sup>2</sup> autour de 870nm. Enfin l'absorption par les états excités ne présente qu'une faible assymétrie entre la polarisation parallèle et perpendiculaire à l'axe c favorisant légèrement la polarisation parallèle. Cependant, il subsiste un point faible dans nos derniers calculs, car le facteur d'échelle entre le gain apparent et les sections efficaces reposent sur un spectre très étroit, mesuré pour un signal de sonde faible<sup>4</sup> et sur l'hypothèse d'une section efficace d'absorption par les états excités négligeable (ce qui n'a pas été prouvé).



 $<sup>{}^{4}</sup>$ En effet, le miroir dichroïque permettant l'injection de la pompe et de la sonde dans la fibre multimode coupe la sonde autour de 775 nm.



FIG. 3.34 – Sections efficaces d'absorption par l'état fondamental et d'émission (cf chapitre 1), et section efficace d'émission effective (mesurée dans ce chapitre) et section efficace d'absorption par les états excités (obtenue par soustraction, cf texte) en fonction de la longueur d'onde, pour les polarisations respectivement parallèle (haut) et perpendiculaire (bas) à l'axe de symétrie ou axe optique du cristal.

# 3.9 Conclusion

L'expérience réalisée a permis de mesurer le gain effectif et d'observer que ce gain est considérablement réduit par l'absorption par l'état excité et ce sur chacune des polarisations, comme le prévoyait le modèle décrit section 3.3.2.

Ont été mis en évidence 2 problèmes : les effets thermiques dus à l'absorption de la pompe par le cristal, qui induisent une lentille thermique dynamique modifiant la diffraction de la sonde. Deuxièmement, la réserve dynamique des détections synchrones qui nécessite d'assurer un rapport "raisonnable" entre la sonde et la luminescence détectée. Cependant, la technique de mise à l'échelle du gain n'est pas parfaitement fiable car réalisée sur un très petit domaine spectral. Par ailleurs, nous n'avons pas élucidé l'impact du "walk-off" sur le spectre d'absorption par les états excités pour une polarisation dite "parallèle à l'axe de symétrie du cristal".

Néanmoins, le maximum du spectre de gain effectif, d'environ  $0.5 \ 10^{-20} \ \text{cm}^2$ , obtenu autour de 870 nm, est en accord avec l'expérience de génération laser décrite au chapitre 4.

Il apparait dès lors que le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB voit ses paramètres de générations laser considérablement handicapés par l'absorption par les états excités. Cependant, la qualité d'un cristal laser ne reposant pas uniquement sur sa section efficace de gain effectif et nous avons déjà montré au chapitre 2 certaine supériorité de ce cristal sur le LiSAF et le SBO, au point de vue thermique, par exemple. Il reste donc intéressant de comparer l'efficacité réelle du  $Cr^{3+}$  :CSB placé en cavité laser.

Les concepts et les résultats de ce chapitre seront décrits dans un article en cours de rédaction.

# Chapitre 4

# Autres propriétés optiques du cristal Cr<sup>3+</sup> :CSB

# 4.1 Mesure de l'absorption par les états excités entre 600 nm et 700 nm.

#### 4.1.1 Introduction

A la section 3.1, nous avons déjà parlé de l'absorption par les états excités. Brièvement, de quoi s'agit-il?

Nous avons vu que la matrice cristalline de CSB pure est transparente pour toute lumière visible mais que la présence du dopage en ion  $Cr^{3+}$  lui donne une coloration verte due aux deux bandes d'absorption respectivement dans le rouge et le bleu (chapitre 1).

Cependant, l'excitation d'une certaine population d'ions  $Cr^{3+}$  par absorption d'un rayonnement, dit "de pompage", est succeptible de faire apparaître de nouvelles bandes d'absorption résultant de transitions entre niveaux excités. Si l'expérience pompe-sonde a justement permis de détecter l'apparition d'une bande d'absorption dans le proche infrarouge, cette méthode ne permet pas d'étudier l'absorption par les états excités dans le même domaine de fréquence que le rayonnement de pompage. Dans ce chapitre, nous allons donc exposer une expérience permettant de mesurer l'absorption par les états excités entre 600 nm et 700 nm.

En effet, la détermination qualitative et quantitative d'une bande d'absorption par les états excités dans ce domaine est essentielle à l'interprétation ou la prédiction de l'efficacité du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB dans un dispositif laser. L'idéal en termes d'efficacité du pompage optique est que l'absorption de chaque photon du rayonnement de pompage entraîne la transition d'un ion  $Cr^{3+}$  de l'état fondamental vers l'état excité. Si un photon de pompe est absorbé par un ion  $Cr^{3+}$  dans un état excité, non seulement il est perdu pour le pompage optique mais en plus, il est possible que l'ion qui était déjà dans l'état excité, le soit aussi.

En pratique donc, la connaissance du spectre d'absorption par les états excités dans le domaine de pompage du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB permet de motiver le choix, entre 600 nm et 700 nm, de la longueur d'onde effectivement la plus efficace.

Par ailleurs, cette expérience, grâce à l'information complémentaire qu'elle donne

sur les transitions entre niveaux excités de l'ion  $Cr^{3+}$ , permet de rétroagir à nouveau sur la synthèse des nouveaux cristaux lasers.

## 4.1.2 Principe de l'expérience

Cette expérience tient quasiment en trois mots : mesure du "bleaching" et elle consiste à mesurer la transmission du cristal (entre 600 nm et 700 nm) en fonction de la puissance du rayonnement incident.

En effet, imaginons l'absorption, par le cristal, d'une puissance de pompe suffisamment intense pour amener simultanément tous les ions  $Cr^{3+}$  dans un état excité. En l'absence d'absorption par les états excités, toute puissance supplémentaire serait intégralement transmise tant que les ions  $Cr^{3+}$  ne seront pas retombés à l'état fondamental et la transmission de la pompe tendrait progressivement vers 1 (c'est le "bleaching"). Par contre si les ions  $Cr^{3+}$  dans l'état excité sont toujours succeptibles d'absorber le rayonnement de pompage, la puissance excédentaire peut être absorbée et le phénomène de "bleaching" n'apparaît que pour un rayonnement beaucoup plus intense.

En pratique, la caractéristique de transmission du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB devrait tendre vers 1 quand on augmente la puissance de pompe en l'absence d'absorption par les états excités et dans le cas contraire, elle devrait présenter une évolution plus lente, fonction de la section efficace d'absorption par les états excités et de la dynamique de relaxation entre les états excités. La technique de mesure de la saturation de l'absorption pour déterminer l'absorption par les états excités a également été utilisée pour des verres dopés au Nd<sup>3+</sup> [49].

Nous avons utilisé le rayonnement un laser à colorant impulsionnel accordable entre 600 nm et 700 nm, dont la durée des impulsions est de 10 ns avec un taux de répétition de 10 Hz. Ensuite, il s'agit de relever la courbe de transmission du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB en fonction de l'énergie des impulsions pour les deux polarisations respectivement parallèle et perpendiculaire à l'axe de symétrie du cristal.

Mais avant, voyons quel modèle permet de décrire la transmission d'une impulsions par le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB et comment extraire la valeur de la section efficace d'absorption par les états excités de la courbe de transmission en fonction de l'énergie de l'impulsion (voir [24], [23], [7], [8]).

L'ion  $Cr^{3+}$  est modélisé par 4 niveaux d'énergie, présenté à la figure 4.1 tandis que l'équation (4.1) décrit la propagation du faisceau dans le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB.

$$\frac{\partial I}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial I}{\partial t} = -N_1 \sigma_{GSA} I - N_2 \sigma_{ESA} I - \alpha I \tag{4.1}$$

Où I est l'intensité du faisceau, t et z sont le temps et la coordonnée selon la direction de propagation, c est la vitesse de la lumière,  $N_1$  et  $N_2$  sont les populations d'ions  $\operatorname{Cr}^{3+}$  respectivement dans les niveaux d'énergie 1 et 2,  $\sigma_{GSA}$  et  $\sigma_{ESA}$  sont les sections efficaces d'absorption respectivement par l'état fondamental et les états excités, et  $\alpha$  représente les pertes non-saturables.



FIG. 4.1 – Modèle à 4 niveaux schématisant les transitions entre niveaux d'énergie du  $Cr^{3+}$  et les temps de vie de chaque niveau dans le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB. L'absorption du faisceau de pompe provoque la transition  $1 \rightarrow$ 3 et éventuellement la transition  $2 \rightarrow 4$  tandis que les transitions  $3 \rightarrow 2$  et  $4 \rightarrow 2$ , sont considérées comme non radiatives et instantanées par rapport à la durée de l'impulsion de pompe de 10 ns. Enfin, le niveau 2 représente les états excités métastables dont la durée de vie, de l'ordre de 10  $\mu$ s (mesurée au chapitre 2), est beaucoup plus longue que la durée de l'impulsion.

A l'équation (4.1), ajoutons l'équation (4.2a) décrivant l'évolution de la population dans l'état fondamental (niveau 1) en fonction du temps et l'équation (4.2b) exprimant la conservation de la population totale d'ions  $Cr^{3+}$  répartis entre les niveaux d'énergie 1 et 2 car étant données les durées de vie des niveaux d'énergie, seuls ces niveaux sont effectivement peuplés.

$$\frac{\partial N_1}{\partial t} = -\frac{\sigma_{GSA}I}{h\nu} N_1 \tag{4.2a}$$

$$N_0 \approx N_1 + N_2 \tag{4.2b}$$

Où h est la constante de Planck,  $\nu$  est la fréquence optique du faisceau et  $N_0$  est la densité totale d'ions  $Cr^{3+}$ .

De l'équation (4.2a) on obtient  $N_1 = -\frac{h\nu}{\sigma_{GSA}I} \frac{\partial N_1}{\partial t}$  et de l'équation (4.2b),  $N_2 \approx N_0 - N_1$ . En replaçant dans l'équation (4.1), on obtient

$$\frac{\partial I}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial I}{\partial t} = h\nu \left(1 - \frac{\sigma_{ESA}}{\sigma_{GSA}}\right) \frac{\partial N_1}{\partial t} - N_0 I \sigma_{ESA} - \alpha I$$
(4.3)

Intégrons cette équation de  $t = -\infty$  à  $t = \tau$ , où  $\tau$  inclut toute la durée de l'impulsion. Utilisons le fait que  $\int_{-\infty}^{\tau} I dt = E$ , où E est la densité d'énergie d'une impulsion et le fait que  $\frac{1}{c} \int_{-\infty}^{\tau} \frac{\partial I}{\partial t} dt = 0$ . Nous obtenons ainsi

$$\frac{dE}{dz} = h\nu \left(1 - \frac{\sigma_{ESA}}{\sigma_{GSA}}\right) (N_1(\tau) - N_0) - N_0 \sigma_{ESA} E - \alpha E \tag{4.4}$$

Par ailleurs,  $\frac{dN_1}{dt} = -\frac{\sigma_{GSA}I}{h\nu} N_1$  permet d'écrire

$$\int_{N_0}^{N_1(\tau)} \frac{dN_1}{N_1} = -\int_{-\infty}^{\tau} \frac{\sigma_{GSA}I}{h\nu} dt$$
(4.5a)

c'est-à-dire

$$\ln\left(\frac{N_1(\tau)}{N_0}\right) = -\frac{\sigma_{GSA}}{h\nu}E$$
(4.5b)

ou

$$N_1(\tau) = N_0 \exp\left(-\frac{\sigma_{GSA}E}{h\nu}\right) \tag{4.5c}$$

En mettant (4.5c) dans (4.4), après quelques opérations, nous obtenons finalement, l'équation (4.6) qui décrit l'absorption de l'impulsion lors de sa propagation dans le cristal

$$\frac{dE}{dz} = -h\nu N_0 \left(1 - \frac{\sigma_{ESA}}{\sigma_{GSA}}\right) \left(1 - \exp\left(-\frac{\sigma_{GSA}E}{h\nu}\right)\right) - N_0 \sigma_{ESA}E - \alpha E \qquad (4.6)$$
qui se ramène bien à  $\frac{dE}{dz} = -N_0 \sigma_{GSA}E - \alpha E \quad \text{pour } E << \frac{h\nu}{\sigma_{GSA}}$ .

A titre d'illustration, nous avons intégré l'équation (4.6), pas à pas selon z, jusqu'à la sortie du cristal, pour les paramètres donnés au tableau 4.1. Comme l'équation (4.6) concerne la densité d'énergie, nous devons faire le choix du profil transverse des impulsions. Bien qu'en réalité, il soit plutôt proche d'un profil gaussien (de rayon, w), nous avons supposé, en première approximation, un profil transverse "top hat" (de rayon  $\frac{w}{\sqrt{2}}$ ).

La transmission obtenue en fonction de l'énergie des impulsions courtes est donnée à la figure 4.2, ainsi que la valeur moyenne, dans le cristal, de la densité de population sur les niveaux 1 et 2. Les densités de population sont normalisées par  $N_0$  et en abscisse, l'énergie est normalisée par  $E^* = \frac{h\nu}{\sigma_{GSA}} \frac{\pi w^2}{2}$ , l'énergie d'impulsion de profil transverse "top hat" (de rayon  $\frac{w}{\sqrt{2}}$ ) dont la densité d'énergie maximum est  $\frac{h\nu}{\sigma_{GSA}}$  (densité d'énergie caractéristique de l'équation (4.6)).

## 4.1.3 Dispositif expérimental.

#### 4.1.3.1 Dispositif général.

Le dispositif expérimental est montré sur la figure 4.3. Les impulsions émisent par le laser et atténuées par le couple de deux polariseurs sont focalisées dans le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB au moyen d'une lentille. Avant le cristal, une séparatrice, étalonnée préalablement, réfléchit une partie de l'énergie sur un premier détecteur permettant ainsi



FIG. 4.2 – Résultats de l'intégration pas à pas sur toute l'épaisseur du cristal de l'équation (4.6) pour les valeurs de paramètres données au tableau 4.1. Sont représentées les densités de population dans l'état fondamental,  $N_1$ , et excité,  $N_2$ , (normalisées par la densité d'ions,  $N_0$ ) dans les cas où l'absorption par l'état excité est respectivement négligeable et non négligeable (25% de l'absorption par l'état fondamental); ainsi que la valeur de la transmission correspondante, en fonction de l'énergie de l'impulsion (normalisée par l'énergie caractéristique,  $E^* = \frac{h\nu}{\sigma_{GSA}} \frac{\pi w^2}{2}$ ). Cette figure met en évidence la différence de transmission si l'absorption par les états excités n'est pas négligeable.

$E_{max}$	= 10	mJ	énergie maximum de l'impulsion incidente
w	= 70	$\mu$ m	rayon du faisceau dans le cristal
λ	= 650	nm	longueur d'onde du faisceau
L	= 4	mm	longueur du cristal
No	$= 0, 5 \ 10^{20}$	cm <sup>-3</sup>	densité d'ions Cr <sup>3+</sup>
$\sigma_{GSA}$	$=4 \ 10^{-20}$	$\mathrm{cm}^2$	section efficace d'absorption par l'état fondamental
TESA	$= 0 \& 1 10^{-20}$	$cm^2$	section efficace d'absorption par l'état excité
x	= 0,02	$cm^{-1}$	coefficient de perte non saturable
$E^*$	= 0, 6	mJ	énergie caractéristique

TAB. 4.1 – Paramètres utilisés pour intégrer l'équation (4.6), les résultats sont illustrés à la figure 4.2. Les valeurs données aux paramètres sont proches de l'expérience réalisée au laboratoire. La principale inconnue étant la valeur de la section efficace d'absorption par l'état excité,  $\sigma_{ESA}$  à laquelle nous avons donné ici, deux valeurs caractéristiques respectivement négligeable et non négligeable par rapport à la section efficace d'absortion par l'état fondamental,  $\sigma_{GSA}$ .

de définir avec précision l'énergie incidente, tandis que l'énergie en sortie du cristal est mesurée par un deuxième détecteur. Les valeurs mesurées par les deux détecteurs sont lues et enregistrées, et la transmission correspondante calculée, pour chaque impulsion, par l'ordinateur permettant ainsi l'accumulation rapide d'un grand nombre de points.

Ce dispositif permet de sélectionner la longueur d'onde des impulsions grâce à l'accordabilité du laser et de modifier l'énergie incidente (par simple rotation du premier polariseur pendant que l'ordinateur enregistre) entre une valeur minimum limitée par la sensibilité des détecteurs et une valeur maximum dépendant de la longueur d'onde du laser (obtenue quand les deux polariseurs sont parallèles). Enfin, la rotation du support du cristal permet de réaliser, pour chaque longueur d'onde, deux expériences correspondant à l'axe du cristal respectivement parallèle et perpendiculaire à la polarisation du laser.

Le laser utilisé est un laser à colorant émettant des impulsions de 10 ns à un taux de répétition de 10 Hz. Ce laser est accordable entre 600 nm et 700 nm avec une décroissance de l'énergie au grande longueur d'onde (80 mJ et 10 mJ respectivement pour 650 nm et 690 nm).

Les deux polariseurs sont des polariseurs de Glan non traités (afin d'éviter tout dommage suite à la tenue au flux limitée des simples traitements antireflets).

La séparatrice est, en fait, une lame de microscope dont la transmission est mesurée en réalisant, préalablement, l'expérience sans cristal.

La lentille est une lentille de distance focale de 1000 mm.

Les détecteurs 1 et 2 sont deux joulesmètres de type "Ophir" de sensibilité différentes dont les sorties analogiques sont lues automatiquement grâce à la carte analogique de l'ordinateur et un programme réalisé avec le logiciel "Labview".


