

Développement de nouvelles sources laser femtosecondes à base de cristaux dopés ytterbium et pompés par diode laser

Justine Boudeile

► To cite this version:

Justine Boudeile. Développement de nouvelles sources las er femtosecondes à base de cristaux dopés ytterbium et pompés par dio de las er. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2008. Français. NNT: . tel-00504695v1

HAL Id: tel-00504695 https://pastel.hal.science/tel-00504695v1

Submitted on 21 Jul 2010 (v1), last revised 11 Jul 2012 (v2)

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.





Développement de nouvelles sources laser femtosecondes à base de cristaux dopés ytterbium et pompés par diode laser

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION GENERALE 1

BIBLIOGRAPHIE 6

<u>1.1</u> INTRODUCTION 8

<u>1.2</u> STRATEGIE DU CHOIX DU CRISTAL HOTE 11

| 1.2.1- PROPRIETES SPECTROSCOPIQUES | 11 |
|---|----|
| 1.2.1.1- UN LARGE SPECTRE D'EMISSION | 11 |
| 1.2.1.2- LES CAUSES CLASSIQUES DE LA PRESENCE D'UN LARGE SPECTRE D'EMISSION | 12 |
| 1.2.1.3- SECTIONS EFFICACES ET TEMPS DE VIE DE L'ETAT EXCITE | 14 |
| 1.2.1.4- LA REABSORPTION DANS LES CRISTAUX LASER DOPES YTTERBIUM | 15 |
| 1.2.1.5- CONCLUSION | 15 |
| 1.2.2- UN AUTRE CRITERE TRES IMPORTANT : LA CONDUCTIVITE THERMIQUE | 16 |
| 1.2.2.1- DEFINITION DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE | 16 |
| 1.2.2.2- CONDUCTIVITE THERMIQUE ET CONCENTRATION DU DOPAGE | 17 |
| 1.2.2.3- CONCLUSION | 19 |
| 1.2.3- DES CRITERES ANTAGONISTES, COMMENT CHOISIR ? | 19 |
| 1.2.4- Les principales familles de cristaux utilisees en femtosecond | 20 |

1.3-PRESENTATION DES CRISTAUX CHOISIS POUR LA GENERATIOND'IMPULSIONS FEMTOSECONDES DE PUISSANCE23

| 1.3.1- LA FAMILLE DES FLUORURES | 23 |
|--|----|
| 1.3.1.1- TECHNIQUE DE CROISSANCE ET DONNEES CRISTALLOGRAPHIQUES | 24 |
| 1.3.1.2- Spectroscopie des fluorures | 26 |
| 1.3.1.3- CONDUCTIVITE THERMIQUE ET DILATATION THERMIQUE | 27 |
| 1.3.1.4- Impulsions femtosecondes ? | 28 |
| 1.3.2- LE CALGO | 28 |
| 1.3.2.1- TECHNIQUE DE CROISSANCE ET DONNEES CRISTALLOGRAPHIQUES | 28 |
| 1.3.2.2- Spectroscopie du cristal laser YB:CALGO | 30 |
| 1.3.2.3- LA THERMIQUE : CONDUCTIVITE THERMIQUE ET DILATATION THERMIQUE | 33 |
| 1.3.2.4- IMPULSION FEMTOSECONDE ? | 33 |

<u>1.4-</u> SYNTHESE ET CONCLUSIONS DE CE CHAPITRE 1. 34</u>

BIBLIOGRAPHIE 36

2.1- INTRODUCTION 41

<u>2.2-</u> ETAT DE L'ART 42

| 2.2.1- CONTEXTE : TRAVAUX ANTERIEURS | 42 |
|---|----|
| 2.2.1.1 SUR LES SOURCES DE CHALEUR DANS LES CRISTAUX LASER | 42 |
| 2.2.1.2 SUR LA LENTILLE THERMIQUE | 43 |
| 2.2.1.3 SUR LA CONDUCTIVITE THERMIQUE | 44 |
| 2.2.1.4 DE L'EQUIPE | 44 |
| 2.2.2- POMPAGE LONGITUDINAL PAR DIODE LASER DE PUISSANCE FIBREE | 45 |
| 2.2.3- Le systeme de refroidissement | 46 |

2.3- LES DIFFERENTES SOURCES DE CHALEUR DANS LES CRISTAUX LASER 47

| 2.3.1- QUANTIFICATION ET LES ORIGINES DES DIFFERENTES SOURCES DE CHALEUR AU | U SEIN |
|---|--------|
| DES CRISTAUX LASER | 47 |
| 2.3.1.1- EXPRESSION DE LA FRACTION THERMIQUE | 47 |
| 2.3.1.2- EXPRESSION DU RENDEMENT D'EXTRACTION LASER | 51 |
| 2.3.2- LES CONSEQUENCES DE CES SOURCES DE CHALEUR POUR LE CRISTAL LASER | 53 |
| 2.3.2.1- Les effets thermomecaniques | 53 |
| 2.3.2.2- LES EFFETS THERMO-OPTIQUES | 55 |
| 2.3.2.3- LES EFFETS SUR LES POPULATIONS | 56 |
| 2.3.2.4- CONCLUSIONS | 57 |
| 2.3.3- LA LENTILLE THERMIQUE | 57 |
| 2.3.4- CONCLUSIONS | 61 |

2.4- LE BANC COMPLET DE CARACTERISATION THERMIQUE 62

| 2.4.1- INTERET DE L'ASSOCIATION THERMOGRAPHIE/LENTILLE THERMIQU | 63 |
|---|----|
| 2.4.2- LA THERMOGRAPHIE | 64 |
| 2.4.1.1- CHOIX DE LA GAMME SPECTRALE DE LA CAMERA IR | 64 |
| 2.4.1.2- CALIBRATION REQUISE | 64 |
| 2.4.1.3- Schema experimental detaille | 66 |
| 2.4.1.4- COURBE THEORIQUE POUR LA DISTRIBUTION DE LA CHALEUR | 67 |
| 2.4.3- MESURE DE LA LENTILLE THERMIQUE | 70 |
| 2.4.3.1- PRINCIPE DU DETECTEUR SHACK-HARTMANN | 70 |
| 2.4.3.2- PRINCIPE DE LA MESURE DE LA LENTILLE THERMIQUE | 71 |
| 2.4.3.3- MONTAGE EXPERIMENTAL | 75 |

2.5- DETERMINATION DES PARAMETRES THERMIQUES DES CRISTAUX LASER 79

| 2.5.1- Les aberrations thermiques | 79 |
|--|----|
| 2.5.2- D ETERMINATION DE LA LENTILLE THERMIQUE DES CRISTAUX DOPES YTTERBIUM | 80 |
| 2.5.2.1- SIGNE DES PUISSANCES DIOPTRIQUES MESUREES | 80 |
| 2.5.2.2- CAVITES LASER DE FORTES PUISSANCES | 83 |
| 2.5.3- Etude thermique des fluorures | 86 |
| 2.5.3.1- LE CALCUL DE LA FRACTION THERMIQUE AVEC ET SANS EFFET LASER | 86 |
| 2.5.3.2- DETERMINATION EXPERIMENTALE DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE | 91 |
| 2.5.3.3- CALCUL DU COEFFICIENT THERMO-OPTIQUE POUR LES CRISTAUX DE FLUORURES | 93 |
| 2.5.4- MESURE DU GRADIENT THERMIQUE DU CRISTAL YB:CALGO | 95 |

| 2.5.5- COMPARAISONS THERMIQUES | 96 |
|--|----|
| 2.5.5.1- COMPARAISON ENTRE LES CRISTAUX DE FLUORURES | 96 |
| 2.5.5.2- COMPARAISON ENTRE LE CAF ₂ et le CALGO | 97 |
| 2.5.5.2- COMPARAISON ENTRE LE CAF₂ ET LE CALGO 2.6- CONCLUSIONS DU CHAPITRE 2 97 | |
| BIBLIOGRAPHIE 99 | |

3.1- INTRODUCTION 104

3.2- COMMENT PRODUIRE UNE IMPULSION LASER FEMTOSECONDE ? 104

| 3.2.1 - LE PRINCIPE DU VERROUILLAGE DES MODES EN PHASE | 104 |
|---|-----|
| 3.2.2- Les mecanismes possibles | 106 |
| 3.2.3 – DISCUSSION | 109 |

3.3- ARCHITECTURE DE NOS CAVITES LASER FEMTOSECONDES 110

| 3.3.1- LE VERROUILLAGE PAR EFFET SOLITON GRACE AU SESAM | 111 |
|---|-----|
| 3.3.1.1- LE MODE DE FONCTIONNEMENT | 111 |
| 3.3.1.2- PROPRIETES MACROSCOPIQUES DU SESAM | 113 |
| 3.3.1.4- LE CHOIX DU SESAM | 114 |
| 3.3.2- COMPENSATION DE LA DISPERSION DE VITESSE DE GROUPE | 115 |
| 3.3.2.1- LA NOTION DE DISPERSION | 115 |
| 3.3.2.2- Les methodes de compensation de la dispersion de vitesse de groupe | 118 |
| 3.3.2.3- COMPARAISON ENTRE LES METHODES DE COMPENSATION | 123 |
| 3.3.3- UN AUTRE PHENOMENE A PRENDRE EN COMPTE | 124 |
| 3.3.4- CONCLUSIONS | 125 |

3.4- COMMENT CARACTERISER UN TRAIN D'IMPULSIONS FEMTOSECONDES ? 125

| 3.4.1- L'AUTOCORRELATION | 125 |
|--------------------------|-----|
| 3.4.2- LE FROG | 128 |

3.5- VERS LA PUISSANCE AVEC LE CRISTAL DE CALGO 130

| 3.5.1- Oscillateur de generation 1 | 131 |
|---|-----|
| 3.5.1.1- LA CAVITE LASER | 131 |
| 3.5.1.2 – RESULTATS | 132 |
| 3.5.1.3- EVALUATION DE LA DISPERSION A INTRODUIRE | 133 |
| 3.5.1.4- LE SYSTEME DE POST-COMPRESSION | 133 |
| 3.5.1.5- Les resultats | 134 |
| 3.5.2- Oscillateur de generation 2 | 135 |
| 3.5.2.1- CONTROLE DE LA DISPERSION DES DIFFERENTES OPTIQUES | 135 |
| 3.5.2.2- LA CAVITE LASER | 136 |

| 3.5.3.3- RESULTATS | 137 |
|--|-----|
| 3.5.3- Oscillateur de generation 3 | 139 |
| 3.5.3.1- LA CAVITE LASER | 139 |
| 3.5.4.2- Les resultats | 139 |
| 3.5.4.3- UN LASER BI-COULEUR | 140 |

<u>3.6-</u> VERS LA PUISSANCE AVEC LE CRISTAL CAF₂ 141

3.6.1- LA CAVITE LASER 141 3.6.2- LES RESULTATS 143

3.7- CONCLUSIONS 143

| 3.7.1- CONCLUSIONS SUR LES OSCILLATEURS A BASE DE YB:CALGO ET DE YB:CAF ₂ | 143 |
|--|-----|
| 3.7.2- PERSPECTIVES | 144 |
| 3.7.2.1- SUPPRESSION DU MIROIR DICHROÏQUE | 145 |
| 3.7.2.2- SUPPRESSION DU SESAM : REGIME KLM | 147 |

BIBLIOGRAPHIE 148

CONCLUSION GENERALE 152

TABLEAU RECAPITULATIF DES CARACTERISTIQUES DES PRINCIPAUX CRISTAUX LASER DANS LA GENERATION D'IMPULSIONS FEMTOSECONDES 156

EXPRESSIONS ANALYTIQUES DE L'ABSORPTION DANS UNE STRUCTURE ELECTRONIQUE QUASI-TROIS NIVEAUX 158

LISTE DES DIFFERENTES PUBLICATIONS ET CONFERENCES LIEES A CES TRAVAUX DE THESE 162

Introduction générale

En 1917, Albert Einstein en discutant des lois de la physique atomique introduisit pour la première fois l'idée de l'émission stimulée. Ce phénomène physique postule qu'il est possible de désexciter un atome par l'intermédiaire d'un photon. Lors de cette désexcitation, un photon identique et aux mêmes caractéristiques que le photon initiateur est alors produit. Il apparaît alors possible de multiplier les photons, et donc de faire de l'amplification de photons et de créer ainsi un laser, acronyme signifiant « Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation ». De nombreux phénomènes physiques ont dû être démontrés avant l'apparition du laser comme le pompage optique par A. Kastler en 1950 [Kastler 50] et la création du MASER (« Microwave Amplification by Stimulated Emission of Radiation ») en 1953 par J. P. Gordon, H. J. Zeiger et C. H. Townes [Gordon 54]. Mais ce n'est en 1960 que le physicien Théodore Maiman démontre pour la première fois une source laser grâce à un cristal de rubis [Maiman 60] en reprenant l'idée d'une cavité résonante émise par C. Townes et A. Schawlow [Schawlow 58].

Les lasers trouvent très rapidement leur place dans des applications industrielles. En 1965, un laser à rubis a permis de percer un diamant sur une surface de 4,7 mm et d'une profondeur de 2 mm [Wilson 83]. En 1967, 2,5 mm d'acier inoxydable sont découpées à une vitesse de 1m par minute sous atmosphère de dioxygène avec un laser à CO₂ de 300 W [Hilton 02]. Destiné à l'usinage dans les premières années de sa découverte, le laser s'est maintenant rendu indispensable dans la vie courante. En effet, depuis 1974, les lasers servent à la lecture des codes barres mais ce n'est réellement qu'en 1982 que les lasers commencent réellement à s'imposer dans la vie courante par la lecture et l'écriture des CDs [Schouhamer Immink 98].

Les lasers, utilisés dans la vie courante, sont principalement des lasers continus, ce qui signifie que le faisceau laser a une émission continue dans le temps, et à faibles puissances. Pourtant, le premier laser crée à partir de rubis par Maiman était un laser impulsionnel, délivrant des impulsions de l'ordre de la milliseconde (10⁻³ s). Grâce à ce genre de sources laser, des scientifiques ont découvert voir confirmé des phénomènes physiques initiés par des lasers impulsionnels comme l'optique non-linéaire. En effet, l'intérêt des lasers impulsionnels est la concentration de l'énergie de l'impulsion sur une courte durée. Il est donc possible d'obtenir des puissances crêtes relativement importantes et il devient alors possible de faire apparaître de nouveaux phénomènes physiques comme les effets non-linéaires.

Bien que les impulsions soient de l'ordre de la milliseconde, les chercheurs ont souhaité produire des impulsions encore plus courtes pour observer des phénomènes plus rapides mais également pour obtenir des puissances crêtes de plus en plus élevées. Dans les années 80 arrive l'ère des lasers femtosecondes ou fs $(10^{-15}$ secondes) avec les démonstrations de 700 fs en 1974 [Shank 74] et 300 fs en 1976 [Ruddock 76]. Mais à quoi correspond une femtoseconde ? En sachant que la lumière fait presque 8 fois le tour de la Terre en une seule seconde, elle parcourt donc 30 µm, correspondant à l'épaisseur d'un cheveu humain, pendant 100 fs.

Mais pourquoi les scientifiques souhaitent accéder à des impulsions laser dont la durée soit aussi courte ? Tout d'abord, elles permettent l'observation de phénomènes très rapides comme la dissociation d'une liaison chimique entre deux atomes ou les modes de vibrations moléculaires dans certaines molécules. On parle alors du domaine de la « femtochimie ». L'exemple d'une étude avec des impulsions femtosecondes de l'iodo-cyanique ICN est représenté *Figure I.1* Zewail *et al* réussit à observer un stade transitoire juste au moment où la



liaison I-C allait disparaître; la durée totale de réaction est de 200 femtosecondes [Roberts 95].

<u>Figure I.1:</u> Exemple de la femtochimie : dissociation de l'iodo-cyanique ICN* \rightarrow I +CN

Ensuite, plus l'impulsion est courte temporellement, plus la puissance crête par impulsion est élevée. Il est alors possible de tester les matériaux soumis à de fortes énergies (conditions extrêmes) et/ou de mesurer leur seuil de dommage. Ensuite, en micro-usinage on préfère l'utilisation de lasers femtosecondes pour des découpes ou des gravures plus propres qu'avec des impulsions plus longues, comme des impulsions nanosecondes (10^{-9} s) . En effet, l'utilisation d'impulsions femtosecondes évitent l'échauffement des zones avoisinantes comme le prouve la *Figure I.2* (on parle d'usinage athermique).



<u>Figure I.2</u>: Exemples de gravures avec des impulsions nanosecondes (ns 10⁻⁹ s) comparées aux gravures via des impulsions femtosecondes

D'autre part, la médecine et la biologie requiert de plus en plus de sources laser femtosecondes. Tout d'abord, les lasers femtosecondes sont utilisés en chirurgie oculaire comme la découpe de capot cornéen en chirurgie réfractive de la myopie) (*Figure I.3 (a*)) Pallikaris 90]. De plus, elles permettent de faire de la microscopie non-linéaire dans le but de cartographier en trois dimensions de tissus vivants (*Figure I.3(b*)).



<u>Figure I.3:</u> Découpe du capot cornéen par impulsions femtosecondes (a) et observation d'une drosophile in vivo par microscopie non-linéaire [Olgilvie 06] (b)

Finalement, la physique fondamentale, elle aussi, demande des sources femtosecondes énergiques. L'interaction de ces impulsions avec la matière permet la création de plasmas et la génération de faisceaux de protons de plusieurs dizaines de MeV (10^6 eV) d'énergie maximale. Une application de cette génération de protons est dans le domaine biomédical avec la protonthérapie pour traiter les tumeurs de l'œil et du cerveau. D'autre part, ces impulsions ultra-courtes participent à la génération d'harmoniques élevées (HHG pour «Higher Harmonic Generation») (Figure I.4 (a)) par interaction laser-plasma à très haute intensité. Ces harmoniques élevées permettent de comprendre le régime relativiste et d'obtenir des sources de rayonnement XUV (« Extreme UltraViolet »), correspondant aux longueurs d'onde allant de 10 nm (10⁻⁹ m) à 120 nm. L'interaction laser-plasma à très haute intensité permet également de créer des champs électriques très intenses (supérieurs au gigavolt/mètre) pouvant dans certaines conditions accélérer les électrons. Finalement ces impulsions participent à la génération d'impulsions attosecondes (10⁻²⁰ secondes) (Figure I.4 (b)). L'intérêt est primordial car certains phénomènes physiques ou chimiques imposent des sources laser attosecondes pour pouvoir être étudiés comme le contrôle des réactions chimiques.



<u>Figure I.5:</u> Génération d'harmoniques élevées (a) et source d'impulsions attosecondes (b-gauche) et mesure d'une impulsion femtoseconde (b-droite)¹

¹ Images issues du Laboratory for Attosecond and high-fields Physics (LAP) Site web : http://www.attoworld.de/indexjs.html

Les sources laser femtosecondes actuelles sont principalement à base d'un cristal Ti:Saphir. Ces sources laser sont imposantes et peu efficaces à cause de l'absorption du cristal dans les longueurs d'onde vertes de ce cristal. C'est la raison pour laquelle nous nous sommes orientés vers les cristaux dopés ytterbium pompés directement par diode laser pour être plus efficaces et plus compactes.

Ce mémoire de thèse s'articulera autour de trois principales parties :

La première partie sera consacrée à un état de l'art des sources laser solides femtosecondes à base de cristaux dopés ytterbium. Il est difficile d'associer pour de tels lasers puissance et impulsions femtosecondes. La raison tient compte que les cristaux laser doivent présenter de critères de sélection antagonistes, à savoir une bonne conductivité thermique pour la puissance et une large bande d'émission pour la génération d'impulsions femtosecondes. Cet antagonisme est présent parmi la majorité des familles de cristaux laser couramment utilisées en régime femtoseconde. Cependant, il existe quelques exceptions à cette sélection générale. Ces exceptions, les fluorures et le cristal laser CaGdAlO₄ (CALGO), seront en conséquence choisis pour ces travaux de thèse.

Les collaborations avec le Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Paris et le Centre de recherche sur les Ions, les MAtériaux pour la Photonique (CIMAP) ont permis l'étude du CALGO et des fluorures respectivement.

La deuxième partie sera centrée sur l'étude de la distribution inhomogène de la température dans des cristaux laser massifs pompés longitudinalement par diode laser fibrée et de ses effets thermiques. Pour augmenter les puissances moyennes produites, il faut accroître les puissances de pompe, il faut donc s'assurer de la bonne gestion de la thermique par les cristaux laser choisis précédemment. Dans un premier temps, nous mettrons en avant le peu d'études expérimentales effectuées sur ces effets thermiques et nous décrirons les phénomènes physiques mis en jeu lors de l'échauffement du cristal laser. Ensuite, nous présenterons un banc complet de caractérisation thermique permettant aussi bien de mesurer quelques propriétés thermiques telles que la conductivité thermique que de quantifier les sources de chaleur dans le cristal laser pompé. Ce banc sera utilisé pour caractériser les fluorures et le CALGO dopés ytterbium. A ce jour, ce banc complet de caractérisation thermique est unique en son genre.

La dernière partie se focalisera sur l'étude de ces cristaux en régime femtoseconde. Tout d'abord, après avoir détaillé le principe du verrouillage de modes par effet soliton pour obtenir des impulsions femtosecondes, nous présenterons l'architecture et les principaux blocs d'une telle cavité laser. Nous montrerons en parallèle les contraintes qu'apportent les différents composants optiques de la cavité laser. Puis, les méthodes de caractérisation seront explicitées en particulier l'autocorrélation et la méthode FROG (« Frequency Resolved Optical Gating »). La présentation chronologique des résultats en régime femtoseconde avec le CALGO permettra aussi bien de montrer les performances obtenues que les difficultés rencontrées et les idées apportées. Les résultats avec les fluorures seront également présentés. En conclusion, des perspectives d'architecture de la cavité laser seront présentées pour un élargissement spectral de l'impulsion laser mais également l'apport de la très récente technologie « thin-disk » pour obtenir de fortes puissances et pour une meilleure gestion des problèmes thermiques.

Bibliographie

[Gordon 54] J. P. Gordon, H. J. Zeiger and C. H. Townes, "Molecular Microwave Oscillator and New Hyperfine Structure in the Microwave Spectrum of NH₃", Physical Review **95**, 282 (1954)

[Hilton 02] P. A. Hilton, The International Congress on Applications of Lasers and Electro-Optics (ICALEO), USA, (2002)

[Kastler 50] Journal de la Physique, "Quelques suggestions concernant la production optique et la détection optique d'une inégalité de population des niveaux de quantification spatiale des atomes. Application à l'expérience de Stern et Gerlach et à la résonance magnétique", Journal de Physique et le Radium, **11** (6) 255-265 (1950)

[Maiman 60] T. Maiman, "Stimulated Optical Radiation in Ruby", Nature 187 (4736) 493-494 (1960)

[Olgilvie 06] J. P. Ogilvie, D. Débarre, X. Solinas, J. -L. Martin, E. Beaurepaire, and M. Joffre, "Use of coherent control for selective two-photon fluorescence microscopy in live organisms," Opt. Express 14, 759-766 (2006)

[Pallikaris 90] I. G. Pallikaris, M. E. Papatzanaki, E. Z. Stathi, O. Frenschock, A Georgiadis, "Laser in situ Keratomileusis" (Lasik), Laser in Surgery and Medecine **10** (5) 463-468 (1990)

[Roberts 95] G. Roberts and A. H. Zewail, "Femtosecond Real-Time Probing of Reactions 17, Centrifugal Effects in Direct Dissociation", J. Phys. Chem **99**, 2520-2259 (1995)

[Ruddock 76] I. S. Ruddock and D. J. Bradley, "Bandwith-limited subpisecond pulse generation in mode-locked CW dye laser", Appl. Phys. Lett. **29**, 296-297 (1976)

[Schawlow 58] A. L. Schawlow and C. H. Townes, "Infrared and Optical Masers", Physical Review, **112** (6) 1940-1949 (1958)

[Schouhamer Immink 98] Kees. A. Schouhamer Immink, "The Compact Disk Story", J. Audio Eng. Soc. 46 (5) 458-465 (1998)

[Shank 74] C. V. Shank and E. P. Ippen, "Subpisecond pulses form a mode-locked CW dye laser", Appl. Phys. Lett. **24**, 374-375 (1974)

[Wilson 83] J. Wilson and B. F. B. Hawkes, "Optoelectronics: an introduction", Englewood Cliffs, NJ, Prentice-Hall International Inc (1983)

CHAPITRE 1 :

Etat de l'art : Les différentes familles de cristaux pour la génération d'impulsions femtosecondes.

1.1 Introduction

De plus en plus d'applications industrielles sollicitent des lasers à impulsions ultra-brèves compacts, efficaces, fiables, énergétiques (fortes puissances crêtes et fortes puissances moyennes) et demandant une faible maintenance. Mais à quoi servent les lasers à impulsions ultra-brèves ? Les applications ne s'arrêtent pas qu'au domaine de l'industrie avec le microusinage mais s'étend également à la médecine avec la découpe de cornée dans la chirurgie oculaire et à la physique fondamentale avec des sources secondaires pour la génération d'impulsions attosecondes par exemple. L'enjeu actuel est focalisé en conséquence sur des sources laser à impulsions ultra-brèves mais surtout de fortes puissances moyennes synonyme aussi de hautes cadences et fortes énergies. Les lasers à impulsions ultra-brèves commerciaux actuels ne répondent pas intégralement aux souhaits des demandes industrielles.

Le laser à impulsions ultra-brèves le plus connu et le plus largement répandu est le laser à base d'un cristal de saphir dopé au titane (Ti³⁺:Al₂O₃), couramment nommé le « Ti:saphir », découvert par Moulton [Moulton 86] en 1986. Ce cristal aux propriétés intrinsèques exceptionnelles a ouvert l'ère technologique des lasers impulsionnels. En effet, ce cristal de Ti:saphir présente un spectre d'émission extrêmement large allant de 680 nm à 1100 nm, propriété fondamentale pour la génération d'impulsions ultra-brèves. Grâce à cette bande d'émission, des impulsions de 4,8 femtosecondes (fs) ont déjà été démontrées et restent à ce jour les impulsions les plus courtes jamais obtenues à partir issu d'un oscillateur pompé optiquement. De plus, ce cristal présente une excellente conductivité thermique $\kappa_c = 34$ W.m⁻ ¹.K⁻¹, lui ouvrant la possibilité de supporter de forts pompages optiques sans risque de fracture. Ses propriétés intrinsèques font de lui un cristal très omniprésent dans la génération d'impulsions femtosecondes de puissance. Cependant la bande d'absorption de ce cristal constitue le facteur limitant la puissance que peut délivrer ce genre de laser impulsionnel. En effet, le spectre d'absorption de ce cristal se situe dans les longueurs d'onde vertes. Or seuls quelques systèmes de pompage existent dans une telle région de longueurs d'onde tels que le laser à Argon ou le Nd : YAG (et ses dérivés comme le Nd : YLF et le Nd : YVO₄) doublé en fréquence. Ces systèmes de pompage se révèlent être peu efficaces, imposants et particulièrement complexes. Il s'avère en conséquent extrêmement difficile de produire des puissances de pompe élevées pour les lasers à base de Ti :saphir. En résumé malgré ses propriétés intrinsèques hors du commun, le cristal de « Ti :saphir » n'est absolument pas le meilleur candidat pour la génération d'impulsions femtosecondes avec de fortes puissances moyenne, car même si les propriétés du Ti :saphir sont très bonnes, les problèmes pour obtenir de fortes puissances moyennes sont rejetées sur les systèmes de pompe émettant dans le vert.

C'est la raison pour laquelle la recherche de nouvelles sources laser femtosecondes s'est naturellement orientée vers d'autres systèmes de pompage : en particulier le pompage direct par diode laser [Keyes 64]. Le pompage direct par diode laser présente de nombreux avantages. Les diodes laser ont non seulement des fortes efficacités allant jusqu'à des rendements électriques-optiques de l'ordre de 80 % et des fiabilités supérieures à 10000 heures. Mais elles sont également beaucoup plus compactes et délivrent des puissances allant du watt à la dizaine de kilowatts. Deux types de diodes laser ont été largement développés et ont une technologie pleinement maîtrisée: d'une part les diodes laser à base de semiconducteur InGaAsP/InGaAs ayant une longueur d'émission comprise entre 900 nm et 1

 μ m grâce aux télécommunications pour le pompage des fibres amplificatrices dopées en ions erbium et ytterbium et d'autre part les diodes laser à base de semiconducteur GaAlAs/GaAs ayant une longueur d'onde d'émission aux alentours de 800 nm pour le pompage de l'ion néodyme.

Parmi tous les ions dopants qui s'ouvrent à nous, le néodyme Nd³⁺ et l'ytterbium Yb³⁺ sont sans nul doute les plus efficaces. Tout d'abord l'ion néodyme se présente avec un spectre d'absorption autour de 800 nm et l'ion ytterbium présente un spectre d'absorption autour de 900 nm - 980 nm. Quel ion dopant est le plus adapté pour la génération d'impulsions femtosecondes de puissance? Pour pouvoir répondre à cette question, il faut s'intéresser davantage à la spectroscopie de ces deux ions dopants. Ces ions dopants ont des spectroscopies très différentes malgré des longueurs d'onde d'émission laser proches (Figure 1.1). En effet pour des émissions laser autour de 1 μ m, l'ion ytterbium est comparable à une transition laser quasi-trois niveaux tandis que l'ion néodyme à une transition laser 4 niveaux. La simple structure électronique de l'ion ytterbium exclut l'existence de certains phénomènes parasites tels que les désexcitations d'Auger, les relaxations croisées ou l'absorption dans les états excités. Ces phénomènes parasites, détaillés durant l'étude thermique du chapitre 2, entrainent une baisse de l'efficacité laser. En effet, ces effets délétères réduisent la population du niveau excité de manière significative, donc provoquent une altération du gain laser. De plus, ces effets non-radiatifs sont en partie responsables également d'un échauffement du matériau hôte du dopant pouvant même entraîner une fracture de ce dernier [Fan 93].