FIG. 4.3 – Montage expérimental mesurant la transmission d'impulsion laser par le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB en fonction de l'énergie des impulsions incidentes, afin de déterminer la section efficace d'absorption par l'état excité. Le laser émet des impulsions accordables sur la bande d'absorption, dans le rouge, du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB. L'expérience consiste alors à mesurer l'énergie des impulsions incidentes, grâce à la lame séparatrice et du détecteur 1, et l'énergie des impulsions en sortie du cristal grâce au détecteur 2; les mesures des deux détecteurs étant lues par l'ordinateur pour chaque imulsion. Celles-ci sont focalisées dans le cristal au moyen d'une lentille tandis que deux polariseurs de Glan permettent d'augmenter progressivement l'énergie des impulsions incidentes, en tournant le premier polariseur entre la polarisation croisée (énergie minimale) jusqu'à la polarisation parallèle à celle du deuxième polariseur, verticale (énergie maximale). Le cristal est placé dans un support permettant d'orienter l'axe du cristal parallèlement ou perpendiculairement à la polarisation des impulsions.

#### 4.1.3.2Conditions de focalisation.

Si l'énergie maximum des impulsions est limitée par le laser, la variable pertinente est la densité d'énergie, ce qui nous donne une relativement grande liberté d'expérience, grâce aux conditions de focalisation. En effet, l'équation (4.6) et la figure 4.2 indique qu'il existe une densité d'énergie caractéristique de la saturation donnée par la relation  $E^* = \frac{h\nu}{\sigma_{GSA}}$ , dans notre cas, de l'ordre de 8 J/cm<sup>2</sup>. Comment évaluer les conditions de focalisation?

Si le faisceau a un profil transverse gaussien, la densité d'énergie répond à l'équation,  $E(r) = \frac{2E_0}{\pi w(z)^2} \exp(-\frac{2r^2}{w(z)^2})$ , où r est la coordonnée radiale,  $E_0$  est l'énergie totale de l'impulsion et w(r) est le rayon gaussien qui dépend de la distance de propagation z, suivant l'équation  $w(z) = w_0^* \sqrt{1 + z^2/z_0^{*2}}$  où  $w_0^*$  est le rayon minimum du faisceau, z est la distance de propagation depuis ce rayon minimal et  $z_0^* = \frac{\pi w_0^{*2}}{\lambda}$  est la distance de Rayleigh pour la longeur d'onde  $\lambda$ . Par ailleurs, après une distance de propagation de quelques longueurs de Rayleigh, la divergence du faisceau gaussien s'inscrit dans un cône de demi-ouverture  $\theta^* = \frac{\lambda}{\pi w_0^*}$ .

Suite à la propagation à travers la lentille, le faisceau subit une diffraction qui tend à le focaliser et transforme l'équation du rayon gaussien en w(z) = $w_0 \sqrt{1 + (z - z_L)^2/z_0^2}$  où  $w_0 = \frac{\lambda f}{\pi w_L}$  est le nouveau rayon minimum situé mainte-nant en  $z_L$  (nouvelle origine de z), près du plan focal de la lentille,  $w_L$  est le rayon du faisceau au niveau de la lentille, f est la distance focale de la lentille,  $z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$  est la nouvelle distance de Rayleigh. Enfin, le nouveau demi-angle du cône de diffraction est  $\theta = \frac{\lambda}{\pi w_0}$ . Avec toute ces relations, il est possible de calculer le profil de la densité d'énergie dans le cristal.

Cependant, dans notre cas, le profil du faisceau (avant la lentille) est plutôt "supergaussien" ce qui signifie qu'il s'écarte du profil gaussien et se rapproche d'un profil "top hat". A cause de cela, la diffraction du faisceau est plus forte ainsi que le "waist" du faisceau focalisé. L'intérêt du rappel sur les faisceaux gaussiens est que les relations qui décrivent sa propagation se transpose facilement au cas des faisceaux supergaussiens par l'ajout d'un facteur, appelé "M-carré",  $M^2$ , chaque fois qu'apparaît la longueur d'onde. Le facteur  $M^2$  est toujours plus grand ou égal à 1 et traduit l'écart du faisceau par rapport à un faisceau gaussien (le  $M^2$  d'un faisceau gaussien étant égal à 1). Ainsi, nous avons trois nouvelles équations pour le rayon minimum du faisceau près du plan focal, la diffraction du faisceau et la divergence asymptotique, données par les relations (4.7).

$$w_{0} = \frac{M^{2} \lambda f}{\pi w}$$

$$w(z) = w_{0} \sqrt{1 + M^{2} \frac{(z - z_{L})^{2}}{z_{0}^{2}}} \quad \text{avec} \quad z_{0} = \frac{\pi w_{0}^{2}}{\lambda}$$

$$\theta = \frac{M^{2} \lambda}{\pi w_{0}}$$
(4.7)

La documentation du laser garantit une diffraction inférieure à 0,5 mrad ce qui pour un rayon minimum de 1,8 mm à 650 nm donne une borne supérieure de 4,2 pour le  $M^2$ . Cependant, comme cela laisse une grande indétermination sur le "waist" du faisceau au delà de la lentille, nous avons cherché à le mesurer. L'expérience la plus simple consiste à déplacer une "lame de rasoir", latéralement au niveau du waist (près du plan focal de la lentille) et ainsi, masquer progressivement le faisceau tout en mesurant l'énergie transmise.

Pour extraire le rayon de cette expérience, nous avons appliqué le modèle donné par l'équation (4.8), correspondant à un profil gaussien de rayon  $w_0$  mais ici, dans le plan focal de la lentille. Cette équation donne l'énergie transmise quand une "lame de rasoir" masque une partie du faisceau.

$$E_{out} = \frac{2E_{in}}{\pi w_0^2} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{x} e^{-\frac{x^2 + y^2}{w_0^2}} dx \, dy$$
  
=  $\sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{E_{in}}{w_0} \int_{-\infty}^{x} e^{-\frac{x^2}{w_0^2}} dx$  (4.8)

Où  $E_{out}$  et  $E_{in}$  sont les énergies transmise et incidente,  $w_0$  est le rayon gaussien du faisceau, x et y sont les coordonnées respectivement horizontale et verticale.

Les résultats expérimentaux pour deux valeurs de l'énergie incidente, sont représentés à la figure 4.4, pour la lentille de distance focale égale à 1000 mm et une longueur d'onde de 650 nm. Sur cette figure, nous avons ajouté les résultats obtenus à partir de l'équation (4.8) pour des valeurs de  $w_0$  de 0, 2 mm et 0, 3 mm.

L'écart entre l'expérience et la courbe théorique trahit la présence de modes d'ordre plus élevé. En effet, dans l'encadré en haut de la figure, les dérivées en x des courbes expérimentale et théorique sont représentées, or comme l'expérience réalise une intégration de la densité d'énergie, la dérivée de l'expérience nous donne à peu de chose près la densité d'énergie en fonction de la coordonnée radial. Nous voyons qu'au niveau du plan focal, la tache de diffraction du faisceau réel présente des bords latéraux plus intenses que le profil gaussien théorique et confirme que le faisceau n'a pas un profil gaussien au niveau de la lentille mais présente des composantes d'ordre plus élevé.

Cependant, cette expérience donne l'ordre de grandeur du "waist" du faisceau et de cet ordre de grandeur, par un petit calcul à partir de l'équation (4.7), nous obtenons un  $M^2$  de l'ordre de 2,2, qui correspond bien aux données du constructeur (voir tableau 4.2).

Le choix d'une lentille de grande distance focale (f = 1000 mm) n'est pas anodin car il s'agit de la plus grande focale disponible au laboratoire et permet de focaliser le faisceau le moins possible dans le cristal (voir équation (4.7)). La place et le matériel disponible au laboratoire ne permettant pas d'utiliser des lentille de distance focale plus longue, pour réduire encore la focalisation, nous avons monté un téléscope au



FIG. 4.4 – Energie transmise lorsqu'un écran masque une partie du faisceau au niveau du plan focal, en fonction de la limite latérale de l'écran. Les points expérimentaux sont représentés ainsi que les courbes théoriques pour des rayons gaussiens de 0,2 mm et 0,3 mm (selon l'équation (4.8)). L'expérience correspondant à une intégration de la densité d'énergie (équation (4.7)), nous avons représenté dans l'encadré la dérivée de la courbe expérimentale ci-dessus, ainsi que la courbe théorique pour w = 0, 2 mm. Ces dérivées ont été normalisée par la dérivée maximum et représente, à peu de chose près, la densité d'énergie en fonction de la coordonnée radial, r. Nous trouvons une bonne concordance entre la théorie et l'expérience pour un rayon gaussien de 0,2 mm mais remarquons que les lobes latéraux de la densité d'énergie trahissent la présence de modes d'ordres supérieurs dans le faisceau au niveau de la lentille ce qui confirme l'hypothèse d'un profil "supergaussien".

$\lambda$ f w $\Theta$ w <sub>0</sub>	$= 0, 650 \\= 1000 \\= 1, 8 \\< 0,5 \\\simeq 0, 25$	nm mm mm mrad mm	longueur d'onde focale de la lentille rayon en sortie du laser divergence (donnée constructeur) "waist" (mesuré)	
$M^2 = \frac{w_0}{w_{0}} = \frac{w_0}{\lambda f}$	$\simeq 2, 2$		mesuré	
$M^2 = \frac{\pi w \Theta}{\lambda}$	< 4, 2		constructeur	

TAB. 4.2 – Application numérique comparant le  $M^2$  du faisceau laser (rapport entre le "waist" mesuré et le "waist" calculé pour un faisceau gaussien) et le  $M^2$  obtenu à partir des spécifications du constructeur.

moyen de deux lentilles (de distances focales respectivement égales à 150 mm et 50 mm) réduisant le rayon du faisceau collimaté. La réduction du rayon du faisceau au niveau de la lentille augmente d'un même facteur le rayon minimum du faisceau focalisé (voir équation (4.7)) . La vérification expérimentale du "waist" donne alors 0,5 mm (ce qui ne correspond pas exactement au facteur trois attendu mais permet d'obtenir quand même un facteur 2). En conclusion, le tableau 4.3 donne les densités d'énergie maximum obtenues au niveau du plan focal pour la lentille de distance focale égale à 1000 mm sans et avec le téléscope. Etant donné que la densité d'énergie caractéristique de la saturation est de l'ordre de 8 J/cm<sup>2</sup> dans le cas du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB, le montage sans téléscope devrait permettre d'observer la saturation de la transmission, tandis qu'avec le téléscope, nous devrions pouvoir en observer le début (car la sensibilité des détecteurs est limitées).



FIG. 4.5 - L'ajout d'un téléscope qui réduit le rayon du faisceau collimaté,avant la lentille de focalisation, tend à augmente le rayon du faisceau au niveaudu plan focal (relation (4.7)). En l'occurence, nous avons utilisé des distancesfocales <math>f1 = 150 mm, f2 = 50 mm et f3 = 1000mm permettant un facteur 2 entre les "waist" du faisceau focalisé.

#### 4.1.4 Résultats

Une mesure de la transmission du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB en fonction de l'énergie des impulsions incidentes est donnée à la figure 4.6 pour les deux orientations du cristal (axe du cristal respectivement parallèle et perpendiculaire à la polarisation du faisceau) et pour une longueur d'onde de 650 nm. Les paramètres de cette expérience sont rappelés au tableau 4.4.



FIG. 4.6 – Transmission d'impulsions à 650 nm en fonction de l'énergie des impulsions, pour le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB, dont l'axe est orienté parallèlement  $(\pi)$  et perpendiculairement  $(\sigma)$  à la polarisation des impulsions. Résultats de l'expérience schématisée à la figure 4.3 et réalisée pour les paramètres rappelés au tableau 4.4.

$E^{*}_{max} = \frac{h\nu}{\sigma_{GSA}}$ $w_{0}$ $w_{0}$	$ \simeq 20  \simeq 8  = 0,25  = 0,5 $	mJ J/cm <sup>2</sup> mm mm	Energie des impulsions laser densité d'énergie caractéristique "waist" du laser sans téléscope "waist" du laser avec téléscope
$E_s = \frac{2E}{\pi w_0^2}$ $E_s = \frac{2E}{\pi w_0^2}$	$\simeq 20$ $\simeq 5$	$\rm J/cm^2$ $\rm J/cm^2$	densité d'énergie maximum sans téléscope densité d'énergie maximum avec téléscope

TAB. 4.3 – Calcul de la densité d'énergie maximum (au centre du faisceau) sans et avec téléscope et comparaison avec la densité d'énergie caractéristique de la saturation de la transision.

λ	= 650	nm	longueur d'onde des impulsions
au	= 10	ns	durée des impulsions
ν	= 10	Hz	taux de répétition
w	= 1, 8	$\mathbf{m}\mathbf{m}$	rayon du faisceau
f	= 1000	mm	distance focale de la lentille
$w_0$	= 0, 25	mm	rayon du faisceau dans le cristal
L	= 4	mm	longueur du cristal Cr <sup>3+</sup> :CSB
$N_0$	$= 0,5 \ 10^{-20}$	$cm^{-3}$	concentration en Cr <sup>3+</sup>
$\sigma_{GSA\pi}$	$=4,3 \ 10^{-20}$	$cm^2$	section efficace d'absorption par l'état fondamental pour une polarisation parallèle à l'axe du cristal
$\sigma_{GSA\sigma}$	$= 3,1 \ 10^{-20}$	$\mathrm{cm}^2$	section efficace d'absorption par l'état fondamental pour une polarisation perpendiculaire à l'axe du cristal
α	= 0.02	$cm^{-1}$	ordre de grandeur des pertes non saturables

TAB. 4.4 – Rappel des paramètres de l'expérience présentées à la figure 4.6.

Etant données les sections efficaces d'absorption, la concentration et la longueur du cristal (voir tableau 4.4), les transmissions (à très faible densité d'énergie) prévue par la relation  $T = \exp(-\sigma_{GSA}N_0L)$  sont de 42 % et 54 % respectivement pour les polarisations parallèle et perpendiculaire à l'axe du cristal. Cependant, nous avons à corriger ces deux valeurs, à cause des réflexions de Fresnel sur les surfaces d'entrée et de sortie du cristal, selon

$$T_{\text{mesuré}} = \left(\frac{n_i - 1}{n_i + 1}\right)^2 T_{\text{cristal}}$$
(4.9)

où  $T_{\text{mesuré}}$  est la transmission mesurée,  $\left(\frac{n-1}{n+1}\right)^2$  est le facteur de transmission dû aux réflexions de Fresnel (où  $n_i$  est successivement l'indice de réfraction ordinaire,  $n_o = 1,85$ , et l'indice extraordinaire,  $n_e = 1,76$ , pour les polarisations respectivement perpendiculaire et parallèle à l'axe du cristal) et où  $T_{\text{cristal}}$  est la transmission du cristal seul. On obtient ainsi, des transmissions de respectivement 39 % et 49 % pour les polarisations parallèle et perpendiculaire.

D'où vient la différence observée entre ces transmissions théoriques et celle observées sur la figure 4.6 pour les faibles énergies? Dans le modèle décrit par l'équation (4.6), seul le paramètre d'absorption non saturable,  $\alpha$ , permettrait de l'expliquer et on obtiendrait des valeurs de  $\alpha$  de respectivement 0,3 et 0,6 cm<sup>-1</sup>. Ce sont des valeurs considérables, correspondant à une perte de 20 % de l'énergie en absence de dopant. Par ailleurs, l'étude de la transmission du dispositif sans cristal, qui permet normalement de calibrer la lame de verre (voir figure 4.3) fait apparaître une nonlinéarité des détecteurs et des décrochages lors des changement de calibres (voir figure 4.7).



FIG. 4.7 – Rapport entre les énergies mesurées aux détecteurs 2 et 1 en fonction de l'énergie réféchie par la lame de verre mesurée par le détecteur 1 (voir figure 4.3) pour deux longueurs d'onde du laser (expérience sans cristal). Que la transmission de la lame de verre dépende de la longueur d'onde ne nécessite que de calibrer pour chaque longueur d'onde mais on observe une non linéarité à faible énergie et un décrochage lors du changement de calibre. Ceux-ci sont quasiment invisibles sur la courbe de l'énergie mesurée par le détecteur 1 en fonction de celle mesurée par le détecteur 2 (voir encadré) mais sont succeptibles d'affecter la mesure de transmission du cristal.

C'est ainsi que nous avons été limités dans l'expérience car l'augmentation de l'énergie des impulsions introduit une destruction du cristal, et l'usage du téléscope n'a permis d'observer qu'une transmission constante. L'observation d'autres longueurs d'onde n'a pas plus permis de faire apparaître de variation de la transmission attribuable sans ambiguité à la saturation du cristal (voir figure 4.8).



FIG. 4.8 – Transmission du cristal en fonction de l'énergie des impulsions pour des polarisations parallèle et perpendiculaire à l'axe du cristal et pour différentes longueurs d'onde. La décroissance de la transmission est due à la destruction du cristal et aucune augmentation de la transmission, qui puisse être attribuée sans ambiguité au cristal, est observée.