<u>Figure 1.1:</u> Schéma simplifié des structures électroniques (sous niveaux d'énergie) dans les ions dopants Nd³⁺ et Yb³⁺

Bien que l'ion néodyme soit reconnu pour des transitions laser très efficaces autour de 1064 nm, l'ion ytterbium est quant à lui réputé pour ses larges bandes d'émission, propices à

la génération d'impulsions ultra-brèves. L'exemple du YAG dopé néodyme ou ytterbium illustre parfaitement cette remarque. En effet, pour une émission laser autour de 1 μ m, les sections efficaces d'émission (de l'ordre de 33 10^{-20} cm²) pour le cristal Nd:YAG sont 100 fois supérieurs à celles du cristal Yb: YAG (de l'ordre de 0,31 10^{-20} cm²). Par contre, un facteur 10 existe entre la largeur de la bande d'émission (9 nm) du cristal Yb:YAG par rapport au cristal Nd:YAG (0,6 nm). Cette rapide comparaison (*tableau 1.1*) nous permet d'affirmer que l'ion ytterbium apparaît évidemment comme un candidat idéal pour le développement de nouvelles sources laser femtosecondes.

| Cristal | Nd:YAG | Yb:YAG | |
|-----------------------------|----------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------------|
| Emission | | | |
| Longueur d'onde | 1064 nm | 1031 nm | |
| Section efficace | $28 \ 10^{-20} \mathrm{cm}^{-2}$ | 2,1 10 | $1^{-20} \mathrm{cm}^{-2}$ |
| Largeur spectrale (FWHM) | 0,8 nm | 9 | nm |
| Temps de vie de | 230 µs | 95 | 1 μs |
| l'état excité | | | |
| La fluence de saturation | $0,67 \text{ J/cm}^2$ | 9,2 | J/cm ² |
| Taux maximal de | 2 % | 10 | 0 % |
| dopage | | | |
| <u>Absorption</u> | | | |
| Longueur d'onde | 808 nm | 968 nm | 942 nm |
| Section efficace | $67 \ 10^{-20} \mathrm{cm}^{-2}$ | $0,7 \ 10^{-20} \mathrm{cm}^{-2}$ | $0,75 \ 10^{-20} \mathrm{cm}^{-2}$ |
| Largeur spectrale | 2 nm | 4 nm | 18 nm |
| (FWHM) | | | |
| Défaut quantique | 32 % | 6.5 % | 9.5 % |
| Tableau 1.1 : Compara | ison entre les propriété | s spectroscopiques pou | r le matrice YAG dopé |

néodyme et ytterbium

Contrairement aux ions métalliques comme le titane ou le chrome où les bandes d'émission (et absorption) sont très larges quelque soit la matrice hôte, les propriétés spectroscopiques des ions terre-rare² tels les ions ytterbium, erbium, néodyme subissent fortement l'influence de la matrice hôte. Ces propriétés spectroscopiques mais également les propriétés thermiques dépendent fortement de l'environnement de l'ion ytterbium et donc du choix de la maille cristalline. Changer la matrice pour l'ion ytterbium implique forcément un changement de la conductivité thermique, de la largeur de la bande spectrale d'émission....Le choix de la matrice hôte ne se fait absolument pas au hasard et demande mûres réflexions et études. C'est en partant de ce constat que de nombreux laboratoires internationaux se sont lancés dans une course vers les meilleurs cristaux dans l'optique d'obtenir des lasers sub-100 fs avec de fortes puissances. Mais comment choisir la matrice hôte du dopant? Quelles caractéristiques doivent présenter un cristal pour générer des impulsions femtosecondes? Tous les cristaux peuvent-ils associer forte puissance crête et impulsions ultra-brèves ? Le cristal « parfait » existe-t-il ?

² Terre rare ou lanthanides sont des éléments situés entre les éléments 57 (lanthane) à 71 (lutécium) inclus. Ces lanthanides ont des orbitales 4f, partiellement ou complètement remplies.

Objectifs de ce chapitre :

Ce chapitre a pour but, dans un premier temps, de discuter des critères de sélection pour le choix de la matrice hôte du dopant. Ensuite, nous préciserons parmi les familles de cristaux déjà utilisées en régime femtoseconde lesquelles sont prometteurs dans la génération d'impulsion non seulement ultra-courtes mais également de fortes puissances moyennes et les raisons de cette sélection.

1.2 Stratégie du choix du cristal hôte

Le choix du cristal hôte du dopant est crucial pour le développement de nouvelles sources laser femtosecondes. En effet tous les cristaux hôtes dopés ytterbium ne peuvent être utilisés pour la génération d'impulsions ultra-brèves de puissance. Tout d'abord, nous poserons les critères essentiels que doivent présenter le cristal hôte du dopant pour prétendre associer impulsions ultra-courtes et forte puissance (1.2.1-1.2.3). Ensuite deux familles de cristaux seront sélectionnées parmi les principales familles de cristaux laser déjà présents dans le paysage des sources laser femtosecondes (1.2.4).

1.2.1- Propriétés spectroscopiques

1.2.1.1- Un large spectre d'émission

Lorsque nous parlons d'impulsions laser femtosecondes, nous ne pouvons échapper à l'inégalité reliant la durée temporelle à mi-hauteur (FWHM) de l'impulsion Δt et la largeur spectrale à mi-hauteur (FWHM) de l'impulsion Δv (« the time-bandwith product » en anglais) exprimée de la manière suivante :

$$\Delta t . \Delta v \ge K \tag{1.1}$$

où K dépend de la forme de l'impulsion. Les impulsions sont dites en limite de Fourier lorsque l'équation (1.1) devient une égalité. Dans le cas contraire, les impulsions sont dites à dérive de fréquence ou « chirpés », c'est-à-dire que l'impulsion a une fréquence dépendante du temps. Pour illustrer et comprendre cette inégalité, prenons une impulsion ayant un spectre centré autour de 1050 nm avec une largeur spectrale de 12 nm, la durée temporelle minimale théorique que nous puissions atteindre pour cette impulsion est alors de 100 fs pour une impulsion de type sécante hyperbolique (*Figure 1.2*). On constate, grâce à cette inégalité, que la durée temporelle de l'impulsion est inversement proportionnelle à largeur spectrale de l'impulsion. Ceci se traduit de la manière suivante : plus large est le spectre de l'impulsion, plus courte pourra être la durée temporelle de l'impulsion.



<u>Figure 1. 2:</u> Largeur spectrale $\Delta\lambda$ nécessaire en fonction de la durée temporelle Δt des impulsions pour une impulsion centrée à une longueur d'onde de 1050 nm

Pour générer des impulsions courtes, il faut absolument que le spectre de l'impulsion soit large. Mais une question nous vient à l'esprit : d'où vient le spectre de l'impulsion ? La source du spectre de l'impulsion est naturellement liée au spectre d'émission même du cristal laser dopé ytterbium. En conséquent, plus large est le spectre d'émission du cristal laser, plus grandes seront les chances de créer une impulsion à large spectre. La prochaine étape est donc d'étudier les possibilités d'obtention d'une large bande d'émission pour un cristal laser.

1.2.1.2- Les causes classiques de la présence d'un large spectre

d'émission

Différents phénomènes physiques au sein de la matrice cristalline sont les causes classiques de la présence d'un large spectre d'émission. Ils sont énumérés et détaillés ci-après :

1) Couplage phonons/électrons

Des interactions entre les niveaux électroniques et les modes de vibrations (appelés également phonons) du réseau cristallin existent et permettent l'élargissement des différents niveaux d'énergie (*Figure 1.3 gauche*) à température ambiante. Ces couplages phonons/électrons interviennent dans tous les cristaux laser et sont la première raison de l'élargissement spectral.

Les trois autres phénomènes physiques ont un point commun : ils permettent la création de divers sites cristallographiques d'accueil de l'ion ytterbium et des environnements disparates pour ce dernier. Ces élargissements inhomogènes du spectre sont provoqués en fait par l'installation d'un désordre structural au sein même du cristal laser dopé ytterbium.

2) Environnement différent pour les ions ytterbium

Un dopage consiste à substituer des ions d'une maille cristalline par les ions dopants, dans notre cas les ions ytterbium (Yb³⁺). Une fois l'ion ytterbium installé, ce dernier est soumis au champ électrique imposé par les ions qui l'entourent, on parle alors de champ cristallin. Ce champ cristallin participe à la levée de dégénérescence partielle par effet Stark des sousniveaux d'énergie ${}^{4}F_{5/2}$ et ${}^{4}F_{7/2}$ (*Figure 1.3 centre*) de l'ion ytterbium. Mais suivant le site où l'ion ytterbium vient se greffer, son environnement peut être différent d'un autre ion ytterbium. Environnements différents sont synonymes de champs cristallins différents. Or ces derniers impliquent des éclatements de sous-niveaux d'énergie différents. Une pléthore de champs cristallins entraîne alors des élargissements des spectres d'émission. Prenons différents exemples pour expliquer nos dires : si tous les environnements de l'ion ytterbium sont identiques, alors les transitions laser se feront autour de raies fines. Par contre, pour un matériau amorphe où tous les ions ytterbium ont leur propre environnement, il y a disparition totale de ces raies fines pour une bande d'émission large et plate.



<u>Figure 1.3</u>: Représentation de l'ion Yb isolé (gauche), de la levée de dégénérescence à une température de 0 K (centre) et de l'élargissement des sous-niveaux d'énergie à une température ambiante (droite)

3) Compensation de charge

L'ion ytterbium peut se substituer à un ion de charge différente. Cette différence de charge entraîne une réorganisation locale des ions au sein de la maille cristalline. Cette réorganisation des ions implique de nouveaux environnements pour les ions ytterbium. Ces nouveaux environnements entraînent de nouveaux éclatements des sous-niveaux d'énergie. Ce phénomène se passe par exemple dans le cristal laser CaF_2 où les ions ytterbium Yb³⁺ substituent des ions calcium Ca^{2+} . Lors de la substitution des ions Yb dans la matrice de CaF_2 , des ions fluors F⁻ sont introduits pour compenser cette différence de charge et donc obligent les ions à se restructurer dans la maille cristalline avec l'arrivée de ces nouveaux ions fluors. On peut aussi noter l'apparition d'agrégats.

4) Défauts du cristal

Lors de la croissance des cristaux laser dopés ytterbium, des impuretés et/ou des lacunes et/ou des dislocations dans la matrice cristalline peuvent se produire. Ces défauts liés à la cristallogenèse du matériau permettent d'augmenter le nombre d'environnements différents pour l'ion ytterbium et donc provoquer des éclatements supplémentaires des sous-niveaux d'énergie, nécessaires pour l'obtention d'une large bande d'émission. Cependant, notre souhait est l'obtention de fortes puissances moyennes, et l'ajout de défauts détériorent les performances laser. Nous ne chercherons donc pas à introduire du désordre par l'ajout de défauts. Une très bonne maîtrise de la croissance du matériau sera même recherchée pour l'obtention de cristaux laser dopés ytterbium de très bonne qualité.

Lors de la substitution des ions de la matrice cristalline par les ions ytterbium, ces derniers peuvent être confronté à l'un ou plusieurs de ces phénomènes précédents, si bien que les différents éclatements des sous-niveaux élargis s'additionnent et se recouvrent pour élargir le spectre d'émission final du cristal laser dopé ytterbium (*Figure 1.4*).



Figure 1.4: Addition des niveaux d'énergie pour l'élargissement spectral.

1.2.1.3- Sections efficaces et temps de vie de l'état excité

Deux autres propriétés spectroscopiques du cristal laser dopé ytterbium attirent notre attention. Il est important de s'intéresser aux sections efficaces d'émission à la longueur d'onde laser $\sigma_{em}(\lambda_l)$ et au temps de vie de l'état excité τ , appelé aussi temps de fluorescence.

Tout d'abord, les transitions laser sont d'autant plus efficaces que les sections efficaces d'émission à la longueur d'onde laser sont élevées. En effet, le gain petit signal, représentatif de l'émission laser, s'exprime en exp{ $\sigma_{em}(\lambda_l).\Delta N.l$ } où ΔN est l'inversion de population et *l* la longueur du cristal laser. Les cristaux laser dopés ytterbium ont un faible gain. Pour obtenir

le maximum d'efficacité laser, le contrôle de pertes introduites par les différents éléments dans la cavité laser sera un enjeu majeur et critique. Cette remarque est d'autant plus importante que les architectures des cavités laser complexes.

Ensuite, le produit $\sigma_{em}(\lambda_l)$. ΔN est un paramètre utilisé pour l'efficacité laser. Plus le produit est grand, plus l'efficacité laser sera importante. En général, une grande valeur de τ est très intéressante pour la réalisation d'amplificateurs. Le cristal laser stocke de l'énergie pendant une durée τ qui sera ensuite extraite. Par contre, une grande valeur de τ n'est pas souhaitée pour les oscillateurs femtosecondes. En effet, l'énergie est libérée sous forme d'impulsions courtes et intenses suivant un régime que l'on appelle déclenché ou «Q-Switch» (commutation du facteur de qualité Q de la cavité laser). En pratique, la durée de l'impulsion ainsi formée ne dépasse pas quelques dizaines de nanosecondes. Il s'agit d'un régime pulsé concurrent au régime « mode-locked » (ou verrouillage des modes en phase) permettant de générer des impulsions femtosecondes. Pour défavoriser ce régime déclenché, le temps de vie de l'état excité ne doit donc pas être trop grand, c'est-à-dire supérieur à la centaine de microsecondes [Hönninger 98]

1.2.1.4- La réabsorption dans les cristaux laser dopés ytterbium

L'inconvénient dans les cristaux laser dopés ytterbium est le phénomène de réabsorption à la longueur d'onde laser. En effet, dans une configuration électronique quasi-trois niveaux, le niveau bas de la transition laser est peuplé. Ce dernier est proche du niveau fondamental et il est donc peuplé thermiquement (statistique de Boltzmann). Les photons émis à la longueur d'onde laser peuvent être alors absorbés pour exciter des atomes dans le niveau bas de la transition laser vers le niveau haut de la transition laser. Pour éviter ce phénomène de réabsorption à la longueur d'onde laser, il faut dépasser le seuil de transparence du cristal laser. Ceci revient à dire qu'il faut apporter assez d'énergie pour le peuplement du niveau haut de la transition laser.

1.2.1.5- Conclusion

Pour conclure, deux critères liés aux propriétés spectroscopiques des cristaux laser dopés ytterbium sont essentiels pour la génération efficace d'impulsions femtosecondes :

1) une large bande d'émission, pour générer des impulsions ultra-brèves.

2) de fortes sections efficaces d'émission, pour éviter une trop grande sensibilité aux pertes de la cavité laser.

Généralement, on constate que ces deux critères sont des critères antagonistes. En effet, si les ions ytterbium ont le même environnement et donc les mêmes pics d'émission, la section efficace d'émission du cristal laser sera globalement intense mais fine, comme l'illustre le spectre d'émission du cristal laser YAG ($Y_3Al_5O_{12}$) dopé ytterbium de la *Figure 1.5*. Par contre, si les ions ytterbium ont des environnements différents et donc des pics différents, la section efficace sera généralement faible mais très large. Le verre dopé ytterbium en est le meilleur exemple (*Figure 1.5*).



Figure 1.5 : Spectres d'émission du Yb:YAG (courbe rouge) et Yb:verre (courbe verte)

1.2.2- Un autre critère très important : la conductivité thermique

Pour éviter le phénomène de réabsorption à la longueur d'onde laser, nous sommes contraints de focaliser longitudinalement la pompe sur de petits diamètres. Un échauffement du cristal laser se crée alors à l'endroit même de la focalisation avec des contraintes thermiques fortes et de très forts gradients de température. Il faut impérativement que le cristal laser ait la capacité d'évacuer rapidement cette chaleur. La conductivité thermique apparaît alors comme le paramètre thermique le plus pertinent.

1.2.2.1- Définition de la conductivité thermique

La conductivité thermique κ_c est une quantification de la conduction de la chaleur à l'intérieur du cristal laser. Les phonons (ou modes vibratoires du réseau cristallin) véhiculent la chaleur en se propageant dans la matrice cristalline. La conductivité thermique est un paramètre très important pour le développement de laser de puissance. En effet elle montre la faculté du cristal laser à évacuer la chaleur. Plus la valeur de la conductivité thermique est élevée, plus l'échauffement thermique du cristal laser sera faible. L'échauffement entraîne des baisses d'efficacité laser, de déstabilisation de la cavité laser par la lentille thermique engendrée dans le cristal, des déformations du mode laser et à l'extrême la fracture du cristal laser. Les conséquences et les quantifications de ces effets thermiques seront étudiées et détaillées dans le chapitre 2.

On se rend compte que si le matériau présente un degré très élevé de désordre comme les matériaux amorphes, les phonons auront de grandes difficultés à se propager, ce qui diminue fortement la conductivité thermique. Par exemple, la conductivité thermique est inférieure à 1 W.m⁻¹.K⁻¹ pour le verre non dopé. Dans le cas contraire, une structure très organisée comme le YAG non dopé présente une valeur de la conductivité thermique de 10,7 W.m⁻¹.K⁻¹. On remarque alors de suite qu'il sera difficile pour un cristal laser de présenter non seulement un

spectre très large mais également une excellente conductivité thermique. Il faudra un compromis entre ces critères dans le choix du cristal laser.

Le choix d'un cristal avec une bonne conductivité thermique lorsqu'il est non dopé est un premier critère important à perdre en compte mais ce n'est pas le seul; En effet, précédemment, nous avons noté que la substitution des ions de la matrice cristalline par les ions dopants est à l'origine de l'apparition de désordre structural au sein du cristal laser dopé. Pour un cristal laser non dopé présentant déjà un grand degré de désordre, l'introduction supplémentaire n'aura pas énormément d'influence sur la valeur de la conductivité thermique déjà très basse. Par contre, introduire du désordre dans une matrice ordonnée aura pour conséquence de faire décroître de manière significative la valeur de la conductivité thermique. Il paraît alors évident que plus le taux de dopage est important, plus la valeur de la conductivité thermique de conductivité thermique diminuera. Ce critère est important et aussi à prendre en compte dans le choix du cristal laser ? Comment estimer la baisse de la conductivité thermique en dopant le cristal? Pour cela une modélisation mathématique devient nécessaire.

1.2.2.2- Conductivité thermique et concentration du dopage

Durant ses travaux de thèse, R. Gaumé [Gaumé 03] s'est particulièrement intéressé à l'évolution de la valeur de la conductivité thermique en fonction du taux de dopage du cristal laser. La conductivité thermique, d'après l'expression simplifiée du modèle de P.G. Klemens [Klemens 60], s'écrit de la manière suivante³ :

$$\kappa_{c} = \frac{1}{\pi.a} \cdot \sqrt{\frac{2.k_{B}.\nu.\kappa_{0}}{\delta}} \cdot A \tan\left[\pi.a \cdot \sqrt{\frac{\kappa_{0}.\delta}{2.k_{B}.\nu}}\right]$$
(1.2)

$$\delta = \sum_{i} c_{i} \left(\frac{M_{i} - M}{M} \right)^{2} \qquad M = \sum_{i} c_{i} M_{i} \qquad a = 2 \left[\frac{3 N_{m}}{4 \pi Z N} \right]^{1/3}$$

où *a* représente la distance moyenne entre proches voisins, k_B la constante de Boltzmann, v^4 la vitesse de son dans le cristal laser (c'est-à-dire les phonons), κ_o la valeur de la conductivité thermique pour le cristal laser étudié non dopé, V_m le volume de la maille cristalline, Z le nombre d'unités formulaires par maille cristalline, N le nombre d'atomes par unité formulaire. δ désigne la variance de la masse moyenne M des sites de substitutions où l'ion ytterbium vient se greffer avec une probabilité c_i d'être occupé par un ion *i* de masse M_i .

Les évolutions de la conductivité thermique ont été tracées sur la *Figure 1.6* en fonction du taux de substitution en ions ytterbium pour deux cristaux laser connus qui sont deux grenats très similaires: le cristal laser Yb:YAG et le cristal laser Yb:GGG (Gd₃Ga₅O₁₂). Immédiatement, nous remarquons que la baisse de la conductivité thermique n'est pas la

avec :

³ Attention cette équation de la conductivité thermique ne reste qu'une tendance de l'évolution de la conductivité thermique et ne donne qu'une estimation de la valeur de la conductivité thermique.

⁴ Des grandes incertitudes existent sur la valeur de la vitesse du son. Dans un contexte d'analyse des propriétés thermiques-structurales, la connaissance exacte de la valeur n'est pas cruciale. Une valeur moyenne de 7000 ms⁻¹ sera donc utilisée pour ν pour les différents cristaux étudiés.

même suivant les différents cristaux laser dopés en ions ytterbium. En effet, la différence de conductivité entre des échantillons non dopé et dopé à 5 % est de seulement 0,5 W.m⁻¹.K⁻¹ pour le cristal Yb:GGG alors que la différence vaut 4 W.m⁻¹.K⁻¹ pour le cristal pour le cristal Yb:YAG. De plus, on constate également que la conductivité thermique non dopé est plus importante pour le YAG que pour le GGG. Mais à partir d'une substitution proche de 4 % en ions ytterbium, la conductivité thermique du Yb:GGG devient plus élevée que celle du Yb:YAG.



<u>Figure 1.6:</u> Evolutions de la conductivité thermique en fonction de taux de substitution en ions ytterbium pour le Yb:YAG et le Yb:GGG

Comment peut-on avoir une si grande différence d'évolution de la conductivité thermique entre ces deux grenats. En regardant l'équation (1.2), un seul terme tient compte de la présence des ions de la matrice hôte. Ce terme est le terme de variance de la masse moyenne δ , proportionnel à la différence entre la masse de l'ion dopant et la masse de l'ion substitué Pour minimiser au mieux la chute de la conductivité thermique, il faut en conséquent réduire la différence de masse entre les ions substituant et substitués⁵.

Le tableau 1.2 donne quelques exemples d'ions substitués par l'ion ytterbium ainsi que leur variation de masse. On constate de que la variation de masse est beaucoup plus faible pour l'ion gadolinium que pour l'ion yttrium. Cette grande différence de variation de masse nous explique la chute plus brutale pour la conductivité thermique pour le cristal laser Yb:YAG comparée à celle du cristal laser Yb:GGG.

⁵ Ce modèle de la conductivité thermique et ces remarques ne sont pas seulement attribuables à l'ion ytterbium mais s'appliquent également aux autres ions dopants comme le néodyme, l'erbium, le thulium...

Chapitre 1- Etat de l'art : Les différentes familles de cristaux pour la génération d'impulsions femtosecondes

| Ion | masse molaire de l'ion | variation de masse / Yb |
|-----------------|------------------------|-------------------------|
| Ytterbium -Yb | 173,04 | - |
| Yttrium -Y | 88,91 | 49 % |
| Lutécium - Lu | 174,967 | 1 % |
| Gadolinium - Gd | 157,25 | 9 % |
| Scandium -Sc | 44,95 | 74 % |

<u>Tableau 1.2:</u> Rappel de la masse molaire de l'ion ytterbium et quelques exemples d'ions substitués ainsi que la différence de masse entre les ions substituant et substitué

1.2.2.3- Conclusion

Pour conclure, la conductivité thermique est un autre critère important pour les lasers de puissance et donc les lasers femtosecondes de puissance. Un cristal laser à la structure simple et ordonnée présente, s'il n'est pas dopé, des valeurs élevées pour la conductivité thermique. Cependant, le dopage en ions ytterbium introduit inévitablement du désordre au sein de la matrice. Ce dopage n'a que peu d'influence pour une matrice désordonné initialement. Par contre, pour un cristal laser non dopé présentant une bonne conductivité thermique, cette dernière décroit en fonction du taux de dopage. Pour minimiser cette chute de la conductivité thermique, une faible différence de masse entre les ions substitués et substituant quels que soient le dopant et la matrice cristalline permet l'association dopage et bonne conductivité thermique.

Après avoir discuté des trois principaux critères d'un cristal laser dopé ytterbium pour des sources laser femtosecondes, intéressons nous à la possibilité de cumuler justement ces trois critères de sélection au sein d'une même matrice hôte cristalline.

1.2.3- Des critères antagonistes, comment choisir ?

Pour le développement de nouvelles sources femtoseconde efficaces et de puissance, il faut trouver des cristaux laser associant large bande spectrale, fortes sections efficaces de gain et excellente conductivité thermique.



<u>Figure 1.7</u>: *Critères de sélection pour le choix de la matrice cristalline*

Mais, nous nous sommes aperçus que ces critères sont des critères antagonistes comme le montre la *Figure 1.7*. Faut-il alors privilégier un critère de sélection par rapport à un autre ? Privilégier un critère par rapport à un autre nous impose de choisir entre impulsions ultracourtes et production de for puissance moyenne. Or l'idée principale de notre étude est d'associer ces deux critères. Nous devons donc trouver des cristaux qui présentent un compromis entre ces deux critères importants ou qui sont des exceptions de cette tendance générale

Après discussion des critères de sélection, intéressons-nous aux différentes familles de cristaux déjà étudiés en régime femtoseconde pour choisir les familles de cristaux pouvant être associées à de fortes puissances moyennes.

1.2.4- Les principales familles de cristaux utilisées en femtoseconde

Pour choisir les familles de cristaux laser en régime femtoseconde de puissance, on s'intéresse davantage à la conductivité thermique et à la largeur spectrale qu'aux fortes sections efficaces d'émission. En effet, les faibles sections efficaces d'émission ne représentent pas un problème insurmontable car il est possible de jouer sur les pertes de la cavité laser pour compenser ces faibles valeurs et obtenir des efficacités laser correctes. Nous avons noté précédemment que les propriétés spectroscopiques de l'ion ytterbium changent énormément suivant les matrices hôtes. Enumérons quelques familles de matériaux laser déjà existantes et parmi toutes ces familles, les matériaux nous permettant la génération d'impulsions laser femtosecondes de puissance (voir annexe A).

1) La famille des verres amorphes :

Etant donné la structure désordonnée des verres amorphes, le spectre d'émission a une largeur de 35 nm ayant permis de produire des impulsions de moins de 60 fs mais présente une conductivité thermique inférieure à 1 W.m⁻¹.K⁻¹[Hönninger 98]. Cette faible valeur de la conductivité thermique nous oblige à nous orienter vers d'autres familles de cristaux laser.

2) Les familles des grenats et des sesquioxydes :

Ces deux familles présentent des conductivités thermiques intéressantes⁶. En effet, les valeurs de la conductivité thermiques sont égales à 10,7 W.m⁻¹.K⁻¹ pour le YAG [Aus der Au 99] appartenant à la famille des grenats et 13,6 W.m⁻¹.K⁻¹ pour le cristal laser Y_2O_2 et 16,5 W.m⁻¹.K⁻¹ pour le cristal Sc₂O₃ [Peters 02], tous deux de la famille des sesquioxydes. Par contre, leurs bandes d'émission présentent des spectres étroits, inférieurs à 10 nm, non propices à la génération d'impulsions femtosecondes très courtes. De plus, leur croissance est extrêmement complexe avec un point de fusion très élevé (>2000°C) et seule la synthèse de céramiques est prometteuse. Ces cristaux laser ne seront pas alors choisis dans notre étude.

⁶ Les principaux grenats sont le YAG ($Y_2Al_5O_{12}$) et le GGG ($Gd_3Al_5O_{12}$) et les principaux sesquioxydes sont le sesquioxyde d'yttrium Y_2O_3 et le sesquioxyde de scandium Sc_2O_3 .

3) La famille des tungstates :

Un des premiers avantages de ces cristaux laser, utilisés pour des lasers commerciaux, est les nombreuses études déjà réalisées pour ces cristaux laser comme le KYW $(KY(WO_4)_2)$ ou le KGW $(KGd(WO_4)_2)^7$ à cause de leurs grandes sections efficaces d'émission [Delaigue 06] [Klopp 02]. Malgré une faible conductivité thermique, des puissances moyennes de 10 W ont été obtenues mais pour des impulsions longues de 290 fs pour le cristal Yb:KGW [Holtom 06]. Dans ces conditions, le facteur limitant pour ces cristaux est sa faible largeur spectrale.

4) La famille des fluoroapatites :

La famille des fluoroaptites regroupe les cristaux laser comme FAP ($Ca_5(PO_4)_3F$) et S-FAP ($Sr_5(PO_4)_3F$. Ces cristaux réputés pour leurs sections efficaces très importantes présentent des spectres d'émission très fins de l'ordre de 4 nm pour les deux cristaux. De plus, les conductivités thermiques ont des valeurs proches de 2 W.m⁻¹.K⁻¹ [DeLoach 94]. Ces cristaux, fautes de large spectre d'émission et conductivités intéressantes, ne seront pas au cœur de notre étude.

5) Les familles des borates et des silicates ordonnés :

Ces deux types de familles présentent de larges bandes d'émission. En effet, le cristal laser BOYS $(Sr_3Y(BO_3)_3)$ de la famille des borates a un spectre large de 60 nm et le cristal laser SYS $(SrY_4(SiO_4)_3O)$ de la famille des silicates ordonnées a quant à lui une bande spectrale de 73 nm [Haumesser 01] [Haumesser 02]. Ces cristaux laser nous apparaissent très intéressants mais leurs conductivités thermiques sont très moyennes et proches de 2 W.m⁻¹.K⁻¹, trop faibles pour notre application.

6) Les silicates type « YSO » :

Les silicates de type YSO (Y_2SiO_5) regroupe les cristaux laser YSO, LSO (Lu_2SiO_5), GSO (Gd_2SiO_5)... Ces cristaux laser présentent un bon compromis entre largeur spectrale de 40 nm et 54 nm et conductivité thermique de 4,4 et 5,3 W.m⁻¹.K⁻¹ pour les cristaux YSO et LSO respectivement. L'étude de ces cristaux a été effectuée récemment dans le cadre de notre équipe durant la thèse de Florent Thibault [Thibault 06].

7) Les vanadates :

Les vanadates ont la particularité de cumuler large bande d'émission et conductivité thermique intéressante. Prenons l'exemple du cristal laser YVO_4 , il présente un spectre de 30 nm et une conductivité thermique de 5,1 W.m⁻¹.K⁻¹ [Kisel 99]. Ce cristal laser est très intéressant. Mais des problèmes technologiques apparaissent à cause de la faible différence de longueurs d'onde entre la pompe à 984 nm et l'émission laser à 1010 nm pour les traitements de miroirs à titre d'exemple.

8) La famille des fluorures:

⁷ Mais aussi le KLuW (KLu(WO₄)₂), le NYW (NaY(WO₄)₂) et le NaGd(WO₄)₂

La famille des fluorures a l'avantage de présenter non seulement de larges spectres mais également de très intéressantes valeurs de la conductivité thermique. En effet, les fluorures de strontium et de calcium, SrF_2 et CaF_2 respectivement, ont des spectres de 70 nm et de valeurs de conductivités thermiques égales à 9,7 et 8,6 W.m⁻¹.K⁻¹ respectivement [Camy 07] Ces cristaux sont très intéressants pour la génération d'impulsions laser femtosecondes de puissances et feront partie de notre étude.