#### 4.1.5 Conclusion

Nous avons réalisé plusieurs tentatives de mesure de transmission du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB en fonction de l'énergie d'impulsion dans le domaine de longueur d'onde d'absorption par l'état fondamental et le domaine d'énergie significatif du modèle décrit par l'équation

$$\frac{dE}{dz} = -h\nu N_0 (1 - \frac{\sigma_{ESA}}{\sigma_{GSA}})(1 - \exp(-\frac{\sigma_{GSA}E}{h\nu})) - N_0 \sigma_{ESA}E - \alpha E$$
(4.10)

Aucune variation de la transmission n'a été observée qui puisse être attribuée sans ambiguité (due aux non linéarités des détecteurs) au cristal.

Avant interprétation supplémentaire, il convient probablement de remettre en question le modèle utilisé et notament le schéma en quatre niveaux ainsi que les temps de dynamique entre niveaux (voir figure 4.1).

Cependant, toute tentative en ce sens, a été, jusqu'à présent, infructueuse face à notre ignorance des mécanismes de relaxation entre niveaux d'énergie. A cette fin, des expériences annexes seraient nécessaires comme la mesure du temps de vie des niveaux excités sous pompage par absorption d'un rayonnement autour de 410 nm (transition  ${}^{4}A_{2} \rightarrow {}^{4}T_{1}$ ).

### 4.2 Mesure par la technique de Z-scan de l'indice non linéaire du CSB

#### 4.2.1 Introduction

Dans cette section, nous allons étudier la non linéarité de l'indice de réfraction du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB.

En effet, jusqu'à présent, nous nous sommes interrogés sur la variation de l'indice en fonction de la fréquence (dispersion), en fonction de la polarisation (biréfringence), en fonction de la température (lentille thermique) et dans cette section, nous nous intéresserons à la dépendance de l'indice de réfraction en fonction de l'intensité de la lumière.

En d'autres termes, l'indice de réfraction du cristal est-il le même pour un faisceau incident de 1  $W/cm^2$  et un faisceau de 100  $GW/cm^2$ , cent mille millions de fois plus intense? La réponse est "non" mais, tous les matériaux ne sont pas égaux devant la non linéarité.

Nous verrons qu'on distingue essentiellement deux types de non linéarité : la non linéarité de type  $\chi_2$  et la non linéarité de type  $\chi_3$ . Mais de quoi s'agit-il et qu'en est-il du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB? Quelles sont les propriétés liées à l'indice non linéarie?

#### 4.2.2 Qu'est-ce que l'indice non linéaire?

Dans les lois de Descartes et de Fresnel, l'indice de réfraction apparaît comme une propriété de la matière : l'indice vaut 1 pour le vide, 1,5 pour le verre, 1,33 pour l'eau et 1,8 pour le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB. Quand on étudie la diffraction d'un front d'onde par une lentille, l'indice apparaît comme le rapport entre la vitesse de propagation d'une onde plane dans un milieu matériel et sa vitesse de propagation dans le vide.

Mais il est essentiel de garder en mémoire que l'indice de réfraction décrit un des aspects de l'interaction de la lumière et de la matière et qu'il dépend aussi bien des caractéristiques de la matière que des caractéristiques de la lumière.

Pour s'en convaincre, prenons le point de vue des équations de Maxwell couplées aux équations constitutives de la matière et rappelons ce modèle en quelques mots dans les cas où l'intensité de la lumière incidente, n'est pas et est, suffisamment intense pour mettre en évidence des effets dits non linéaires.

Dans les quatre équations de Maxwell (équations (4.11a)) ainsi que les deux équations constitutives du milieu matériel (équations (4.11b)), la lumière est modélisée par un champ électromagnétique et le milieu matériel est représenté en termes de densité de polarisation induite par couplage avec le champ électromagnétique (faisons l'hypothèse d'un milieu diélectrique pour lequel les charges et courants sont nuls ainsi que l'intensité d'aimantation).

$$\operatorname{rot} \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \qquad \operatorname{div} \vec{D} = 0$$

$$\operatorname{rot} \vec{H} = +\frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \qquad \operatorname{div} \vec{B} = 0$$

$$(4.11a)$$

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \qquad \qquad \vec{B} = \mu_0 \vec{H} \qquad (4.11b)$$

où  $\vec{E}$  est le champ électrique,  $\vec{D}$  le champ de déplacement,  $\vec{H}$  le champ magnétique et  $\vec{B}$  l'induction magnétique enfin,  $\vec{P}$  est la densité de polarisation,  $\epsilon_0$  est la permittivité du vide et  $\mu_0$  la perméabilité du vide, ici égale à la perméabilité du milieu.

Si le milieu est isotrope (pas de biréfringence), on suppose que la polarisation est parallèle au champ électrique, ce qui permet de réduire le système d'équation (4.11) à un système d'équation à une dimension, celle de l'amplitude des champs considérés, en posant  $\vec{E} = E \vec{1}_x$ ,  $\vec{H} = H \vec{1}_y$ ,  $\vec{D} = D \vec{1}_x$ ,  $\vec{B} = B \vec{1}_y$  et  $\vec{P} = P \vec{1}_x$ .

Si l'amplitude du champ électrique est suffisamment faible, on suppose que la polarisation est proportionnelle au champ électrique (équation (4.12a)), ce qui, avec (4.11b), définit la permittivité du milieu,  $\epsilon = \epsilon_0 + \epsilon_0 \chi = \epsilon_0 \epsilon_r$ , comme le rapport entre les amplitudes du champ de déplacement et du champ électrique,  $D = \epsilon E$ .

Après un petit calcul, on trouve l'équation de propagation de la lumière dans le milieu comme ayant pour seule différence avec le vide, sa vitesse de propagation (équation (4.12b)), égale à  $c = \frac{1}{\sqrt{\epsilon_0 \mu_0}}$  dans le vide et à  $v = \frac{c}{n} < c$  dans le milieu matériel (où  $n = \sqrt{\epsilon_r}$ ).

Ainsi, "coté" équations constitutives, l'indice est la racine carrée de la permittivité relative du milieu,  $\epsilon_r$ , qui traduit la polarisation induite dans la matière par couplage avec le champ électromagnétique et "coté" équations de Maxwell, l'indice est le rapport des vitesses de propagation du champ électromagnétique dans le diélectrique et dans le vide (voir équation (4.12c)).

$$P = \epsilon_0 \chi E \quad \rightarrow \quad D = \epsilon_0 (1 + \chi) E \quad (4.12a)$$

$$\Delta E = \frac{1}{v^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} \qquad \text{avec} \qquad v^2 = \frac{1}{\epsilon_r(\epsilon_0 \mu_0)} = \frac{c^2}{n^2} \tag{4.12b}$$

$$n = \sqrt{\epsilon_r} = \sqrt{1 + \chi}$$
 ou  $n = \frac{c}{v}$  (4.12c)

Au niveau atomique, l'indice est relié, par une théorie semi-classique, à une polarisation du noyau et du nuage électronique de chaque atome, moyennée sur les concentrations de chaque élément. C'est dans la complexité de cette interaction microscopique que se trouvent les dépendances de l'indice de réfraction en fonction de la fréquence et de la direction de polarisation du champ électrique (dispersion et biréfringence), en fonction de la température du milieu matériel ... et en fonction de l'amplitude du champ électrique.

Si l'amplitude du champ électrique est élevée, la polarisation n'est plus simplement proportionnelle au champ électrique (équation (4.12a)) mais peut être développée en termes de puissances de celui-ci (équation (4.13)),

$$P = \epsilon_0 \chi_1 E + \epsilon_0 \chi_2 |E|^2 + \epsilon_0 \chi_3 |E|^2 E + \dots$$
(4.13)

où nous voyons apparaître ce que, dans l'introduction, nous avons appelé la non linéarité de type  $\chi_2$  et  $\chi_3$ : le  $\chi_2$  est la non linéarité à la base des processus de génération paramétrique optique, la génération de seconde harmonique, ... tandis que le  $\chi_3$ est à l'origine de la génération de troisième harmonique mais aussi de l'effet Kerr. [9]

Si  $\chi_2$  est négligeable (cas des cristaux centro-symétrique), sachant qu'en fait,  $|E|^2$  est proportionnel à l'intensité de la lumière, nous pouvons appliquer le même raisonnement que celui qui a mené à la définition de l'indice linéaire et obtenir une équation de propagation (équations (4.14)) où la vitesse de propagation, dépend maintenant, en plus, du module carré du champ électrique.

Selon les équations (4.14) l'indice de réfraction présente alors un terme linéaire,  $n_0$ , et un terme non linéaire,  $n_2$ , et on peut décrire une non linéarité de type  $\chi_3$  en termes d'indice non linéaire. Cette modélisation constitue le principe de base de l'expérience de Z-scan que nous allons décrire.

$$D = \epsilon_0 E + P = \epsilon_0 (1 + \chi_1 + \chi_3 |E|^2) E$$
(4.14a)

$$\Delta E = \frac{1}{v^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} \qquad \text{avec} \qquad v^2 = \frac{1}{\epsilon_r(\epsilon_0 \mu_0)} = \frac{c^2}{n^2(|E|^2)} \tag{4.14b}$$

$$n = \sqrt{\epsilon_r} = \sqrt{1 + \chi_1 + \chi_3 |E|^2}$$
  
=  $\sqrt{1 + \chi_1} \left(1 + \frac{1}{2} \frac{\chi_3}{1 + \chi_1} |E|^2\right)$   
=  $\sqrt{1 + \chi_1} + \frac{\chi_3}{2\sqrt{1 + \chi_1}} |E|^2$   
=  $n_0 + \frac{n_2}{2} |E|^2$  (4.14c)

D'après les équations (4.14c), nous avons  $n_0 = \sqrt{1 + \chi_1}$  et  $n_2 = \chi_3/n_0$ . Si, en plus, nous appliquons la relation  $I = \epsilon_0 c |E|^2$  (où I est l'intensité du faisceau), on peut définir l'indice par la relation  $n = n_0 + \gamma I$  avec  $n_0 = \sqrt{1 + \chi_1}$  et  $\gamma = \frac{\chi_3}{2\epsilon_0 c n_0}$ .

Une petite application numérique concernant le cristal non linéaire de KTP est donnée au tableau 4.5.

$\mathbf{P}_{m}$	= 10,8	mW	puissance du laser
$n_0$	$\simeq 1.8$		indice de réfraction
$\chi_2$	$\simeq 1$	pm/V	succeptibilité d'ordre 2
$\gamma$	$\simeq 1 \ 10^{-15}$	$cm^2/W$	coefficient d'indice non linéaire
εo	$= 8,85 \ 10^{-12}$	F/m	permittivité du vide
с	$= 3 \ 10^8$	m/s	vitesse de la lumière dans le vide
nous	pouvons en dédui	ire	
X1	$\simeq 2,24$		succeptibilité d'ordre 1
X2	$\simeq 1 \ 10^{-12}$	m/V	succeptibilité d'ordre 2
X3	$\simeq 9.6 \ 10^{-22}$	$m^2/V^2$	succeptibilité d'ordre 3

TAB. 4.5 – Succeptibilité d'ordre 1, 2 et 3 du cristal de KTP.

Par ailleurs, un faisceau de 100 GW/cm<sup>2</sup> (=I) a un champ électrique de l'ordre de  $E \simeq 6, 110^8$  V/m dont nous pouvons tirer les trois premiers termes de la polarisation à partir de l'équation (4.14) et les deux premiers termes de l'indice de réfraction :

$$P = \epsilon_0 (2, 24 + 6 \, 10^{-4} + 3, 6 \, 10^{-4}) E$$
  

$$n = 1, 8 + 1 \, 10^{-4}$$
(4.15)

Par conséquent, même si le KTP est connu comme un cristal non linéaire de type  $\chi_2$ , le  $\chi_3$  ne peut être négligé avec un faisceau de l'ordre de 100 GW/cm<sup>2</sup>. De plus, le terme non linéaire de l'indice de réfraction apparaît bien comme une correction faible (mais non négligeable).

#### 4.2.3 Principe de l'expérience

#### 4.2.3.1 Comment atteindre une telle intensité?

Si on focalise la diode de pompe de 2 W jusqu'à obtenir un rayon de 10  $\mu$ m, l'intensité maximum au centre du faisceau atteint 1 MW/cm<sup>2</sup>, et il est donc impossible de lui faire atteindre une intensité de 100 GW/cm<sup>2</sup>. Seules les sources pulsées permettent ce type d'expérience et plus spécifiquement, nous avons utilisé un laser Ti :saphire MIRA, infrarouge femtoseconde, avec un amplificateur régénératif.

Estimons l'intensité maximum obtenue grâce à ce laser en supposant que le faisceau a un profil spatial gaussien et que les impulsions ont un profil temporel en sécante hyperbolique,

$$I(r,t) = I_0 \exp(-2(r/w_0)^2) \operatorname{sech}(2t/\tau)^2$$
(4.16)

$$\varepsilon = 2\pi \int I(r,t) \, r dr \, dt = I_0 \frac{\pi w_0^2}{2} \, \tau \tag{4.17}$$

où I(r,t) est l'enveloppe spatio-temporelle de l'intensité de l'impulsion,  $\varepsilon$  est l'énergie d'une impulsion,  $I_0$  est l'intensité maximum,  $w_0$  est le rayon du profil gaussien et  $\tau$  est la largeur temporelle de l'impulsion.

Par ailleurs, si  $\nu$  est le taux de répétition du laser et  $P_m$  est sa puissance moyenne, nous avons

$$P_m = \varepsilon \, \nu \tag{4.18}$$

En combinant (4.17) et (4.18), nous obtenons :

$$I_0 = \frac{2}{\pi w_0^2} \frac{1}{\tau} \frac{P}{\nu}$$
(4.19)

Avec les caractéristiques du laser utilisés, données au tableau 4.6, en tenant compte de la focalisation du faisceau au moyen d'une lentille, nous obtenons une intensité maximum de 95 GW/cm<sup>2</sup> : avec ce type de source, nous atteignons l'intensité permettant de révéler les aspects non linéaires de type  $\chi_3$ .

	$ \begin{array}{c} \lambda \\ P \\ \nu \\ \tau \\ w \\ f \\ w_0 \end{array} $	= 780 = 10,8 = 200 = 250 = 0,2 = 5 = 0,0012	nm mW kHz fs cm cm cm	longueur d'onde du laser puissance du laser taux de répétition largeur temporelle des impulsions rayon du faisceau focale de la lentille de focalisation rayon du laser dans le plan focal	
→	I <sub>0</sub>	= 95	$\mathrm{GW/cm^2}$	Intensité maximum	

TAB. 4.6 – Caractéristiques du faisceau laser infrarouge femtoseconde et calcul, à partir de (4.19) de l'intensité maximum des impulsions.

Successivement, nous avons placé deux cristaux  $Cr^{3+}$  :CSB, de longueur différente, dans le faisceau infrarouge femtoseconde, (leur longueur respectivement égale à 1, 3 et 5, 5 mm). A la sortie du cristal fin, au faisceau infrarouge (780 nm) s'ajoute un faisceau bleu d'intensité fonction de l'orientation du cristal et croissante avec la puissance du faisceau infrarouge incident, il s'agit de la génération de seconde harmonique liée au  $\chi_2$  du cristal et dont l'efficacité de conversion est liée à l'accord de phase (ce qui explique la dépendance de l'intensité générée en fonction de l'orientation du cristal).

Dans le cas du cristal épais, nous observons également l'émission d'un faisceau bleu obtenu par la génération de seconde harmonique mais à partir d'une certaine énergie (de l'ordre de 0, 15  $\mu$ J sur une section de rayon  $w \simeq 12 \ \mu$ m), la génération de seconde harmonique est en compétition puis supplantée par une émission visible de toutes les couleurs (qui devient blanche pour des puissances plus élevées). L'intensité et les couleurs dépendent légèrement de l'orientation du cristal ou de sa position par rapport au plan focal du faisceau. Il s'agit d'une génération de supercontinuum [1]. Deux photographies sont représentées à la figure 4.9.

#### 4.2.3.2 Principe de l'expérience : lentille non linéaire et Z-scan

Nous avons vu qu'avec une source pulsée dont les impulsions ont une largeur temporelle de l'ordre de la centaine de femtosecondes, nous pouvions atteindre le niveau d'intensité pour lequel la non linéarité de type  $\chi_3$  est non négligeable. L'expérience de Z-scan permet de la mettre en évidence qualitativement et quantitativement.



FIG. 4.9 – Photo du faisceau transmis par des cristaux  $Cr^{3+}$  :CSB avec un faisceau infrarouge femtoseconde incident, à gauche, cristal de 5,5 mm de longueur, à droite, cristal de 1,3 mm de longueur.

Pour cela, elle allie deux concepts que nous allons vous présenter : la génération d'un effet de lentille, dans le cristal (grâce à l'indice non linéaire et au profil spatial transverse gaussien des impulsions intenses) et le concept du Z-scan. Cette technique a été réalisée avec succès sur de nombreux cristaux (LN :Mg, KTA, KTP, BBO, LBO, BBO [28], CS<sub>2</sub>, BaF<sub>2</sub>, ZnSe [44]).

Modélisation de la lentille non linéaire.

Section (4.2.2), nous avons rappelé que l'indice de réfraction du cristal, vu par un faisceau incident, peut être décomposé en un terme constant et un terme proportionnel à l'intensité du faisceau (appelé indice de réfraction non linéaire).

$$n = n_0 + \frac{n_2}{2} |E|^2$$

$$= n_0 + \gamma I \quad \text{avec} \quad \gamma = \frac{1}{2} n_2 \epsilon_0 c \qquad (4.20)$$

L'indice non linéaire étant proportionnel à l'intensité de l'impulsion, si le faisceau a un profil transverse gaussien, au sein du cristal, l'indice non linéaire suivra le même profil gaussien : l'indice total (si  $\gamma$  est positif) sera donc plus élevé sur l'axe de propagation du faisceau, là où l'intensité est maximum, que sur les bords du faisceau, là où l'intensité tend vers zéro.