9) Le CALGO :

Le CALGO, de formule CaGdAlO₄ est un cristal ayant une large bande d'émission de 80 nm et une conductivité thermique non dopée de l'ordre de 7 $W.m^{-1}.K^{-1}$ [Petit 05]. Le cristal laser CALGO apparaît lui aussi, tout comme les fluorures, un cristal prometteur pour des sources solides femtosecondes de puissance.

Pour résumé l'énumération des familles de cristaux laser, la conductivité thermique non dopé κ_0 a été tracée en fonction de la largeur spectrale à mi-hauteur $\Delta\lambda$ pour différents cristaux sur le *Figure 1.8*.



<u>Figure 1.8:</u> Conductivité thermique non dopé en fonction de la largeur spectrale à mi-hauteur pour différents cristaux utilisés en technologie femtoseconde.

Pour visualiser également les performances déjà obtenues en régime femtoseconde, la puissance moyenne a été tracée en fonction de la durée temporelle de l'impulsion pour différents cristaux laser dopés ytterbium sur le *Figure 1.9*. Ce tableau n'est pas exhaustif de toutes les démonstrations faites à ce jour en régime femtoseconde mais est représentatif de l'état de l'art et pose le contexte au début de notre étude. Sur la *Figure 1.9*, la ligne en pointillé délimité une zone encore inexplorée. Le but sera alors d'accéder à cette région. Deux idées nous viennent à l'esprit. La première idée est d'augmenter les puissances moyennes de sortie obtenues avec le cristal laser Yb:CALGO, ayant des performances très intéressantes d'un point de vue de la durée temporelle de l'impulsion. La seconde idée se base sur une réduction de la durée temporelle des impulsions laser issues des cavités laser femtosecondes à base de cristaux laser Yb:CaF₂ en gardant les fortes puissances moyennes déjà reportées à ce

jour. De plus, nous remarquons qu'aucune démonstration d'impulsions femtosecondes a été reportée pour un laser à base du cristal laser Yb:SrF₂.



Figure 1.9: Puissance moyenne en fonction de la durée de l'impulsion laser pour différents cristaux

Après connaissance des performances en régime femtoseconde et surtout après avoir choisi les deux familles de cristaux qui seront au centre de notre étude, focalisons-nous davantage justement sur les paramètres spectroscopiques et thermiques de ces cristaux dopés ytterbium.

1.3- Présentation des cristaux choisis pour la génération d'impulsions femtosecondes de puissance

1.3.1- La famille des fluorures

Le fluorure de calcium⁸ (*Figure 1.10*) ou CaF₂ est un minéral connu depuis l'antiquité pour sa diversité de couleurs grâce aux dopages en ions yttrium, ytterbium, europium... Mais c'est au début du XX^{ème} siècle que W. J. Humphreys [Humphreys 1904] remarque la présence naturelle de l'yttrium (Y) et de l'ytterbium (Yb) dans les cristaux de fluorures de calcium, et plus particulièrement dans les cristaux en provenance du Texas, de Bolivie et de Virginie. En 1909, G. Urbain [Urbain 1909] met en évidence une quantité importante de terres rares comme l'ytterbium dans les fluorines naturelles. Au début du XXème siècle, les rares travaux

⁸ Le fluorure de calcium est également appelé fluorine ou sparth fluor dans l'industrie. Attention le mot « fluorine » en langue anglaise signifie le mot fluor alors que le mot « fluorite » en anglais désigne la fluorine en français.

effectués sur les fluorines se focalisaient exclusivement sur la fluorine naturelle. Mais en 1949, D. C. Stockbarger [Stockbarger 49] découvre un procédé de synthèse de ces cristaux. Grâce à cette découverte, la technique de croissance des fluorures, à l'heure actuelle est parfaitement maîtrisée. Ces cristaux sont très connus pour leur excellente transmission sur une très large bande spectrale allant de l'UV jusqu'au proche IR. Grâce à sa bande de transmission et sa faible dispersion, la fluorine est utilisée sous forme de lentilles pour les caméras et les télescopes. Ces cristaux sont également très utilisés en lithographie UV.



<u>Figure 1.10:</u> boule de fluorine dopée ytterbium obtenue par la méthode de croissance de Bridgman-Stockbarger par le CIMAP

Par contre, le fluorure de strontium⁹ ou SrF_2 n'existe pas dans la nature contrairement à son collègue le fluorure de calcium. Grâce à sa large bande de transparence (150 nm jusqu'à 11 µm), tout comme la fluorine, le cristal SrF_2 est utilisé sous forme de lentilles mais également en couches minces comme traitement pour les optiques. De plus, le cristal SrF_2 peut être aussi utilisé pour les dosimètres thermoluminescents. Il permet la mesure la dose radioactive reçue pour une personne exposée à un rayonnement ionisant.

1.3.1.1- Technique de croissance et données cristallographiques

Nos travaux sur les cristaux de fluorure dopés ytterbium ont été réalisés grâce à une collaboration avec le Centre de recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique $(CIMAP)^{10}$ de Caen (*Figure 1.10*). Les cristaux de fluorure étudiés dans le cadre de ma thèse ont été obtenus par la méthode de croissance dite classique de Bridgman-Stockbarger avec une production de chaleur par radiofréquences.

Encadré 1.1 : la méthode de croissance de Bridgman-Stockbarger (Figure 1.11)

Cette technique consiste à introduire des poudres de fluorures alcalino-terreux (MeF₂ où Me = Ca, Ba ou Sr) et du fluorure de terre rare (YbF₃) dans un creuset placé dans la zone hautes températures du four. Les températures de ce four sont choisies pour être supérieures aux températures de fusion des fluorures de calcium ou de strontium pour transformer les poudres en état liquide. Un vide est créé dans la chambre de croissance par l'introduction de gaz

⁹ L'élément Strontium (ou Sr) fut découvert par A. Crawford et W. Cruikshank en 1787 en Angleterre mais fut isolé et baptisé Strontium en 1808 par Sir H. Davy car l'oxyde contenant du strontium fut découvert dans les mines de Strontian en Ecosse [Clarke 1830].

¹⁰Site internet : http://cimap.ensicaen.fr/

Argon et CF_4 pour réduire l'oxygène. Ce bain fondu est alors déplacé dans un gradient de température pour le faire passer lentement de l'état liquide à l'état solide. Le système de tirage est constitué d'une translation et d'une rotation [Petit 06].



Figure 1.11: *Méthode de croissance de Bridgman-Stockbarger [Petit 06]*

Les fluorures de calcium et de strontium ont une structure cristalline cubique (*Figure 1.12*). On peut assimiler la maille cristalline en deux sous-réseaux. Les cations, les ions calcium Ca^{2+} ou les ions strontium Sr^{2+} , forment un réseau cristallin cubique faces centrées et les anions, les ions fluor F⁻, un réseau cubique simple. Les coordinences¹¹ sont de 8 pour les ions Ca^{2+} et Sr^{2+} et est de 4 pour F⁻. L'ion ytterbium substituera les ions Ca^{2+} ou Sr^{2+} car tous partagent le même site cristallographique de symétrie C_{4v} . Par contre, il existe une différence de charge entre les ions calcium/strontium et ytterbium. En effet les ions ytterbium ont une charge 3+ alors que les ions calcium/strontium ont une charge de 2+. C'est la raison pour laquelle des ions fluor sont introduits lors du dopage en ions ytterbium pour compenser cette différence de charge.

¹¹ La coordinence ou nombre de coordination d'un atome est le nombre d'atomes voisins les plus proches dans les trois directions de l'espace.



<u>Figure 1.12</u>: Représentation de la maille cristalline du fluorure de calcium (CaF_2) et du fluorure de strontium (SrF_2)

A de forts taux de dopage, des agrégats (ou clusters) apparaissent au sein de la matrice cristalline. Différents types d'agrégats ont été observés par décalage de raies d'émission [Leniec 05] [Ito 04]. Ces clusters participent à l'élargissement spectral grâce à l'apparition de ces nouvelles raies d'émission. Ce phénomène peu étudié auparavant est au centre des recherches à l'heure actuelle.

1.3.1.2- Spectroscopie des fluorures

Les fluorures sont des cristaux isotropes. Les cristaux étudiés dans le cadre de ma thèse ont des dopages typiques en ions ytterbium de 2 à 3-at $\%^{12}$ pour les cristaux de CaF₂ et SrF₂ respectivement. Les spectres d'absorption et d'émission de ces cristaux en fonction de la longueur d'onde sont représentés sur la *Figure 1.13*. Les pics d'absorption sont centrés à 979,8 nm pour le cristal de Yb:CaF₂ et à 975,6 nm pour le cristal de Yb:SrF₂. Les bandes d'émission laser s'étalent entre 1000 nm et 1070 nm environ pour les deux fluorures dopés à l'ytterbium [Camy 07].

Les indices de réfraction *n* sont égaux à 1,43 et à 1,44 pour les cristaux isotropes de CaF₂ et SrF₂ respectivement alors que les temps de vie de l'état excité τ sont de l'ordre de 2400 et 2900 µs. Ces valeurs de τ sont très élevées et de risques de régime « Q-Switch » sont non négligeables.

¹² Correspond à une concentration en ions ytterbium de 4,9 à 7,35 10⁻²⁰ ions.cm⁻³ et 4,04 à 6,05 10⁻²⁰ ions.cm⁻³ pour les fluorures de calcium et strontium respectivement.



<u>Figure 1.13</u>: Spectres d'absorption et d'émission pour les cristaux de Yb(2,6%): Ca F_2 et Yb(2,9%): Sr F_2 .

1.3.1.3- Conductivité thermique et dilatation thermique

Les valeurs de conductivité thermique pour des cristaux non dopés de CaF_2 et de SrF_2 sont égales à 9,7 et 8,3 W.m⁻¹.K⁻¹ respectivement. Ces conductivités thermiques sont très intéressantes comparées au 10,7 W.m⁻¹.K⁻¹ pour le YAG [Weber 03]. Malheureusement, la différence de masse entre les ions substitués et substituant est non négligeable et une forte chute de la conductivité thermique est attendue. Grâce à aux valeurs de la conductivité thermique des fluorures non dopés et au modèle théorique de la conductivité thermique défini équation (1.2), il est possible de déduire les valeurs de la conductivité thermiques en fonction du taux de dopage. Ainsi, pour les cristaux étudiés de Yb(2,6%):CaF₂ et Yb(2,9%):SrF₂ les conductivités thermiques déduites de ce modèle sont égales à 6,06 et 3,31 W.m⁻¹.K⁻¹ respectivement (*Figure 1.14*). Lors de l'étude thermique, nous présenterons les premières mesures expérimentales de la conductivité thermique, jamais réalisées auparavant, pour ces deux fluorures qui corroborent ces déductions du modèle de R. Gaumé.



<u>Figure 1.14</u>: Evolution théorique de la conductivité thermique en fonction du taux de dopage pour des cristaux de CaF_2 et de SrF_2 d'après le modèle de R. Gaumé [Gaumé 03].

Un autre paramètre thermique important est la dilatation thermique. La dilatation thermique permet de quantifier l'expansion du volume du cristal lors de l'échauffement de ce dernier. Plus la dilatation thermique est importante, plus les risques de fracture du cristal laser seront importants à cause des contraintes au sein du cristal laser. Les dilatations thermiques sont mesurées égales à 18,9 10^{-6} et 18,4 10^{-6} K⁻¹ pour le CaF₂ et le SrF₂ respectivement, valeurs relativement élevées comparées aux autres cristaux. Nous devons alors tenir compte de ce problème dans nos expériences thermiques et femtosecondes de puissance.

1.3.1.4- Impulsions femtosecondes ?

Intéressons-nous aux impulsions femtosecondes déjà obtenus avec ces cristaux. Des impulsions de 150 fs centrées à 1049 nm avec une largeur spectrale de 7,7 nm et avec une puissance moyenne de 880 mW ont déjà été démontrées avec un cristal de fluorine dopé 5% en ions ytterbium. Des puissances moyenne jusqu'à 1,4W ont été obtenues avec ce même cristal mais pour des impulsions de 220 fs pour une cadence de répétition de 85 MHz, au sein de l'équipe ELSA [Lucca 04].

Par contre, aucune démonstration d'impulsions femtosecondes n'a été démontrée à ce jour pour des cristaux de fluorure de strontium dopés à l'ytterbium.

1.3.2- Le CALGO

L'oxyde CaGdAlO₄ (CALGO) appartient à la famille des matériaux ABCO₄ ou A = Ca²⁺, Sr²⁺ ou Ba²⁺; B = un lanthanide ; C = Al³⁺, Gd³⁺. Des études ont été réalisées sur ce cristal dopé erbium [Wells 00], néodyme [Lagatskii 97] ou titane [Kodama 98]. Mais ce n'est qu'en 2005 que les premiers cristaux dopés ytterbium ont été synthétisés à Chimie Paris. De suite, ils apparaissent être des cristaux très prometteurs pour le développement de sources laser femtosecondes [Petit 05].

1.3.2.1- Technique de croissance et données cristallographiques

Grâce à une collaboration avec le Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Chimie Paris¹³, des cristaux Yb:CALGO ont pu être étudiés en régime femtoseconde au sein de notre équipe de recherche. Les cristaux de CALGO dopés 2-at%¹⁴ en ytterbium (*Figure 1.15*) ont été obtenus par la méthode de croissance dite de Czochralski avec des vitesses de tirage et de rotation de 1mm/h et de 30 tours/min respectivement.



Figure 1.15: Boule de 2-at% Yb:CaGdAlO₄ (LCAES)

¹³ Site internet: http://www.enscp.fr/labos/LCAES/.index.html

¹⁴ Correspond à une quantité volumique de 2,50 10⁻²⁰ ions.cm⁻³

Chapitre 1- Etat de l'art : Les différentes familles de cristaux pour la génération d'impulsions femtosecondes

Encadré 1.2: la méthode de Czochralski [Czochralski 18] (Figure 1.16)

La croissance de Czochralski est basée sur une solidification dirigée à partir d'un germe monocristallin de petite taille. Le matériau est fondu légèrement au dessus de sa température de fusion. Le germe vient se placer au niveau du matériau fondu. Comme la méthode de Bridgman-Stockbarger, un gradient de température est contrôlé afin de solidifier le matériau accroché au germe. Le germe est tiré vers le haut au fur et à mesure dans ce gradient de température en tournant à vitesse très lente. L'amorçage (ou germe) est fixé à une tige en iridium. Cette technique de croissance présente l'avantage de l'obtention de cristaux de très grande dimension (uniquement limitée par la taille du creusé).



Le cristal laser Yb:CALGO à symétrie cylindrique est un système cristallin quadratique qui présente donc deux orientations inéquivalentes pour ses propriétés physiques. Le cristal laser CALGO est biréfringent uniaxe. Les ions gadolinium Gd^{3+} et les ions calcium Ca^{2+} partagent un même site cristallographique de symétrie C_{4v} . Etant donné que les tailles des ions calcium et gadolinium en coordinence 9 sont très proches, une distribution désordonnée se réalisera entre ces ions dans la matrice cristalline [Lagatskii 97]. Cependant, ces deux sites ne sont pas équivalents à cause d'une différence de valence entre les deux ions : de 2 pour le calcium et de 3 pour le gadolinium. Huit mailles du cristal de CALGO sont représentées sur la *Figure 1.17*. Les octaèdres bleus correspondent aux sites pour les ions aluminium et les octaèdres verts aux sites des ions gadolinium et calcium.



Figure 1.17: Représentation de 8 mailles de la matrice cristalline du CALGO

L'ion ytterbium a également le même site d'accueil que les ions calcium et gadolinium. Il vient donc lui aussi se greffer aléatoirement sur ces sites cristallographiques. Une répartition aléatoire des ions ytterbium entre les deux sites est alors à prévoir au sein du cristal Yb:CALGO.

1.3.2.2- Spectroscopie du cristal laser Yb:CALGO

Le cristal laser est un cristal à symétrie cylindrique et biréfringent uniaxe. Lorsque le champ électrique est parallèle à l'axe optique à savoir l'axe c, le champ électrique est alors d'orientation (ou de polarisation) π et le vecteur d'onde k du champ électrique appartient au plan formé par les deux vecteurs a (*Figure 1.18 a*). Par contre le champ électrique est d'orientation σ si le champ électrique E est perpendiculaire à l'axe optique c ou parallèle à l'axe a et donc le vecteur d'onde k est parallèle à l'axe optique c (*Figure 1.18 b*).



<u>Figure 1.18</u>: Champ électrique dit orientation π (a) d'orientation σ (b)
Les spectres d'absorption et d'émission en fonction de la longueur d'onde sont tracés *Figure* 1.19 en fonction de la longueur d'onde λ suivant les deux plans de polarisation.



Figure 1.19: Spectre d'absorption et d'émission en fonction de la longueur d'onde

1) Suivant l'orientation π :

Suivant l'axe optique c, sont mesurées les plus grandes valeurs de sections efficaces d'absorption. La valeur maximale est mesurée pour une longueur d'onde de 979 nm correspondant donc au pic d'absorption du cristal Yb:CALGO.

2) Suivant l'orientation σ :

Suivant l'orientation σ aura lieu l'émission laser. L'émission laser est possible entre 1000 et 1050 nm. De plus, suivant cette orientation, on se rend compte que les phénomènes de réabsorption seront non négligeables. Finalement un plateau entre 990 et 1050 nm est observé dans le spectre d'émission. Cette caractéristique du cristal Yb:CALGO est propice à la génération d'impulsions ultra-brèves.

Ce plateau est un caractère peu habituel dans les spectres d'émission des cristaux laser. Quelle est donc son origine ?

3) Origine du plateau dans le spectre d'émission:

Pour rappel, il existe deux sites de substitution des ions ytterbium dans la matrice cristalline du cristal laser Yb:CALGO. Or il se révèle que ces deux sites sont complémentaires [Petit 05bis]. Pour prouver l'existence de cette complémentarité, une expérience d'excitation sélective en longueur d'onde à été réalisée. Cette expérience consiste à exciter indépendamment les deux sites. Pour cela, l'expérience n'est possible qu'à très basse température. En effet, à de telles températures, l'un des cations est plus covalent que l'autre cation. On observe alors un décalage, vers les longueurs d'onde rouges, de l'absorption pour ce cation plus covalent. On parle alors de l'effet néphélauxétique.



<u>Figure 1.20:</u> Spectres d'émission à une température de 10 K suivant deux excitations proches de 980 nm (gauche) et le spectre d'émission à une température ambiante (300 K) pour une excitation autour de 980 nm (droite) pour un cristal Yb :CALGO.

Dans le cas du cristal Yb:CALGO, à une température de 10 K, pour des longueurs d'onde de 978 nm et de 983 nm, deux spectres d'émission complémentaires sont ainsi observés. En effet, pour une excitation inférieure à 980 nm, un site est excité (spectre rouge sur la *Figure 1.20 gauche*). Et pour une excitation supérieure à 980 nm, l'autre site est alors excité (spectre vert sur la *Figure 1.20 gauche*). On remarque immédiatement qu'une bosse pour l'un des spectres correspond à un creux pour l'autre spectre. Si les deux spectres sont additionnés, il y a une compensation entre ces deux spectres pour donner le plateau dans le spectre d'émission, plateau mesuré à température ambiante et pour une excitation autour de 980 nm (*Figure 1.20 droite*)

En conclusion, on remarque que le plateau dans le spectre d'émission est dû à une complémentarité des sites des ions ytterbium. Ce spectre plat ne provient donc pas d'un désordre structural de la matrice cristalline. Cette remarque nous donne l'espoir d'avoir des valeurs élevées de la conductivité thermique pour ce cristal Yb:CALGO.

Le temps de vie de l'état excité τ est de 420 µs. Puisque qu'aucune mesure expérimentale n'ayant été faite auparavant de l'indice de réfraction, nous avons mesuré *n* grâce à un goniomètre et un prisme (*Figure 1.21*) en CALGO en fonction de la longueur d'onde et suivant aussi les deux plans de polarisation. Le laser sonde provient d'un laser « Ti:saphir » balayant les longueurs d'onde comprises entre 911 nm et 1044 nm.



Figure 1.20 : Orientation des axes cristallographies du prisme CALGO



<u>Figure 1.22</u>: Variation de l'indice de réfraction suivant les plans de polarisation en fonction de la longueur d'onde pour le cristal Yb:CALGO.

Grâce aux résultats présentés dans la *Figure 1.22*, les indices de réfraction n_a et n_c pour le cristal laser CALGO sont respectivement égale à 1,893 et 1,892, démontrant une faible biréfringence dn inférieure à 10^{-3} .

1.3.2.3- La thermique : conductivité thermique et dilatation thermique

Les valeurs de la conductivité thermique κ_a et κ_c ont été mesurées égales à 6,9 et 6,3 W.m⁻¹.K⁻¹ suivant les axes *a* et *c* respectivement pour un cristal de CALGO dopé 2 % en ytterbium par J. Petit durant sa thèse au Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Chimie Paris [Petit 05 bis]. Ces valeurs de la conductivité thermique apparaissent très intéressantes comparées au 8 W.m⁻¹.K⁻¹ pour un cristal de YAG dopé 5% en ions ytterbium [Patel 01]. Bien qu'aucune mesure n'ait été faite pour la conductivité thermique non dopé du CALGO, on peut supposer que les valeurs pour le cristal de CALGO non dopé seront très proches des valeurs mesurées pour un échantillon dopé à 2 % en ions ytterbium et donc comprises entre 6 et 7 W.m⁻¹.K⁻¹ pour les deux axes cristallographiques du cristal. En effet, les ions ytterbium substituent principalement les ions gadolinium. Vu leur faible différence de masse (tableau 1.1), on peut naturellement s'attendre à ce genre de valeurs pour la conductivité thermique d'un cristal de CALGO non dopé.

Les dilatations thermiques α_a et α_c du cristal laser Yb:CALGO sont égales à 10,1 10⁻⁶ et 16,2 10⁻⁶ K⁻¹ suivant les axes *a* et c respectivement [Petit 05bis]. On remarque qu'elles sont plus faibles que les valeurs proches de 20 10⁻⁶ K⁻¹ pour les deux cristaux de fluorure. Une meilleure résistance thermique est alors attendue pour le cristal Yb:CALGO.

1.3.2.4- Impulsion femtoseconde?

Avec le cristal d'Yb:CALGO, des impulsions de 47 fs ont été obtenues pour une puissance moyenne de 38 mW. Ces impulsions femtosecondes restent à ce jour les impulsions les plus courtes générées par un cristal dopé ytterbium pompé directement par diode laser. Ce cristal, au vu de ses performances, apparaît également comme un candidat très prometteur pour le développement de sources laser femtosecondes de fortes puissances [Zaouter 06]

1.4- Synthèse et conclusions de ce chapitre 1.

Dans un premier temps, après le choix de l'ion ytterbium comme ion dopant, on a précisé l'importance du choix du cristal laser hôte. En effet la structure cristalline des cristaux laser va déterminer leurs propriétés spectroscopiques et thermomécaniques. La stratégie du choix du cristal hôte s'articule autour de trois critères de sélection. Ces trois critères de sélection sont les suivants :

-- 1) La présence d'un large spectre d'émission est propice à la génération d'impulsions ultra-brèves.

-- 2) Le souhait d'une excellente conductivité thermique κ_c pour une meilleure résistance thermique et en conséquence pour pouvoir supporter de forts pompages sans risque de fracture du cristal. Un modèle théorique de la conductivité thermique en fonction du taux dopage en ions dopants a montré que le choix des ions substitués a aussi une importance sur la conductivité des cristaux dopés.

-- 3) La dernière requête se focalise sur de fortes sections efficaces d'émission $\sigma_{em}(\lambda_l)$ car ces dernières participent à l'efficacité laser. Mais une maîtrise des pertes de la cavité laser permet d'optimiser l'efficacité laser au mieux malgré les faibles sections efficaces de l'ion ytterbium.

Ensuite, nous nous sommes aperçus que ces trois critères de sélection sont en général contradictoire et que seuls des cristaux atypiques comme les fluorures (agrégats) et le CALGO (complémentarité des deux sites de substitution) peuvent les réunir. Il existe en effet quelques exceptions à ces critères de sélection comme les cristaux de fluorure et le cristal CALGO. Pour les fluorures, les forts dopages en ions ytterbium introduisent non seulement du désordre mais participent aussi à la formation d'agrégats. Ce phénomène peu connu est en cours de recherche. Néanmoins, cette présence d'agrégats permet l'association d'une conductivité thermique intéressante et une large bande d'émission. En comparaison, le cristal CALGO présente un spectre plat grâce à une complémentarité de deux sites et non d'un fort désordre ce qui lui autorise des valeurs excellentes pour la conductivité thermique. Ces deux cristaux ont été alors choisis pour le développement de nouvelles sources femtosecondes de puissance.

Toutes les principales caractéristiques des cristaux de fluorures et CALGO sont répertoriées tableau 1.3. Elles mettent en avant leurs larges bandes d'émission et leurs conductivités thermiques intéressantes.

| | Yb:CaF ₂ | Yb:SrF ₂ | Yb:CALGO | |
|---|---------------------|---------------------|-------------------|--|
| | | | axe a axe c | |
| largeur spectrale à mi-hauteur du spectre d'émission Δv (nm) | 70 | 70 | 80 | |
| conductivité thermique non dopé $\kappa_0 $ (W.m ⁻¹ .K ⁻¹) | 9,7 | 8,3 | 7-6 | |
| conductivité thermique dopé $\kappa_c (W.m^{-1}.K^{-1})$ | 6,06 (2,6%) | 3,31 (2,9%) | 6,9 (2%) 6,3 (2%) | |

| Chapitre 1- Etat de l'art : Les différentes familles de cristaux pour la génération d'impulsions |
|--|
| femtosecondes |
| |

| coefficient de dilatation $\alpha(10^{-6} \text{ K}^{-1})$ | 18,9 | 18,4 | 10,1 | 16,2 |
|--|-------|-------|-------|-------|
| indice de réfraction n | 1,43 | 1,44 | 1,89 | 1,89 |
| dispersion $(fs^2/\mu m)^*$ | 0,197 | 0,219 | 0,497 | 0,472 |
| temps de vie de l'état excité τ (µs) | 240 | 290 | 420 | |
| * une longueur d'onde centrale de 1µm | | | | |

Tableau 1.3: Principales caractéristiques des cristaux de fluorures et de CALGO

Finalement, le tableau 1.4 résume pour nos trois cristaux les performances déjà obtenues en régime femtoseconde. Mon projet sera principalement tourné vers une augmentation de la puissance de pompe afin d'accroître les puissances de sortie pour le CALGO et réduire la durée pour les fluorures.

| | Yb:CaF ₂ | Yb:SrF ₂ | Yb:CALGO |
|---------------------|---------------------------------------|--|---|
| impulsions obtenues | 150 fs @ P=880 mW | aucune | 37 fs @ P=38 mW |
| puissance de pompe | Pompe 15 W | | Pompe 5W |
| Idée | augmentation de la puissance de pompe | utiliser pour un laser femtoseconde | augmentation de la puissance de pompe |
| But | sub-100 fs et étude thermique | obtention des premières impulsions fs et étude thermique | sub-100 fs puissance supérieure à 500 mW et étude thermique |

Tableau 1.4: Résumé des performances et nos prochaines études des cristaux dopés ytterbium choisis.

Avant de les soumettre à un fort pompe par diode laser, une étude thermique sera effectuée sur chaque cristaux afin d'analyser leurs propriétés thermiques et leurs comportements sous de forts pompages optiques.

Bibliographie

A

[Aus der Au 99] J. Aus der Au, S. F. Schaer, R. Paschotta, C. Hönninger, U. Keller, and M. Moser, "High-power diode-pumped passively mode-locked Yb:YAG lasers," Opt. Lett. 24, 1281-1283 (1999)

С

[Camy 07] P. Camy, J.L. Doualan, A. Benayad, M. von Edlinger, V. Ménard and R. Moncorgé, "Comparative spectroscopic and laser properties of Yb^{3+} -doped CaF₂, SrF₂ and BaF₂ single crystals", Appl. Phys. B 89 (4) 539-542 (December 2007)

[Clarke 1830] E.-D. Clarke, Lettre traduite du professeur Clark traduit par Billy pour les Annales de Chimie et de Physique, tome III, sous la tutelle de Gay-Lussac et Arago, Edition Masson 1980

[Czochralski 18] J. Czochralski, "Ein neues Verfahren zur Messung des Krostallosationsgeschwindigkeit der Metalle", Z. Phys. Chem. 92, 219-221 (1918)

D

[Delaigue 06] Delaigue, M., Manek-Honninger, I., Salin, F., Honninger, C., Rigail, P., Courjaud, A., Mottay, E., "300 kHz femtosecond Yb: KGW regenerative amplifier using an acousto-optic Q-switch", Applied Physics B **84**, (3) 375-378 (2006)

[DeLoach 94] D. DeLoach, S. A. Payne, L. K. Smith, W. L. Kway, and W. F. Krupke, "Laser and spectroscopic properties of Sr5(PO4)3F:Yb," J. Opt. Soc. Am. B **11**, 269- (1994)

F

[Fan 93] T.Y. Fan, "Heat generation in Nd:YAG and Yb:YAG", IEEE J. Quantum Electron. 29 (6), 1457-1459 (1993)

G

[Gaumé 02] Romain Gaumé, "Relations structure-propriétés dans les lasers solides de puissance à l'ytterbium. Elaboration et caractérisation de nouveaux matériaux et de cristaux composites soudés par diffusion", thèse de Doctorat de l'Université Pierre et Marie Curie Paris VI (2002)

[Gaumé 03] R. Gaumé, B. Viana, D. Vivien, J.P. Roger and D. Fournier, "A simple model for the prediction of thermal conductivity in pure and doped insaluting crystals", Appl. Phys. Lett. 83 (7) 1355-1357 (2003)

Н

[Haumesser 01] P-H. Haumesser, R. Gaumé, J.-M. Benitez, B. Viana, B. Ferrand, G. Aka and D. Vivien "Czochralski growth of six Yb-doped double borate and silicate laser materials", J. Crystal Growth 233, 233-242 (2001)

[Haumesser 02] P-H. Haumesser, R. Gaumé, B. viana and D. Vivien "Determination of laser parameters of ytterbium-doped oxide crystalline materials", J. Opt. Soc. Am. B, 19, 2365-2375 (2002)

[Holtom 06] G. R. Holtom, "Mode-locked Yb:KGW laser longitudinally pumped by polarization-coupled diode bars," Opt. Lett. **31**, 2719-2721 (2006)

[Hönninger 98] C. Hönninger, F. Morier-Genoud, M. Moser, U. Keller, L. R. Brovelli, and C. Harder, "Efficient and tunable diode-pumped femtosecond Yb:glass lasers," Opt. Lett. 23, 126-128 (1998)

[Humphreys 1904] W. J. Humphreys, "On the presence of Yttrium and Ytterbium in Fluor Spar", University of Virginia (1904)

Ι

[Ito 04] M. Itao, C. Goutaudier, Y. Guyot, K. Lebbou, T. Fukuda, G. Boulon, "Crystal growth, Yb3+ spectroscopy, concentration quenching, analysis and potentially of laser emission in Ca1-xYbxF2+x", J. Phys.: Condens. Matter, 16, 1501-1521 (2004)

K

[Keyes 64] R.J. Keyes, T.M. Quist, "Injection luminescent pumping of $CaF_2:U^{3+}$ with GaAs diode lasers", App. Phys. Lett. 4, 50-52 (1964)

[Kisel 04] Kisel, A. E. Troshin, N. A. Tolstik, V. G. Shcherbitsky, N. V. Kuleshov, V. N. Matrosov, T. A. Matrosova, and M. I. Kupchenko, "Spectroscopy and continuous-wave diode-pumped laser action of Yb³⁺:YVO₄," Opt. Lett. 29, 2491-2493 (2004)

[Klemens 60] P.G. Klemens, "Thermal resistance due to point defects at high temperature", Phys. Rev. 119 (2), 507-509 (1960)

[Klopp 02] P. Klopp, V. Petrov, U. Griebner, and G. Erbert, "Passively mode-locked Yb:KYW laser pumped by a tapered diode laser," Opt. Express **10**, 108-113 (2002)

[Kodama 98] N. Kodama, M. Yamaga "Crystal characterization and optical spectroscopy of CaGdAlO₄ crystal", Phys. Rev. B, 17 (2) 811-817 (1998)

L

[Lagatskii 97] A.A. Lagatskii, N.V. Kuleshov, V.G. Shcherbitskii et al, "Lasing characteristic of a diode-pumped Nd³⁺:CaGdAlO₄", Journal of Luminescence, 27 (1) 15-17 (1997)

[Leniec 05] G. Leniec, S.M. Kaczmarek, G. Boulon, "EPR and optical properties of CaF₂:Yb single crystals", Proceedings of SPIE 5958, 531-540 (2005)

[Lucca 04] A. Lucca, G. Debourg, M. Jacquemet, F. Druon, F. Balembois, P. Georges, P. Camy, J. L. Doualan, and R. Moncorgé, "High-power diode-pumped Yb³⁺:CaF₂ femtosecond laser," Opt. Lett. 29, 2767-2769 (2004)

Μ

[Metrat 99] G. Metrat, M. Boudeulle, N. Muhlstein, A. Brenier, G. Boulon "Nucleation, morphology and spectroscopic properties of Yb3+ -doped KY(WO4)2 crystals grown by the top nucleated floating crystal method", Journal of Crystal Growth, 197, 883-888 (1999)

[Moulton 86] P.F. Moulton, "Spectroscopic and laser characteristics of $TiAl_2O_3$ ", J. Opt. Soc. Am. B 3, 125-133 (1986).