Le même raisonnement peut être appliqué au point de vue temporel : si l'impulsion a un profil en sécante hyperbolique au carré, nous supposerons que l'indice non linéaire suivra le même profil.

A cause de la variation transverse et temporelle de l'indice de réfraction du milieu, la vitesse de propagation de l'impulsion présente une dépendance transverse et temporelle, ce qui introduit une distorsion de la phase en sortie du cristal dont voici le modèle développé par la référence [44].

Supposons le cristal placé, dans un faisceau focalisé au moyen d'une lentille, à une distance z du plan focal. Au point de vue spatial, outre le profil transverse gaussien, si le faisceau est focalisé au moyen d'une lentille, nous obtenons, pour le champ électrique incident, la relation

$$E(z,r,t) = E_0(t) \ \frac{w_0}{w(z)} \ \exp(-\frac{r^2}{w^2(z)} - \frac{ikr^2}{2R(z)}) \ e^{i\phi(z,t)}$$
(4.21)

où z et r sont les coordonnées cylindriques (avec z, selon la direction de propagation du faisceau et l'origine placée au plan focal),  $w^2(z) = w_0^2 (1 + z^2/z_0^2)$  est le rayon du faisceau,  $R(z) = z (1 + z_0^2/z^2)$  est le rayon de courbure du front d'onde en z,  $z_0 = kw_0^2/2$  est la distance de Rayleigh,  $k = 2\pi/\lambda$  est le vecteur d'onde et  $\lambda$  est la longueur d'onde (dans le vide).  $E_0(t)$  représente le champ électrique au niveau du "waist" du faisceau (et contient essentiellement l'enveloppe temporelle de l'impulsion laser).  $e^{i\phi(z,t)}$  contient toute variation de phase tranversalement uniforme.

Calculons la variation de phase transverse,  $\Delta \phi(r)$ , due à l'interaction du cristal et du champ électrique lors de sa propagation dans celui-ci. Pour cela, plusieurs hypothèses simplificatrices sont faites : premièrement, l'approximation de l'enveloppe lentement variable (SVEA) ; deuxièmement, nous supposerons que la diffraction ("normale") du faisceau est négligeable dans le cristal, soit  $L < z_0$ , troisièmement, que la diffraction du faisceau due aux effets non linéaires est également négligeable dans le cristal, soit  $L < z_0/\Delta \phi(0)$ ). Dans ce cas, les deux équations (4.22) modélisent l'intensité du faisceau, I(z, r, t) et la variation transverse de la phase  $\Delta \phi$  en fonction de la distance de propagation dans le cristal, z'.

$$\frac{d\Delta\phi}{dz'} = \Delta n(I(z, r, t)) k$$

$$\frac{dI(z, r, t)}{dz'} = -\alpha(I(z, r, t)) I(r, z, t)$$
(4.22)

Où  $\alpha(I)$  couvre l'absorption linéaire et non linéaire. Après intégration de ces deux équations sur la longueur L de cristal, si l'absorption non linéaire est faible, la dépendance de  $\Delta\phi(z, r, t)$  en r et z reproduit simplement la dépendance de l'intensité, I(z, r, t), en r et z. La variation transverse de la phase à la sortie du cristal répond alors à l'équation

 $\Delta\phi(z,r,t) = \Delta\phi_0(z,t) \exp\left(-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right)$   $\Delta\phi_0(z,t) = \frac{\Delta\Phi_0(t)}{1+z^2/z_0^2}$ (4.23)

avec

où  $\Phi_0(t)$ , la différence de phase sur l'axe et dans le plan de focalisation, est définie par

$$\Delta \Phi_0(t) = k \Delta n_0(t) L_{\text{eff}} \tag{4.24}$$

où  $L_{\text{eff}} = (1 - e^{-\alpha L})/\alpha$  (avec L, la longueur du cristal et  $\alpha$ , l'absorption linéaire) traduit l'intégration qui a été faite sur la propagation dans le cristal et  $\Delta n_0(t)$  est égal à  $\gamma I_0(t)$  où  $I_0(t)$  est l'intensité sur l'axe au niveau du "waist" (où nous avons négligé les réflections de Fresnel sur les surfaces du cristal). Compte-tenu de la diffraction non-linéaire, le champ électrique à la sortie du cristal répond à l'équation

$$E_e(z, r, t) = E(z, r, t) e^{-\alpha L/2} e^{i\Delta\phi(z, r, t)}$$
(4.25)

Comparons la diffraction due à l'indice non linéaire à celle introduite par une lentille plan convexe de profil transverse inconnu et supposons que la variation transverse de la phase, intégrée sur l'épaisseur maximale de la lentille, est donnée par la relation (4.26a). En identifiant ces deux équations (4.24) et (4.26a), on trouve le profil de la lentille équivalente aux effets non linéaires et donné par l'équation (4.26b).

$$\Delta\phi(z, r, t) = k\Delta n \,\Delta L(r) \tag{4.26a}$$

$$\Delta L(r) = L_0 - L(r) = \pm \frac{L_{\text{eff}}}{1 + z^2/z_0^2} \left(1 - \exp(-2\frac{r^2}{w^2(z)})\right)$$

$$\Delta n = n - 1 = |\gamma| I_0(t)$$
(4.26b)

Où  $\Delta n$  est la variation d'indice entre le milieu constituant la lentille et l'air et  $\Delta L(r)$  est la variation transverse de l'épaisseur de la lentille. Outre l'absorption du faisceau dans le cristal, le champ électrique sortant,  $E_e$ , présente une distorsion de phase comparable à celle due à une lentille de profil gaussien, dont le profil dépend de la position du cristal, dont le signe de la vergence correspond au signe du coefficient non linéaire ( $\gamma$  positif correspond à une lentille convergente et réciproquement) et dont la différence d'indice (par rapport à l'indice de l'air) dépend du temps comme l'enveloppe temporelle de l'intensité de l'impulsion.

Une propriété remarquable de la distorsion de phase introduite par le cristal non linéaire est sa forte décroissance en fonction de z, position du cristal par rapport au "waist" du faisceau, c'est pourquoi au-delà de quelques longueurs de Rayleigh, elle est quasi nulle.

Principe du Z-scan

Nous avons vu que l'interaction du faisceau femtoseconde avec le cristal introduit une diffraction supplémentaire au faisceau à la manière d'une lentille. Le principe du Z-scan est d'étudier cette pseudo-lentille en la déplaçant pas à pas sur la direction de propagation d'un faisceau focalisé, de part et d'autre de son plan focal.

Observons l'effet de cette pseudo-lentille sur le faisceau quand elle est placée avant et après le plan focal sur la figure 4.10 (cas d'une lentille convergente) et plus précisément la conséquence sur la puissance mesurée par un détecteur placé après un diaphragme loin du plan focal.

Si la pseudo-lentille est convergente et placée avant le plan focal, elle tend à accentuer la convergence du faisceau et, à cause de l'augmentation conséquente du rayon du faisceau sur le diaphragme, diminuer la puissance transmise au détecteur. Inversément, si la pseudo-lentille est placée juste après le plan focal, elle tend à réduire la divergence du faisceau, ainsi que le rayon de celui-ci sur le diaphragme, et augmenter la puissance mesurée par le détecteur.

Par conséquent, si on déplace pas à pas la lentille, de telle sorte qu'elle passe par le plan de focalisation, nous observerons une diminution suivie d'une augmentation de la puissance mesurée par le détecteur. La variation de puissance détectée est d'autant plus grande que la vergence de la pseudo-lentille est forte.

Cependant, si la lentille est remplacée par le cristal non linéaire, nous savons que sa vergence équivalente décroit très vite quand on s'écarte du plan focal de quelques longueurs de Rayleigh. Par conséquent, de part et d'autre du plan focal, pour les positions du cristal plus éloignées, la puissance transmise au détecteur devient constante et égale à sa valeur pour z = 0.

Ainsi, l'expérience de Z-scan consiste à déplacer pas à pas un cristal non linéaire de part et d'autre du plan focal d'un faisceau et de mesurer, pour chaque position, la puissance transmise par un diaphragme placé au delà du plan focal, et met en évidence la non linéarité du cristal grâce à la variation, en vallée-pic, de la puissance transmise par le diaphragme. Le signe de la non linéarité est directement accessible si on constate que dans le cas d'une non linéarité positive (lentille équivalente convergente), la position du cristal avant le plan focal correspond à la diminution de la puissance transmise (vallée) et la position du cristal après le plan focal, à l'augmentation de la puissance transmise (pic).

Tout le raisonnement précédent peut être appliqué pour un cristal dont la non linéarité est négative. Dans ce cas, la lentille équivalente est divergente et la transmission a un comportement en pic-vallée, le pic correspondant au cristal placé avant le plan focal et la vallée correspondant au cristal après le plan focal.

Signalons qu'une technique analogue (et plus sensible) consiste à remplacer le diaphragme par un petit cache circulaire (complémentaire au diaphragme). Dans ce cas, les raisonnements ci-dessus sont simplement inversés, [52]. Par ailleurs, l'expérience de Z-scan présente des analogies avec l'étude de la lentille thermique dans le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB (étudiée section 3.5.2). Nous avions vu qu'un faisceau gaussien a une diffraction propre minimale qui le rend, comparativement à celle-ci, plus sensible à la diffraction introduite par une lentille. De même que dans le cas de la lentille thermique, on peut supposer qu'un faisceau supergaussien ne permettrait pas une expérience de Z-scan aussi sensible.



FIG. 4.10 – Principe de Z-scan : une lentille mobile (convergente ((a) et (b)) ou divergente ((c) et (d)) est placée dans un faiceau, focalisé au moyen de la lentille fixe, respectivement avant ((a) et (c)) et après le plan focal ((b) et(d)); tandis qu'un diaphragme est placé au-delà des lentilles devant un détecteur. (a) La lentille mobile convergente se situe avant le plan de focalisation virtuel du faisceau, elle tend à précipiter sa convergence, augmenter le rayon du faisceau sur le diaphragme et, ainsi, diminuer la puissance transmise par le diaphragme, (b) la lentille convergente se situe après le plan focal du faisceau, elle tend à réduire la divergence du faisceau, diminuer le rayon du faisceau sur le diaphragme et, ainsi, augmenter la puissance transmise par le diaphragme, au détecteur. (c) La lentille mobile divergente se situe avant le plan de focalisation virtuel du faisceau, elle tend à réduire sa convergence, diminuer le rayon du faisceau sur le diaphragme et, ainsi, augmenter la puissance transmise par le diaphragme, (d) la lentille divergente se situe après le plan focal du faisceau, elle tend à augmenter la divergence du faisceau, augmenter le rayon du faisceau sur le diaphragme et, ainsi, diminuer la puissance transmise par le diaphragme, au détecteur.

## 4.2.3.3 Deux effets supplémentaires : l'absorption non linéaire et les défauts du cristal

#### Comment tenir compte de l'absorption non linéaire?

L'absorption à deux photons introduit une dépendance de l'absorption du cristal en fonction de sa position, en effet, le passage du "waist" augmente l'absorption du faisceau, ce qui diminue directement l'intensité transmise. La dépendance de la transmission en fonction de la position du cristal, due à l'absorption non linéaire, est aisément mesurée par le même dispositif que décrit ci-dessus, si on enlève le diaphragme. La figure 4.12 montre le résultat d'une telle expérience dans le cas du CSB.

Par conséquent, la mesure de la puissance transmise au détecteur par le diaphragme résulte de la superposition des deux effets non linéaires. Mais, si l'absorption non linéaire est faible, on peut supposer qu'elle n'a qu'un effet négligeable sur la variation transverse de la phase et qu'en faisant le rapport des transmissions normalisées, avec diaphragme et sans diaphragme, on obtient la variation de transmission due uniquement à l'indice non linéaire (voir référence [44]).

#### Comment s'affranchir de l'effet des défauts du cristal?

Un autre problème est rencontré si des défauts dans le cristal ou sur l'une de ses surfaces affectent la transmission du faisceau en fonction de la position du cristal (en accentuant localement la diffraction du faisceau). Avec une réflexion analogue à celle décrite au paragraphe précédant, on s'affranchit de ce problème en soustrayant, à la transmission normalisée à haute puissance, la transmission normalisée obtenue à faible puissance (on suppose qu'à faible puissance, les effets non linéaires étant négligeables, la fonction de transmission est liée uniquement aux défauts). Ce procédé est également décrit et justifié à la référence [44].

#### 4.2.4 Montage expérimental

Le dispositif expérimental est décrit à la figure 4.11. Le laser est un laser Mira (Cohérent) suivi d'un amplificateur régénératif. Les caractéristiques des impulsions de ce laser et les paramètres de l'expérience sont ceux utilisés au paragraphe (4.2.3.1), rappelés au tableau 4.7. Le cristal est un cristal de CSB de 1,3 mm de long et dopé au  $Cr^{3+}$  à 0,5  $10^{20}$  cm<sup>-3</sup>.

Le rayon du laser au niveau du plan focal a été mesuré grâce à mesureur de profil, cette mesure a donné un rayon gaussien,  $w = 12 \,\mu\text{m}$ . Un rapide calcul, compte tenu de la relation  $w_0 = \frac{M^2 \lambda f}{\pi w}$ , donne  $M^2 = 1,5$  (qui correspond aux spécifications de l'amplificateur qui garantit un  $M^2$  inférieur à 2) et donne  $z_0 = 1,7$  mm qui est bien supérieur à la longueur du cristal.

Ρ	= 10,8	mW	puissance du laser
ν	= 200	kHz	taux de répétition
λ	= 780	nm	longueur d'onde du laser
au	= 250	fs	largeur temporelle des impulsions
w	= 0,2	cm	rayon du faisceau en sortie du laser
f	= 50	mm	focale de la lentille
$w_0$	= 0,012	mm	rayon du faisceau dans le plan focal
L	= 1,3	mm	longueur du cristal
d	= 50	mm	distance entre le plan focal et le diaphragme
$\boldsymbol{S}$	= 40		transmission movenne du diaphragme

TAB. 4.7 - Paramètres de l'expérience de Z-scan sur le cristal Cr<sup>3+</sup> :CSB.



FIG.  $4.11 - Dispositif permettant de réaliser l'expérience de Z-scan, mesurant l'indice non linéaire du cristal <math>Cr^{3+}$  :CSB. Le laser est un laser infrarouge femtoseconde, le faisceau est focalisé par une lentille de 50 mm de focale, le cristal est fixé sur une table de déplacement micrométrique pilotée par l'ordinateur (déplacement de part et d'autre du plan de focalisation du faisceau laser), enfin, à 50 mm du plan focal, se trouve un diaphragme juste avant le mesureur de puissance relié à l'ordinateur. L'expérience consiste à mesurer la puissance transmise au détecteur par le diaphragme en fonction de la position du cristal par rapport au plan focal du faisceau.

#### 4.2.5 Mesures

L'expérience de Z-scan a été réalisée plusieurs fois sur le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB de 1,3 mm de long. Les paramètres de l'expérience sont rappelés au tableau 4.7 et deux courbes de transmission relative pour différentes positions du cristal de part et d'autre du waist sont données à la figure 4.12 (correspondant à deux points d'impacts différents dans le cristal.

Chacune des figures comprend l'expérience avec et sans diaphragme, l'expérience sans diaphragme mettant en évidence la présence d'absorption non linéaire. Les deux expériences ayant, pour seule différence, le point d'impact du faisceau dans le cristal, mais présentant des variations de transmission d'ordre de grandeur différent (10% dans le premier cas et 50% dans le deuxième) on peut soupçonner une inhomogeïnité du cristal et, peut-être, la présence de défauts locaux déformant la réponse du cristal à l'expérience de Z-scan ([15], [35]).

Il aurait été dès lors nécessaire de réaliser l'expérience de Z-scan à faible puissance (voir (4.2.3.3)), afin de pouvoir séparer la variation de transmission due aux défauts et inhomogeïnités et celle liée à l'indice non linéarité. Comme nous ne disposons pas de ce résultat, nous devrons nous contenter d'une interprétation qualitative des résultats.

La mise en forme des résultats passent par trois étapes : premièrement, normaliser la transmission avec diaphragme par la transmission moyenne, deuxièmement, faire de même avec la transmission sans diaphragme et troisièmement, faire le rapport entre la transmission normalisée avec diaphragme et la transmission normalisée sans diaphragme.

Sur la courbe de transmission, ainsi obtenue, l'alternance vallée-pic (dans les deux expériences) indique que l'indice non linéaire du  $Cr^{3+}$  :CSB est positif. Par ailleurs, la référence [44] donne une relation entre la différence de transmission normalisée et la différence de phase maximum :

$$\Delta T_{p-v} = 0,406 \, (1-S)^{0,25} \, |\Delta \Phi_0| \quad \text{pour} \quad |\Delta \Phi_0| < \pi \tag{4.27}$$

Par cette formule, nous obtenons  $|\Delta \Phi_0| = 0, 25$ , or comme  $|\Delta \Phi_0| = \frac{2\pi}{\lambda} \gamma I L$ , où I est la valeur moyenne de l'intensité maximale (sur l'axe de propagation et dans le plan focal) dans l'enveloppe temporelle de l'impulsion. Etant donné que nous obtenons un produit  $\gamma I$  de l'ordre de  $310^{-5}$ , pour une intensité maximum de 100 GW/cm<sup>2</sup>,  $\gamma$  est de l'ordre de  $610^{-16}$ cm<sup>2</sup>/W (compte tenu du rapport 2 entre la valeur moyenne et la valeur maximum de l'intensité).