Р

[Patel 01] F. D. Patel, E. C. Honea, J. Speth, S. A. Payne, R. Hutcheson, R. Equall, "Laser demonstration of Yb3Al5O12 (YbAG) and materials properties of highly doped Yb:YAG", IEEE J. Quantum Electon. **37** (1), 135-144 (2001)

[Peters 02] V. Peters, A. Bolz, K. Petermann, G. Huber, "Growth of high sesquoixides by the heat exchanger method", J. Crystal Growth 237-239, 879-883 (2002)

[Petit 05] J. Petit, P. Goldner, and B. Viana, "Laser emission with low quantum defect in Yb:CaGdAlO₄," Opt. Lett. 30, 1345-1347 (2005)

[Petit 05bis] Johan Petit, "Monocristaux dopés ytterbium et matériaux assemblés pour laser de fortes puissances", thèse de Doctorat de l'Université Pierre et Marie Curie Paris VI (2002)

[Petit 06], Vincent Petit, "Etude de matériaux dopésYb³⁺ pour une émission laser large bande autour de 1 μ m", thèse de Doctorat de l'Université de Caen (2006)

S

[Stockbarger 1949], D.C. Stockbarger, "Artificial Fluorite", J. Opt. Soc. Am. 39, (9) 731-740 (1949)

Т

[Thibault 06] F. Thibault, D. Pelenc, F. Druon, Y. Zaouter, M. Jacquemet, and P. Georges, "Efficient diode-pumped $Yb^{3+}:Y_2SiO_5$ and $Yb^{3+}:Lu_2SiO_5$ high-power femtosecond laser operation," Opt. Lett. 31, 1555-1557 (2006)

U

[Urbain 1909], G. Urbain, "La phosphorescence cathodique des Terres Rares", Annales de Chimie et de Physique, 8ème série, tome XVII (1909)

V

[Viana 04] B. Viana, D. Vivien, P. Loiseau, S. Jandl, and S. Campos, "Spectroscopic investigation of the laser materials $Yb^{3+}:RE_2SiO_5$, RE=Y, Sc, Lu", in Solid-State Lasers Proceedings of SPIE Photonics Europe 2004, 48, paper 5460-48 (2004)

W

[Wells 00] J.P.R. Wells, T.P.J Han, M. Yamago, N. Kodama, and H.G. Gallagher, "Disordered laser gain medium Er^{3^+} doped CaGdAlO₄ and Ca₃Ga₂Ge₄O₁₄", Journal of Luminescence, 87-89 1093-1095 (2000)

Z

[Zaouter 06] Y. Zaouter, J. Didierjean, F. Balembois, G. L. Leclin, F. Druon, P. Georges, J. Petit, P. Goldner, and B. Viana, "47-fs diode-pumped Yb³⁺:CaGdAlO₄ laser, " Opt. Lett. 31, 119-121 (2006)

CHAPITRE 2 :

Etude des propriétés thermiques des cristaux Yb:CALGO et Yb:fluorures.

2.1- Introduction

Qui dit lasers de forte puissance moyenne dit fortes puissances de pompe. Une augmentation de la puissance de pompe est synonyme d'échauffement du cristal laser et entraine en conséquence des effets thermiques au sein de ce cristal. Ces effets thermiques inévitables et non souhaités entraînent des gradients de température donc d'indice de réfraction dans le matériau laser (lentille thermique) et peuvent être responsables d'une baisse de l'efficacité laser, de la déformation du faisceau laser (d'un faisceau monomode en un faisceau multimode, *Figure 2.1*), de la perte de l'oscillation et, dans le pire des cas, de la fracture du cristal laser.



Figure 2.1: Déformation du faisceau laser avec la lentille thermique

Une étude des propriétés thermiques des cristaux laser est donc fondamentale pour éviter la fracture du cristal laser. La prochaine étape dans le développement de nouvelles sources laser femtosecondes est une compréhension et surtout une quantification de différentes sources de chaleur et de leurs conséquences dans le cas des cristaux laser choisis précédemment. Une des conséquences mesurables de cet échauffement est ce que l'on appelle la lentille thermique. L'échauffement du cristal va l'obliger à se comporter comme une lentille qui peut aisément déstabiliser la cavité laser et/ou changer radicalement le mode du faisceau laser. Plusieurs questions nous viennent alors à l'esprit : comment quantifier ces sources de chaleur ? Quelles sont leurs origines physiques et surtout les conséquences de ces effets thermiques ? Comment un cristal laser soumis à un fort pompage peut se comporter comme une lentille ?

Objectif de ce chapitre

Dans un premier temps, nous nous focaliserons sur un bref état de l'art des différentes études thermiques qui ont déjà réalisées mais également celles effectuées au sein de notre équipe. Ce succinct état de l'art permettra alors de présenter le contexte de la réalisation du banc de caractérisation thermique. Ensuite, les origines des sources de chaleur ainsi que leurs quantifications et conséquences seront expliquées. Puis nous présenterons le banc complet de caractérisation thermique qui nous a permis l'étude des trois cristaux laser choisis précédemment. Grâce à ce banc d'étude thermique, nous avons non seulement eu la possibilité in situ de mesurer des propriétés thermiques mais également déterminer une valeur pour la conductivité thermique des fluorures dopés ytterbium, mal connue jusqu'alors. Finalement, cette étude thermique nous permettra une rapide comparaison entre ces différents cristaux.

2.2- Etat de l'art

Cette partie sera dédiée aux études thermiques, expérimentales et théoriques. Ces études porteront sur la mesure de l'échauffement du cristal laser et de la lentille thermique, qui pour rappel est l'une des conséquences mesurable de cet échauffement. De plus, seront présentés le système de pompage utilisé et ses intérêts ainsi que le système de refroidissement choisis pour éviter un échauffement trop important du cristal laser.

2.2.1- Contexte : travaux antérieurs...

Dans un premier temps, nous présenterons les travaux antérieurs sur les propriétés thermiques des cristaux laser, travaux principalement focalisés sur l'origine des différentes sources de chaleur au sein du cristal laser après absorption de photons de pompe. Ensuite, nous détaillerons les études et les mesures faites sur la lentille thermique. Enfin, nous présenterons les expériences déjà effectuées au sein de notre équipe.

2.2.1.1- ...sur les sources de chaleur dans les cristaux laser

Un des paramètres utile pour quantifier la chaleur déposée par la pompe dans le cristal laser est la fraction thermique. La fraction thermique est la proportion de puissance optique absorbée perdue sous forme de chaleur. La fraction thermique sera détaillée ultérieurement. Ce formalisme fut introduit par Fan [Fan 93], et nous servira comme théorie de base dans notre étude. De plus, de nombreux travaux se sont concentrés sur l'évolution de la fraction thermique en présence d'effet laser ou non [Blows 98]

Pourtant, peu d'expériences ont été réalisées sur la répartition de la chaleur au sein du cristal lors d'un pompage par diode laser. Cette distribution de la chaleur étant inhomogène, les sondes thermiques ne peuvent pas être utilisées pour mesurer de manière exhaustive cette répartition de la chaleur. En 1970, Koechner s'est intéressé aux études thermiques et à la distribution de chaleur dans des barreaux de Nd:YAG pompés par lampes à arc. Malheureusement, ces sont des mesures indirectes et son étude ne peut s'appliquer à notre système de pompage longitudinal par diode laser [Koechner 70]. Une autre expérience intéressante a consisté en une mesure de diffusivité thermique via une cartographie thermique de cristaux chauffés par une impulsion d'un laser à Argon [Bisson 00]. Cependant un travail récent a attiré notre attention puisqu'il s'intéresse à la dépendance des effets thermiques avec le dopage et de la longueur d'onde d'émission laser dans des cristaux laser Nd:YAG grâce à une cartographie thermique [Pavel 06].

Contrairement aux expériences de caractérisations des propriétés thermiques, il existe une multitude d'exemples d'études thermiques théoriques. Une étude théorique généralisée a été développée par Farruk [Farruck 88] Cette étude est applicable quelle que soit la configuration de pompe. En 1992, Cousins a publié une étude thermique de très grande qualité sur les barreaux pompés longitudinalement [Cousins 92]. De plus en parallèle, la technologie grandissante des ordinateurs ont permis le développement de calculs numériques par éléments finis (ou «FEA » en anglais) de la distribution de la température tels que le logiciel de LASCAD [Site LASCAD]

2.2.1.2- ...sur la lentille thermique

De nombreuses publications abondent sur la mesure et le calcul de la lentille thermique. Il existe trois grands types de méthodes qui seront décrites ci-après :

1) méthodes géométriques de déplacement du point de focalisation :

Le principe de cette méthode consiste en une mesure de déplacement du plan focal. En partant de l'optique géométrique, il a pour but de calculer la distance entre les plans de focalisation du faisceau lumineux sonde traversant le cristal pompé et ensuite non. Ce déplacement permet de remonter à la focale de la lentille thermique [Burnham 70]. Mais cette méthode est limitée car elle est basée sur l'évaluation de focales de lentilles parfaites (en conséquence pas d'évaluation des aberrations), adaptée pour des pompages transverses avec des cristaux de grandes surfaces. Cette méthode n'est donc pas valable pour notre étude, à cause de petitesse des tailles de pompe (200- 400 μ m sont de tailles de pompe couramment utilisées).

Une autre méthode simple utilise un faisceau de sonde spatialement cohérent de taille comparable à celle de la zone pompée [Hu 73]. On s'intéresse alors aux déformations du faisceau sonde après avoir traversé le cristal pompé ou non grâce à une différence de divergence [Hue 73] ou un changement de taille de la pupille (surface éclairée sur le détecteur) dans un plan judicieusement choisi [Murray 83].

Le gros inconvénient de ces méthodes de déplacement du point focal est l'imprécision des mesures. Leurs incertitudes atteignent généralement des valeurs comprises entre 20 et 30 % sur les mesures de distance focale. Finalement, seule la focalisation est mesurée, les aberrations de cette lentille thermique ne peuvent pas être déterminées.

2) méthodes basées sur les modes de la cavité :

Une lentille thermique modifie les zones de stabilité de la cavité laser. Elle a une influence aussi sur les propriétés du faisceau laser émis telle que sa taille ou sa divergence. En mesurant ces déformations, on est alors capable de mesurer la focale de la lentille thermique grâce aux à la méthode des matrices ABCD. Ils existent différentes techniques comme celles développées par Frauchiger *et al* [Frauchiger 92] sur la divergence ou Neuenschwander *et al* [Neuenschwander 95] par la mesure d'une zone de stabilité.

L'inconvénient de cette méthode est l'incapacité de mesurer la focale de la lentille thermique sans effet laser mais présente l'avantage d'un faible coût. De plus les valeurs mesurées ne sont absolument pas précises et ne sont que des ordres de grandeur, jusqu'à 60% d'incertitude dans certains cas [Neuenschwander 95].De manière analogue à la méthode précédente, les méthodes basées sur les modes de la cavité laser ne permettent que de mesurer la focale de la lentille thermique et pas ses aberrations.

3) méthodes interférométriques :

Tout d'abord, il existe des méthodes interférométriques dites « classiques » à base d'interféromètres de Michelson ou de Mach-Zender par exemples. La mesure de la lentille thermique est basées l'interaction de deux répliques de front d'onde légèrement retardé l'un par rapport à l'autre. Ces méthodes de mesure de lentille thermique, très sensibles aux vibrations ne sont malheureusement pas applicables dans des pompages longitudinaux par diode laser car les déformations induites sur la phase sont tellement petites qu'il est impossible de créer un système d'interférence donc de franges. En effet, les zones de pompage sont trop petites [Pfitsner 94]. Ensuite, il existe les méthodes interférométriques à décalage de phase latéral (« trilateral shearing interferometry ») [Primot 97] qui sont adaptées pour le pompage longitudinal. Le principe consiste à scinder un front d'onde

aberrant en trois répliques dans les deux directions orthogonales grâce à un réseau bidimensionnel [Chanteloup 98]. La précision de ces méthodes est très bonne : seulement 12 % d'incertitude sur la mesure de la focale de la lentille thermique. De tels dispositifs sont commercialisées [Site Phasics].

4) méthodes géométriques du front d'onde par un analyseur de type Shack-Hartmann:

Les méthodes géométriques de mesure de front d'onde utilisent des analyseurs de front d'onde de type Shark-Hartmann par exemple. De tels analyseurs sont des dispositifs commercialisés [Site Imagine-Optic]. Grâce à une matrice de microlentilles, il est capable de mesurer les différentes pentes locales du front d'onde d'un faisceau lumineux. Il suffit alors d'analyser le front d'onde d'un faisceau lumineux qui viendrait sonder le cristal pompé ou non. Le cristal soumis à un fort pompage se comportera comme une lentille thermique et déformera alors le front d'onde de la sonde traversant le cristal. Ce système d'analyse a déjà fait ses preuves [Pittman 02] [Ito 02] et au sein de notre équipe [Chénais 06]. Les avantages de ce système sont sa faible incertitude sur les mesure : inférieures à 10 %, sa non-sensibilité aux vibrations externes ou à la cohérence de la source de la sonde et finalement à sa possibilité de faire des mesures en temps réel. Le nombre de microlentilles est le facteur limitant de cette méthode de mesure de lentille thermique. Un autre avantage de cette méthode est la possibilité d'observer la focale de la lentille thermique mais également ses aberrations comme l'aberration sphérique ou l'astigmatisme.

2.2.1.3- ... sur la conductivité thermique

La principale méthode utilisée est la méthode de mesure par « flash ». Sur l'une des faces du cristal à étudier est envoyé un puissant flash [Parker 61]. On mesure alors l'évolution de la température de la face opposée du cristal en fonction du temps. Cette courbe nous permet de calculer la diffusivité thermique D_{th} qui est reliée à la conductivité thermique κ_c de la manière suivante :

$$\kappa_c = D_{th} . C_p . \rho \tag{2.1}$$

où C_p est la capacité thermique et ρ la densité. On constate alors que la mesure de κ_c est une mesure indirecte car elle demande la connaissance de la capacité thermique et de la densité. Or C_p est une donnée thermodynamique complexe à déterminer. La source flash peut être remplacée par un laser impulsionnel pour avoir des impulsions plus courtes que le temps de diffusion de la chaleur.

Cette méthode est également utilisée mais en variant les méthodes de détection de la chaleur arrivant sur la face opposée du cristal. Ces moyens de détection sont la microscopie par réflectance [Pottier 94], la détection de la déviation d'un faisceau sonde [Salazar 91] ou la détection de l'onde de chaleur grâce à une caméra infrarouge [Bisson 00].

2.2.1.4- ...de l'équipe

Précédemment au sein de l'équipe, des nombreux travaux avaient été déjà été réalisés sur les propriétés thermiques des cristaux laser dopés ytterbium.

Tout d'abord, un banc de mesure de lentille thermique en configuration laser ou non à été développé initialement par Sébastien Chénais durant sa thèse. De nombreux cristaux laser dopés ytterbium ont été étudiés comme la famille des borates (Yb:BOYS) ou la famille des grenats (Yb:YAG) par exemple. Ce banc thermique a permis de mesurer non seulement les focales de lentille thermique (et ses aberrations) mais aussi les rendements quantiques de fluorescence (une quantification des sources de chaleur, détaillée ultérieurement) et les coefficients thermo-optiques de cristaux laser [Chénais 02] [Chénais 06].

Ensuite, Sébastien Chénais a développé un autre banc d'étude : la cartographie thermique. Ce banc de cartographie a permis la mesure de l'efficacité du bloc de refroidissement du cristal pompé. Pour cela, les coefficients de transfert thermique entre le cristal et la monture ont été calculés. Bien que les cartographies ont été réalisées sous pompage *in situ*, elles ne peuvent être malheureusement étudiées qu'en l'absence d'effet laser de part la configuration de la mesure [Chénais 04].

Finalement, durant ces travaux de thèse, J. Didierjean a amélioré le banc de cartographie thermique en permettant la prise de mesure en présence ou non de l'effet laser. Il a également développé une nouvelle méthode de mesurer la conductivité thermique des cristaux dopés ytterbium via une cartographie thermique en présence d'effet laser [Didierjean 07].

En ayant posé le contexte de nos travaux sur l'étude thermique, intéressons-nous aux systèmes de pompage et de refroidissement utilisés pour notre banc de caractérisation thermique qui est similaire à celui généralement utilisé pour les cavités laser femtosecondes de puissance.

2.2.2- Pompage longitudinal par diode laser de puissance fibrée

Le choix du pompage longitudinal permet un meilleur recouvrement entre les faisceaux laser et de pompe contrairement au pompage transverse. Les diodes laser de type fibrées présentent un faisceau de pompe à la sortie de fibre à symétrie radiale ou circulaire. Les diodes laser étant commerciales et de fortes puissances moyennes, nous optons pour ce système de pompage.

Le seul inconvénient de ces diodes laser est la qualité du faisceau en sortie de fibre. Les fibres utilisées sont des fibres multimodes de diamètres de cœur compris entre 50 μ m et 400 μ m avec une ouverture de 0,22 dans la majorité des cas. Le facteur de qualité, le facteur M^2 (voir encadré 2.1), a des valeurs comprises entre 36 et 569, loin d'un faisceau monomode où le M² vaut 1. De plus, si la fibre n'est pas une fibre à maintien de polarisation, le faisceau en sortie de fibre est totalement dépolarisé.

Encadré 2.1: le facteur M² ?

Un faisceau gaussien est dit « limité par diffraction » lorsque la qualité de faisceau qui peut être évalué par le moment d'ordre 2 : M^2 vaut l'unité. Le mode fondamental TEM₀₀ correspond à un faisceau gaussien. Lorsque le $M^2 > 1$, le faisceau va diverger M^2 plus rapidement que le faisceau gaussien TEM₀₀ de même dimension. M^2 s'écrit de la manière suivante :

$$M^{2} = \frac{\pi . \omega_{0} . \theta}{\lambda}$$
(2.2)



Le faisceau de pompe issu de la diode est collimaté (par un doublet ou un triplet) puis focalisé (par un doublet ou un triplet) dans le cristal laser (*Figure 2.3*) avec un facteur de grandissement adapté. Ce banc de pompage sera utilisé aussi bien pour les études thermiques que pour les cavités laser femtosecondes qui seront étudiées dans le chapitre suivant.



Figure 2.3: Vue d'en haut du système de pompage longitudinal

2.2.3- Le système de refroidissement

Les problèmes thermiques sont les facteurs limitant des lasers de fortes puissances moyennes. Il faut donc réaliser une bonne évacuation des calories. Pour aider le cristal laser à évacuer cette chaleur, un système de refroidissement a été développé et est représenté sur la *Figure 2.4*. De la graisse thermique est ajoutée sur les faces du cristal pour améliorer le contact thermique entre le cristal et la monture en cuivre [Chénais 04]. De plus, un module a effet Peltier¹⁵ a été rajouté pour contrôler de manière active la température de l'ensemble du bloc de refroidissement mais également de favoriser le transfert thermique cette fois-ci entre le cristal et la circulation d'eau.

¹⁵ L'effet Peltier (ou effet thermoélectrique) est un phénomène physique (à revoir, c'est pas une absorption, mais un transfert entre une face chaude et une face froide en fonction du courant) de la chaleur qui se fait au niveau du contact entre deux conducteurs de natures différentes suivant le sens du courant.



Figure 2.4: Système de refroidissement de nos cristaux laser

2.3- Les différentes sources de chaleur dans les cristaux laser

Une partie de cette puissance de pompe est alors absorbée par ce dernier dans le but de créer l'inversion de population. Une fraction de cette puissance absorbée sera transformée en émission laser et/ou en fluorescence suivant la présence de l'effet laser ou non. Le reste de cette énergie sera inévitablement convertie sous forme de chaleur. La présence de ces sources de chaleur est à l'origine d'une distribution de la chaleur dans le cristal laser.

Dans un premier temps, après définition des rendements utilisés en thermique, nous détaillerons les causes des sources de chaleur dans le cristal laser (2.3.1). Puis, les conséquences de ces sources de chaleur seront étudiées (2.3.2). Finalement, nous nous focaliserons sur la lentille thermique, conséquence mesurable de ces effets thermiques (2.3.3).

2.3.1- Quantification et les origines des différentes sources de chaleur au sein des cristaux laser

2.3.1.1- Expression de la fraction thermique

La principale quantification des sources de chaleur est la fraction thermique. En effet, la fraction thermique ou η_h (« fractional thermal load » en anglais) représente la fraction de la puissance absorbée par le cristal laser transformé en chaleur car $P_{th} = \eta_h$. P_{abs} où P_{th} et P_{abs} représentent les puissances thermique dissipée et absorbée.

Pour pouvoir comprendre les différentes contributions à la fraction thermique, intéressonsnous aux différentes origines de ces sources de chaleur après absorption d'un photon de pompe par le cristal laser. Ces différents « chemins » sont représentés sur la *Figure 2.5*.



Figure 2.5: Les différents chemins possibles au sein du cristal laser après absorption d'un photon de pompe pour l'apparition des sources de chaleur.

Fan [Fan 93] a introduit des rendements qui permettent aisément de quantifier les différentes sources de chaleur mais également de les proportionner:

1) η_p ou rendement quantique d'absorption (« pump efficiency » en anglais)

Le rendement quantique d'absorption représente la probabilité qu'un photon excite un ion pour l'amener dans le niveau d'énergie supérieur, donc augmenté le peuplement du niveau excité. Quand le rendement quantique d'absorption vaut l'unité, on parle alors de cristal parfait où aucun piège non-radiatif (ou « dead sites » en anglais) ne vient emprisonner le photon de pompe. Par conséquent, $\eta_p < 1$ signifie que les photons sont piégés par ces sites non-radiatifs et leur énergie *h. v_p* est alors convertie en chaleur. *h* est la constante de Planck et v_p la fréquence du photon de pompe. Attention, ce rendement ne tient compte que des photons absorbés par le cristal mais en aucun cas de la notion de puissance absorbée par ce dernier. Ce rendement quantique d'absorption est dépendant du dopage du cristal laser. Par contre, la mesure directe de ce rendement paraît impossible et les seules déterminations de η_p sont des mesures indirectes issues de la mesure de la fraction thermique ou fraction de la puissance de pompe convertie en chaleur [Blows 98]. Couramment, dans les principales études thermiques, le rendement quantique d'absorption est supposé égal à l'unité car on suppose les cristaux suffisamment parfaits.

2) η_l ou le rendement d'extraction laser (ou « laser extraction efficiency » en anglais)

Le rendement d'extraction laser correspond à la fraction des photons absorbés qui vont participer à l'émission d'un photon laser, donc à l'émission stimulée. Une fraction de cette énergie sera attribuée à l'énergie du photon alors que le reste de l'énergie sera dissipé thermiquement dans le cristal laser. Cette perte sous forme de chaleur est appelé le défaut quantique et s'exprime de la manière suivante :

$$\eta_{défaut_quantique} = \frac{h.(v_p - v_l)}{hv_p} = l - \frac{\lambda_p}{\lambda_l}$$
(2.3)

où λ_p et λ_l sont les longueurs d'onde de pompe et d'émission laser. L'expression (2.3) nous montre que le défaut quantique est relatif à l'écart entre l'énergie des photons absorbés et l'énergie des photons laser. En conclusion, plus petite est la différence entre les longueurs d'onde d'absorption et laser, plus petite sera la valeur du défaut quantique, plus faible sera la production de chaleur.

Comparons les défauts quantiques pour les cristaux Yb:YAG et Nd:YAG. Pour un pompage à 808 nm, le cristal Nd:YAG a une émission laser autour de 1064 nm. Le YAG dopé néodyme a en conséquence un défaut quantique de 24%, soit quasiment un quart de la puissance absorbée se dissipe thermiquement. Par contre, pour un pompage efficace près de 980 nm, le cristal Yb:YAG a une émission laser autour de 1064 nm, soit un défaut quantique de 8 %. Il apparaît clairement l'avantage du choix de l'ion ytterbium comme dopant du cristal laser.

3) η_r ou rendement quantique de fluorescence ou rendement quantique (ou « quantum radiative efficiency » en anglais)

L'analyse est la même que la précédente. A la différence de participer pour l'émission laser, cette fois-ci, le photon absorbé contribue à l'émission d'un photon de fluorescence. Lors de l'émission spontanée, l'ion évacue l'énergie sous forme radiative (un photon de fluorescence moyenne de longueur d'onde λ_f) et le reste de l'énergie sous forme de chaleur. De manière analogue, on définit le défaut quantique de fluorescence correspondant à cette création de chaleur :

$$\eta_{défaut_quantique_fkuorescence} = \frac{h.(v_p - v_f)}{h.v_p} = 1 - \frac{\lambda_p}{\lambda_f}$$
(2.4)

Dans la majorité des cristaux laser, la longueur d'onde de fluorescence moyenne est inférieure à la longueur laser. Pour illustrer ce propos, donnons l'exemple du cristal Yb: CaF_2 de nos expériences avec une longueur d'onde laser de 1050 nm et une longueur d'onde de fluorescence de 1008 nm.

4) Parcours $\eta_p . (1-\eta_l)$. $(1-\eta_r)$ et $(1-\eta_p)$: désexcitations non-radiatives

Ce parcours correspond à des désexcitations non radiatives. L'ion ytterbium ayant une structure électronique simple, seul l'extinction de fluorescence par effet de concentration peut avoir lieu au sein d'un cristal dopé ytterbium. Cette désexcitation a pour origine des échanges

d'énergie d'excitation entre deux ions ytterbium proches soit de manière non-radiative soit par des émissions et des absorptions de photons de manière successives (*Figure 2.9*).

Si le matériau laser ne présente aucun défaut, aucune émission de chaleur ne sera observée. Par contre, en présence d'impuretés (*Figure 2.9*), l'énergie ainsi véhiculée sera piégée par l'impureté et convertie en chaleur. Ces transferts successifs de l'énergie sont d'autant plus probables que le taux de dopage est important, diminuant ainsi la distance entre deux ions ytterbium différents. Ce phénomène a été mis en évidence dans les cristaux laser dopés ytterbium [Yang 02].



Figure 2.9: Schéma représentatif de l'extinction de fluorescence par effet de concentration

Il existe aussi les relaxations multiphonons. Ce sont des désexcitations successives entre les niveaux d'énergie excité ${}^{2}F_{5/2}$ et fondamental ${}^{2}F_{7/2}$, d'une énergie de 10 000 cm⁻¹. Il faut plusieurs phonons pour pouvoir braver l'énergie qui séparent ces deux niveaux. Si ce nombre de phonons est supérieur à 4, on peut alors affirmer que la relaxation multiphonons peut être alors négligée.

Prenons l'exemple de la matrice Yb:CaF₂, l'énergie le plus élevée du phonon est de 800 cm⁻¹ [Petit 06]. Il faut donc la présence de plus de 4 phonons pour observer des relaxations multiphonons. Ce phénomène est donc parfaitement improbable pour la matrice Yb:CaF₂. Pour le cristal Yb:CALGO, il est impossible d'affirmer si la relaxation multiphonons est négligeable puisque aucune mesure des énergies de phonons a été réalisée.

La fraction thermique globale peut s'écrire en fonction de η_p , η_l et η_r et a pour expression :

$$\eta_{h} = I - \eta_{p} \left[(I - \eta_{l}) \cdot \eta_{r} \cdot \frac{\lambda_{p}}{\lambda_{f}} + \eta_{l} \cdot \frac{\lambda_{p}}{\lambda_{l}} \right]$$
(2.5)

En l'absence d'effet laser, η_l étant nul, l'équation (2.5) devient :

$$\eta_{h_{sanslaser}} = I - \eta_{p} . \eta_{r} . \frac{\lambda_{p}}{\lambda_{f}}$$
(2.6)

Cette expression (2.6) dépend énormément du rendement quantique de fluorescence η_r .

Expression simplifiée de la fraction thermique en l'absence d'effet laser si $\eta_p = \eta_r = 1$

Supposons maintenant que le cristal laser étudié est un cristal laser de bonne qualité donc sans défaut et sans désexcitations non-radiatives ($\eta_p = \eta_r = 1$), l'expression de la fraction thermique sans effet laser est égale au défaut quantique de fluorescence définie par l'équation (2.4).

En présence d'effet laser, nous remarquons que nous pouvons exprimer la fraction thermique en fonction de la fraction thermique sans effet laser par l'expression suivante :

$$\eta_{h_laser} = \eta_{h_sanslaser} + \eta_{p}.\eta_{l} \left[\eta_{r}.\frac{\lambda_{p}}{\lambda_{f}} - \frac{\lambda_{p}}{\lambda_{l}} \right]$$
(2.7)

Le rendement quantique de fluorescence ne pouvant être supérieur à 1, le signe du terme entre crochets dépend alors des valeurs de λ_l et λ_f . De manière générale pour les cristaux laser, les longueurs d'onde de fluorescence sont supérieures aux longueurs d'onde laser. Mais des démonstrations où $\lambda_l < \lambda_f$ ont déjà été reportées comme pour le cristal Yb:CALGO avec des valeurs de λ_l de 990 nm et λ_f de 1013 nm [Petit 05]. Pourtant, dans la majorité des cas, le terme entre crochets est négatif et donc $\eta_{h_laser} < \eta_{h_sanslaser}$. En effet, l'émission laser entraine un dépeuplement du niveau excité, empêchant par la même occasion les désexcitations non-radiatives fortement productives de chaleur. Moins d'effets thermiques non-radiatifs interviennent avec la présence d'effet laser.

Expression simplifiée de la fraction thermique en présence d'effet laser si $\eta_p = \eta_r = \eta_l = 1$

Il a été prouvé que pour de très grandes puissances intracavités¹⁶, on peut affirmer que le rendement d'extraction laser tend vers 1 [Didierjean 07bis]. En supposant donc de fortes puissances intracavités et un cristal laser parfait ($\eta_p = \eta_r = 1$), la fraction thermique avec effet laser est alors égale au défaut quantique laser définie par l'expression (2.3).

Les principales mesures de fraction thermique permettent d'affirmer que le rendement quantique d'absorption a des valeurs comprises entre 0,8 et 1 dans des cristaux dont la croissance est parfaitement maîtrisée [Brown 98] [Barnes 02]. Les cristaux étudiés, CaF₂, SrF₂ et le CALGO ont des méthodes de croissance connues et largement maîtrisées donc peu de défauts, les rendements quantiques d'absorption pour nos trois cristaux peuvent supposer être égaux à l'unité.

2.3.1.2- Expression du rendement d'extraction laser

Pour pouvoir exprimer le rendement d'extraction laser, détaillons les expressions des débits $Q_{stimul\acute{e}}$ stimulé, $Q_{spontan\acute{e}}$ spontané et $Q_{nonradiatif}$ non radiatif qui peuvent se produire durant une émission laser. Ces débits représentent en fait le nombre d'ions excités par m³ et par seconde qui se désexcitent suivant le processus indiqué en indice. Ces trois débits peuvent d'exprimer de la manière suivante :

¹⁶ La puissance intracavité est la puissance à l'intérieur de la cavité laser. Pour la calculer, il suffit de mesurer la puissance de sortie et de tenir compte de la transmission T (en %) du miroir de sortie : $P_{intracavité} = (P_{sortie} / T)$.

$$Q_{stimul\acute{e}} = \sigma_{em}(\lambda_{l}).N_{2}.I - \sigma_{abs}(\lambda_{l}).N_{l}.I$$

$$Q_{spon tan\acute{e}} = \frac{N_{2}}{\tau}$$

$$Q_{nonradiatif} = \frac{N_{2}}{\tau_{nr}}$$
(2.8)

où N_l et N_2 désigne respectivement les densités des multiplets $F_{7/2}$ (niveau fondamental) et des multiplets $F_{5/2}$ (niveau d'énergie excité), $\sigma_{em}(\lambda_l)$ et $\sigma_{abs}(\lambda_l)$ les sections efficaces d'émission et d'absorption à la longueur d'onde laser λ_l , τ le temps de vie de l'état excité et τ_{nr} est un « temps de vie non radiatif » défini comme l'inverse de la probabilité de désexcitation non radiative. I est l'intensité laser intracavité exprimée en nombre de photons par m² et par seconde et dépendante de la composante radiale r qui vérifie l'expression suivante [Augé 2000] :

$$I(r) = \frac{2.\lambda_l P_{\text{int}}}{h c.\pi.w_l^2} \exp\left\{\frac{-2.r}{w_l^2}\right\}$$
(2.9)

où P_{int} correspond à la puissance intracavité, *h* la constante de Planck, *c* la célérité, w_l le rayon du faisceau laser.

Le rendement d'extraction laser et le rendement quantique de fluorescence ont pour expressions les équations suivantes [Chénais 06]:

$$\eta_{l} = \frac{Q_{stimul\acute{e}}}{Q_{stimul\acute{e}} + Q_{spon tan \acute{e}} + Q_{nonradiatif}}} \qquad \eta_{r} = \frac{Q_{spon tan \acute{e}}}{Q_{spon tan \acute{e}} + Q_{nonradiatf}}} = \frac{\tau}{\tau + \tau_{nr}}$$
(2.10)

La réabsorption à la longueur d'onde laser dans les deux fluorures et le CALGO est négligeable. En effet, les valeurs de sections efficaces d'absorption à la longueur d'onde laser inférieures à 5 10^{-23} cm², à 1 10^{-23} et à 1,47 10^{-23} cm² et à pour les cristaux Yb:CaF₂, Yb:SrF₂ et Yb:CALGO respectivement, comparé à des sections efficaces d'émission de l'ordre de 10^{-20} cm². Dans ces conditions, on peut alors affirmer $\sigma_{em}(\lambda_l).N_2 >> \sigma_{em}(\lambda_l).N_1$, on peut alors écrire :

$$\eta_{l}(r) = \frac{\sigma_{em}(\lambda_{l}).I(r)}{\sigma_{em}(\lambda_{l}).I(r) + \frac{l}{\tau} + \frac{l}{\tau_{nr}}} = \frac{\sigma_{em}(\lambda_{l}).I(r)}{\sigma_{em}(\lambda_{l}).I(r) + \frac{l}{\eta_{r}.\tau}}$$
(2.11)

Après la quantification des sources de chaleurs et de leurs définitions, plusieurs questions nous viennent spontanément à l'esprit : quelles sont les conséquences de l'apparition de ces sources de chaleur sur les propriétés du cristal laser ? Sur quelles propriétés du cristal laser les sources de chaleur ont-elles un effet ?

2.3.2- Les conséquences de ces sources de chaleur pour le cristal laser

Une conséquence des sources de chaleur est une distribution inhomogène de la chaleur dans le cristal laser. Cette distribution inhomogène a non seulement des effets thermomécaniques mais aussi des thermo-optiques. Les effets thermomécaniques font référence aux contraintes et déformations du cristal laser pompé alors que les effets thermo-optiques sont relatifs à la modification de l'indice de réfraction due à l'échauffement. Cette partie sera consacrée à l'étude de ces deux effets thermiques. Commençons par les effets thermomécaniques puisque les calculs de ces effets nous permettent par la suite de calculer les effets thermo-optiques.

2.3.2.1- Les effets thermomécaniques

Lors du pompage, il existe des contraintes au sein du cristal laser pour deux raisons. Tout d'abord, le cristal laser n'a pas la liberté de se déformer comme il le souhaite dans sa monture (2.2.3). Ensuite la seconde raison est due à la présence d'une distribution inhomogène de la chaleur dans le cristal laser car c'est un système hors d'équilibre. La loi de Hooke généralisée permet de modéliser ces contraintes thermiques, non seulement liés aux déformations mais également liés aux élévations de température grâce au tenseur des coefficients élastiques du matériau [Cousins 92]. Cette équation mathématique complexe à étudier fait apparaître le tenseur des coefficients de dilatation thermique α_{Tij} . On peut facilement réduire le nombre de coefficients de dilatation thermique au nombre d'axes de déformation du cristal, correspondant en réalité à ses axes de symétrie. Cela signifie que les cristaux optiquement isotropes ont un seul coefficient de dilatation thermique, les cristaux uniaxes en ont deux et les cristaux biaxes en ont trois. Ces coefficients représentant la dilatation du matériau se traduira par la courbure des faces, comme un bombement des faces par exemple.

La majorité des études des contraintes thermiques se sont focalisées sur des cristaux isotropes. Il apparaît que les effets élastiques peuvent être déterminés par deux paramètres : le module de Young E et le coefficient de Poisson v. Le module de Young représente la contrainte mécanique qui engendrait un allongement de 100 % du matériau. Le coefficient de Poisson permet de caractériser la contraction de la matière perpendiculairement à la direction de l'effort appliqué.

L'étude des contraintes thermiques de part sa complexité requiert des outils numériques d'analyse par éléments finis comme LASCAD. Cependant une résolution analytique est possible pour un cristal isotrope. Cette étude permet de poser le dimensionnement du problème et de représenter les principales contraintes introduites par un pompage longitudinal, la configuration de pompage dans notre étude.

Pour un cristal dans nos configurations de refroidissement et de pompage, le calcul des contraintes peu être alors simplifié à un problème à symétrie radiale [Chénais 02] dans l'approximation des « contraintes planes ».

Encadré 2.2 : Les « contraintes planes »

Pour obtenir un problème à 2 dimensions, Koechner a proposé l'étude d'un barreau long et fin (cas 1 de la *Figure 2.10*) de YAG en configuration de pompage par flash. Les

déformations suivant l'axe z sont négligeables. La suppression d'un axe d'étude permet de simplifier le problème. Cette approximation est appelée l'approximation des « déformations planes ».

Une autre approximation possible (cas 2 de la *Figure 2.10*) est de se placer dans le cas d'un disque mince. Cette fois-ci ce ne sont pas les déformations qui sont négligeables mais les contraintes. On parle alors d'approximation des « contraintes planes ». Il a été prouvé que cette approximation reste applicable à un rapport L/r_0 proche de 1 [Cousins 92] et en conséquence nous pouvons utiliser cette approximation pour nos études de cristaux laser.



Figure 2.10: Cas adaptés pour l'approximation des déformations et les contraintes planes

L'analyse des contraintes thermiques dans un cristal laser isotrope a mis en évidence que le centre du cristal est en compression (donc contraintes négatives) alors que les bords sont en tension ou dilatation (donc contraintes positives). La *Figure 2.11* représente les différentes contraintes que connaît un cristal laser cylindrique isotrope lors d'un échauffement. Pour expliquer de manière plus simple, étant donné que le cristal est posé sur un bloc de refroidissement, les bords du cristal qui se dilatent se retrouvent bloqués par la monture et sont donc contraintes d'appuyer sur le centre du cristal laser qui se retrouve quant à lui comprimé.



Figure 2.11: Contraintes dans un cristal isotrope soumis à un pompage longitudinal par diode laser en supposant un coefficient de dilatation positif

Comme les matériaux sont plus sensibles à la tension qu'à la compression [Le Boiteux 60], la fracture du cristal laser a donc lieu à l'endroit où une tension a dépassé sa valeur limite

appelée résistance à la traction (ou « tensile strength » en anglais). La fracture du cristal se propage ensuite dans le plan tangentiel à cette tension pour les matériaux les plus fragiles [Le Boiteux 60]. Ceci montre la limitation annoncée précédemment dans les lasers de puissance, à savoir la fracture du cristal laser.

2.3.2.2- les effets thermo-optiques

Les effets thermo-optiques sont les conséquences des effets thermomécaniques. La première contrainte thermo-optique abordée sera la biréfringence induite par les contraintes et finalement, nous montrerons l'influence de l'échauffement du cristal laser sur son indice de réfraction.

2.3.2.2.a- l'effet photoélastique

Il est connu que les propriétés optiques linéaires peuvent être représentées par l'ellipsoïde des indices. Pour rappel, l'ellipsoïde des indices a pour expression:

$$\frac{x^2}{n_x} + \frac{y^2}{n_y} + \frac{z^2}{n_z} = I$$
(2.12)

où x, y et z sont les axes cristallophysiques¹⁷ et n_x , n_y et n_z les indices principaux, et représentent les axes principaux du cristal laser. Bien entendu un cristal isotrope a un indice de réfraction unique $n_x = n_y = n_z = n_0$, les cristaux uniaxes en ont deux et les cristaux biaxes en ont trois.

Une contrainte sur un cristal modifie la taille et la forme de son ellipsoïde des indices. On parle alors d'effet photoélastique. Dès que le cristal laser subit des contraintes, l'ellipsoïde des indices est différent en tout point du cristal et une nouvelle orientation des axes principaux est à prévoir. En conséquence une biréfringence induite par contraintes vient se rajouter à la biréfringence naturelle ou non du cristal laser. Une estimation de ces variations est possible à partir du tenseur des coefficients élasto-optiques. Ces coefficients élasto-optiques sont faciles à trouver pour des cristaux simples et connus comme le cristal YAG ou le cristal CaF₂. Par contre, ces données sont quasiment introuvables pour des cristaux plus complexes et très récents comme le CALGO par exemple.

Ces calculs ont été effectués pour un cristal isotrope et pour un système à symétrie radiale [Chénais 02]. Il a été prouvé que les contraintes peuvent engendrer une modification de l'indice de réfraction pour l'axe tangentiel et l'axe radial. En effet pour un cristal de longueur L, d'indice n et avec un coefficient de dilatation thermique α_T , cette modification s'écrit de la manière suivante:

$$\Delta n_{r,\theta}(r) - \Delta n_{r,\theta}(r=0) = 2.n^3 \cdot \alpha_T \cdot C_{r,\theta} \cdot \int_0^L (T(r,z) - T(r=0,z)) dz$$
(2.13)

avec C_r et C_{θ} sont les constantes photoélastiques et $\Delta n_{r,\theta}$ représente la variation de l'indice de réfraction *n* suivant les axes radial *r* ou tangentiel θ en *r*. T(r,z) représente la température aux

¹⁷ Les axes critallophysiques sont en général confondus avec les axes cristallographiques a, b et c.

coordonnées r et z. Les coefficients photoélastiques sont calculables à partir du tenseur des coefficients élasto-optiques. Chénais *et al* présentent ce calcul dans l'approximation des contraintes planes [Chénais 02].

Une conséquence de cette biréfringence induite est les pertes par dépolarisation. Pour en savoir davantage, des études sur ces pertes ont été réalisées sur des cristaux isotropes [Koechner 99]. De plus, il existe de nombreuses solutions pour compenser les conséquences d'une biréfringence induite par ces contraintes dans certaines configurations [Clarkson 01] [Fluck 00].

2.3.2.2.b- variation de l'indice de réfraction avec la température

Il est également connu que l'indice de réfraction est dépendant de la température. On parle du paramètre dn/dT et s'écrit de la manière suivante [Woods 91]:

$$\frac{dn}{dT} = \frac{(n^2 + 2).(n^2 - 1)}{6.n} \cdot \left[\frac{1}{\alpha_e} \cdot \frac{d\alpha_e}{dT} - 3.\alpha_e \right]$$
(2.14)

où *n* est l'indice de réfraction, α_T le coefficient de dilatation thermique et α_e la polarisabilité électronique. Grâce à l'expression (2.9), les deux termes sources de la dépendance de l'indice de réfraction à la température sont la dilatation thermique et la polarisabilité. Notons au passage que cette étude est relativement complexe étant donné que la dilatation thermique est elle aussi dépendante de la température. La mesure classique de dn/dT consiste en la mesure du minimum de déviation sur un prisme du matériau étudié dans une enceinte thermostatée [Woods 91]. Il existe des mesures plus précises par des techniques interférométriques [Mangin 93]. Comme on peut le constater, dans une enceinte thermostatée, l'élévation de température est uniforme dans le cristal. Par contre, dans une configuration d'un pompage par diode laser, la distribution de température est inhomogène. En conséquence, les contraintes subies par le cristal ne sont pas les mêmes suivant la configuration choisie.

2.3.2.3- Les effets sur les populations

Les effets thermiques ont aussi des conséquences sur les peuplements des niveaux d'énergie. En effet, dans une structure électronique à quasi-trois niveaux, qui représente pour rappel le schéma électronique de l'ion ytterbium, la population d'un sous-niveau d'énergie N_a dépend de la statistique de Boltzmann :

$$N_{a} = N_{0} \cdot \frac{g_{a} \cdot \exp\left(\frac{-E_{a}}{k_{B} \cdot T}\right)}{\sum_{i \in niveau-bas} g_{i} \cdot \exp\left(\frac{-E_{i}}{k_{B} \cdot T}\right)}$$
(2.15)

où N_0 est la population totale, E_i/E_a l'énergie d'activation de l'état i/a, k_B la constante de Boltzmann, g_i/g_a le facteur de dégénérescence de l'état i/a. Cette expression (2.15) est importante pour des transitions laser quasi-trois niveaux où la réabsorption à la longueur d'onde laser est non négligeable. En effet, la population des sous-niveaux du niveau fondamental de la transition laser est directement liée à la température du système. Plus la

température est élevée, plus le peuplement du niveau bas de la transition laser sera élevé. Cette hausse de population aura donc pour conséquence une chute du gain laser. En conclusion, un fort pompage s'accompagne d'une élévation de température et donc une baisse de l'inversion de population préjudiciable à un bon fonctionnement laser [Didierjean 07bis].

2.3.2.4- Conclusions

En conclusion, les élévations de température ont des conséquences sur les propriétés thermomécaniques et thermo-optiques mais aussi sur les populations de niveaux d'énergie et sur la spectroscopie des cristaux laser dopés à très basses températures. De manière générale, ces effets thermiques dégradent les performances laser aussi bien en régime continu qu'en régime femtoseconde. Une évaluation des propriétés thermiques des cristaux apparaît donc essentielle pour optimiser correctement les lasers de puissance.

La mesure de ces propriétés thermiques des cristaux est rendue possible par des mesures de la distribution de la température dans le cristal et de la mesure de la lentille thermique. La mesure de la distribution de la chaleur est une mesure directe grâce à une cartographie thermique. La mesure de la lentille thermique est une mesure directe du front d'onde. Par contre, la mesure des sources de cette lentille thermique est indirecte. Intéressons-nous à l'origine de cette lentille thermique.

2.3.3- La lentille thermique

S'il y a une distribution inhomogène de la température au sein du cristal laser, les cristaux, initialement équivalents à une lame à face planes et parallèles, ont tendance à se comporter comme une lentille dite « lentille thermique ». L'apparition de la lentille thermique est due à la combinaison de trois phénomènes liés à l'élévation de température. Il s'agit de la courbure des faces avec la dilation thermique, des contraintes et de l'apparition d'un gradient d'indice associées à la dépendance de l'indice de réfraction avec la température. C'est ce que nous allons voir tout de suite.

Dans l'approximation paraxiale, le cristal laser sous forts puissances de pompe est l'équivalent d'une lentille mince dont la focale f_{th} est donnée par la relation suivante [Chénais 02]:

$$D_{th} = \frac{1}{f_{th}} = \frac{\eta_h P_{abs}}{2.\pi . w_p^2 . \kappa_c} \cdot \chi = \frac{\eta_h P_{abs}}{2.\pi . w_p^2 . \kappa_c} \left[\frac{dn}{dT} + (n-1) \cdot (2+\nu) . \alpha_T + 2 \cdot n^3 . \alpha_T . C_{r,\theta} \right]$$
(2.16)

où D_{th} est la puissance dioptrique, η_h la fraction thermique, P_{abs} la puissance absorbée, w_p le rayon de courbure du faisceau (ou « waist » en anglais) de pompe, κ_c la conductivité thermique du cristal laser étudié, n l'indice de réfraction du cristal laser dopé, ν le coefficient de Poisson, $C_{r,\theta}$ les coefficients élastiques suivant les axes radiale r et tangentiel θ et χ le coefficient thermo-optique.

Le coefficient thermo-optique tient compte de trois phénomènes responsables de l'apparition de la lentille thermique. En effet, $\chi_{dn/dT} = dn/dT$ tient compte de la variation de l'indice de réfraction, $\chi_{dilatation} = (n-1).(2+\nu).\alpha_T$ de la dilatation thermique et $\chi_{contraintes} = 2.\pi n^3.\alpha_T. C_{r,\theta}$ Les différentes contributions sont décrites ci-après : 1) La contribution de dn/dT Prenons l'exemple d'un cristal laser Yb:YAG où l'indice de réfraction augmente avec la température, ce qui revient à dire que le terme dn/dT > 0. Le faisceau de pompe est focalisé au centre du cristal laser donc il subit une élévation de température plus importante au centre que sur ses bords. Un gradient de température apparaît alors au sein du cristal et le transforme en une lame de phase, qui retarde plus fortement un front d'onde incident au centre que sur les bords. Le cristal laser se comporte alors comme une lentille convergente (*Figure 2.12*).



Figure 2.12: Contribution du dn/dT positif dans un cristal laser.

Par contre, il paraît évident que pour un dn/dT < 0, le cristal laser pompé se comportera alors comme une lentille divergente. C'est en effet le cas pour les fluorures comme les cristaux Yb:CaF₂ et Yb:SrF₂.

2) La contribution de la dilatation

La dilatation provoque une courbure des faces du cristal. Cette courbure donne alors au cristal laser la forme caractéristique d'une lentille épaisse convergente ou divergente suivant la courbure des faces. La dilatation thermique aura pour conséquence un bombement des faces du cristal et donc l'apparition d'une lentille convergente¹⁸ (*Figure 2.13*)



Figure 2.13: Contribution de la dilatation positive dans un cristal laser

¹⁸ Il est très rare de trouver un matériau dont le coefficient de dilatation est négatif. Notons à titre d'exemple les systèmes de Kondo $C_{2x}La_{1-x}Al_2$ [Lang 87]

3) La contribution des contraintes thermiques

Précédemment, nous avons montré que les contraintes thermiques entrainent une déformation de l'ellipsoïde des indices, précisée dans la partie 2.3.2.2. Dans un pompage longitudinal, ces contraintes thermiques ne sont pas uniformes et impliquent une modification de l'indice de réfraction du cristal entre le centre et les bords de la zone pompée.

Pour un cristal isotrope, les déformations de l'ellipsoïde des indices sont différentes suivant les axes radial et tangentiel (partie 2.3.2.2). On introduit alors la notion de « double focalisation » (« bi-focusing » en anglais). Une lumière polarisée radialement et tangentiellement aura donc deux points de focalisation (*Figure 2.14*).



Figure 2.14: Contribution des contraintes sur un cristal isotrope : phénomène de bi focalisation

Cette double focalisation sera à l'origine d'aberration sphérique. Ceci revient à dire que la mesure de la lentille thermique ne détermine pas seulement la focale de cette lentille mais également ses aberrations comme les aberrations sphériques ou de l'astigmatisme. Ces aberrations constituent le principal inconvénient car une lentille thermique parfaite, à savoir sans aberrations, peut être totalement compensée. Ce n'est pas absolument plus le cas dès l'apparition des ces autres aberrations.

Revenons sur l'expression analytique de la lentille thermique définie équation (2.11), nous remarquons que plusieurs hypothèses doivent être vérifiées. Tout d'abord, on considère que le cristal se comporte comme une lentille mince, cela revient à dire que l'on suppose que la longueur du cristal est inférieure à la focale de la lentille thermique. Cette approximation reste valable dans notre étude thermique car les distances des focales thermiques sont de l'ordre de la dizaine de centimètres alors que les cristaux laser étudiés ont des épaisseurs de l'ordre de quelques millimètres. Ensuite, il faut supposer un faisceau de pompe collimaté ce qui revint à dire que le rayon de courbure reste constant lors de son passage dans le cristal. Dans une configuration de pompage par diode laser, cette hypothèse n'est pas applicable à cause de la divergence non négligeable du faisceau de pompe, l'expression analytique (2.11) de la lentille thermique ne tient pas en compte de la saturation d'absorption, non négligeable dans les cristaux laser dopés ytterbium (encadré 2.3).

Encadré 2.3 : la saturation d'absorption

La saturation d'absorption, bien souvent négligée car cela rend les études complexes est un phénomène physique non négligeable, en particulier dans les cristaux laser dopé ytterbium. La saturation d'absorption survient surtout en l'absence d'effet laser lorsque le cristal laser dopé ytterbium est pompé à 980 nm. En effet, cette longueur d'onde correspond à la raie zéro-phonon (ou « zero-phonon line » en anglais) de l'ion ytterbium. La raie « zéro-phonon » correspond à la longueur d'onde où les valeurs des sections efficaces d'absorption et d'émission sont similaires. Dans le cas de l'ion ytterbium, cette raie correspond à la transition entre le sous-niveau d'énergie le plus bas du multiplet fondamental ${}^{2}F_{7/2}$ et le sous-niveau d'énergie le plus bas du multiplet fondamental ${}^{2}F_{7/2}$ et le sous-niveau d'énergie le plus bas du multiplet fondamental ${}^{2}F_{1/2}$ et le sous-niveau d'énergie le plus bas du multiplet fondamental est alors entre les phénomènes d'absorption et d'émission à 980 nm apparaît. Le niveau d'énergie fondamental est alors entièrement vidé. Le cristal laser ne peut absorber davantage de photons et une saturation d'absorption est alors observée. Expérimentalement, ce phénomène est vérifié lors de fortes brillances de pompe. Cette forte brillance est largement vérifiée dans nos configurations de pompage longitudinal où les dimensions de zone pompée sont petites (de l'ordre de la centaine de micromètres).

Cette saturation d'absorption n'existe pas en présence d'effet laser. En effet, l'extraction laser permet de réduire la population du niveau d'énergie excité en ramenant les électrons dans le niveau fondamental et de repeupler le niveau fondamental.

En conséquence pour une même puissance incidente sur le cristal laser dopé ytterbium, la puissance absorbée en l'absence d'effet laser sera plus faible que celle en présence de l'effet laser. La *Figure 2.15* montre ce phénomène dans un cristal de Yb(2%):CALGO.



Figure 2.15: Différence entre les puissances absorbées avec et sans effet laser pour un cristal laser *Yb:CALGO due à la saturation de l'absorption*

Cette différence non négligeable entre les puissances absorbées avec et sans effet laser a son importance lors de nos mesures de la puissance dioptrique. En effet, D_{th} dépend de la puissance absorbée par le cristal comme le prouve l'équation (2.11) et les puissances dioptriques des lentilles thermiques seront alors différentes pour une même puissance incidente suivant la présence ou l'absence de laser.

Pour pouvoir mieux modéliser la lentille thermique et prendre en compte la divergence et la saturation d'absorption du faisceau de pompe, nous supposons que le cristal laser est une addition de N lentilles d'épaisseur dz extrêmement petite, absorbant une puissance de pompe $P_{abs} = P_{pompe}(z) \cdot P_{pompe}(z+dz)$ répartie sur un profil de rayon de pompe $w_p(z)$ évoluant suivant l'axe z du cristal (*Figure 2.16*). Les contraintes le long de l'axe z peuvent alors être négligées. Nous sommes donc dans l'approximation des « contraintes planes » (voir encadré 2.3).



Figure 2.16: Cristal considéré comme l'association de N lentilles.

En décomposant le cristal en N lentilles, les puissances dioptriques pour chaque tranche dz s'additionnent par la formule de Gullstrand:

$$D_{th} = \frac{1}{f_{th}} = \frac{\eta_h \chi}{2.\pi \kappa_c} \sum_{i=0}^{N} \frac{P_{abs}(i.dz) - P_{abs}((i+1).dz)}{w_p^2(i.dz)}$$
(2.17)

où L est la longueur du cristal laser et avec dz = L/N. On peut aisément écrire cette formule sous forme d'une intégrale :

$$D_{th} = \frac{1}{f_{th}} = \frac{\eta_h \cdot \chi}{2.\pi \cdot \kappa_c} \int_0^L \frac{-1}{w_p^2(z)} \cdot \frac{dP_{pompe}(z)}{dz} \cdot dz$$
(2.18)

Même si cette formule est approximée, elle présente l'avantage d'exprimer la puissance dioptrique sous forme analytique en tenant compte non seulement de la saturation d'absorption par le terme dP/dz mais également de la divergence de la pompe dans le cristal laser par le terme $w_p(z)$.

2.3.4- Conclusions

Premièrement, nous avons montré que la fraction thermique est un facteur particulièrement bien adaptée pour quantifier les sources de chaleur au sein du cristal pompé En effet, elle représente la fraction de la puissance absorbée convertie en chaleur. Ensuite, le fait que le cristal se comporte comme une lentille thermique s'explique par l'association de deux contributions thermo-optiques (variation de l'indice de réfraction et de la dilatation des faces du cristal) et d'une conséquence thermomécanique (variation de l'indice de réfraction entre le centre et les bords du cristal). Les contraintes thermiques provoquent aussi une doublefocalisation, à l'origine d'aberrations sphériques. Finalement, nous avons démontré une expression analytique (2.13) pour la lentille thermique en tenant compte de la divergence de la pompe et de la saturation d'absorption

2.4- Le banc complet de caractérisation thermique

Le banc de caractérisation thermique que J. Didierjean et moi-même avons développé a pour objectif d'associer en parallèle le banc de cartographie thermique et le banc de mesure de lentille thermique, tous les deux développés durant les thèses de Sébastien Chénais de J. Didierjean [Chénais 04] [Didierjean 07bis]. Pour tenir compte de la saturation d'absorption, phénomène non négligeable dans les cristaux laser dopés en ions ytterbium, les mesures doivent se faire impérativement en présence ou non de l'effet laser. Notre banc complet de caractérisation thermique présenté sur la *Figure 2.17* tient compte de toutes les remarques faites précédemment.



Figure 2.17: Schéma expérimental du banc de caractérisation thermique

Le montage expérimental permet donc non seulement de faire la thermographie du cristal laser mais aussi la mesure de la lentille thermique en parallèle et en temps réel. Pour rappel, la thermographie permet d'obtenir la distribution de chaleur grâce à une caméra thermique IR. Ensuite la mesure de la lentille thermique est possible grâce à un analyseur de front d'onde de type Shack-Hartmann qui mesure les déformations de front d'onde d'un faisceau lumineux sonde qui traverse le cristal laser pompé.

Nous savons l'intérêt de mesurer la lentille thermique et la distribution de chaleur dans le cristal. Mais alors quel est l'intérêt de l'association de ces deux études thermiques? Et pourquoi peut-on parler de banc « complet » de caractérisation thermique ?