Cette valeur d'indice non-linéaire situe le CSB un peu en-dessous de la valeur du KTP ( $\gamma_{\rm KTP} \simeq 1 \, 10^{-15} {\rm cm}^2/{\rm W}$ , référence [28]).



FIG. 4.12 - Expérience de Z-Scan réalisée en deux points du cristal. Pour chaque expérience, nous avons sur la même figure, la transmission (normalisée par la transmission moyenne) respectivement avec et sans diaphragme, ainsi que la différence entre les deux, ramenée autour de 1 (pour la lisibilité du schéma), en fonction de la position longitudinale du cristal. Les expériences sans diaphragme, correspondant à l'absorption non-linéaire, présentent une absorption forte et symétrique autour du plan focal, mais la figure (au-dessus) montre une brisure forte lors du passage du plan focal qui trahit, peut-être, l'existence de défauts dans le cristal. De même, la dissymétrie du comportement en "vallée-pic" de la différence de transmission et la non reproductibilité du cristal et nécessitent des expériences supplémentaires en vue d'une détermination quantitative de l'indice non linéaire du Cr<sup>3+</sup> :CSB. Cependant, le comportement en "vallée-pic" implique un signe positif à l'indice non linéaire dont nous avons calculé une estimation qualitative à partir d'une variation de

#### 4.2.6 Conclusion

Nous avons placé le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB dans un faisceau laser infrarouge femtoseconde et observé non seulement la génération de seconde harmonique mais aussi la génération de supercontinuum mettant en évidence les aspects non-linéaire  $\chi_2$  et  $\chi_3$ . Par ailleurs, en vue d'une détermination quantitative du  $\chi_3$ , nous avons réalisé une expérience de Z-scan sur un cristal de 1,3 mm de long. L'expérience n'a pas bénéficié de tout les approfondissements nécessaires dus aux défauts ou inhomogeïnités du cristal, mais nous avons défini un signe positif pour l'indice non linéaire et un ordre de grandeur pour  $\gamma$ , de 6  $10^{-16}$  cm<sup>2</sup>/W.

## Chapitre 5

# Génération laser dans le cristal Cr<sup>3+</sup> :CSB pompé par un laser à colorant pulsé

#### 5.1 Introduction

Au chapitre 1, nous avons étudié le spectre d'absorption du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB, ainsi que le spectre d'émission dans le proche infrarouge lié à la transition  ${}^{4}A_{2} \leftarrow {}^{4}T_{2}$ . Au chapitre 2, nous avons étudié le méchanisme de "thermal quenching" et démontré une réduction faible du rendement quantique de la transition radiative à température ambiante. Bien qu'au chapitre 3, l'étude du spectre d'absorption par les états excités semble démontrer une réduction forte de la section efficace d'émission effective par absorption due à la transition  ${}^{4}T_{2} \rightarrow {}^{4}T_{1}$ , dans ce chapitre, nous allons décrire un dispositif permettant d'observer le processus laser dans le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB.

Dans un premier temps, nous avons pompé le cristal à l'aide d'une diode de puissance de 2,3 W à 660 nm. Mais ce dispositif s'est révélé insuffisant pour dépasser le seuil du laser et nous l'avons remplacé par un laser à colorant impulsionnel (présenté au chapitre 4). Bien que ce type de pompe ne réponde pas à l'intérêt technologique du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB en tant que cristal laser dans le proche infrarouge, elle nous a permis de démontrer la génération laser du cristal et valider la mesure de gain effectif dans le proche infrarouge. Cette expérience a été réalisée en collaboration avec le département de physique de l'université de Krasnodar et plus particulièrement avec Mr I. V. Voroshilov, et a fait l'objet d'un article [3].

### 5.2 Dispositif expérimental

Pour obtenir une génération laser à partir du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB, il nous faut une source de pompage optique. Le spectre d'absorption (figure 1.7) indique la possibilité de générer une densité d'ions  $Cr^{3+}$  excités par absorption d'un rayonnement autour de 460 nm ou de 650 nm. Dans les deux cas, le spectre d'émission du cristal est une bande large dans l'infrarouge proche (autour de 900 nm) signature de la transition  ${}^{4}A_{2} \leftarrow {}^{4}T_{2}$ . Pour cette transition, une source de pompage autour de 650 nm aura un rendement quantique maximum supérieur,  $\simeq \frac{650}{900} \simeq 72\%$  (échauffant moins le cristal) qu'une source de pompage autour de 460 nm (rendement quantique maximum  $\simeq \frac{460}{900} \simeq 51\%$ ).

Outre la source de pompage optique, nous avons opté pour un oscillateur de géométrie plan-convexe et d'une longueur de quelques centimètres, composé d'une part par un traitement dichroïque hautement réfléchissant autour de 850 nm, sur une des faces polies du cristal et d'autre part par un miroir semi-réfléchissant de transmission égale à 1% autour de 850 nm et de rayon de courbure égal à 50 mm. Afin de minimiser les pertes, le traitement dichroïque du cristal est complété d'un traitement antireflet autour de 650 nm (longueur d'onde de la pompe) et d'une traitement antireflet autour de 850 nm sur l'autre surface du cristal.

#### Premier dispositif de pompage : diode las er continue de 2,3 W à 660 nm

Le rayonnement cette diode est injecté dans une fibre multimode dont le diamètre du coeur est de 115  $\mu$ m et dont l'ouverture numérique est de 0, 2. En sortie de la fibre, une lentille de focale égale à 4,5 mm est placée à environ une fois et demi la distance focale afin de focaliser le rayonnement dans le cristal à 3 fois la distance focale de la lentille avec un diamètre d'environ 230  $\mu$ m.

A cela, nous avons ajouté un dispositif de refroidissement du cristal, composé d'une lame de saphir (de 0,8 mm d'épaisseur) traitée antireflet autour de 650 nm et appliquée contre la surface d'entrée de cristal; et d'un élément Peltier asservi à température ambiante (percé d'un trou de 3 mm afin de laisser le passage au rayonnement de la diode laser).

Lorsque que tous ces éléments sont mis en place et que la diode émet un maximum de puissance, nous ajoutons, à la sortie de l'oscillateur, un filtre (pour éliminer le reste de pompe non-absorbé par le cristal) et un mesureur de puissance à tête sensible dans l'infrarouge proche, afin de mesurer la luminescence émise par l'oscillateur. Ensuite, l'orientation du miroir de sortie de l'oscillateur est ajustée pour maximiser pas à pas la luminescence émise. Si tout se passe bien, nous devrions détecter la génération laser par l'apparition d'un spot brillant au milieu de la surface sensible du détecteur.

Bien que cette démarche soit efficace avec le cristal  $Cr^{3+}$  :LISAF (voir chapitre 6), avec le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB, aucun réglage ne semble convenir. La puissance de luminescence augmente bien avec l'ajustement du miroir de sortie, garantissant ainsi que le cristal pompé est effectivement un milieu amplificateur, mais, apparemment, l'oscillateur n'atteint pas le niveau de seuil correspondant à l'égalisation du gain et des pertes.

#### Deuxième dispositif de pompage : laser à colorant impulsionnel de 80 mJ à 650 nm

Nous avons réalisé la même expérience avec un laser colorant émettant des impulsions de 10 ns et 80 mJ à 650 nm, avec un taux de répétition de 10 Hz. Il s'agit du même laser que celui utilisé pour l'expérience de mesure de l'absorption par les états excités au chapitre 4. Nous avons également adapté les conditions de focalisation de ce laser de pompe en plaçant simplement une lentille de focale de 1000 mm grâce à laquelle nous savons que le faisceau de pompe a un rayon de 200  $\mu$ m dans le cristal (voir section (4.1.3.2)). Ce nouveau dispositif est représenté à la figure 5.1. Le réglage progressif de l'orientation du miroir de sortie du laser Cr<sup>3+</sup> :CSB n'a pas tardé à réaliser la génération laser.



FIG. 5.1 – Schéma expérimental permettant d'observer la génération laser dans un cristal  $Cr^{3+}$  :CSB. Le laser est pompé par un laser à colorant émettant des impulsions de 10 ns à 650 nm et d'énergie égale à 80 mJ. La puissance de pompe est modifiée grâce à un jeu de densités neutres. L'oscillateur est composé du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB dont une des faces est traitée par un traitement dichroïque (à haute réflectivité autour de 850 nm et antireflet autour de 650 nm) et d'un miroir de sortie semi-réfléchissant (de transmission égale à 1%) et de rayon de courbure égal à 50 mm. En sortie de l'oscillateur, un filtre coloré absorbe le reste de pompe permettant l'analyse du rayonnement laser grâce aux différents dispositifs : un joulemètre mesure la puissance, une photodiode reliée à un oscilloscope permet la détection du profil temporel des impulsions et un monochromateur permet de mesurer la longueur d'onde du rayonnement laser.

#### 5.3 Résultats

#### Caractéristique de puissance du laser Cr<sup>3+</sup> :CSB

Nous avons relevé la puissance du laser  $Cr^{3+}$  :CSB en fonction de la puissance de pompage. La puissance du laser  $Cr^{3+}$  :CSB est mesurée au moyen d'un joulemètre (voir figure 5.1) tandis que la puissance de pompage est augmentée pas à pas grâce à un jeu de densités neutres placées sur le faisceau de pompe avant l'oscillateur. Cette caractérististique est représentée à la figure 5.2. L'énergie des impulsions de pompe est limitée non pas par la puissance du laser à colorant mais bien par la destruction systématique du traitement dichroïque du cristal pour des énergies supérieures à 4 mJ, nécessitant de déplacer transversalement le cristal afin de retrouver une fenêtre optique favorable. La figure 5.2 indique un seuil de 2 mJ et une efficacité de 13%.



FIG. 5.2 – Energie des impulsions du laser  $Cr^{3+}$  :CSB en fonction de l'énergie des impulsions de pompe.

#### Enveloppe temporelle des impulsions du laser Cr<sup>3+</sup> :CSB

Dans l'expérience précédente, le joulemètre indiquant l'énergie des impulsions du laser  $Cr^{3+}$  :CSB ne présente pas une réponse stable, d'un coup sur l'autre du laser de pompe. La curiosité nous a amené à remplacer ce joulemètre par une photodiode de type "Thorlabs Det-210" de bande passante supérieure à 100 MHz et d'observer sur un oscilloscope, déclenché sur la pompe, l'enveloppe temporelle des impulsions du laser  $Cr^{3+}$  :CSB. Il apparaît qu'elles n'ont effectivement pas systématiquement la même énergie (aire sous l'enveloppe temporelle) et qu'elles alternent sur les 5 enveloppes stables représentées à la figure 5.3. Dans l'encadré de cette figure, nous constatons que le délai varie entre 0, 2 et 0, 6  $\mu$ s pour une largueur temporelle constante de 0, 25  $\mu$ s (sauf pour l'enveloppe d'énergie minimum). Enfin, l'energie des impulsions varient entre 100% et 10% de l'énergie maximum <sup>1</sup>.

Nous n'avons pas examiné plus avant les raisons de cette dynamique si ce n'est que la différence de délai peut être mise en corrélation avec un temps de montée de la luminescence de 0, 5  $\mu$ s à 1, 5  $\mu$ s observé lors de l'étude du "thermal quenching",

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Si vous êtes curieux, allez voir ce que ça devient dans l'article [3]!

décrite au chapitre 2. Elle consistait à pomper le cristal avec une diode laser de 1 W, émettant des impulsions de 100 ns à 665 nm et d'observer la cinétique de la luminescence. On avait alors observé que le maximum de luminescence n'apparaissait qu'après un délai de 0,5  $\mu$ s à 1,5  $\mu$ s, pour ensuite décroître exponentiellement en fonction de la durée de vie de l'état excité. Nous avions alors émis l'hypothèse d'une dynamique de transition entre les niveaux <sup>2</sup>E et <sup>4</sup>T<sub>2</sub> lors d'un pompage à 665 nm régie par le passage d'une petite barrière de potentiel dont la probabilité pourrait être suffisamment faible pour qu'un délai dit de "buildup" de la luminescence soit observable. Mais rappelons également que nous avions appelé à une grande prudence concernant la vérification expérimentale de cette hypothèse.



FIG. 5.3 – Puissance des impulsions laser en fonction du temps, à puissance de pompe constante. Le schéma expérimental permettant d'obtenir ces résultats est décrit à la figure 5.1. Il apparaît que l'enveloppe des impulsions du laser  $Cr^{3+}$  :CSB n'est pas reproductible d'un coup sur l'autre du laser de pompe. Cependant, une alternance entre ces cinq enveloppes représentées, a été observée. Elles ont été numérotées par énergie croissante et caractérisées (en fraction de l'énergie maximum) par leur énergie, leur délai de déclenchement par rapport à l'impulsion de pompe et leur largeur temporelle, dans l'encadré. Ainsi, l'énergie des impulsions laser, à puissance de pompe constante, varie entre 10% et 100%, le délai entre l'impulsion de pompe et l'impulsion du laser  $Cr^{3+}$  :CSB varie entre 0,2  $\mu$ s et 0,6  $\mu$ s tandis que la largeur temporelle reste de l'ordre de 0,2  $\mu$ s (sauf pour l'impulsion de plus faible énergie).

Longueur d'onde d'émission du laser Cr<sup>3+</sup> :CSB

En plaçant un monochromateur "M25-HUET" après le laser  $Cr^{3+}$  :CSB (voir figure 4.3), nous avons mesuré la longueur d'onde des impulsions, elle vaut 877 nm et correspond apparemment bien avec le maximum de la section efficace d'émission effective mesurée au chapitre (3).

#### 5.4 Etude du seuil

Nous avons essayé, sans résultat, de remplacer le miroir de sortir par un miroir de courbure identique mais de transmission égale à 2% et 3%. Avec ce type de miroir, on s'attend à observer une caractéristique seuil et de pente plus élevés mais, apparemment, le seuil du laser est, dans ce cas, plus élevé que le seuil de dommage du traitement dichroïque.

Quelle remarque peut-on faire à propos du seuil du laser? Essayons de définir quels facteurs entrent en jeu. Le faisceau de pompe dans le cristal a un profil transverse gaussien de rayon égal à 0,25 mm, il est peu diffracté dans le cristal (distance de Rayleigh de l'ordre de 20 cm) et est exponentiellement absorbé selon un paramètre  $\alpha = N_0 \sigma_{GSA} \simeq 2,8 \text{ cm}^{-1}$ , si on néglige les effets de saturation et d'absorption par les états excités (voir chapitre 4).

Par ailleurs, la cavité est de type plan-convexe dont la courbure du miroir sphérique est de 50 mm. Si nous négligeons les effets de lentille thermique et de lentille induite par le gain, nous avons (voir référence [47]) une relation donnant le waist du mode fondamental de la cavité :

$$\rho_0^4 = (\frac{\lambda}{\pi})^2 L(R - L)$$
 (5.1)

où  $\rho_0$  est le waist de la cavité situé sur le miroir plan,  $\lambda$  est la longueur d'onde, L est la longueur de la cavité et R est la courbure du miroir sphérique. Cette relation donne un "waist" maximum de 84  $\mu$ m pour une longueur de cavité de 25 mm et un "waist" de 81  $\mu$ m dans notre cas, où la longueur de la cavité est de 17 mm (avec une distance de Rayleigh de l'ordre de 23 mm, donc une faible diffraction du faisceau laser dans le cristal). Par ailleurs, étant donné que la pompe est impulsionnelle, les effets thermiques (et donc la lentille thermique) sont beaucoup plus faibles que dans le cas de la pompe continue.

Avec ces paramètres nous pouvons calculer l'absorption de l'impulsion de pompe dans le cristal (équation (5.2a)). De celle-ci, on tire la densité d'états excités (équation (5.2b)) en supposant une efficacité quantique,  $\eta_p$ , du processus de pompage (sachant que sur l'échelle de temps étudiée, les processus de désexcitation spontanée sont négligeables). Le "waist" de la cavité se trouvant dans le cristal avec un rayon 3 fois plus faible que la pompe, nous pouvons considérer que la densité d'états excités est quasi constant et nous pouvons estimer l'amplification du cristal pour un aller-retour par l'équation (5.2c), compte-tenu de l'efficacité quantique du processus d'émission,  $\eta_e$ , de l'ordre de 90 % à température ambiante (voir chapitre 2).

$$\frac{dE(r,z)}{dz} = -\alpha E(r,z) = -\alpha \frac{2E_0}{\pi w^2} \exp(-\alpha z - 2\frac{r^2}{w^2})$$
(5.2a)

$$N_e(r,z) = \frac{\eta_p}{h\nu} \left(-\frac{dE(r,z)}{dz}\right) = \frac{\alpha}{h\nu} \frac{2E_0}{\pi w^2} \exp(-\alpha z - 2\frac{r^2}{w^2})$$
(5.2b)

$$G = 2\eta_e \int_0^L \sigma_{\text{eff}} N_e(0, z) \, dz = \frac{4\eta_p \eta_e \sigma_{\text{eff}} E_0}{h\nu \pi w^2} (1 - e^{-\alpha L})$$
(5.2c)

où E(r, z) est la densité d'énergie des impulsions de profil transverse gaussien et de durée de 10 ns (avec z et r, les coordonnées cylindriques);  $\alpha$  est le coefficient d'absorption linéaire de la pompe (égal à  $\sigma_{GSA}N_0$  où  $\sigma_{GSA}$  est la section efficace d'absorption et  $N_0$  la concentration en dopant  $\operatorname{Cr}^{3+}$ );  $E_0$  est l'énergie des impulsions de pompe; w est le "waist" de la pompe dans le cristal; h est la constante de Planck;  $\nu$  est la fréquence optique de la pompe;  $\eta_p$  et  $\eta_e$  sont les rendements quantiques de pompage et d'émission; L est la longueur du cristal et  $\sigma_{\text{eff}}$  est la section efficace d'émission effective.