2.4.1- Intérêt de l'association Thermographie/Lentille thermique

Tout d'abord, nous constatons que la thermographie permet de mesurer la conductivité thermique κ_c du cristal laser étudié [Didierjean 07]. Mais pour calculer la focale de la lentille thermique, il faut faire une hypothèse sur le coefficient thermo-optique χ (*Figure 2.18 gauche*). Ensuite, pour le calcul du coefficient thermo-optique via la mesure de la lentille thermique, la conductivité thermique doit être approximée (*Figure 2.18 centre*). Dans ces deux expériences, il faut obligatoirement approximer soit κ_c soit χ pour obtenir la focale de la lentille thermique quelles que soient les conditions expérimentales. C'est la raison pour laquelle une association de ces méthodes d'étude thermique en parallèle pourrait résoudre ce problème car elle nous permettrait en même temps et en parallèle de mesurer non seulement la conductivité thermique mais également le coefficient thermo-optique indépendamment. Il devient ensuite possible de calculer la focale de la lentille thermique dans la configuration expérimentale souhaitée (*Figure 2.18 droite*).



Figure 2.18: Avantages du banc complet de caractérisation thermique

A notre connaissance, il s'agit de la première démonstration d'un banc de caractérisation thermique permettant de mesurer ou de calculer κ_c , χ , η_h et f_{th} . Nous pouvons alors parler de

banc « complet » de caractérisation thermique. De plus, toutes les mesures effectuées sont des mesures *in situ* sur des cristaux étudiés avec ou sans effet laser.

Avant de s'intéresser aux résultats obtenus pour les fluorures et le cristal Yb:CALGO, intéressons-nous dans un premier temps au principe de la thermographie et ensuite au principe de la mesure de la lentille thermique.

2.4.2- La thermographie

La thermographie consiste à faire une cartographie thermique du cristal laser pompé, grâce à l'utilisation d'une caméra thermique IR. Cette partie sur la thermographie sera consacrée à l'étude du choix de la gamme spectrale de la caméra thermique, du schéma expérimental et des expressions analytiques de la distribution de chaleur pour corroborer les résultats obtenus expérimentalement.

2.4.1.1- Choix de la gamme spectrale de la caméra IR

Notre choix de la gamme spectrale de la caméra thermique IR se portera dans la plage de longueurs d'onde comprises entre 8 et 12 μ m, dans laquelle la majorité des cristaux laser usuels sont opaques. La caméra thermique IR mesure donc la température d'une des faces externes du cristal. Sans cela, il y aurait intégration du flux thermique sur toute l'épaisseur du cristal qui parasiterait la mesure.

Naturellement, notre choix de cartographie thermique IR se portera sur la face pompée du cristal. Cette face du cristal sera en général soumis au maximum de puissance de pompe¹⁹ et en conséquence aux élévations de température les plus élevées. C'est sur cette face d' « entrée » que les gradients de T° sont les plus forts et facilement mesurables.

2.4.1.2- Calibration requise

Les valeurs initialement données par la caméra thermique IR ne correspondent pas aux valeurs de température réelle. Il faut donc calibrer le détecteur car celui-ci ne mesure que les flux thermiques émis par l'élément étudié et non la température de l'élément car ils n'ont pas la même émissivité. Il est possible de convertir le flux thermique mesuré à la température dans le cas d'un corps noir. En effet, le flux thermique $F_{thermique}$ par le détecteur est relié à la température T du corps noir d'après la loi de Stefan :

$$F_{thermique} = \int_{bande spectrale \Delta\lambda} \frac{dF_{thermique}(\lambda)}{d\lambda} = K_3 \cdot T^4 \cdot G \cdot \Delta\lambda$$
(2.19)

où $\Delta \lambda$ est la bande spectrale de détection du détecteur choisi, K_3 la constante de Stefan²⁰ et *G* est l'étendue géométrique du système.

La caméra thermique IR voit les cristaux comme des corps gris avec une température « mesurée » inférieure à la température réelle. Ceci est dû à un plus faible rayonnement dans l'infrarouge pour une température T. On peut quantifier cette différence de comportement par

¹⁹ Sauf en cas de « bonding », c'est-à-dire assemblage de deux matériaux par collage atomique

²⁰ La constante de Stefan K_3 vaut 1,804 10⁻⁸ W.m⁻².sr⁻¹.K⁻⁴

l'émissivité ε d'un corps. L'émissivité est définie comme le rapport entre les rayonnements émis du corps étudié et les rayonnements émis du corps noir, rapport toujours inférieur ou égale à 1 :

$$\left[\frac{dL}{d\lambda}\right]_{cristal}^{T}(\lambda) = \varepsilon(\lambda, T) \cdot \left[\frac{dL}{d\lambda}\right]_{corps_noir}^{T}(\lambda)$$
(2.20)

où L est la luminance spectrique. L'émission complète du cristal dans l'infrarouge peut être décomposée de la manière suivante

$$\left[\frac{dL}{d\lambda}\right]_{cristal}^{T} = \varepsilon \cdot \left[\frac{dL}{d\lambda}\right]_{corps_noir}^{T} + \frac{R_{d}}{\pi} \cdot \frac{dE}{d\lambda}$$
(2.21)

où R_d est le coefficient de réflexion diffuse de la surface et E l'éclairement reçu par la surface observée. Étant donné que la caméra thermique IR considère le cristal comme un corps noir à une température $T_{mesurée}$ plus basse que sa température $T_{réelle}$, on peut affirmer que :

$$\left[\frac{dL}{d\lambda}\right]_{cristal}^{T_{réelle}} = \left[\frac{dL}{d\lambda}\right]_{corps_noir}^{T_{mesurée}}$$
(2.22)

En intégrant sur le spectre, la loi de Stefan s'écrit finalement de la manière suivante :

$$T_{r\acute{e}elle} = \left(\frac{1}{\varepsilon} \cdot T^{4}_{mesur\acute{e}e} - \frac{R_{d} \cdot E}{\pi \cdot K_{3}}\right)^{1/4}$$
(2.23)

Si on fixe les valeurs de ε , R_d et E, on remarque que l'évolution de la température réelle est proche d'une fonction affine dans une plage de température supérieure à 273 K, soit la plage qui nous intéresse. On peut alors écrire des fonctions de calibration sous forme linéaire :

$$T_{r\acute{e}elle} = a.T_{mesur\acute{e}e} + b \tag{2.24}$$

où *a* et *b* sont des valeurs obtenues expérimentalement (encadré 2.4). La véracité de ces fonctions linéaires a déjà été démontrée [Didierjean 07bis].

Encadré 2.4 : Mesure expérimentale des valeurs de a et b

Le cristal et sa monture sont chauffés de manière uniforme grâce à un Peltier jusqu'à l'équilibre thermodynamique. Une sonde thermique LM35 vient alors mesurer la température $T_{r\acute{e}elle}$ représentant la température de l'ensemble un fois thermalisé. Grâce à la caméra thermique nous mesurons la température que voit la caméra donc $T_{mesurée}$ sur la face du cristal laser qui sera pompée par la suite. Ensuite il suffit de tracer $T_{r\acute{e}elle} = f(T_{mesurée})$ et d'en déduire les coefficients *a* et *b*. Cette mesure est valide dans les gammes de températures considérées car les pertes par convexion sont négligeables. De plus pour éviter toute source d'erreurs

systématiques, cette calibration doit être effectuée indépendamment pour chaque série de mesures.

Un exemple de calibration est représenté *Figure 2.19*. Il s'agit de la calibration effectuée pour les cartographies du cristal Yb:SrF₂. Les valeurs empiriques de a et de b ont des valeurs de 1,9 et -22,4 respectivement.



2.4.1.3- Schéma expérimental détaillé

Le schéma expérimental de la cartographie est représenté sur le *Figure 2.20*. Le cristal laser dopé ytterbium est pompé longitudinalement par une diode laser fibrée ayant une émission laser aux alentours de 980 nm. La diode laser fibrée dont le diamètre de cœur vaut 400 μ m délivre une puissance maximale de 120 W et possède une ouverture numérique de 0,2. Le faisceau de pompe est imagé sur la face entrée du cristal laser grâce à un système f-f composés de doublets de focale de 60 mm.

La cavité laser est une cavité simple de type plan-concave. Le premier miroir de fond de cavité (M_1) est un miroir dichroïque. Ce miroir dichroïque a la propriété d'être transparent à la longueur de pompe mais totalement réfléchissant à la longueur d'onde laser. Le second miroir de fond de cavité, miroir M_4 , est un miroir concave avec un rayon de courbure de 200 mm. Le miroir M_3 à 45° est un miroir de repli de cavité laser. Ce miroir va permettre la mesure de la lentille thermique comme nous le verrons ultérieurement. Le dernier miroir M_2 à 45° est une lame de Sélénium de Zinc (ZnSe), matériau transparent dans la bande 8-12 µm. Elle possède un traitement dichroïque, réfléchissant aux longueurs d'onde de pompe et laser et totalement transparent dans la région 8-12 µm. Elle peut donc être placée facilement comme un miroir dans la cavité laser. Elle va permettre de laisser passer le flux thermique issu de la face pompée du cristal. On peut donc placer la caméra thermique IR derrière cette lame pour les mesures de flux thermique. En résumé, cette lame de ZnSe va donc nous offrir la possibilité d'imager thermiquement la face pompée du cristal. Cependant, cette lame de ZnSe introduit des pertes de l'ordre de 10 % dans la cavité laser. Une partie de ces fuites
s'oriente vers la caméra thermique, qui est insensible aux longueurs d'onde proches de 1 μ m. Donc pour pouvoir optimiser l'efficacité laser, tous les autres miroirs de la cavité laser sont hautement réfléchissants à la longueur d'onde laser.



Figure 2.20: Montage expérimental pour la thermographie

Un objectif à large ouverture en germanium va collecter un maximum de flux thermique pour l'envoyer sur la caméra thermique IR. L'objectif de la caméra thermique IR et l'objectif de germanium forment un système d'imagerie de grandissement proche de 1. L'objectif de germanium a une ouverture numérique de 0,7 et une distance focale de 50 mm. L'objectif « macro » de la caméra thermique IR nous permet d'obtenir une résolution de 18 μ m sur un champ de 4x4 mm². La seule contrainte de ce système d'imagerie est la courte frontale de l'objectif de germanium qui nous oblige à le placer au plus proche du cristal. La caméra thermique IR est un modèle Thermovision 140 de *Flir System inc*. [Site Flir System inc.].

Comme nous l'avons précisé, le cristal est posé sur un bloc de refroidissement à eau, présenté *Figure 2.3* et utilisant un Peltier pour un contrôle actif de la température du bloc du cristal et sa monture.

Le dispositif de prise de mesure étant détaillé, il faut maintenant s'intéresser aux courbes théoriques qui vont modéliser les profils expérimentaux de la température obtenus sur les cartographies thermiques. Comment modéliser la distribution de la chaleur dans le cristal laser pompé?

2.4.1.4- Courbe théorique pour la distribution de la chaleur

En régime stationnaire, la « charge thermique » Q_{th} et la température T(x,y,z) suivant les axes, x, y et z sont reliées par l'expression suivante issue de la résolution de l'équation de la chaleur:

$$\nabla^2 T(x, y, z) = -\frac{Q_{th}}{\kappa_c}$$
(2.25)

où κ_c est la conductivité thermique en W.m⁻¹.K⁻¹. Le terme de « charge thermique » signifie en fait la puissance thermique dissipée par unité de volume (W.m⁻³).

Dans notre étude et pour certaines conditions, il existe une solution analytique à notre problème. Les différentes conditions, à valider, sont décrites ci-après:

1) $1^{e^{re}}$ condition :

Il faut s'assurer que la coupe du faisceau de pompe soit rectangulaire et à symétrie radiale (faisceau « top-hat »). Cette hypothèse est vérifiée par une configuration de type pompage longitudinal par diode laser, puisque le faisceau de pompe en sortie d'une diode laser fibré est « top-hat ».

2) $2^{e^{ime}}$ condition :

On considère que la conductivité thermique κ_c est un scalaire. Cette condition est une approximation forte puisque de nombreux cristaux sont des cristaux uniaxes ou biaxes et présentent des valeurs de conductivité thermique différentes suivant les axes cristallographiques du cristal laser.

3) 3^{eme} condition :

Le système de refroidissement doit être à symétrie radiale, condition compatible avec nos blocs de refroidissement malgré leur forme carrée (encadré 2.5).

Encadré 2.5: Peut-on appliquer une symétrie radiale à des cristaux laser carrés?

La supposition d'un problème à symétrie radiale peut être aisément faite malgré la forme carrée de nos cristaux et de son bloc de refroidissement. Deux raisons expliquent ce raisonnement: Premièrement, la taille de la zone pompée est très petite comparée à la taille des cristaux laser utilisés. Dans le cas de notre étude, cette condition est vérifiée puisque la zone pompée est de l'ordre de quelques centaines de µm et la taille du cristal laser de quelques mm. L'élévation de température ayant lieue principalement dans la zone pompée, la géométrie des bords du cristal n'a que très peu d'effet sur les gradients de température. Ensuite, notre système de refroidissement des cristaux laser est homogène. On peut donc envisager un refroidissement suivant les axes horizontal et vertical. On peut alors travailler sur les profils horizontaux et verticaux comme s'il s'agissait de profils radiaux d'un cristal rond [Didierjean 07bis].

4) $4^{e^{ime}}$ condition :

La dernière hypothèse repose sur une évacuation de la chaleur axiale négligeable. Ceci revient à dire que l'évacuation de la chaleur s'effectue vers la monture entourant les faces du cristal laser et non vers les faces qui ne sont pas en contact avec la monture, ce qui est effectivement le cas car la face d'entrée du cristal est en contact avec l'air, isolant thermique.

En effet, la loi de Newton relie le transfert thermique au niveau de l'interface entre le cristal laser et sa monture par l'expression suivante:

$$j_q z = -\kappa_c \cdot \frac{\partial T(x, y, z)}{\partial z} = H \cdot (T(r_0) - T_c)$$
(2.26)

où $T(r_0)$ représente la température au bord du cristal laser, T_c la température de la monture du cristal laser, j_q le flux thermique, z la direction normale à l'interface, H le coefficient de transfert thermique ou conductance en W.cm⁻².K⁻¹, κ_c la conductivité thermique en W.m⁻¹.K⁻¹. Le coefficient thermique H vaut environ 1 W.cm⁻².K⁻¹ pour un cristal laser dans sa monture en cuivre, avec de la graisse thermique ou de l'indium [Chénais 04]. Par contre, pour un cristal en contact de l'air ambiant, le coefficient thermique H est de l'ordre de 10⁻³ W.cm⁻².K⁻¹ [Cousins 92]. Cette comparaison des coefficient H nous permet d'affirmer que l'évacuation axiale de la chaleur peut donc être négligée.

Etant donné que notre problème satisfait toutes les exigences, la solution peut alors s'écrire de la manière suivante [Chen 97]:

$$T(r,z) - T(r_0,z) = -\frac{\eta_h}{4.\pi\kappa_c} \cdot \frac{dP(z)}{dz} \cdot f(r,z)$$
(2.27)

où f(r,z) représente une fonction géométrique dépendante du rayon de courbure du faisceau de pompe :

$$f(r,z) = \begin{cases} ln\left(\frac{r_0^2}{w_p^2(z)}\right) + 1 - \frac{r^2}{w_p^2(z)} & si & r \le w_p^2 \\ ln\left(\frac{r_0^2}{r^2}\right) & si & r \ge w_p^2 \end{cases}$$
(2.28)

Cette formule analytique présente de nombreux avantages. En effet, cette équation (2.22) permet de prendre en compte l'évolution suivant l'axe z du profil de la pompe dans le cristal laser par la fonction de $w_p(z)$ et la saturation d'absorption en l'absence d'effet laser par le terme dP(z)/dz (calculs détaillés en annexe B). Etant donnée que la cartographie thermique concerne la face d'entrée du cristal laser, le dP(z)/dz correspondra au dP(z)/dz en z = 0. Cependant, cette mesure ne reflète pas la température absolue du cristal laser pompé mais l'écart de température ΔT entre le centre de la zone pompée et les bords du cristal laser.

Une autre remarque importante doit être faite. La conductivité thermique κ_c a un rôle très important sur l'allure du profil de température dans le cristal laser pompé.

Encadré 2.6: Incertitudes sur f(r,z)

La principale cause d'incertitude sur la fonction f(r,z) provient de la mesure de la courbure du faisceau de pompe $w_p(z)$, dont l'incertitude est de l'ordre de 2 %. Ceci implique une incertitude sur les erreurs systématiques de l'ordre de 1 % [Didierjean 07bis].

Pour comprendre notre démarche, voici l'exemple d'une cartographie obtenue pour un cristal Yb:CaF₂ soumis à une puissance incidente de pompe de 86 W en présence d'effet laser. La cartographie thermique (*Figure 2. 21 gauche*) permet de voir si le point de focalisation de la pompe sur le cristal laser est bien au centre du cristal laser. Il permet également de vérifier

l'efficacité du bloc de refroidissement entre le cristal laser et sa monture. En effet il est possible de voir des points chauds, c'est à dire des points rouges sur les bords du cristal laser comme on peut le remarquer sur le bas de la cartographie thermique, synonyme de mauvais transfert thermique. Ensuite grâce à un programme informatique, un profil horizontal de la température (*Figure 2.21 droite, courbe bleue*) peut être extrait de la cartographie thermique pour déterminer le gradient de température entre le centre de la zone pompée et les bords du cristal laser. On peut également superposer une courbe théorique de la distribution (*Figure 2.21, droite, courbe rouge*) de la chaleur définie équation (2.27). On constate un très bon accord entre les courbes expérimentale et théorique de la température.



<u>Figure 2.21:</u> Cartographie thermique du cristal Yb:CaF2 (droite) et le profil horizontal de la température extrait de l'image de cartographie (courbe bleue) ainsi que la courbe théorique (courbe rouge) (gauche)

2.4.3- Mesure de la lentille thermique

Suite à une élévation de température, le cristal laser est l'équivalent d'une lentille thermique. Il est donc intéressant de mesurer la lentille thermique. Parmi les différentes méthodes existantes de mesure de la lentille thermique, notre choix s'est arrêté sur une méthode de mesure de fronts d'onde utilisant un détecteur de front d'onde de type Shack-Hartmann. Mais comment peut-on mesurer la focale de la lentille thermique d'un cristal laser à partir des déformations de front d'onde d'un faisceau lumineux sonde traversant le cristal laser?

2.4.3.1- Principe du détecteur Shack-Hartmann

Une base des connaissances en optique stipule que les rayons lumineux sont orthogonaux au plan d'onde. Le détecteur de type Shack-Hartmann est basé sur ce principe et fut découvert il y a plus d'un siècle maintenant en 1900 par Hartmann [Hartmann 00]. Si on mesure localement la direction d'un faisceau lumineux, on peut alors mesurer la pente locale de son front d'onde.

Prenons un front d'onde incliné d'un angle par rapport à l'axe optique, ceci implique que le faisceau lumineux correspondant est lui aussi incliné par rapport à l'axe optique. Si on place une lentille sur le trajet du faisceau lumineux, il est connu que le faisceau lumineux viendra se focaliser sur un point du plan focal hors de l'axe optique. La distance entre le point de

focalisation du faisceau lumineux de l'axe optique de la lentille ou déviation Δx est liée à l'angle d'inclinaison par rapport à l'axe optique (*Figure 2.22*).

Prenons maintenant une surface d'onde quelconque, on peut supposer que la surface d'onde est plane localement si les variations de pentes ne sont pas trop brusques (moins rapides que la fréquence spatiale du réseau de microlentille du SH). Ce plan fait alors *un* angle avec l'axe optique de la microlentille et donc sera focalisé sur le plan focal avec une distance Δx de l'axe optique cette lentille. La matrice de microlentilles peut alors mesurer les pentes locales du front d'onde en plusieurs points et ainsi former une carte des pentes locales du front d'onde. Le principe d'un détecteur est représenté sur la *Figure 2.22*. La continuité des pentes locales mesurées du front d'onde permet alors d'obtenir l'allure générale du front d'onde.



Figure 2.22: Schéma de principe de l'analyseur de front d'onde de type Shack-Hartmann

Le détecteur que nous avons utilisé pour la mesure de la lentille thermique est l'HASO⁶⁴ développé par Imagine-Optic. Le logiciel du capteur HASO⁶⁴ peut reconstruire le front d'onde sur une pupille qui correspond à la zone d'éclairement définie par l'utilisateur ou par la zone d'intensité lumineuse que le détecteur capte. Pour le choix d'une pupille ronde, ce logiciel peut utiliser les polynômes de Zernike pour décomposer les déformations du front d'onde. Il est alors possible de séparer les contributions relatives à la courbure (coefficient C_3) des autres aberrations géométriques bien connus [Jeong 07].

2.4.3.2- Principe de la mesure de la lentille thermique

Pour comprendre la mesure de la lentille thermique, plaçons-nous dans le cas d'un cristal laser cylindrique ayant un rayon r_0 et de longueur L_0 dans un repère de coordonnées cylindriques (r, θ, z) . Le cristal laser est pompé par un faisceau de pompe de diamètre $2.w_p$ et est soumis à un effet laser dont le mode gaussien a un diamètre de $2.w_l$. Nous avons remarqué précédemment qu'un cristal laser se comporte comme une lame de phase (partie 2.3.3.2). Si un faisceau lumineux de sonde, de caractéristiques gaussien et de diamètre $2.w_s$ vient traverser le cristal laser pompé, son front d'onde sera alors déformé par cette lame de phase. Ces déformations seront alors lues par l'analyseur de front d'onde.

1) Comment choisir le faisceau de sonde?

Tout d'abord, lorsque la cavité laser est optimisée pour un quasi-trois niveaux, le diamètre de mode laser correspond au diamètre de la zone pompée soit $w_l = w_p$ Il ne reste donc qu'à définir le diamètre du faisceau sonde par rapport à w_p . Trois cas se présentent et sont décrites ci-après :

-- $\underline{\text{Si } w_s > w_p = w_l}$: Dans cette configuration-là, il y a un grand risque d'observation de l'aberration sphérique induite entre la différence de convergence entre le centre et les bords de la zone pompée. Cette aberration n'a pas lieue d'être prise en compte lors d'un bon recouvrement entre les faisceaux de pompe et laser puisque cette aberration n'affecte en aucun cas le faisceau laser. La mesure de la lentille thermique sera donc fausse et naturellement cette configuration ne sera pas retenue pour nos mesures de lentille thermique.

-- <u>Si $w_s < w_p = w_l$ </u>: Dans cette configuration, la sonde ne verra pas toute la lentille thermique vue par le faisceau laser. Il apparaît logique que cette configuration ne sera absolument pas choisie pour la mesure de la lentille thermique.

-- $\underline{\text{Si } w_s = w_l = w_p}$: Une égalité entre les rayons des faisceaux de pompe, de laser et de sonde permet d'estimer de manière correcte les différentes aberrations de la lentille thermique puisque la lentille thermique vue par le faisceau de sonde est la même que celle vue par le faisceau laser.

En résumé, il faut un bon recouvrement entre les faisceaux laser, de pompe et de sonde sur la face pompée du cristal pour une estimation la plus correcte possible de la focale de la lentille thermique et donc opter pour des diamètres identiques entre les trois faisceaux. De plus, pour une forte cohérence entre les faisceaux laser et de sonde lors de la traversée dans le cristal, nous optons pour un faisceau de sonde gaussien monomode.

2) Mais que mesure-t-on exactement ?

Pour simplifer la mesure, il apparaît évident que le front d'onde du faisceau de sonde doit être initialement plan. Ceci est facilement réalisable en plaçant la face pompée du cristal laser au point de focalisation de la sonde. En effet, au rayon de col (ou « waist ») d'un faisceau gaussien focalisé, le front d'onde est plan. En présence de la lentille thermique, ce front d'onde initialement plan sera donc déformé. Nous mesurons alors un front d'onde qui s'écarte du front d'onde plan initial. Cet écart total de chemin optique Δ est la somme de deux écarts bien distincts : $\Delta_{courbure}$ et $\Delta_{aberration}$ (*Figure 2.23*).

Le terme $\Delta_{courbure}$ représente l'écart entre le front d'onde plan et le front d'onde ne tenant compte que de la focalisation de la lentille thermique, appelé sphère de référence. Cette sphère de référence est donc un front d'onde sphérique de rayon f_{th} . Donc, le terme $\Delta_{aberration}$ tiendra compte justement de toutes les autres aberrations de la lentille thermique.

Il a été prouvé que dans la majorité des cas (pour les cavités laser optimisées pour le mode TEM 00), la lentille thermique est très peu aberrante [Chénais 06] et en conséquence que le terme $\Delta_{courbure}$ est prédominant par rapport au terme $\Delta_{aberration}$. Cependant, des aberrations

non négligeables peuvent parfois être mesurées surtout lorsque le cristal est soumis à de fortes puissances de pompe. En effet, l'astigmatisme est une aberration non négligeable dans un cristal anisotrope ou lorsque le cristal laser a un refroidissement inhomogène.



<u>Figure 2.23:</u> L'écart total Δ et sa décomposition en $\Delta_{courbure}$ et $\Delta_{aberration}$

3) Comment relier f_{th} et $\Delta_{courbure}$?

On parle de lentille thermique peu ouverte lorsque la valeur du rayon du faisceau de sonde est extrêmement petite par rapport à la valeur de la focale de la lentille thermique, condition largement vérifiée dans nos configurations d'étude. Lorsque la lentille thermique est peu ouverte, la sphère de référence liée à $\Delta_{courbure}$ peut être approximée par une parabole et $\Delta_{courbure}$ se retrouve alors reliée à f_{th} de la manière suivante :

$$\Delta_{courbure} = \frac{w_s^2}{2.f_{th}}$$
(2.29)

En supposant que la condition $w_s = w_l$ est vérifiée et en vérifiant que la dispersion chromatique entre les longueurs d'onde laser et de sonde est négligeable, on peut affirmer que la lentille thermique vue par le faisceau de sonde est donc la même que celle observée par le faisceau laser.

4) Comment imager le front d'onde sur le détecteur ?

Il apparaît évident qu'il faut agrandir le faisceau de sonde pour qu'il puisse éclairer un maximum de microlentilles sur l'analyseur de front d'onde pour une mesure bien plus précise de la focale de la lentille thermique. Cet agrandissement nous impose deux contraintes :

-- 1) Conjugaison parfaite entre les plans du cristal laser et du détecteur :

Expérimentalement, il est très utile de faire des mesures de front d'onde référencées. Dans un premier temps, une mesure du front d'onde de la sonde sans pompe sera réalisée et servira de « front d'onde de référence ».



Sans conjugaison des plans du cristal laser et du détecteur

Avec conjugaison des plans du cristal laser et du détecteur par un système afocal



<u>Figure 2.24:</u> En haut, exemple d'un schéma expérimental sans conjugaison des plans du cristal laser et du détecteur et en bas, exemple d'un schéma expérimental prenant compte de la conjugaison de ces plans par un système afocal

Elle ne prendra qu'en compte les variations de phase introduites par le montage et le cristal (non-pompé) lui-même. Cette référence sera alors soustraite à la mesure en présence de la pompe. La soustraction de cette référence permet de tenir compte que des effets thermiques liés au pompage. Pour ceci, il faut absolument vérifier que la pupille (pour rappel la zone éclairée sur le détecteur) soit la même pour le front d'onde de référence et le front d'onde à caractériser. Pour résoudre alors ce problème, il faut que les plans du cristal laser et du détecteur soient parfaitement conjugués. Le schéma expérimental est représenté *Figure 2.24*.

-- 2) Système afocal :

Comme nous avons fait la remarque précédemment, le faisceau de sonde est focalisé sur la face pompée du cristal laser dans un souhait d'obtenir un front d'onde plan. Pour éviter d'engendrer des courbures liées à la configuration d'imagerie sur le détecteur, il est astucieux

de se placer dans un système afocal de conjugaison des plans du cristal laser et du détecteur. On effectue ainsi en quelque sorte une « imagerie du front d'onde » au niveau de la face pompée du cristal laser. Le système d'imagerie est explicité *Figure 2.25*. Ce système afocal d'imagerie est donc un jeu de deux lentilles (lentille 1 et lentille 2) dont le plan focal image de la lentille 1 correspond au plan focal objet de la lentille 2. La distance intermédiaire entre les deux lentilles est en conséquence la somme des focales des deux lentilles.

Le grandissement de ce système afocal « d'imagerie » est appelé G :

$$G = \frac{f_2}{f_1} \tag{2.30}$$

Dans cette configuration, on peut alors exprimer le rayon de courbure mesuré par le détecteur R_{mes} par rapport à la focale de la lentille thermique f_{th} :

$$R_{mes} = G^2 f_{th} \tag{2.31}$$

On constate alors que la taille du faisceau de sonde est multipliée par un coefficient G par le système d'imagerie, alors le rayon de courbure est multiplié par un facteur G^2 . De plus, on vérifie que l'écart $\Delta_{courbure}$ du front d'onde au niveau du cristal et la même que l'écart $\Delta'_{courbure}$ mesuré par le détecteur :

$$\Delta'_{courbure} = \frac{(G.w_s)^2}{2.R_{mes}} = \frac{w_s^2}{2.f_{th}} = \Delta_{courbure}$$
(2.32)

En conclusion, grâce à la donnée expérimentale obtenue lors de la mesure du front d'onde déformé R_{mes} et en connaissant le grandissement G du système afocal « d'imagerie du front d'onde », nous sommes capable de calculer la valeur de la focale de la lentille thermique f_{th} grâce à l'équation (2.26).

2.4.3.3- Montage expérimental

Le schéma expérimental de la mesure de la lentille thermique est représenté sur la *Figure* 2.25. Nous remarquons que la configuration « d'imagerie du front d'onde » respecte la conjugaison des plans du cristal laser et du détecteur grâce à un système afocal de deux lentilles de focales f_1 et f_2 . Une lame de verre a été introduite dans le banc de pompe de la cavité laser pour orienter le faisceau de sonde vers l'analyseur de front d'onde et utiliser le doublet de focalisation comme la première lentille du système afocal « d'imagerie du front d'onde ». De plus, une optimisation de la cavité laser permet de nous assurer que la face pompée du cristal est dans le plan focal du doublet de focalisation.

Pour rappel, la présence dans la cavité laser de la lame de ZnSe (miroir M_2) nous autorisait la possibilité de faire la cartographie thermique du cristal laser. Pour nos mesures de focales thermiques c'est le miroir de repli à 45° (miroir M_3) dans la même cavité laser qui va permettre au faisceau de sonde de traverser le cristal laser pour pouvoir mesurer la focale de la lentille thermique. Ce miroir de repli est choisi plan pour éviter une altération du front d'onde du faisceau de sonde traversant ce miroir.