Par ailleurs, l'énergie de seuil du laser correspond à l'égalité du gain et des pertes, celles-ci étant dues au miroir de sortie (de transmission égale à 1%) et aux pertes propres au cristal. Si nous évaluons la relation (5.2c) avec l'énergie des impulsions au seuil du laser ( $E_0 = 2 \text{ mJ}$ ) et avec la section efficace d'émission stimulée effective maximum mesurée qu chapitre 3 (voir figure 3.34),  $\sigma_{\text{eff}} = 0,5 \, 10^{-20} \text{ cm}^2$ , nous obtenons un gain de l'ordre de 5 % pour une efficacité de pompage maximum,  $\eta_p = 100$  % (paramètres rappelés au tableau 5.1).



TAB. 5.1 – Paramètre de la pompe et du cristal au seuil du laser.

La différence entre le gain au seuil du laser et les pertes dues au miroir de sortie peut être attribuée soit aux défauts optiques du cristal lui-même soit à un faible rendement quantique du pompage  $(\eta_p)$ . Celui-ci peut être dû, par exemple, à l'absorption par les états excités du rayonnement de pompage (que nous avions tenté de mesurer et définir sans succès au chapitre 4) ou à de l'upconversion Auger. Dans le premier cas, il serait utile d'améliorer la qualité optique du cristal lors de sa synthèse tandis que dans les deux suivants, outre l'intérêt de la compréhension de ces méchanismes, il pourrait être possible d'augmenter le rendement de pompage par un choix plus adapté de la longueur d'onde de pompage entre 600 nm et 700 nm (voir chapitre 4).

### 5.5 Conclusion

Nous avons démontré la possibilité de génération laser dans le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB pompé par un rayonnement impulsionnel à 650 nm. Limités par le seuil de dommage du traitement dichroïque du cristal, nous avons néanmoins observé une efficacité de 13 % et un seuil de 2 mJ relativement élevé, donnant lieu à deux interprétations possibles à l'échec du pompage par la diode de puissance continue : des pertes

optiques propres aux imperfections du cristal ou un mécanisme d'absorption par les états excités réduisant le rendement quantique de pompage. Par ailleurs, l'enveloppe temporelle des impulsions du laser  $Cr^{3+}$  :CSB montre une instabilité récurrente qui pourrait également être liée aux mécanismes de relaxation entre états excités. En conclusion, bien que laissant de nombreuses questions non résolues, cette expérience a permis de prouver qu'il y avait bien une amplification stimulée effective dans le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB, pompé à 650 nm, permettant un effet laser à 877 nm.
# Chapitre 6

# Développement d'un laser à état solide dans le proche infrarouge pompé par diode laser

# 6.1 Introduction

Le développement d'un laser à état solide, de puissance dans le proche infrarouge, pompé par diode infrarouge, a tout son intérêt dans le laboratoire, sur les expériences de refroidissement d'atomes de rubidium ou césium par interaction avec un rayonnement autour de 780 nm et 852 nm. Non seulement, grâce à une diode de pompe de 2,3 W, nous espérons développer un laser infrarouge de plusieurs centaines de milliwatts mais les lasers à état solide sont connus pour pouvoir osciller sur un mode transverse fondamental efficacement injectable dans une fibre monomode.

L'espoir est d'obtenir une source plus performante que les diodes lasers utilisées à ce jour, qui doivent être complétées par un milieu amplificateur de type "MOPA" et sont relativement difficiles à injecter dans une fibre monomode.

# 6.2 Généralités

### 6.2.1 Milieu à gain

Nous avons fait le choix d'un laser à état solide dont le milieu à gain est un cristal de LiSAF ou LiCAF dopé au chrome. En effet, le  $Cr^{3+}$  :LiSAF et le  $Cr^{3+}$  :Li-CAF présentent une bande d'absorption autour de 650 nm permettant un pompage optique au moyen d'une diode laser rouge de puissance (2,3W). De plus, tous deux présentent une bande de luminescence large dans le proche infrarouge centrée autour de 850 nm pour le  $Cr^{3+}$  :LiSAF et 780 nm pour le  $Cr^{3+}$  :LiCAF, voir figure 6.1. Enfin, leur efficacités sont connues pour n'être suplantées que par l'alexandrite et l'émeraude.

Le principal inconvénient de ces cristaux est la dégradation de leurs propriétés laser au-delà d'une température de 70°C pour le  $Cr^{3+}$  :LiSAF et 260°C pour le Li-CAF, due au phénomène de "thermal quenching" (figure 6.2). C'est pourquoi, le

développement ce type de laser impose un dispositif de refroidissement du cristal performant.

Nous avons choisi des cristaux de forme cylindrique (3 mm de diamètre et 2 mm de long) fortement dopés au  $Cr^{3+}$  de sorte que la pompe soit à 90 % absorbée lors de sa propagation dans le cristal. Le LiSAF et le LiCAF sont des cristaux biréfringents, taillés de sorte que l'axe optique soit parallèle aux surfaces polies du cristal. En outre il a été montré qu'ils oscillaient naturellement sur une seule polarisation parallèle à cet axe.

Un traitement dichroïque est appliqué sur ces cristaux, hautement réfléchissant autour de 850 nm pour le LiSAF et 780 nm pour le LiCAF, et antiréfléchissant autour de la longueur d'onde de pompe, 660 nm. Afin de réduire les pertes de la cavité, la deuxième face du cristal (face interne à la cavité) est traitée antireflet autour de 850 nm pour le LiSAF et 780 nm pour le LiCAF.

## 6.2.2 Le dispositif de pompage

La pompe optique est constituée d'un boitier contenant 6 diodes laser rouges et d'un dispositif optique permettant d'injecter leur rayonnement dans une même fibre multimode (de diamètre de coeur égal à 115  $\mu$ m et d'ouverture numérique égale à 0,22). La puissance des diodes est controlée en courant, manuellement, entre 0 et 1,2 A permettant l'ajustement de la puissance en sortie de fibre entre 0 et environ 2 W suivant les boitiers de diode<sup>1</sup>.

Une lentille de distance focale égale à 4,5 mm est placée à une distance variable de la sortie de la fibre afin d'ajuster le rayon de la pompe dans le cristal (voir tableau 6.1).

<i>l</i> (mm)	w (mm)	<i>l'</i> (mm)
5,99	0,345	18` ´
6,75	0,230	13,5
9	0,115	9

TAB. 6.1 – Caractéristique du "waist" de la pompe après la lentille de distance focale égale à 4,5 mm, où l est la distance entre la sortie de la fibre et la lentille, w est le diamètre du "waist" et l' est la position du "waist" au-delà de la lentille.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Remarquons qu'à puissance de diode maximale 2,3 W de rayonnement sont obtenus pour une puissance électrique de 16 W (1,2 A \* 13,2 V), soit un rendement de 14 %. Si on tient compte de la puissance du dispositif de refroidissement nécessaire à la diode (100 W), le rendement tombe à 2 %. Si on obtient une puissance laser finale de 300 mW (ce qui serait "super") le rendement global serait de 0,3 % ... si on tient compte du rendement de la centrale électrique (50 %)... restons en là, sachons seulement que 99,9 % de l'énergie est dégradée en chaleur quand on allume le laser.



FIG. 6.1 – Spectres d'absorption et d'émission du  $Cr^{3+}$  :LiSAF [37] et du  $Cr^{3+}$  :LiCAF [36]. Tous deux présentent une forte absorption autour de 650 nm (ou 15400 cm<sup>-1</sup>) et une bande d'émission large dans le proche infrarouge.



FIG. 6.2 – Rappel de l'efficacité quantique des cristaux  $Cr^{3+}$  :LiSAF et  $Cr^{3+}$  :LiCAF en fonction de la température. Au delà de 40 °C, celle-ci chute rapidement à cause de la dominance de la désexcitation non radiative de la population excitée. Ce phénomène n'apparaît par contre, pour le LiCAF, pour une température beaucoup plus élevée.

### 6.2.3 La cavité

Nous avons fait le choix d'une cavité courte constituée d'un traitement hautement réfléchissant directement appliqué sur une des faces du cristal et d'un miroir de sortie choisi parmi neuf possibilités données par trois courbures (miroir plan et miroir sphérique de rayon de courbure respectivement égal à 50 mm et 20 mm) et trois transmissions (respectivement 1%, 2% et 3%).

#### Lentille thermique et lentille de gain

Nous verrons qu'une cavité plan-plan est la plus performante, celle-ci est stable par l'action conjuguée de la lentille thermique [29] et la lentille de gain [42]. Les colquiriites dont font partie le LiSAF et le LiCAF ont la particularité d'avoir un coefficient de variation thermique de l'indice négatif compensé par la dilatation du cristal de telle sorte que la lentille thermique est faible et convergente [19], [13]. Dans ce type de cavité, courte et avec une lentille thermique et de gain faible, le mode fondamental "s'adapte" au rayon de la pompe et les modes transverses d'ordre supérieur n'apparaissent que si la cavité est mal alignée.

#### Les modes longitudinaux

La longueur de la cavité peut varier entre la longueur du cristal (2 mm) et quelques centimètres. L'intervalle spectral libre du laser (dû à la cavité "Fabry-Pérot"), est donné par

$$\Delta \nu = \frac{c}{2L}$$

$$\Delta \lambda = \frac{\lambda}{\nu} \Delta \nu = \frac{\lambda^2}{2L}$$
(6.1)

et varie entre 40 GHz et 5 GHz ou entre 0,01 nm et 0,1 nm, où  $\Delta \nu$  et  $\Delta \lambda$  sont les intervalles spectraux libres donnés en fréquence ou en longueur d'onde, c est la vitesse de la lumière et L est la longueur de la cavité (indice du cristal compris), voir figure 6.3.

Remarquons d'ailleurs que l'analyseur de spectre disponible au laboratoire ne descend pas en dessous d'une résolution de 0,07 nm (ce qui sera limitant dans notre cas, voir figure 6.3).



FIG. 6.3 – Intervalle spectral libre du laser en fonction de la longueur de la cavité, en gigahertz (gauche) et en nanomètre (droite). Le cristal impose une longueur de cavité supérieure à 2 mm ( $\simeq 3,4$  mm en longueur optique) et la résolution de l'analyseur optique s'avère insufisante pour résoudre les modes longitudinaux d'une cavité de longueur supérieure à 4 mm.

## 6.2.4 Conclusion, dispositif

En conclusion, le dispositif général, utilisé pour les lasers  $Cr^{3+}$ :LiSAF et  $Cr^{3+}$ :LiCAF, est représenté figures 6.4 et 6.5.



FIG. 6.4 – Rappel du principe de montage du laser  $Cr^{3+}$  :LiSAF et  $Cr^{3+}$  :Li-CAF. le cristal est pompé par le rayonnement d'une diode laser de puissance rouge, dont le faisceau est mis en forme au moyen d'une lentille. La cavité est obtenue par le traitement dichroïque déposé sur la face d'entré du cristal et par le miroir de sortie. Le cristal est refroidi grâce à la mise en contact de sa face d'entrée avec une lame de saphir, elle même refroidie et asservie en température grâce à un Peltier percé.



FIG. 6.5 – Photos du dispositif laser développé.

# 6.3 Laser LiSAF

### 6.3.1 Introduction

Le Cr :LiSAF a été étudié dans de nombreuses configurations. Pompé par un laser Kr de 2,2 W, une puissance de 800 mW à 825 nm a été obtenue [37]. Le LiSAF a aussi été pompé par diode laser de 1 W et une puissance de 200 mW a été obtenue [43]. Dans une cavité en "z" et pompé par un ensemble de diodes de 6 W, un laser de plus d'un watt a également été réalisé [22].

Nous avons choisi un dispositif simple représenté figure 6.4 où le LiSAF est pompé par 6 diodes fibrées d'une puissance d'environ 2 W. Ses caractéristiques sont présentées ci-dessous.

Mais deux inconvénients du cristal ont abrégé l'expérience : premièrement c'est un cristal particulièrement fragile (fragilité du même ordre que celle du verre [20]) qui s'est brisé lorsque nous l'avons serti dans sa monture, deuxièmement, le traitement dichroïque appliqué sur le cristal n'a pas résisté longtemps à la condensation formée sur le cristal et la lame de saphir lors de leur refroidissement (la dissolution du LiSAF par l'eau est de 2,7 mg/(cm<sup>2</sup>jour), valeur 10 fois plus supérieure au LiCAF et plus de 30 fois supérieure au CaF<sub>2</sub> [39]).

## 6.3.2 Profil thermique et efficacité quantique

Puisque que nous parlons de refroidissement, voyons le profil thermique stationnaire dans le cristal et la lame de saphir lors de l'absorption de la pompe. Nous avons simuler le dispositif grâce à un logiciel (Pedease), en symétrie cylindrique, pour les paramètres donnés au tableau 6.2. Ce logiciel permet la simulation de l'équation de la chaleur dans le cristal compte-tenu du profil de la source de chaleur (due à l'absorption de la pompe) et des conditions limites (température fixe du Peltier et convection de l'air sur les surfaces libres). Néanmoins, nous avons fait l'hypothèse d'une conversion moyenne de la puissance de pompe absorbée en chaleur de 50 % (négligeant les aspects non linéaires de la source de chaleur comme le "thermal quenching" et l' "upconversion" Auger [13]).

Les profils résultants sont donnés aux figures 6.6, 6.7 et 6.8. En effet, le cristal  $Cr^{3+}$  :LiSAF voit son efficacité fortement diminuée au delà d'une température de 50 °C, comme le rappelle la figure 6.2 [45]. Il s'agit de dimensionner le dispositif pour ne pas atteindre cette limite.

Dans un premier temps, nous avons mis en évidence l'avantage de la lame de saphir, en comparant les cas de refroidissement par le bord du cristal et refroidissement par la face avant sans et avec saphir, voir figure 6.6.

Dans un deuxième temps, nous avons étudié les conditions de focalisation de la pompe. En effet, la focalisation forte de la pompe permet d'augmenter la densité de pompe absorbée, donc la densité d'ions excités et le gain du cristal mais, en même temps, cela augmente considérablement la température maximum au delà de la température limite de "thermal quenching", 70 °C, voir figure 6.2. Nous voyons que même avec le dispositif de refroidissement comprenant le lame de saphir, le



FIG. 6.6 – Profil thermique dans le cristal  $Cr^{3+}$  :LiSAF chauffé par l'absorption de la diode de pompe et refroidit (a) par sa surface transverse (b) par la face avant sans saphir et (c) par sa face avant avec saphir, tout autres paramètres égaux (donnés au tableau 6.2).

LiSA R <sub>c</sub> L <sub>c</sub> k	F = 1,5 = 2 = $\frac{0,003}{1 + \frac{T - 298}{298}}$	mm mm W/mm/K	rayon du cristal longueur du cristal conductibilité thermique du cristal où $T$ est la température en Kelvin
Saphi R <sub>s</sub> L <sub>s</sub> k	= 4 = 0,8 =	mm mm W/mm/K	rayon du saphir longueur du saphir conductibilité thermique du saphir
$\begin{array}{c} \mathrm{TEC} \\ R_{TEC} \\ T_{TEC} \end{array}$	C = 1,5 C = 0;10;20	mm °C	rayon du trou percé dans le Peltier température du TEC asservi
Pomp P w $\alpha_p$ $\gamma$	= 2 = 0,05;0,10;0,15 = 0,91 = 50	W mm mm <sup>-1</sup> %	puissance de la pompe "waist" (en rayon gaussien) de la pompe coefficient d'absorption de la pompe pourcentage de puissance absorbée convertie en chaleur

TAB. 6.2 - Paramètres utilisés pour simuler les profils de température stationnaire dans le cristal de LiSAF pompé par diode laser et refroidi par uneélément Peltier avec ou sans cristal, voir figures 6.6, 6.7 et 6.8.

"waist" de la pompe est limité à un rayon de l'ordre de 0,15 mm, voir figure 6.7.

Enfin, nous avons montré que la diminution de la température du Peltier asservi, diminuait quasi d'autant la température maximum du cristal, voir figure 6.8. Cependant, descendre en dessous de la température ambiante provoque la formation de condensation sur la lame de saphir et sur le cristal. Non seulement cette condensation altère la propagation de la pompe et du rayonnement du laser mais en plus, elle semble attaquer les traitements appliqués sur les faces du cristal. Par conséquent, l'usage de ce domaine de paramètres nécessite d'isoler le dispositif de toute humidité.



FIG. 6.7 – Profil thermique dans le cristal  $Cr^{3+}$  :LiSAF, refroidit par la face avant avec la lame de saphir, chauffé par absorption de la pompe de profil gaussien (a) de rayon égal à 0,10 mm (b) de rayon égal à 0,05 mm et (c) de rayon égal à 0,15 mm, tout autres paramètres égaux (donnés au tableau 6.2).