Figure 2.25 : Montage expérimental pour la mesure de la lentille thermique

-- Choix de la sonde :

Le choix de la sonde s'est porté sur un faisceau lumineux rouge vers 660 nm. A cette longueur d'onde, le faisceau sonde n'est ni amplifié ni absorbé lors de son passage dans le cristal laser. De plus, les traitements (antireflet, dichroïque ou hautement réfléchissant aux longueurs d'onde proches de 1 μ m) des différentes optiques sur le trajet du faisceau sonde sont transparents à 660 nm. Finalement, la variation de la valeur de la focale de la lentille thermique, due à une différence de dispersion chromatique entre les longueurs d'onde laser (proches de 1 μ m) et de la sonde, est dans le pire des cas envisagé de l'ordre du % [Tsay 73] [Chenais 02]. On peut donc négliger cette minime variation et ne pas tenir compte de la différence de dispersion chromatique dans nos calculs.

Le faisceau de sonde ne doit pas être une source de lumière cohérente temporellement. En effet, l'analyseur de front d'onde est sensible aux interférences entre les taches focales de deux microlentilles voisines (« coherent cross talk » en anglais) [Mansell 99]. Pour éviter ce phénomène, il faut alors une source sonde avec un spectre large, ce qui est la cas car nous avons choisit d'utiliser une LED et non pas une diode laser.

La LED rouge à 660 nm, couplée dans une fibre monomode, émet une émission polarisée de 25 mW (Melles Griot). Grâce à un analyseur de faisceau, l'aspect gaussien du faisceau sonde a été vérifié. Le faisceau, fortement divergent en sortie de fibre, est collimaté grâce à un objectif de microscope de focale égale à 7,75 mm avec une ouverture numérique de 0,6. Le faisceau de sonde est ensuite focalisé sur le cristal laser sur un rayon d'environ 220 μ m. Cette valeur correspond au rayon du faisceau laser, si la cavité laser est bien réglée. Pour adapter le

faisceau sonde au niveau du cristal laser, nous avons choisi une lentille convergente dont la focale f_0 vaut 660 mm (*Figure 2.25*). Le rayon du faisceau de sonde a été mesuré à environ 220 μ m.

--Caractéristiques de l'analyseur de front d'onde :

L'analyseur de front d'onde choisi est un HASO⁶⁴. La matrice de microlentilles est composée de 64 x 64 lentilles de diamètre 180 μ m et de distance focale de 6 mm. La matrice de microlentilles de l'analyseur de front d'onde a une surface de 11,61 x 11,61 mm². Sans moyennage, la fréquence des mesures est de 10 Hz. Mais pour améliorer la précision de nos mesures, des moyennes sur 10 à 20 acquisitions ont été effectuées suivant les cas étudiés. La précision RMS²¹ sur la mesure du front d'onde est de ± 3 nm en mode relatif pour un faisceau de sonde de 670 nm. Une carte d'acquisition permet de traiter numériquement les données.

-- Choix du système « d'imagerie du front d'onde » :

Le système afocal « d'imagerie du front d'onde » doit être composé de deux lentilles comme nous l'avions précisé précédemment. Sur le banc de caractérisation de la lentille thermique (*Figure 2.25*), la première lentille du système d'imagerie correspond au doublet de focalisation du banc de pompe dont la focale f_1 vaut 60 mm. La seconde lentille est la lentille de focalisation sur l'analyseur de front d'onde dont la focale f_2 est égale à 700 mm. Ces deux lentilles nous imposent donc un grandissement G, défini équation (2.25), de 11,7. Le diamètre du faisceau de sonde initialement mesuré à 420 µm au niveau du cristal laser a un diamètre de 5,2 mm au niveau du détecteur. Ce diamètre est largement inférieur au diamètre limite de 11,61 mm imposé par la taille de la matrice de microlentilles et le front d'onde est suffisamment échantillonné pour permettre de ne pas fausser les mesures de lentille thermique.

-- les erreurs systématiques :

Les erreurs systématiques, c'est-à-dire les différences permanentes entre les valeurs réelles et mesurées, se portent essentiellement sur les incertitudes de la valeur du grandissement G et sur le positionnement des lentilles du système afocal « d'imagerie du front d'onde ». Sébastien Chénais a prouvé qu'une bonne conjugaison des plans du cristal laser et du détecteur permet d'affirmer que le positionnement des lentilles n'apparaît alors pas comme un paramètre critique [Chénais 02].

Il ne reste donc que les incertitudes de la valeur du grandissement. Pour rappel, la puissance dioptrique est reliée au carré du grandissement. Les distances focales des lentilles ayant des incertitudes de l'ordre de 1 %, l'incertitude sur la valeur de G² est alors inférieure à 4 % [Taylor 00].

Dans la suite de notre étude, nous considérons que les incertitudes faites sur la mesure de la puissance dioptrique seront de l'ordre de 4 %. Par ailleurs, ces incertitudes sont prépondérantes pour des très fortes puissances dioptriques : supérieures à 20 m⁻¹.

-- les erreurs sur la répétabilité de l'expérience :

 $^{2^{11}}$ RMS signifie « Root Mean Square » en anglais et correspond à la moyenne quadratique c'est-à-dire ($\langle s^2 \rangle$)^{1/2}

L'erreur théorique sur la répétabilité de l'expérience correspond à l'écart-type théorique sur la puissance dioptrique. Cet écart-type peut s'exprimer de la manière suivante :

$$\left(\boldsymbol{\sigma}_{Dth}\right)_{th\acute{o}rique} = F_{reconstruction} \cdot \frac{d}{f} \cdot \boldsymbol{\sigma}_{x} \cdot \frac{\sqrt{6}}{2.w_{x}^{2}}$$
(2.33)

où $F_{reconstruction}$ est un facteur empirique qui prend en compte l'erreur effectuée en « recollant » les différentes pentes locales calculées indépendamment pour chaque microlentille. Ce facteur empirique est de l'ordre de 3, valeur obtenue par la méthode modale sur une base de polynômes de Zernike [Mansell 01, Spiricon Tutorial], $d = 180 \mu m$ représente la taille d'une microlentille, f = 6 mm sa focale. L'écart-type σ_x sur la précision de mesure du point de focalisation d'une microlentille (calculé par les données du constructeur) vaut 0,1 μm . On trouve alors une valeur pour l'écart-type théorique :

$$\left(\sigma_{Dth}\right)_{théorique} = 0,25 \quad m^{-1} \tag{2.34}$$

Une série de mesures avec un cristal laser Yb:SrF₂ a permis de déterminer expérimentalement les erreurs de répétabilité de l'expérience. Les résultats obtenus sont représentés sur la *Figure 2.27*. Une erreur de répétabilité de 0,26 m⁻¹ a été mesurée sur une série de 10 mesures, en sachant que chacune de ses mesures sont effectuées sur une moyenne de 20 acquisitions faites par l'HASO⁶⁴. Chaque série de mesure est effectuée avec une référence différente. Les barres d'erreur de \pm 1,2 m ont été calculées par rapport à des acquisitions ayant la même référence.



Figure 2.26: Etude de la répétabilité des mesures expérimentales.

Il existe un bon accord entre le calcul théorique et la mesure. Une erreur de répétabilité de $0,3 \text{ m}^{-1}$ sera considérée dans la suite des travaux. Ces erreurs sont prédominantes pour des mesures de faible puissance dioptrique, inférieures à 5 m⁻¹.

2.5- Détermination des paramètres thermiques des cristaux laser

La thermographie, possible avec une caméra thermique IR, offre la possibilité non seulement de mesurer la conductivité thermique mais aussi de quantifier toutes les sources de chaleurs, en mettant une valeur sur chaque rendement thermique défini précédemment. Par contre, la mesure de la puissance dioptrique donne une information directe sur la nature même de la lentille thermique, à savoir si elle est divergente et convergente. Elle permet également de confirmer l'expression trouvée pour la focale de la lentille thermique. Ensuite, l'association des cartographies thermiques et des mesures de la puissance dioptrique permet une estimation du coefficient thermo-optique des cristaux laser étudiés. Il s'agit, à ma connaissance, de la première démonstration de mesure in situ du coefficient thermo-optique pour des cristaux laser dopés ytterbium. Dans un premier temps, nous présenterons les résultats obtenus pour les cristaux Yb:CALGO, Yb:CaF2 et Yb:SrF2 ayant tous une épaisseur de 4 mm pour les mesures de la lentille thermique. Ensuite, nous présenterons le calcul des différents rendements thermiques et la vérification des valeurs de conductivité thermique estimées précédemment dans le chapitre 1 grâce aux thermographies pour les cristaux de fluorures. L'association avec la mesure de la lentille thermique nous permettra de calculer les coefficients thermo-optiques pour les fluorures et les comparer avec la littérature. Finalement, une étude des gradients thermiques avec et sans effet laser pour le cristal laser Yb:CALGO nous permettra de faire une comparaison de propriétés thermiques entre les trois cristaux laser.

Encadré 2.7 : Quelques remarques au sujet des fluorures

Les fluorures CaF₂, SrF₂ ainsi que le BaF₂ sont connues pour leur large transmission qui va de l'UV jusqu'à des longueurs d'onde de 11 μ m. Cette transparence entre 8-11 μ m remet en doute la validité des hypothèses énoncées sur la cartographie thermique de la face d'entrée. Cependant, les cristaux laser étudiés thermiquement sont fortement dopés avec des dopages proches de 3 % en ions ytterbium. Ce fort dopage rend les fluorures fortement absorbants dans la bande de fonctionnement de la caméra thermique IR choisie. En effet, expérimentalement, nous avons mesurée une transmission résiduelle de 5 % pour un cristal Yb:CaF₂ dopé à 2,6 % en ions ytterbium d'épaisseur de 0,5 mm avec une source de chaleur d'environ 200° C. Nous pouvons alors considérer que les cartographies thermiques représentent la face pompée du cristal laser.

2.5.1- Les aberrations thermiques

Pour mesurer les aberrations thermiques, il faut faire une décomposition sur les polynômes de Zernike. Sur la *Figure 2.27*, sont représentées la focale et les aberrations de la lentille thermique mesurées avec effet laser pour les cristaux Yb:SrF₂, Yb:CaF₂ et Yb:CALGO pour une puissance incidente de 47, 83 et 86 W respectivement. Les aberrations pertinentes de la lentille thermique sont les astigmatismes à 0 et 45° et l'aberration sphérique du 3^{ème} ordre.

L'absence d'aberration sphérique du 3^{em} ordre pour les fluorures signifie que les faisceaux de pompe et de son sonde ont la même taille sur le cristal et que le profil de la pompe est « tophat » (partie 2.4.3.2).

Pour le cristal Yb:SrF₂, les aberrations de la lentille thermiques sont négligeables par rapport à la focale de la lentille thermique. La lentille thermique n'est donc pas aberrante et il sera possible de compenser parfaitement et facilement en jouant sur les distances de la cavité laser.



<u>Figure 2.27 :</u> Coefficient de courbure, d'astigmatisme à 0 et 45 ° et d'aberration sphérique mesurés avec effet laser pour les cristaux Yb:SrF₂, Yb:CaF₂ et Yb:CALGO à leur puissance de pompe maximale à savoir 47 W, 83 W et 86 W respectivement

Pour le cristal Yb:CaF₂, contrairement à l'astigmatisme à 45°, l'astigmatisme à 0° est non négligeable. Cet astigmatisme est peut être dû à un refroidissement inhomogène suivant les deux axes ou à l'apparition d'une anisotropie entre les propriétés thermomécaniques et thermo-optiques suivant ces deux axes.

Pour le cristal Yb:CALGO, il est naturel de voir des coefficients d'astigmatisme à 0 et 45° étant donné qu'il s'agit d'un cristal uniaxe et que la sonde n'était pas polarisée.

2.5.2- Détermination de la lentille thermique des cristaux dopés ytterbium

2.5.2.1- Signe des puissances dioptriques mesurées

Les puissances dioptriques en fonction de la puissance incidente sont représentées *Figure* 2.28 pour les trois cristaux laser dopés ytterbium choisis. La première différence notable est la mesure de puissances dioptriques positives pour le cristal laser Yb:CALGO et négatives pour les cristaux laser Yb:CaF₂ et Yb:SrF₂. Cette constatation prouve que la lentille thermique du cristal Yb:CALGO est une lentille convergente et que pour les cristaux de fluorures se comportent comme des lentilles divergentes lors de forts pompages.



<u>Figure 2.28:</u> Puissances dioptriques en fonction de la puissance incidente pour les cristaux laser Yb:CALGO, Yb:SrF₂ et Yb:CaF₂

1) Analyse des courbes pour les fluorures :

En ce qui concerne les cristaux de fluorures, les effets thermo-optiques semblent négligeables en l'absence d'effet laser due à la saturation d'absorption. Par contre, elles ne le sont plus en présence d'effet laser puisque les puissances dioptriques atteignent des valeurs proches de 10 m^{-1} . Les lentilles thermiques ainsi générées par l'échauffement laser auront pour conséquence de déstabiliser la cavité laser. La prise en compte de la lentille thermique est fondamentale pour une optimisation de la cavité laser pour les cristaux Yb:CaF₂ et Yb:SrF₂. Une remarque importante est la différence de puissance dioptrique pour une même puissance de pompe incidente suivant la présence ou non de l'effet laser. Cette différence appuie l'importance de la saturation d'absorption dans nos mesures et donc de la différence entre les puissances absorbées avec ou sans effet laser comme le montre la *Figure 2.29*.



Figure 2.29: Puissances absorbées avec et sans effet laser pour les deux fluorures dopés ytterbium en fonction de la puissance incidente

De plus, un regard rapide sur l'expression de la puissance dioptrique, c'est à dire $D_{th} = (\eta_{h.} Pabs.\chi)/(2.\pi w_{p.}^2 \kappa_c)$, nous permet de constater que le signe de D_{th} dépend du signe du coefficient thermo-optique χ puisque tous les autres coefficients ont obligatoirement des valeurs positives. Or d'après toujours la même équation, nous remarquons que χ est la somme de trois termes : $\chi_{dn/dT}$, $\chi_{contraintes}$ et $\chi_{dilatation}$, termes détaillés tableau 2.1 [Weber 03].

| Cristal | <u>Yb:CaF₂</u> | Yb:SrF ₂ |
|--|---|---|
| $dn/dT (10^{-6} K^{-1})$ | -10,6 | -12.0 |
| expansion thermique $\alpha_{\rm T}$ (10 ⁻⁶ K ⁻¹) | 18,9 | 18.4 |
| le coefficient de Poisson v | 0,28 | 0.25 |
| Cr | -0,098 | -0.125 |
| $\mathrm{C}_{\mathrm{	heta}}$ | -0,1025 | -0.131 |
| χ (dn/dT) | -10,6 10 ⁻⁶ K ⁻¹ | -12,0 10 ⁻⁶ K ⁻¹ |
| χ (stress) = 2.n ³ . α_{T} . $C_{r,\theta}$ | -11,1 10 ⁻⁶ K ⁻¹ | -14 10 ⁻⁶ K ⁻¹ |
| χ (dilatation) = (n-1)(1+v) α_T | 10,4 10 ⁻⁶ K ⁻¹ | 10,1 10 ⁻⁶ K ⁻¹ |
| $\chi = \chi (dn/dT) + \chi (stress) + \chi (dilatation)$ | -11,3 10 ⁻⁶ K ^{-1*} | -15,9 10 ⁻⁶ K ^{-1*} |

tableau 2.1: Calcul des différentes composantes pour le coefficient thermo-optique pour les fluorures

2) Analyse des courbes pour le CALGO

Tout d'abord, on remarque que les puissances dioptriques, inférieures à 4.5 m⁻¹ pour le cristal laser Yb:CALGO sont très faibles en présence ou non de l'oscillation laser. On peut en conclure que l'apparition de la lentille thermique n'aura donc quasiment pas d'influence sur la stabilité de la cavité laser.

Ensuite, à cause de trop d'inconnus sur le cristal de CALGO, nous sommes dans l'incapacité de calculer la valeur du coefficient thermo-optique. Cependant, grâce au raisonnement précédent, nous pouvons affirmer que le CALGO a un coefficient thermo-optique positif.

De manière analogue aux fluorures, la différence de puissance dioptrique en l'absence ou non d'effet laser pour une même puissance incidente est due à la présence d'une saturation d'absorption comme le prouve la *Figure 2.30*.



Figure 2.30: Puissance absorbée en fonction de la puissance incidente pour le cristal Yb:CALGO

3) Résumé des résultats expérimentaux

Le tableau 2.2 résume les différentes focales obtenues pour les différents cristaux laser étudiés à puissance incidente maximale en présence de l'effet laser. Les puissances absorbées sont également rappelées dans ce tableau.

| Cristal | Yb:CaF ₂ | <u>Yb:SrF₂</u> | Yb:CALGO |
|-----------------------|----------------------------|---------------------------|-----------------|
| $P_{incidente}$ | 83 W | 47 W | 86 W |
| $P_{absorb\acute{e}}$ | 40 W | 18 W | 42 W |
| W_p | 220 µm | 220 µm | 220 µm |
| f_{th} | -119 mm | -113 mm | + 250 mm |

tableau 2.2: Les différentes focales obtenues pour les cristaux de Yb:CaF₂, Yb:SrF₂ et Yb:CALGO à puissance maximale de pompe

2.5.2.2- Cavités laser de fortes puissances

L'apparition d'une lentille thermique dans la cavité laser peut la déstabiliser et/ou changer le mode du faisceau laser. Il apparaît évident maintenant que la prise en compte de la focale de la lentille thermique permet une optimisation de l'architecture de la cavité laser et de s'assurer un faisceau monomode en sortie de l'oscillateur laser. Grâce à ces mesures de focales, nous avons pu dans des conditions similaires, à savoir puissances absorbées et intracavités, optimiser les cavités laser en régime continu pour les trois cristaux dopés ytterbium étudiés. Intéressons-nous à ces différentes cavités laser et les performances obtenues.

1) cavité laser optimisée de forte puissance pour le Yb:SrF2 et Yb:CaF2

Les cristaux laser dopés ytterbium Yb:CaF₂ et Yb:SrF₂, non traités antireflet, sont pompés avec le même banc de pompe que celui utilisé pour les expériences du banc thermique. Le faisceau de pompe est imagé sur la face entrée du cristal laser grâce à un système de doublets d'une focale de 60 mm. Le montage expérimental est représenté *Figure 2.31 (a)*.



<u>Figure 2.31:</u> Cavité laser (a) et puissance moyenne de sortie en fonction de la puissance incidente pour les cristaux de fluorures (b)

L'oscillateur laser est composé de trois miroirs. Le premier miroir est un miroir dichroïque, réfléchissant à la longueur d'onde laser et transparent à la longueur d'onde de pompe (M_a). Ensuite, le miroir qui vient focaliser le faisceau laser dans le cristal est un miroir concave (M_c) avec un rayon de courbure de 200 mm (M_b). Finalement, le miroir de fond de cavité est un miroir plan avec une transmission de 10 % pour le cristal Yb:SrF₂ et 15 % pour le cristal Yb:CaF₂. Les cristaux laser sont considérés comme des lentilles divergentes ayant une focale de -113 mm pour le cristal Yb:SrF₂ et de -119 mm pour le cristal Yb:CaF₂ pour les puissances de pompe maximales. Les distances optimales entre les différents éléments optiques ont été estimées par un logiciel basé sur la loi des matrices ABCD. Les puissances de sortie en fonction de la puissance incidente sont tracées sur la *Figure 2.31 (b*).

Avec le cristal Yb:SrF₂, une puissance moyenne de 5,8 W a été obtenue pour une puissance incidente de pompe de 26 W, correspondant à une puissance absorbée de 20 W (*Figure 2.31 b*). La puissance de sortie en fonction de la puissance de la diode laser²² (ou « slope efficiency » en anglais) est de 22,7 %. L'efficacité optique-optique²³ (ou « optical-optical efficiency » en anglais) est de 22,3 %. La puissance incidente de pompe a été volontairement limitée à 26 W pour éviter la fracture du cristal due à une température trop élevée (voir partie suivante).

Avec le cristal Yb:CaF₂, une puissance moyenne de sortie de 10,2 W a été obtenue pour 64 W de puissance de pompe incidente correspondant à une puissance absorbée de 39 W et une puissance intracavité d'environ 68 W. La puissance moyenne en fonction de la puissance émise par la diode laser est de 21,6 % et l'efficacité optique-optique est de 16 %. La chute de la puissance incidente pour de fortes puissances de pompe est due au fait que nous sommes proches de la fracture du cristal laser. Le faisceau laser a été caractérisé en sortie de l'oscillateur. Les facteurs M² sont approximativement égaux à 1,16 et 1,20 suivant les axes x et y respectivement, donc proches de la limite de diffraction (*Figure 2.32*) pour une puissance incidente de 64 W. Le faisceau laser est quasiment en limite de diffraction. A notre connaissance, c'est la plus forte puissance moyenne de sortie jamais obtenue avec une cavité laser à base de cristaux Yb:CaF₂ pompés par diode laser en régime continu.

²²Il s'agit tout simple de la pente *c* de la courbe $P_{laser} = c.P_{incident} + d = f(P_{incident})$

²³ Il s'agit du rapport $(P_{laser}) / (P_{incident})$



<u>Figure 2.32:</u> Mesures des facteurs M^2 suivant les axes x (a) et y (b) pour le cristal Yb:CaF₂ à une puissance incidente de 64 W

Si les lentilles thermiques n'avaient pas été prises en compte dans l'architecture des cavités laser, les deux cavités auraient produits des faisceaux multimodes (simulations faites sous le logiciel LASCAD où nous avons la possibilité de calculer les rayons du faisceau laser sur chaque optique de la cavité laser ainsi crée par les lois des matrices ABCD). Les rayons de pompe et du faisceau laser ne sont pas similaires et ne permettent pas alors d'obtenir un laser monomode.

De manière générale, nous remarquons que la prise en compte des focales de lentille thermique nous permet d'améliorer les performances en régime continu pour les cristaux de fluorures. Ceci permet de corroborer nos résultats et nous confortent dans nos mesures de lentille thermique.

2) cavité laser optimisée de forte puissance pour le Yb:CALGO

Contrairement aux cristaux de fluorures, l'apparition de la lentille thermique n'a pas beaucoup d'influence sur la stabilité de la cavité laser de part sa faible convergence. La cavité laser et le banc de pompe de la cavité laser à base d'un cristal Yb:CALGO sont exactement les mêmes que ceux développés pour les cristaux de fluorures mais avec un coupleur de sortie ayant une transmission de 5 %. Cependant, une différence notoire est à soulever. Le cristal Yb:CALGO a un traitement antireflet sur ses faces, évitant ainsi l'introduction supplémentaire de pertes dans la cavité laser.



<u>Figure 2.33</u> Mesures des puissances absorbées avec (losanges) et sans (carré) effet laser et de la puissance moyenne de sortie (triangles) en fonction de la puissance incidente</u>

Une puissance de sortie de 15,3 W (*Figure 2.33* formes triangulaires) a été obtenue pour une puissance incidente de 92 W, correspondant à une puissance absorbée de 42 W (*Figure 2.33* formes losanges). La puissance moyenne en fonction de la puissance de la diode laser est de 22,9 % et l'efficacité optique-optique est de 17 %. C'est également la plus forte puissance moyenne jamais obtenue pour un cristal Yb:CALGO en régime continu.

Le faisceau laser a également été caractérisé en sortie du résonateur. Les facteurs M² ont été mesurées à égales à 1,29 et 1,14 suivant les axes x et y respectivement (*Figure 2.34*).



<u>Figure 2.34:</u> Mesures des facteurs M² suivant les axes x et y respectivement pour le cristal de Yb:CALGO

2.5.3- Etude thermique des fluorures

Le but de cette partie sera, dans un premier temps, de déterminer tous les rendements thermiques définis précédemment : $\eta_{h_sanslaser}$, η_{h_laser} , η_r et η_l . Nous allons au départ utiliser l'équation (1.2) de la conductivité thermique pour montrer que le rendement quantique de fluorescence est proche de l'unité pour les deux fluorures. Ensuite nous utiliserons ces résultats pour en déduire des valeurs expérimentales de la conductivité thermique et des coefficients thermo-optiques, en vérifiant en parallèle la validité de l'expression analytique pour la lentille thermique.

L'objectif de cette étude thermique est de mesurer les conductivités thermiques et les coefficients thermo-optiques des cristaux fluorures pour les comparer entre eux mais également comparer ces valeurs aux valeurs données dans la littérature, pour des cristaux non dopés. De plus ces mesures permettront d'écrire une expression générale de la focale de la lentille thermique grâce seulement à des données expérimentales pour ces deux cristaux.

2.5.3.1- Le calcul de la fraction thermique avec et sans effet laser

Tout d'abord, une méthode de calcul du rendement quantique de fluorescence à partir de la cartographie thermique sans effet laser sera proposée. Ensuite, le rendement d'extraction laser sera estimé. Finalement, en ayant toutes les données, nous pouvons au finalement calculé la fraction thermique avec effet laser, résultat confirmé par la cartographie thermique en présence d'effet laser. On considèrera un rendement quantique d'absorption égal à l'unité, hypothèse qui sera validée par la suite.

1) Le calcul des coefficients d'absorption non saturée

Les coefficients d'absorption non saturée ont une grande importance dans nos calculs de dP(z)/dz (voir annexe B) pour estimer certains rendements thermiques par la suite. Le montage expérimental pour le déterminer est décrit *Figure 2.35*.



Figure 2.35: Montage expérimental du calcul du coefficient d'absorption non saturé

Une diaphragme est placé dans le faisceau de pompe collimaté pour réduire de manière significative la puissance de pompe. De cette manière, aucune saturation de l'absorption n'est observée dans le cristal car le diamètre du faisceau est quelques millimètres et la puissance maximale est de quelques milliwatts. Les mesures de α_{NS} sont de 340 ± 8,5 et 420 ± 10,5 m⁻¹ pour les cristaux laser de Yb:CaF₂ et de Yb:SrF₂ respectivement

2) Calcul de la fraction thermique sans effet laser

En présentant le principe de la thermographie, nous avons montré que la distribution de chaleur inhomogène pouvait s'exprimer en $\Delta T = (\eta_h.(dP(z)/dz))/(4.\pi\kappa_c).f(r,z)$ où la différence de température $\Delta T = T(r = 0, z) - T(r,z)$ est reliée à une fonction géométrique f(r,z). Pour rappel, le dP(z)/dz correspond au dP(z)/dz en z = 0 puisque la cartographie thermique a été mesurée sur la face d'entrée du cristal. Connaissant les valeurs de la conductivité thermique κ_c , le rayon du faisceau de pompe w_p , il est alors possible grâce au profil horizontal théorique de la distribution de chaleur d'estimer la valeur de la fraction thermique sans effet laser $\eta_{\eta_sanslaser}$. Dans le chapitre 1, les valeurs de la conductivité thermique ont été estimées à 6,06 et 3,43 W.m⁻¹.K⁻¹ pour les cristaux Yb:CaF₂ et Yb:SrF₂ respectivement [Gaumé 03] (voir encadré 2.8). Les profils expérimentaux (points bleus) et les courbes théoriques en ajustant la valeur de $\eta_{\eta_sanslaser}$ (ligne rouge) sont représentés sur la *Figure 2.36* pour les deux fluorures.



<u>Figure 2.36</u>: Profils de température expérimentaux et théoriques pour (a) le cristal Yb: CaF_2 , (b) le cristal Yb: SrF_2

Encadré 2.8 : L'estimation de la conductivité thermique dans les courbes théoriques

Bien que les valeurs de κ_c ne soient qu'estimées d'après le modèle de R. Gaumé [Gaumé 03], il existe une petite marge d'ajustement autour de ces valeurs comme le montre la *Figure 2.37*. La validité des courbes d'approximation des profils expérimentaux de la distribution de chaleur est valide dans cette marge d'ajustement. D'ailleurs, ces valeurs seront validées à posteriori.



Figure 2.37 : Ajustement autour de κ_c *pour les fluorures*

Les résultats et le calcul de dP(z)/dz sont résumés dans le tableau 2.3. Cette quantification permet d'affirmer alors que 3,5 % et 1,4 % de la puissance absorbée est transformée en chaleur pour les cristaux laserYb:CaF₂ et Yb:SrF₂ respectivement.

| Cristal | Yb:CaF ₂ | Yb:SrF ₂ |
|------------------------|---|---|
| $P_{incidente}$ | 83 W | 47 W |
| $P_{absorb\acute{e}e}$ | 32 W | 10 W |
| $dP(z)/dz (W.m^{-1})$ | 3669 | 3110 |
| ΔΤ | 13 °C | 6°C |
| Kc | 6,06 W.m ⁻¹ .K ⁻¹ | 3,43 W.m ⁻¹ .K ⁻¹ |
| w_p | 220 µm | 220 µm |
| η_h sanslaser | 0,035 | 0,014 |

<u>tableau 2.3 :</u> Caractéristiques et calculs obtenus pour la fraction thermique en l'absence d'effet laser pour les trois cristaux étudiés

La différence entre les deux valeurs de la fraction thermique sans effet laser est due naturellement à la différence de la longueur d'onde de fluorescence moyenne entre les deux cristaux. Il est donc normal d'obtenir une plus faible valeur pour $Yb:SrF_2$ étant donné que sa longueur d'onde de fluorescence moyenne est de 989 nm comparée au 1008 pour $Yb:CaF_2$.

3) Calcul du rendement quantique de fluorescence

La fraction thermique sans effet laser est reliée directement au rendement quantique de fluorescence par l'équation (2.6). Les longueurs de fluorescence étant de 1008 nm pour le cristal Yb:CaF₂ et de 989 nm pour le cristal Yb:SrF₂, les rendements quantiques de fluorescence vaut respectivement 0,993 et 0,995. Un rendement quantique de fluorescence

porche de l'unité permet d'affirmer que la cristallogenèse des fluorures étudiés est parfaitement maitrisée. Ceci revient à dire que les cristaux sont de très bonne qualité et présentent en conséquence très peu d'impuretés et/ou de lacunes et/ou de dislocations. On valide alors que le rendement quantique d'absorption est lui aussi proche de1.