FIG. 6.8 – Profil thermique dans le cristal  $Cr^{3+}$  :LiSAF, refroidit par la face avant avec la lame de saphir, elle-même refroidie par un Peltier asservit (a) à une température de 20°C (b) à une température de 10°C et (c) à une température de 0°C, tout autres paramètres égaux (donnés au tableau 6.2).

### 6.3.3 Caractéristique en puissance

Nous avons relevé la puissance du laser  $Cr^{3+}$  :LiSAF pompé par diode laser en fonction de la puissance absorbée et ce pour 6 miroirs de sorties correspondant aux transmissions 1%, 2% et 3% pour les miroirs plan et sphérique de courbure égale à 50 mm, ces caractéristiques sont représentées à la figure 6.9. La puissance absorbée est obtenue en corrigeant la puissance de pompe des réflections sur la lame de saphir (5%) et la face d'entrée du cristal et en tenant compte du coefficient d'absorption.



FIG. 6.9 – Puissance du laser  $Cr^{3+}$  :LiSAF en fonction de la puissance de pompe absorbée, pour les miroirs plan et sphérique (de courbure égale à 50 mm) et pour les transmissions égales à 1%, 2% et 3%.

# 6.3.4 Effet du "thermal quenching"

Suite à l'apparition d'un défaut soit dans le cristal ou au niveau du traitement dichroïque (détectable par l'apparition d'un point brillant près de la face avant du cristal), la puissance du laser  $Cr^{3+}$  :LiSAF ne s'est plus comportée comme à la figure 6.9 mais bien comme sur la figure 6.10. L'apparition du défaut semble provoquer un point chaud qui réduit l'efficacité du cristal et l'annule complètement au-delà d'une certaine puissance. On peut aussi supposer que l'altération du traitement dichroïque du cristal (sur la face avant) réduit l'efficacité de transfert de la chaleur vers la lame de saphir. La chute brutale de la puissance du laser  $Cr^{3+}$  :LiSAF est en relation évidente avec l'efficacité quantique en fonction de la température rappelée à la figure 6.2.



FIG.  $6.10 - Puissance du laser Cr^{3+}$  :LiSAF en fonction de la puissance de pompe, depuis qu'un point chaud s'est formé autour d'un défaut du cristal ou du traitement dichroïque de sa face avant. Ce comportement est obtenu pour un refroidissement plus fort avec une grande disparité de la caractéristique en puissance du laser suivant que la position du waist de la pompe dans le cristal est optimisée sur le seuil ou la puissance totale maximum. La chute brutale de la puissance du laser est en relation évidente avec la dépendance de l'efficacité quantique avec la température, quand apparaît le "thermal quenching".

## 6.3.5 Conclusion

Nous avons mis en évidence les caractéristiques de dispositif de refroidissement permettant de concevoir un pompage de puissance et continu. Le défaut apparu dans le cristal a mis également en évidence la chute abrupte de la puissance du laser lorsque le cristal dépasse une certaine température.

La rupture du cristal  $Cr^{3+}$ :LiSAF a coupé court nos expériences, de même, nous n'avons pas testé la diode de pompe plus puissante et à notre disposition qui aurait permis d'obtenir plus de puissance. Cependant, une puissance de 200 mW avec un rendement de l'ordre de 45 % et un seuil de 450 mW a été mesurée.

Par ailleurs, nous avons mesuré la longueur d'onde du laser : le spectre est fortement multimode et centré autour de 820 nm, nous verrons une étude un peu plus détaillée dans le cas du laser  $Cr^{3+}$  :LiCAF ci-dessous.

# 6.4 Laser LiCAF

#### 6.4.1 Introduction

En vue de développer un laser accordable autour de 780 nm, nous avons monté le cristal  $Cr^{3+}$  :LiCAF dans le dispositif présenté figure 6.4. Référence [36], ce cristal pompé par un laser Kr de 2 W a montré une puissance de 800 mW et une accordabilité entre 720 nm et 840 nm. Notre dipositif permet l'utilisation d'une diode de pompe compacte et nous avons relevé quelques caractéristiques du laser développé. Outre le décalage de son spectre d'émission vers 780 nm, le LiCAF présente l'avantage par rapport au LiSAF, de résister au "thermal quenching" jusqu'à une température plus élévée (210 °C au lieu de 70 °C) et d'avoir une conductibilité thermique un peu plus élevée ( $k_{LiCAF} = 0,0049$  W/K/mm au lieu de  $k_{LiSAF} = 0,003$ W/K/mm). Le dispositif de refroidissement est donc conservé mais nous pourrons focaliser plus la pompe et espérer obtenir un meilleur rendement.

### 6.4.2 Caractéristique du laser

La première caractéristique que nous avons relevé est la puissance du laser en fonction de la puissance de pompe et ce, pour les 6 miroirs de sorties à disposition, correspondant à deux courbures (miroir plan et sphérique de rayon de courbure = 50 mm) et à trois transmissions, de respectivement 1, 2 et 3 %.

Les courbes relevées sont représentées à la figure 6.11. La puissance absorbée est calculée à partir de la caractéristique en courant de la diode de pompe et la mesure des transmissions de la lentille (95 %), de la lame de saphir (93 %) et du cristal (5% de perte par réflection et 84 % d'absorption (moyenne sur les deux polarisations, respectivement parallèle et perpendiculaire à l'axe c du cristal).

Comme l'augmentation de la transmission du miroir de sortie augmente les pertes de la cavité, le seuil du laser augmente bien avec la transmission des miroirs. Par contre, on se serait attendu à ce que les pentes correspondant au miroir de transmission plus élevée soit supérieure à celle correspondant au miroir de transmission 1%. Mais c'est oublier l'hypothèse selon laquelle le rayon du faisceau laser dans le cristal est bien plus petit que le rayon de la pompe. Or, nous verrons au paragraphe (6.4.3) que ce n'est pas le cas avec le miroir plan.

## 6.4.3 Caractéristique de la cavité plan-plan

Outre le choix du miroir de sortie et de la longueur de la cavité, nous avons vu que les modes transverses du laser sont affectés par les lentilles de gain et thermique. Nous n'avons pas développé le modèle complet simulant l'ensemble de ces paramètres mais nous avons mesuré le waist de la cavité pour différentes configurations dans le cas du miroir plan 1%. La méthode employée consiste à mesurer le profil spatial du faisceau à 600 mm du miroir de sortie de la cavité et à calculer le waist correspondant grâce aux relations suivantes : dans le cas de la cavité plan-plan, nous savons que la diffraction du faisceau gaussien répond à la relation



FIG. 6.11 – Puissance du laser LiCAF en fonction de la puissance de pompe absorbée, pour 6 miroirs de sortie différents correspondant à 2 types de courbure (miroir plan et sphérique, de rayon égal à 50 mm) et 3 transmissions égale à 1%, 2% et 3%.

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \frac{z^2}{z_0^2}}$$
(6.2a)

avec

$$z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \tag{6.2b}$$

où w(z) est le rayon gaussien du faisceau laser en fonction de z, distance de propagation depuis le miroir de sortie;  $w_0$  est le waist de la cavité et  $z_0$  est la distance de Rayleigh, fonction du waist et de la longueur d'onde,  $\lambda$ .

En dérivant 6.2 par rapport à z, on trouve l'expression de la divergence du faisceau ainsi que sa divergence asymptotique (pour  $z >> z_0$ ):

$$\frac{dw(z)}{dz} = w_0 \frac{\frac{z}{z_0^2}}{\sqrt{1 + \frac{z^2}{z_0^2}}}$$
(6.3a)

avec pour  $z >> z_0$ 

$$\frac{dw(z)}{dz} = \frac{\lambda}{\pi w_0} \tag{6.3b}$$

Par la mesure du rayon gaussien du faisceau à 600 mm du miroir de sortie, nous pouvons estimer sa divergence asymptotique et appliquer la relation (6.3b) pour déterminer la taille du faisceau dans la cavité (nous pouvons montrer sur les résultats que le mode de la cavité ne subit qu'une très faible diffraction dans la cavité, le rayon du faisceau intracavité est dès lors quasi constant et confondu avec le "waist").

#### Cavité en fonction de la puissance de pompe

En premier lieu, observons l'évolution du waist de la cavité en fonction de la puissance de pompe absorbée dans le cas d'un miroir de sortie plan (de transmission égale à 1 %). Celle-ci est représentée à la figure 6.12. Le deux courbes correspondent à une légère ellipticité du faisceau (probablement due à l'anisotropie des paramètres thermiques). On observe une réduction du "waist" de la cavité lorsque la puissance de pompe augmente, nous pouvons l'attribuer à l'augmentation des lentilles thermiques et de gain.

#### Cavité en fonction de la position de la pompe

Nous avons ensuite étudié l'évolution du "waist" du laser en fonction de la position du "waist" de la pompe dans le cristal. En effet, celle-ci subit une faible mais non négligeable diffraction sur l'épaisseur du cristal (diffraction plus forte que celle du faisceau laser parce que le profil de la pompe, sortant d'une fibre multimode, n'est pas gaussien). Les résultats sont donnés figure 6.13, de même que la caractéristique en puissance correspondant en fonction de la puissance de pompe absorbée.

#### Cavité en fonction de la position du miroir de sortie



FIG. 6.12 – "Waist" intracavité en fonction de la puissance de pompe, la diminution du "waist" est attribuée à l'augmentation des lentilles thermiques et de gain. La longueur de Rayleigh du faisceau, décrivant sa diffraction est de l'ordre de 90 mm (pour une longueur d'onde de 800 nm), assurant ainsi que le rayon du faisceau intracavité varie peu.



FIG. 6.13 - (Au-dessus) "waist" du laser intracavité en fonction de la position du "waist" de la pompe dans le cristal et (en-dessous) caractéristique de puissance du laser en fonction de la position de la pompe correspondante. Le "waist" de la cavité augmente si le rayon de la pompe dans le cristal augmente et inversément. La position la plus farorable consiste à positionner le waist de la pompe au niveau de la première moitié du cristal du coté de la face d'entrée.



FIG. 6.14 – Puissance de pompe absorbée au seuil du laser et gain en fonction de la position du "waist" de la pompe dans le cristal (obtenus par analyse de le figure 6.13 (en-dessous). La configuration idéale correspond à une position relative dite "6 mm", dans ce cas, le "waist" de la pompe se trouve à moins d'un millimètre à l'intérieur du cristal du coté de sa face d'entrée. En effet ; la pompe est fortement absorbée et subit une diffraction faible mais non négligeable sur la longueur du cristal. La situation optimale correspond donc à une densité d'ions excités maximale avec un rayon minimum là où le maximum de pompe est absorbé.

En dernier, nous avons mesuré l'évolution du "waist" du laser en fonction de la longueur de la cavité (en déplaçant pas à pas le miroir de sortie). En même temps, nous avons relevé le seuil du laser et sa puissance maximum. Ces résultats sont donnés à la figure 6.15. Quand la longueur de la cavité augmente, le "waist" augmente, le seuil du laser aussi tandis que la puissance maximum du laser diminue. Nous n'avons pas analysé finement cette relation, mais nous pouvons faire l'hypothèse que des pertes dans la cavité peuvent être liées au rayon du faisceau (comme les pertes par diffraction ou les pertes sur les faces du cristal et du miroir). Nous devons aussi garder à l'esprit qu'au delà d'un "waist" de l'ordre de 0,15 mm, le faisceau laser intracavité devient plus large que le faisceau de pompe, réduisant ainsi l'uniformité de l'interaction.



FIG. 6.15 – (au-dessus) "waist" intracavité en fonction du longueur de la cavité, (en-dessous à gauche) puissance du laser correspondant et (en-dessous à droite) seuil du laser en fonction de la longueur de la cavité. Nous voyons en outre que le seuil du laser limite la longueur de la cavité à 3 centimètres et que plus la cavité est courte plus la puissance du laser est grande.

## 6.4.4 Caractéristiques spectrales

Afin de relever le spectre du laser, nous avons injecté une partie de sa puissance de sortie dans une fibre reliée à un analyseur de spectre optique. Ensuite, nous avons mesuré le spectre du laser en fonction de la puissance de pompe et en fonction de la longueur de la cavité.

#### Spectre en fonction de la puissance de pompe

Le spectre du laser en fonction de la puissance de pompe est donné sur la figure 6.16. On observe d'une part un élargissement rapide de celui-ci ainsi qu'une dérive d'une dizaine de nanomètres entre le seuil du laser et la puissance maximum (de l'ordre de deux fois le seuil). Par ailleurs, il semble réparti en plusieurs "paquets" de modes longitudinaux séparés de 1,3 nm, mais nous verrons que cette caractéristique dépend essentiellement de la longueur de la cavité.

#### Spectre en fonction de la position du miroir de sortie

Nous avons dit que la forme globale du spectre en fonction de la puissance de pompe dépendait fortement de la position du miroir de sortie, plus précisément, il s'agit de la longueur de la cavité. Nous avons tenté d'étudier l'évolution du spectre au fur et à mesure du déplacement longitudinal du miroir de sortie. Nous avons observé l'apparition récurrente de sorte du phénomène suivant : le spectre large et dense semble se séparer en 5 à 10 paquets puis le nombre de paquets diminue au fur et à mesure qu'ils s'élargissement, quand il n'y en a plus qu'un celui-ci se déplace spectralement. Et enfin, le phénomène s'inverse. Le mieux, c'est d'observer la figure 6.17, où sont représentés les spectres obtenus pour les distance cristal-miroir autour de 2,3 mm. Ce phénomène apparaît de manière plus ou moins récurrente et semble être en rapport avec l'accord des modes des sous cavités d'air et de cristal. Cependant, nous ne sommes pas allés beaucoup plus loin dans l'interprétation.

#### Ajout d'une lame de verre

Pour réduire le nombre de mode du laser, nous avons placé une lame de verre, non traitée, de 0,10 mm d'épaisseur dans la cavité. Avec un indice de réfraction de l'ordre de 1,5, ce type de lame a un intervalle spectral libre de 1000 GHz ou 2,1 nm. Nous l'avons successivement placée parallèlement au miroir et légèrement inclinée mais le seuil du laser explose rapidement, puis nous l'avons inclinée autour de l'angle de Brewster. Pour chaque position nous avons relevé, le seuil, la puissance maximum et le spectre du laser. Ces caractéristiques en puissance sont données à la figure 6.19 et les caractéristiques spectrales à la figure 6.20.

L'ajout de la lame parallèle au miroir réduit considérablement le nombre de mode du laser en imposant son intervalle spectral libre mais réduit également la puissance du laser de 35 % (voir figure 6.18). Tandis que l'ajout de la lame à l'angle de Brewster ne diminue la puissance du laser que de quelques pourcent mais n'influence quasiment pas le spectre du laser. Tourner la lame n'ayant apparemment pas de grand



FIG. 6.16 – Spectre du laser en fonction de la puissance de pompe, de gauche à droite et de bas en haut, la puissance de pompe augmente régulièrement entre la puissance juste au-dessus du seuil du laser et 110%, 147%, 170%, 200% et 215% de la puissance de pompe au seuil du laser.



FIG. 6.17 – Spectre du laser en fonction de la distance cristal-miroir de sortie, pour les distances de bas en haut et de gauche à droite respectivement égale à 2,20; 2,28; 2,35; 2,36; 2,40; 2,43; 2,57 mm.

#### 6.4. LASER LICAF

intérêt dans la réduction du spectre.



FIG. 6.18 – Puissance du laser en fonction de la puissance de pompe, sans lame, avec lame parallèle au miroir et à l'angle de Brewster.

Etant donné le faible rayon du mode du laser dans la cavité par rapport à l'épaisseur de la lame, celle-ci ne se comporte pas comme un Fabry-Pérot dès qu'elle n'est plus orthogonale à l'axe de propagation. En effet, après un "aller-retour" dans la lame inclinée, le faisceau est déporté transversalement de  $d = 2l \sin(\beta)$  où d est la dérive du faisceau sur un "aller-retour" de la lame, l est l'épaisseur de la lame et  $\beta$  l'angle d'inclinaison. Ainsi, la transmission de la lame de verre n'est plus égale à un pour ses modes dès qu'elle est inclinée et le seuil du laser reflète cette source de perte. Le seuil diminue cependant autour de Brewster étant donné que le coefficient de réflection diminue.

Quel est l'impact de la lame de verre sur le spectre du laser? Quand elle est parallèle au miroir, la lame de verre réduit considérablement le spectre en imposant ses modes et son intervalle spectral libre (voir figure 6.20). A Brewster, cet effet n'est plus visible et le spectre est semblable au spectre sans lame car la réflection est nulle. Proche de Brewster, l'angle d'inclinaison de la lame est de l'ordre de 56°, la dérive du faisceau sur un "aller-retour" dans la lame, d est donc égal à 0,17 mm et le faisceau (de rayon égale à 0,1 mm) ne revient quasi pas sur lui-même. L'action spectralement sélective de la lame de verre en est fort réduite.

A la lueur de l'impact sur le spectre des rapports de longueurs des sous-cavités, nous avons aussi tenté d'étudier le déplacement de la lame dans la cavité et l'usage de plusieurs lames étalons avec des longueurs de sous-cavités choisies. Ceci a permis un fonctionnement sur un ou deux modes, mais avec une perte de plus de 50% de la puissance du laser. Cependant, il pourrait être intéressant de développement d'une compréhension plus nuancée de l'effet de la lame étalon et du couplage des sous-cavités.



FIG. 6.19 - (A gauche) seuil du laser en puissance de pompe absorbée et (à droite) gain du laser en fonction de l'angle d'inclinaison de la lame de 0,1 mm d'épaisseur. Les pertes introduites par la lame ne laisse qu'un domaine réduit de position : parallèle au miroir et proche de l'angle de Brewster.

#### Montage Litrow

Dans l'idée de sélectionner un des modes (restant avec la lame) nous avons monté un réseau de diffraction "en Litrow" en sortie de la cavité [19]. Préalablement, nous l'avons essayé sans lame. Le montage est représenté figure 6.21 Le réseau de diffraction est long de 10 mm et a 1200 traits par millimètre. La position décrite à la figure 6.21 impose un angle de diffraction de l'ordre de 1 de 0°, et donc un angle d'incidence de 75° (sin  $\theta = -\sin \theta_0 - kn\lambda$ , où  $\theta_0$  est l'angle d'incidence par rapport à la normale,  $\theta$  est l'angle de diffraction, k est l'ordre de réfraction, n est le nombre de trait par millimètre et  $\lambda$  est la longueur d'onde). Cet angle quasi rasant permet également l'éclairement de toute la longeur du réseau de diffraction (et donc de tout son pouvoir de résolution).

Nous avons choisi une longueur de la cavité pour laquelle le spectre est divisé en plusieurs paquets (voir ci-dessus). Sur un diaphragme placé juste après le laser, on peut observer le retour des paquets de modes séparés par le réseau. En ajustant par rotation le réseau et le miroir, on peut sélectionner préférentiellement l'un des paquets, voir figure 6.22. Cependant, sans asservissement des longueurs des souscavités ainsi formées, la puissance totale délivée par l'ordre 0 du réseau de diffraction (réflection) est réduite de plus de 50%.

## 6.4.5 Conclusion

Les lasers LiSAF et LiCAF ont été développé et différentes configurations comparées. Les paramètres d'optimisation qui en découlent semble favoriser une cavité plan-plan la plus courte possible et l'injection de la pompe dans la première moitié



FIG. 6.20 – Comparaisons des spectres obtenus sans lame, avec lame parallèle au miroir, avec lame à l'angle de Brewster et avec lame proche de Brewster. La lame parallèle au miroir est très sélective mais réduit la puissance du laser, la lame à l'angle de Brewster ou proche de Brewster n'influence que très peu le spectre du laser parce que le faisceau ne se recouvre quasi plus après un "aller-retour" dans la lame.



FIG. 6.21 – Montage Litrow permettant une réinjection sélective du spectre du laser. Le réseau sépare le spectre que le miroir renvoit vers le laser. Un diaphragme élimine les composantes désalignées et la réinjection dans le laser favorise le mode réinjecté.



FIG. 6.22 – Sélection de paquets de modes longitudinaux par réinjection du réseau de diffraction dans la cavité (voir figure 6.21), de bas en haut, on a le spectre sans réinjection et les spectres avec réinjection successive des paquets autour de 789 nm, 792 nm, 794 nm et 797 nm.

du cristal. Celle-ci est focalisée sur un rayon de 0,12 mm pour le cristal de LiSAF mais peut l'être plus pour le LiCAF(jusqu'à 0,08 mm). Compte-tenu de cela, des puissances respectivement de l'ordre de 200 mW et 400 mW ont été obtenue pour les lasers LiSAF et LiCAF. Le fonctionnnement de ces lasers est linéairement polarisé, multimode longitudinale et monomode transverse. En vue d'un fonctionnement monomode longitudinal, une lame étalon de 0,1 mm a été introduite dans la cavité ainsi qu' un montage en "Litrow", mais des études plus avancées se révèlent nécessaires.

# Conclusion

Au terme de ce travail, il convient d'en récapituler l'intention et les résultats. Nous avons décrit les propriétes d'absorption de luminescence du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB dans le visible et le proche infrarouge qui permettaient de supposer ses propriétés laser accordables dans le proche infrarouge, par absorption d'un rayonnement de pompe autour de 650 nm et fait de lui un bon candidat pour un laser compact pompé par les diodes lasers rouges.

En caractérisant la dépendance de l'efficacité de ces propriétés d'émission en fonction de la température, nous avons montré sa plus grande "robustesse" à l'extinction thermique ("thermal quenching") par rapport au cristal de LiSAF. Cette qualité devrait permettre, avec efficacité, l'utilisation du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB dans un laser continu pompé par des diodes lasers de puissance.

Cependant, la mesure du spectre d'absorption par les états excités semble démontrer que les propriétés d'émission du cristal  $Cr^{3+}$  :CSB pompé sont fortement altérées par une bande d'absorption par les ions excités dans le proche infrarouge, le cristal pompé par diodes lasers intenses ayant d'ailleurs été un échec. De la génération laser obtenue dans le cristal par pompage du laser impulsionnel, nous avons déterminé un seuil très élevé sans pouvoir, cependant, déterminer sans ambiguité s'il est dû essentiellement aux imperfections optiques du cristal, à l'absorption par les états excités pré-citée ou à un mécanisme non étudié du type "upconversion". A la lueur de ce doute, nous ne pouvons juger définitivement si le cristal  $Cr^{3+}$  :CSB est un "mauvais" cristal laser, mais il reste évident que cette étude apporte un complémentaire utile au développement de nouveaux cristaux lasers.

Finalement, un certain travail de comparaison des propriétés du  $Cr^{3+}$  :CSB avec celles des autres cristaux laser dopés  $Cr^{3+}$  en général et les autres borates en particulier, dervrait permettre une exploitation plus complète des résultats obtenus pour ce nouveau cristal laser<sup>2</sup>.

Par ailleurs, le développement des lasers, à partir des cristaux  $Cr^{3+}$  :LiSAF et  $Cr^{3+}$  :LiCAF, dans le proche infrarouge, pompés par diode laser, a permis une puissance de plusieurs centaines de milliwatts. Le fonctionnement en cavité plan-plan courte est "naturellement" linéairement polarisé, monomode transverse et multimode longitudinal. Les études du spectre longitudinal ne proposent, à ce point, que des pistes de travail visant à rendre le laser monomode en réduisant au minimum sa

 $<sup>^2 \</sup>rm A$  ce sujet, le Laboratoire de Chimie Appliquées de l'Etat Solide à Paris semble être spécialisé dans les borates, http://www.enscp.jussieu.fr/labos/LCAES

puissance. Ainsi, le montage en "Litrow" a montré des possibilités qui ne peuvent être caractérisées plus avant sans un asservissement fin des sous cavités. Enfin, concernant l'introduction dans la cavité d'une ou plusieurs lames étalons, il serait intéressant d'approfondir la possibilité d'exploitation du couplage des sous cavités conséquentes.

# Bibliographie

- [1] S. A. Akhamanov, V. A. Vysloukh, and A. S. Chirkin. *Optics of Femtosecond Laser Pulses*. American Institute of Physics, 1992.
- [2] L. J. Andrews, S. M. Hitelman, M. Kokta, and D. Gabbe. Excited state absorption of  $cr^{3+}$  in  $k_2nascf_6$  and  $gd_3ga_2(mo_4)_3$ ; m = ga, al. J. Chem. Phys., 1986.
- [3] A. De Backer, J. C. Garreau, I. M. Razdobreev, P. Szriftgiser, I. V. Voroshilov, V. A. Lebedev, and E. V. Stroganova. Laser performance of new crystal cr<sup>3+</sup> :(cegd)sc<sub>3</sub>(bo<sub>3</sub>)<sub>4</sub>. Optics Communications, 2003.
- [4] V. Bagini, R. Borghi, F. Gori, A. M. Pacileo, M. Santarsiero, D. Ambrosini, and G. Schirripa Spagnolo. Propagation of axialy symmetric flattened gaussian beams. *Journal of Optical Society of America*, 1996.
- [5] C. J. Ballhausen. Introduction to ligand field theory. McGraw-Hill Book Company, Inc, 1962.
- [6] P. Beaud, M. C. Richardson, Y.-F. Chen, and B. H. T. Chai. Optical amplification characteristics of cr :lisaf and cr :licaf under flashlamp-pumping. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1994.
- [7] Z. Burshtein, P. Blau, Y. Kalisky, Y. Shimony, and M. R. Kokta. Excited-state absorption studies of cr<sup>4+</sup> ions in several garnet host crystals. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1998.
- [8] Z. Burshtein, Y. Shimony, R. Feldman, V. Krupkin, A. Glushko, and E. Galun. Excited-state absorption at 1.57  $\mu$ m in u<sup>2+</sup> :caf<sub>2</sub> and co<sup>2+</sup> :znse saturable absorbers. *Opticals Materials*, 2001.
- [9] P.N. Butcher and D. Cotter. *The elements of nonlinear Optics*. Cambridge University Press, 1993.
- [10] J. A. Caird, S. A. Payne, P. Randall Staver, A. J. Ramponi, L. L. Chase, and W. F. Krupke. Quantum electronis properties of the na<sub>3</sub>ga<sub>2</sub>li<sub>3</sub>f<sub>1</sub>2 :cr<sup>3+</sup> laser. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1988.
- [11] D. Curie. *Champ cristallin et luminescence*. Gauthier-Villars, 1965.
- [12] T. M. Dunn, D.S. McClure, and R. G. Pearson. Some Aspects of Crystal Field Theory. Harper International Student Reprint, 1965.
- [13] J. M. Eichenholz and M. Richardson. Measurement of thermal lensing in cr<sup>3+</sup>doped colquiriites. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1998.
- [14] F. Gori. Flattened gaussian beams. *Optics Communications*, 1994.

- [15] J. A. Hermann and R. G. McDuff. Analysis of spatial scanning with thick optically nonlinear media. *Journal of Optical Society of America*, 1993.
- [16] S. Kück, L. Fornasiero, E. Mix, and G. Huber. Excited state absorption and stimulated emission of nd<sup>3+</sup>in crystals. parti : Y<sub>3</sub>al<sub>5</sub>o<sub>12</sub>, yalo<sub>3</sub> and y<sub>2</sub>o<sub>3</sub>. Applied Physics B, 1998.
- [17] S. Kück, L. Fornasiero, E. Mix, and G. Huber. Excited state absorption and stimulated emission of nd<sup>3+</sup>in crystals. partii : Yvo<sub>4</sub>, gdvo<sub>4</sub> and sr<sub>5</sub>(po<sub>4</sub>)<sub>3</sub>f. Applied Physics B, 1998.
- [18] S. Kück, K. L. Schepler, and B. H. T. Chai. Evaluation of mn<sup>5+</sup>-doped sr<sub>5</sub>(vo<sub>4</sub>)<sub>3</sub>f as a laser material based on excited-state absorption and stimulated measurements. Optical Society of America, 1997.
- [19] R. Knappe, G. Bitz, K.-J. Boller, and R. Wallenstein. Compact single-frequency diode-pumped cr :lisaf lasers. Optics Communications, 1997.
- [20] W. Koechner. Solid-State Laser Engineering. Springer, 1999.
- [21] J. Koetke and G. Huber. Infrared excited-state absorption and stimulatedemission cross sections of er<sup>3+</sup>-doped crystals. Applied Physics B, 1995.
- [22] D. Kopf and U. Keller. 1.1-w cr :lisaf laser pumped by a 1-cm diode array. Optics Letters, 1997.
- [23] N. V. Kuleshov, A. V. Podlipensky, V. G. Shcherbitsky, A. A. Lagatsky, and V. P. Mikhailov. Excited-state absorption in the range of pumping and laser efficiency of cr<sup>4+</sup> :forsterite. *Optics letters*, 1998.
- [24] Y.-K. Kuo, M.-F. Huang, and Milton Birnbaum. Tunable cr<sup>4+</sup> :yso q-switched cr :licaf laser. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1995.
- [25] S. T. Lai, B. T. Chai, M. Long, and R. C. Morris. Scbo<sub>3</sub> :cr a room temperature near-infrared tunable laser. *IEEE Journal of Quantum Electronic*, 1982.
- [26] V. A. Lebedev, V. F. Pisarenko, Y. M. Chuev, V. V. Zhorin, A. A. Perfilin, and A. V. Shestakov. Synthesis and study of non-linear laser crystals cesc<sub>3</sub>(bo<sub>3</sub>)<sub>4</sub>. *Optics and Photonic Series, Stephen A. Payn & Clifford R. Pollock eds., (OSA, Washington, DC)*, 1996.
- [27] H. W. H. Lee, S. A. Payne, and L. L. Chase. Excited-state absorption of  $cr^{3+}$  in lical  $f_6$ : effects of asymmetric distortions and intensity selection rules. *Physical Review B*, 1989.
- [28] H. P. Li, C. H. Kam, Y. L. Lam, and W. Ji. Femtosecond z-scan measurements of nonlinear refraction in nonlinear optical crystals. *Optical Materials*, 2001.
- [29] V. Magni. Resonators for solid-state lasers with large-volume fundamental mode and high alignment stability. *Applied Optics*, 1986.
- [30] D. E. McCumber. Theory of phonon-terminated optical masers. *Physical Review*, 1964.
- [31] R. Moncorgé and T. Benyattou. Excited-state absorption and laser parameters of  $v^{2+}$  in mgf<sub>2</sub> and kmgf<sub>3</sub>. *Physical Review B*, 1988.
- [32] P. R. Morkel, M. C. Farries, and S. B. Poole. Spectral variation of excited state absorption in neodymium doped fibre lasers. *Optics Communications*, 1988.

- [33] N. F. Mott. . Proc. R. Soc. London Ser, 1938.
- [34] P. F. Moulton. Spectroscopic and laser characteristics of ti :al<sub>2</sub>o<sub>3</sub>. Journal of Otical Society of America B, 1986.
- [35] B. M. Patterson, W. Roc White, T. A. Robbins, and R. J. Knize. Linear otpical effects in z-scan measurements of thin films. *Applied Optics*, 1998.
- [36] S. A. Payne, L. L. Chase, H. W. Newkirk, L. K. Smith, and W. F. Krupke. Licaalf<sub>6</sub> :cr<sup>3+</sup> : a promising new solid-state laser material. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1988.
- [37] S. A. Payne, L. L. Chase, L. K. Smith, W. L. Kway, and H. W. Newkirk. Laser performance of lisralf<sub>6</sub> :cr<sup>3+</sup>. Journal of Applied Physics, 1989.
- [38] S. A. Payne, L.L. Chase, and G.D. Wilke. Excited-state absorption of  $v^{2+}$  in kmgf<sub>3</sub> and mgf<sub>2</sub>. *Physical Review B*, 1988.
- [39] S. A. Payne and L. K. Smith *et al.* Properties of  $cr^{3+}$  :lisralf<sub>6</sub> crystals for laser operation. *Applied Optics*, 1994.
- [40] J.-P. Pérez. Optique fondements et applications. Masson Sciences, 2000.
- [41] W. R. Rapoport and M. L. Shand. Excited state absorption and upconversion in cr :lisralf<sub>6</sub>. Solid State Communications, 1992.
- [42] F. Salin and J. Squier. Gain guiding in solid-state lasers. Optics Letters, 1992.
- [43] R. Scheps. Cr-doped solid state lasers pumped by visible laser diodes. Optical Materials, 1992.
- [44] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T.-H. Wei, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1990.
- [45] M. Stalder, M. Bass, and B. H. T. Chai. Thermal quenching of fluorescence in chromium-doped fluoride laser crystals. *Journal of Optical Society of America B*, 1992.
- [46] E. V. Stroganova, V. A. Lebedev, I. V. Voroshilov, A. De Backer, I. M. Razdobreev, and M. G. Brik. Spectroscopic and kinetic investigations of double cerium-scndium borates (Ce,Gd)Sc<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> single crystals doped with trivalent chromium (Cr<sup>3+</sup>:CSB), volume 68. OSA Trends in Optics and Photonics Advanced Solid-State Lasers, Optical Society of America, 2002.
- [47] L. Tarassov. Physique des processus dans les générateurs de rayonnement optique cohérent. Mir Moscou, 1985.
- [48] T. Tsuboi and V. V. Ter-Mikirtychev. Excited state absorption in cr<sup>3+</sup>-doped yab crystals. *Phys. Stat. Sol.* (b), 1996.
- [49] M. E. Vance. Saturation and excited-state absorption in neodymium laser glass. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1970.
- [50] T. Wegner and K. Petermann. Excited state absorption of  $ti^{3+}$  :yalo<sub>3</sub>. Applied Physics B, 1989.
- [51] D. J. Wood, J. Ferguson, K. Knox, and J. F. Dillon. Crystal field spectra of d<sup>3,7</sup> ions.iii. spectrum of cr<sup>3+</sup> in various octahedral crystal fields. *The Journal* of Chemical Physics, 1963.

- [52] T. Xia, D. J. Hagan, M. Sheik-Bahae, and E. W. Van Stryland. Eclipsing z-scan measurement of  $\lambda/10^4$  wave-front distortion. *Otics Letters*, 1994.
- [53] A. Yariv and P. Yeh. Optical Waves in Crystals. John Wiley & Sons, 1984.
- [54] K. V. Yumashev, N. V. Kuleshov, P. V. Prokoshin, and A. M. Malyarevich. Excited state absorption of cr<sup>4+</sup> ion in forterite. *Applied Physic Letter*, 1997.
trois work après me their non kumen n'est plus de remercie cherdreum- ég tru à' tru here, parents, poly, see the F gent were the qui ont contribué di ce que j'ai vear. Cet une contrinne de remonener, je vien vois pas le seus si a vier pas garrané, j'aime la povoque et fourbant par d'en faire trap nitheurban les sensibilités. Vous l'esque le résultat des comprovins révultant. Disons que remerch c'est donner de soi chaque jon, pour le pire et le meilleur. Andrew, c'était bon!