Les rendements quantiques de fluorescence de ces cristaux sont proches de l'unité, ce qui constitue une information très intéressante. En effet, ces valeurs proches de 1 signifient que l'immense majorité des ions excités contribueront à l'émission spontanée. Les ions excités dissiperont alors une grande quantité de leur énergie sous forme radiative. Donc en l'absence d'effet laser, la source de chaleur est proche du défaut quantique de fluorescence, défini équation (2.3). Cette source de chaleur sera la plus forte quantité de chaleur qui peut se produire dans un cristal laser pompé en l'absence d'effet laser. Ces résultats sont corroborés par les faibles puissances dioptriques obtenues sans effet laser.

4) Calcul du rendement d'extraction laser

On reprend l'équation $(2.11)^{24}$ où P_{int} correspond à la puissance intracavité, égale à 57 et 60 W pour le cristal Yb:CaF₂ et le cristal Yb:SrF₂ respectivement. Les puissances intracavités ont été calculées pour les cavités laser obtenues à des puissances incidentes de pompe de 83 W et 47W pour les cristaux Yb:CaF₂ et Yb:SrF₂ respectivement [Boudeile 08].



<u>Figure 2.38:</u> Evolution du rendement d'extraction laser en fonction de la coordonnée radiale pour les cristaux de Yb:CaF₂ et de Yb:SrF₂

Le profil radial de l'extraction laser a été tracé sur la *Figure 2.38* pour la puissance intracavité maximale mesurée pour chaque cristal de fluorure. On constate de suite que les rendements d'extraction laser ont des valeurs nettement inférieures à 1. Les faibles puissances intracavités, inférieurs à la centaine de W pour les deux cristaux de fluorures, sont responsables de ces faibles valeurs de η_l . Ces « faibles » puissances intracavités sont provoquées par des pertes intracavités trop importante, occasionnées par la présence de la lame de ZnSe dans la cavité laser, et l'absence de traitement antireflet sur les cristaux de

²⁴ Pour rappel, l'expression du rendement d'extraction laser vaut $\eta_l(r) = \frac{\sigma_{em}(\lambda_l).I(r)}{\sigma_{em}(\lambda_l).I(r) + \frac{l}{n.\tau}}$

fluorures. Pour calculer η_l , on prend alors la valeur moyenne pondérée par le profil de l'intensité de pompe (qui est dans notre configuration « top-hat » à cause de la fibre multimode de la diode laser) du rendement de l'extraction laser sur la zone pompée, c'est-àdire la valeur moyenne de η_l entre $r = -w_p$ et $r = w_p$. Les valeurs de η_l valent 0,45 et 0,46 pour les cristaux Yb:CaF₂ et Yb:SrF₂ respectivement.

5) Calcul de la fraction thermique en présence d'effet laser $\eta_{h \text{ laser}}$:

Etant donné que précédemment nous avons calculé les rendements quantique de fluorescence et d'extraction laser et en connaissant les longueurs d'onde de pompe, de laser et de fluorescence moyenne, nous pouvons aisément grâce à l'équation $(2.4)^{25}$ calculer les valeurs de la fraction thermique η_{h_laser} . Les résultats sont regroupés dans le tableau 2.4.

Une fraction thermique en présence d'effet laser de 0,05 pour le cristal Yb:CaF₂ indique que 5 % de la puissance absorbée est transformée en chaleur, et donc 3,9 % de la puissance absorbée pour le cristal Yb:SrF₂.

| Cristal | <u>Yb:CaF₂</u> | <u>Yb:SrF₂</u> |
|----------------|---------------------------|---------------------------|
| η_p | 1 | 1 |
| η_r | 0,993 | 0,995 |
| η_l | 0,45 | 0,46 |
| λ_p | 980 nm | 980 nm |
| λ_l | 1053 nm | 1051 nm |
| λ_{f} | 1008 nm | 989 nm |
| η_h laser | 0,050 | 0,039 |

tableau 2.4: Résultats obtenus pour la fraction thermique en présence d'effet laser

On remarque que la fraction thermique passe de 3,5 % (tableau 2.3) en l'absence d'effet laser à 5 % (tableau 2.4) en présence d'effet laser pour le cristal Yb:CaF₂ pour une différence de 10 W de puissance absorbée entre les deux régimes et de 1,4 % (tableau 2.3) à 3,9 % (tableau 2.4) pour une différence de 8 W pour le cristal Yb:SrF₂.

6) Autre méthode pour le calcul de la fraction thermique avec effet laser

Pour corroborer nos résultats, il est également possible de calculer la valeur de la fraction thermique en présence d'effet laser en utilisant la même technique que celle choisie pour mesurer la fraction thermique sans effet laser²⁶. Les fractions thermiques en présence de l'effet laser valent 0,055 et 0,042 pour Yb:CaF₂ et Yb:SrF₂ respectivement (tableau 2.5). Ces résultats sont en bon accord avec les résultats trouvés précédemment (tableau 2.4). Les profils de la température pour les deux cristaux de fluorures (points bleus) et les courbes théoriques (lignes rouges) en présence d'effet laser sont représentés pour les cristaux Yb:CAF₂ et Yb:SrF₂ sur la *Figure 2.39*.

²⁵ L'équation (2.4) relie η_{h_laser} avec $\eta_{h_sanslaser}$ de la manière suivante : $\eta_{h_laser} = \eta_{h_sanslaser} + \eta_p \eta_l \left[\eta_r \cdot \frac{\lambda_p}{\lambda_f} - \frac{\lambda_p}{\lambda_l} \right]$

²⁶ Pour rappel, l'ajustement des courbes théoriques de la distribution de chaleur sur les courbes expérimentales issues de la cartographie sans effet laser a permis de trouver la valeur de la fraction thermique sans effet laser., toutes les autres paramètres étant déterminés

| Cristal | Yb:CaF ₂ | Yb:SrF ₂ |
|------------------|---|---|
| $P_{incidente}$ | 83 W | 47 W |
| $P_{absorbée}$ | 40 W | 18 W |
| dP(z)/dz | 8131 | 5194 |
| ΔΤ | 34 °C | 26 °C |
| κ_{c} | 6,06 W.m ⁻¹ .K ⁻¹ | 3,43 W.m ⁻¹ .K ⁻¹ |
| w_p | 220 µm | 220 µm |
| n h laser | 0,055 | 0,042 |

tableau 2.5: Résultats obtenus pour la fraction thermique en présence d'effet laser grâce à la thermographie



<u>Figure 2.39:</u> les profils de température (points bleus) et leurs courbes théoriques (lignes rouges) pour les cristaux (a) Yb:CaF₂ et (b) Yb:SrF₂

6) Conclusions

En conclusion, en l'absence d'effet laser, l'apparition de la chaleur dans le cristal laser est très faible parce que la chaleur provient du défaut quantique de fluorescence (entre les longueurs d'onde de fluorescence moyenne et de pompe). En présence d'effet laser, on remarque que les fractions thermiques augmentent de près de 2 % et 3 % pour les cristaux Yb:CaF₂ et Yb:SrF₂ respectivement. Les fractions thermiques sont plus élevées en présence qu'en l'absence d'effet laser. En effet, une moitié des photons participent à l'émission d'un photon laser et l'autre moitié à l'émission d'un photon de fluorescence. Dans cette configuration, l'émission laser induit plus de chaleur que l'émission spontanée car les longueurs d'onde laser sont supérieures aux longueurs d'onde de fluorescence. Il est donc normal de trouver des valeurs de fraction thermique avec effet laser supérieures à celles sans effet laser. Toutes ces raisons, mais surtout en rajoutant la saturation d'absorption de la pompe, peuvent expliquer les différences de résultats obtenus pour la puissance dioptrique des lentilles thermiques avec et sans effet laser. En effet, pour une puissance incidente de 83 W et 47 W pour les cristaux Yb:CaF₂ et Yb:SrF₂, une différence de 8 W entre les puissances absorbées avec et sans effet laser a été mesurée pour les deux fluorures.

2.5.3.2- Détermination expérimentale de la conductivité thermique

Durant sa thèse, Julien Didierjean a développé une nouvelle méthode de mesure de la conductivité thermique via les cartographies thermiques en présence d'effet laser [Didierjean 07]. Cette technique sera utilisée pour conforter les valeurs de conductivités thermiques admises (et utilisées précédemment) pour les cristaux de fluorures.

Nous remarquons rapidement que, grâce à l'équation (2.27), nous pouvons exprimer facilement la conductivité thermique en fonction de f(r,z)

$$\kappa_c = -\frac{1}{T(r,z) - T(r_0,z)} \cdot \frac{\eta_h}{4.\pi} \cdot \frac{dP(z)}{dz} \cdot f(r,z)$$
(2.31)

où pour rappel f(r,z) est la fonction géométrique décrivant le modèle théorique de la distribution de chaleur dans le cristal, détaillé partie 2.4.1.4.

En ayant toutes les données nécessaires, il est possible de déterminer la valeur de la conductivité thermique en ajustant les profils expérimentaux de la distribution de la chaleur aux courbes théoriques (*Figure 2.40*). Les paramètres et les valeurs de conductivités thermiques utilisés pour les ajustements sont réunis dans le tableau 2.6.

| Cristal | <u>Yb:CaF₂</u> | <u>Yb:SrF₂</u> |
|-------------------|--|---|
| λ_p | 980 nm | 980 nm |
| λ_l | 1053 nm | 1051 nm |
| λ_{f} | 1008 nm | 989 nm |
| $\eta_{h\ laser}$ | 0,050 | 0,039 |
| dP(z)/dz | 8131 | 5194 |
| K | 54 ± 1 W m ⁻¹ K ⁻¹ | $3.1 \pm 0.6 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ |

tableau 2.6: Tableau résumant les résultats obtenus pour les calculs de conductivités thermique



<u>Figure 2.40:</u> Profils thermiques expérimentaux (points bleus) et théoriques (courbe rouge) pour les cristaux Yb:CaF₂ et Yb:SrF₂

Les incertitudes indiquées pour les conductivités thermiques sont de l'ordre de 15 %. Malgré une valeur inférieure pour le cristal Yb:CaF₂, nos résultats, plutôt en bon accord avec les valeurs de conductivité thermiques issues du modèle théorique de R. Gaumé [Gaumé 03], nous confortent dans notre choix des valeurs de 6,06 et 3,43 W.m⁻¹.K⁻¹ des conductivités thermiques pour Yb:CaF₂ et Yb:SrF₂ respectivement dans nos mesures (Figure 2.41).



<u>Figure 2.41:</u> Comparaison des mesures de conductivités thermiques avec la littérature [Mogilevskii 76] [Siebold 07], le modèle théorique de R. Gaumé avec la variation du taux de substitution aves l'ion ytterbium [Gaumé 03]

2.5.3.3- Calcul du coefficient thermo-optique pour les cristaux de fluorures

Grâce aux mesures des puissances dioptriques et la détermination de la fraction thermique précédemment, il devient possible de d'approximer les courbes expérimentales en utilisant la formule (2.12). Le seul paramètre d'ajustement est alors le coefficient thermo-optique. On trouve alors que χ vaut -17,8 10⁻⁶ ± 1,5 10⁻⁶ K⁻¹ pour Yb:CaF₂ et -20,5 10⁻⁶ ± 1,8 10⁻⁶ K⁻¹ pour Yb:SrF₂.

Les courbes expérimentales (points bleus) de la puissance dioptriques sont représentées sur la *Figure 2.42* avec les courbes théoriques (courbes roses), définies équation (2.16) avec la valeur ajustée pour le coefficient thermo-optique pour chaque cristal laser.



<u>Figure 2.42:</u> Courbes expérimentales des puissances dioptriques (losanges bleus) et courbes théorique (courbes roses) avec effet laser pour (a) Yb:CaF₂ et (b) Yb:SrF₂

Les incertitudes sont calculées grâce à la dérivée logarithmique de la formule (2.16) :

$$\frac{d\chi}{\chi} = \sqrt{\left(\frac{dD_{th}}{D_{th}}\right)^2 + \left(2.\frac{dw_p}{w_p}\right)^2 + \left(\frac{d\kappa_c}{\kappa_c}\right)^2 + \left(\frac{dP_{abs}}{P_{abs}}\right)^2} \approx 0.10$$
(2.36)

Les calculs du coefficient thermo-optiques ainsi que les valeurs des focales de la lentille thermique mesurées et théoriques sont résumés dans le tableau 2.6.

On peut remarquer, grâce au tableau 2.6, une importante différence entre notre évaluation du coefficient thermo-optique et le coefficient généralement admis dans la littérature pour des cristaux laser non dopés [Weber 03]. Deux raisons pourraient expliquer cette différence notoire :

1) Le coefficient thermo-optique varie avec la concentration du dopant comme c'est le cas pour la conductivité thermique.

2) Le coefficient thermo-optique donné dans la littérature est déduit de mesures obtenues quand le cristal est à l'équilibre thermodynamique et à contrainte constante. Or dans nos expériences, les coefficients thermo-optiques sont mesurés quand le cristal est pompé et donc soumis à une distribution inhomogène de la chaleur, c'est-à-dire loin de l'équilibre thermodynamique et en subissant donc des contraintes.

| Cristal | <u>Yb:CaF</u>₂ | <u>Yb:SrF</u> ₂ |
|---|----------------------------------|------------------------------|
| χ expérimental K^1 (cristaux dopés) | $-17,8 \pm 1,5 \ 10^{-6}$ | $-20,5 \pm 1,8 \ 10^{-6}$ |
| χ théorique K ¹ par l'équation (2.) | -11,3 10 ⁻⁶ | -15,9 10⁻⁶ |
| <i>f_{th} théorique mm</i> (conductivité thermique non dopé) | -302 * | -364 ** |
| <i>f_{th} théorique mm</i> (conductivité thermique dopé) | -188 * | -158 ** |
| <i>f_{th} expérimentale mm (conductivité thermique dopé)</i> | -119 | -113 |
| * $\eta_p = \eta_r = 1; \ \eta_h \ laser = 0,045; \ \eta_l = 0,45; \ \chi = -11,3 \ 10^{-6} \ \mathrm{K}^{-1}$ | | |
| ** $\eta_p = \eta_r = 1; \ \eta_{h \ laser} = 0,037; \ \eta_l = 0,46; \ \chi = -15,9 \ 10^{-6} \ \mathrm{K}^{-1}$ | | |

<u>tableau 2.6:</u> Comparaison entre les résultats expérimentaux et les valeurs théoriques pour le coefficient thermo-optique et les focales des lentilles thermiques associées

Pour conclure, dans le domaine des cristaux laser dopés ytterbium, l'utilisation des valeurs tabulées du coefficient thermo-optique conduit à des sous-estimations de l'effet de la lentille thermique. Dans notre cas, il y a quasiment un rapport 1/3 sur la sous-estimation des puissances dioptriques : la différence est de 37 % pour Yb:CaF₂ et de 38 % pour Yb:SrF₂. Les valeurs mesurées obtenues dans ce travail nous ont permis d'optimiser au mieux nos cavités laser et générer de fortes puissances en régime continu pour un faisceau laser monomode. Les performances pour les trois cristaux laser ont été détaillées dans la partie 2.5.1.2. Nous remarquons naturellement que la prise en compte des valeurs publiées dans la littérature ne

permettait en aucun cas l'optimisation de l'architecture de la cavité laser pour de fortes puissances moyennes [Boudeile 08]

2.5.4- Mesure du gradient thermique du cristal Yb:CALGO

Pour rappel, les valeurs de la conductivité thermique pour le cristal Yb(2%):CALGO ont été mesurées à 6,9 et 6,3 W.m⁻¹.K⁻¹ selon les axes *a* et *c* respectivement [Petit 05]. Les images issues de la thermographie et les profils de la distribution de température correspondants sont représentés sur la *Figure 2.43* Pour une puissance incidente de 86 W, les gradients de température valent 15 °C en l'absence d'effet laser (*Figure 2.43 (a)*) et 21 °C en présence de l'effet laser (*Figure 2.39 (b)*), correspondant respectivement à une puissance absorbée de 29 W et 42 W.



<u>Figure 2.43:</u> Thermographies et profil de température correspondant pour le cristal Yb:CALGO sans (a) et avec (b) effet laser

Deux remarques importantes peuvent être faites. Tout d'abord, quelle que soit la configuration, les gradients de température sont inférieurs à 22 °C. En comparaison, la mesure de gradient de température vaut 36°C en présence d'effet laser et pour une puissance absorbée équivalente de l'ordre de 40 W pour le cristal Yb:CaF₂ (tableau 2.5). Le cristal laser Yb:CALGO ne connaît qu'un échauffement de 21°C pour une puissance incidente de pompe de 86 W ! Finalement, nous remarquons de suite que la différence entre les gradients de température avec et sans effet laser est seulement de 5°C. Cette valeur est très faible, comparée au 21°C pour Yb:CaF₂ et 20°C pour Yb:SrF₂ (tableau 2.5).

Les faibles valeurs de gradient thermique nous confortent dans les excellentes valeurs mesurées de la conductivité thermique du cristal Yb:CALGO [Petit 05].

2.5.5- Comparaisons thermiques

2.5.5.1- Comparaison entre les cristaux de fluorures

Tout d'abord, nos mesures ont montré que le cristal Yb:CaF₂ présente une valeur de conductivité thermique 1,8 fois supérieure à celle du cristal Yb:SrF₂. Ceci confère une meilleure résistance thermique du Yb:CaF₂ comparé au Yb:SrF₂. Expérimentalement, ceci se traduit par une limitation de la puissance de pompe à 47 W à cause des risques trop importants de fracture du cristal Yb:SrF₂. Ensuite, de grandes différences entres les fractions thermiques avec et sans effet laser ont été observées pour les deux cristaux de fluorures. Par exemple, pour le cristal de Yb:CaF₂, la fraction thermique passe d'une valeur de 1,5 % sans effet laser à une valeur de 5 % avec effet laser ; et pour une même puissance incidente de pompe de 83 W la puissance absorbée passe de 32 W sans effet laser à 40 W avec effet laser ! Finalement, les rendements quantiques de fluorescence, ont été calculés : leur valeur est proche de l'unité.

Cette variation de puissance absorbée est d'autant plus dommageable pour les fluorures qu'ils sont très sensibles aux chocs thermiques (encadré 2.9). Ainsi, l'arrêt brutal de l'oscillation laser dans la cavité laser peu provoquer la fracture du cristal.

Encadré 2.9 : Les chocs thermiques et les fractures du cristal

L'élévation inhomogène de la température va créer des contraintes et des tensions au sein du cristal, qui au moindre changement de température peuvent causer la fracture du cristal. On parle alors de choc thermique. On définit alors le « paramètre de choc thermique » R_T , c'est à dire la résistance du matériau à l'amorçage d'une fissure consécutive à un choc thermique de la manière suivante [Gaumé 02]:

$$R_{T} = \frac{\kappa_{c} \cdot \sigma_{max} \cdot f(v)}{\alpha_{T} \cdot E} \quad \text{avec} \quad \sigma_{max} = \frac{\alpha_{T} \cdot E \cdot \eta_{h} \cdot P_{abs} \cdot \alpha}{4 \cdot \pi \cdot \kappa_{c}}$$
(2.37)

où κ_c est la conductivité thermique, σ_{max} la contrainte maximale à laquelle peut résister le cristal, ν le coefficient de Poisson, α_T la dilatation thermique, E le module de Young, η_h est la fraction thermique, P_{abs} la puissance absorbée et α le coefficient d'absorption du cristal.

Dans le cadre de ces expériences, 3 cristaux Yb: CaF_2 et 2 cristaux Yb: SrF_2 ont été cassés, majoritairement suite à la perte de l'oscillation laser. Seulement, un cristal Yb:CALGO fut fracturé durant ces expériences.

En conclusion, pour de fortes puissances, il est préférable d'opter pour le cristal de fluorure de calcium Yb: CaF_2 présentant une meilleure valeur de la conductivité thermique que le cristal de fluorure de strontium Yb: SrF_2 . Cependant ces deux fluorures sont extrêmement sensibles aux chocs thermiques et doivent être maniés avec précaution. Par exemple, il est déconseillé de manipuler les fluorures avec les doigts à cause de la différence entre la

température corporelle et celle du fluorure. L'augmentation de la puissance incidente doit être progressive et non brutale pour éviter une trop grande différence de température au sein du cristal.

2.5.5.2- Comparaison entre le CaF₂ et le CALGO

Au final, il nous reste à comparer les cristaux de Yb:CaF₂ et Yb:CALGO. L'étude thermique nous confirme l'excellente valeur de la conductivité thermique pour le cristal Yb:CALGO, de faibles gradients thermiques inférieurs à 22 °C ont été observés, sans effet laser..De plus, la différence entre les valeurs des gradients de température avec et sans effet laser est faible pour le cristal Yb:CALGO. En effet, seule une différence de 6 °C est mesurée (*Figure 2.39*) comparée au 21 °C pour Yb:CaF₂ (tableaux 2.3 et 2.5). Finalement, le cristal Yb:CALGO a prouvé une forte résistance aux chocs thermiques expérimentalement. Moins de précautions sont nécessaires pour pouvoir manipuler ce cristal.

En conclusion, pour éviter les fractures du cristal laser, il paraît préférable de s'orienter vers le cristal Yb:CALGO. Cependant, le cristal Yb:CaF₂ présente une large bande d'émission plus qu'intéressante pour la génération d'impulsions femtosecondes. De plus, le cristal Yb:CaF₂ a une croissance plus facile et donc il est possible de l'obtenir en plus grande quantité comparé au cristal Yb:CALGO. Il est alors intéressant d'étudier ces deux cristaux en régime femtoseconde.

Une autre remarque doit être signalée : durant ses études thermiques, nous avons constaté que le cristal Yb:CALGO a une faible absorption de seulement 50 % de la puissance de pompe.

2.6- Conclusions du chapitre 2

Le banc de caractérisation thermique complet qui mesure simultanément la lentille thermique et la carte de température par thermographie présentent de nombreux intérêts :

-- Il permet à la fois de mesurer les valeurs de la conductivité thermique et du coefficient thermo-optique. Ces deux paramètres nous permettent d'évaluer la focale de la lentille thermique quelle que soit la configuration expérimentale choisie, sans avoir à utiliser les valeurs tabulées dans la littérature, valeurs calculées principalement pour des cristaux laser non dopés.

-- La différence des résultats avec et sans effet laser à cause de la présence de la saturation d'absorption dans les cristaux laser dopés ytterbium, permettent de remonter jusqu'aux valeurs du rendement quantique de fluorescence des cristaux laser étudiés.

Les principaux résultats obtenus pour le banc de caractérisation complet sont résumés ciaprès :

-- Les valeurs de la conductivité thermique et du coefficient thermo-optiques ont été mesurées pour les cristaux de fluorures :

1) Yb:CaF₂ $\kappa_c = 5,4 \pm 1$ W.m⁻¹.K⁻¹ et $\chi = -17,8 \pm 1,5 \ 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ 2) Yb:SrF₂ $\kappa_c = 3,1 \pm 0,6$ W.m⁻¹.K⁻¹ et $\chi = -20,5 \pm 1,8 \ 10^{-6} \text{ K}^{-1}$

Ce sont les premières démonstrations, à ma connaissance, de mesures de la conductivité thermiques pour ces fluorures mais également des coefficients thermo-optiques *in situ* (c'est-

à-dire pour des cristaux laser dopés et en dehors de l'équilibre thermodynamique et en dehors de contraintes constantes). D'ailleurs, une prise en compte des données bibliographiques nous montrent des surestimations de la focale de la lentille thermique par rapport à celles mesurées expérimentalement. Des cavités laser à l'architecture tenant compte de la focale de la lentille thermique mesurée ont été réalisées. Ceci a permis d'obtenir des performances en régime monomode jamais démontrées auparavant pour ces deux cristaux, nous confortant ainsi dans l'utilité des mesures lentilles thermiques. Grâce à cette étude, une comparaison a pu être faite entre les deux cristaux de fluorures et montrent une meilleure gestion de la thermique de la part du fluorure de calcium au détriment du fluorure de strontium.

-- L'excellente valeur de la conductivité thermique et le bon comportement thermique du cristal Yb:CALGO a été mis en évidence par les faibles valeurs de gradients thermiques mesurées avec et sans effet laser. Ensuite une différence de seulement 5°C a été constatée entre les gradients thermiques en présence ou non de l'effet laser. De plus, ce cristal laser soumis à fort pompage se comporte comme une lentille convergente. Cependant, cette lentille thermique aura peu d'influence sur la stabilisation de la cavité laser puisque les puissances dioptriques mesurées sont faibles. Une puissance moyenne de 15,3 W a été obtenue pour une puissance incidente de 86W, correspondant à 30 W de puissance absorbée.

Cependant quelques améliorations sont à envisager pour le banc de caractérisation thermique :

-- L'amélioration de la cavité laser par la diminution des pertes introduites par la lame dichroique de ZnSe dans la cavité laser.

-- L'amélioration peut également se faire d'un point de vue théorique. Nous sommes capables expérimentalement de tenir compte de la biréfringence des cristaux laser étudiés. En effet, il est possible de faire des profils de température suivant les différents axes cristallographiques du cristal laser .Mais nous n'avons pas, à l'heure actuelle, le formalisme suffisant pour traiter complètement ce cas de figure par le calcul comme le montre le traitement incomplet du cristal CALGO dans ses travaux. Il serait alors possible de faire des études très détaillées des cristaux biréfringents.

En conclusion, ce banc de caractérisation présente l'avantage de permettre d'optimiser les architectures des cavités laser de forte puissance pour différents cristaux laser et de tester d'autres cristaux laser dopés ytterbium non étudiés thermiquement.

La réalisation de ce banc complet de caractérisation thermique a été possible grâce à la MRCT (Missions Ressources et Compétences Technologiques) du CNRS et à la plateforme PRISME d'Optics Valley financé par le conseil général de l'Essonne.

Bibliographie

A

[Augé 00] F. Augé, F. Druon, F. Balembois, P. Georges, A. Brun, F. Mougel, G. Aka, and D. Vivien, "Theroretical and Experimental Investigations of a Diode-Pumped Quasi-Three-Level Laser: The Yb³⁺-doped Ca₄GdO(BO₃)₃ (Yb:GdCOB) Laser", IEEE J. Quantum Electron. **36**, 598-606 (2000)

B

[Balembois 97] F. Balembois, F. Falcoz, F. Kerboull, F. Druon, P. Georges, A. Brun, "Theoretical and experimental investigations of small-signal gain for a diode-pumped QSwitched Cr:LiSAF Laser", IEEE Journal of Quantum Electronics, **33** (2), 269-278 (1997)

[Barnes 02] N. Barnes, B. Walsh, "Quantum efficiency measurements of Nd:YAG, Yb:YAG, and Tm:YAG", OSA TOPS, **68**, Advanced Solid State Lasers, 284-287 (2002)

[Bisson 00] J.F. Bisson, D. Fournier, M. Poulain, O. Lavigne and R. Mévrel, "Thermal conductivity of Yttria-Zirconia single crystals determined with spatially resolved infrared thermography", J. Am. Ceram. Soc., **83** (8), 1993-1998 (2000)

[Boudeile 08] J. Boudeile, J. Didierjean, P. Camy, J.L. Doualan, A. Benayad, V. Ménard, R. Moncorgé, F. Druon, F. Balembois and P. Georges, "Thermal behaviour of ytterbiumdoped fluorite crystals under high power pumping", Accepted in Optics Express

[Blows 98] J.L. Blows, T. Omatsu, J. Dawnes, H. Pask, M. Tateda, "Heat generation in Nd:YVO₄ with or without laser action", IEEE Photonics Technology Letters, **10** (12), 1727-1729 (1998)

[Brown 97] D.C. Brown, "Ultrahigh-average power diode-pumped Nd:YAG and Yb:YAG lasers", IEEE Journal of Quantum Electronics, **33** (5), 861-873 (1997)

[Burnham 70] D. Burnham, "Simple measurement of thermal lensing in laser rods", Applied Optics **9** (7), 1727-1728 (1970)

С

[Chanteloup 98] J. Chanteloup, F. Druon, M. Nantel, A. Maksimchuk, and G. Mourou, "Single-shot wave-front measurements of high-intensity ultrashort laser pulses with a three-wave interferometer," Opt. Lett. 23, 621-623 (1998)

[Chénais 02] Sébastien Chénais, "De l'ytterbium, de la thermique", thèse de Doctorat de l'Université de Paris-Sud (XI) (2002)

[Chénais 04] S. Chénais, S. Forget, F. Druon, F. Balembois and P. Georges, "Direct and absolute temperature mapping in diode-end pumped Yb:YAG", Applied Physics B **79** 221-224 (2004)

[Chénais 06] S. Chénais, F. Balembois, F. Druon, G. Lucas-Leclin and P. Georges, "On thermal effects in solid-state lasers: the case of ytterbium doped-materials" IEEE J. Quantum. Electron. **30** (4) 89-153 (2006)

[Clarkson 01] W. A. Clarkson, "Thermal effets and their mitigation in end-pumped solidstate lasers", J. Phys. D: Appl. Phys. **34**, 2381-2395 (2001)

[Cousins 92] A. K. Cousins, "Temperature and thermal stress scaling in finite-length endpumped laser rods", IEEE J. Quantum Electron. **28** (4), 1057-1069 (1992)

D

[Didierjean 07] J. Didierjean, E. Herault, F. Balembois, P. Georges "Thermal conductivity measurements of laser crystals by infrared thermography. Application to Nd:doped crystals" accepted for publication in Optics Express

[Didierjean 07bis] Julien Didierjean, "Etude thermique des cristaux laser, Réalisation de lasers à fibres monocristalline", thèse de Doctorat de l'Université Paris Sud XI (2006)

F

[Fan 93] T.Y. Fan, "Heat generation in Nd:YAG and Yb:YAG", IEEE J. Quantum Electron. **29** (6), 1457-1459 (1993)

[Farruck 88] U.O Farruckh, A. M. Buoncristiani, C.E. Byvik, "An analysis of the temperature distribution in finite solid-state laser rods", IEEE J. Quantum Electron. **24** (11), 2253-2257 (1988)

[Fluck 00] R. Fluck, M. Hermann, L. Hackel, "Energic and thermal performance of high-gain diode-side pumped Nd:YAG rods", Appl. Phys. B **70**, 491-498 (2000)

[Frauchiger 92] J. Frauchiger, P. Albers, H.P. Weber, "Modeling of thermal lensing and higher-order ring mode oscillation in end-pumped CW Nd:YAG lasers", IEEE J. of Quantum Electron. **28** (4), 1046-1056 (1992)

G

[Gaumé 02] Romain Gaumé, "Relations structure-propriétés dans les lasers solides de puissance à l'ytterbium. Elaboration et caractérisation de nouveaux matériaux et de cristaux composites soudés par diffusion", thèse de Doctorat de l'Université Pierre et Marie Curie Paris VI (2002)

[Guy 98] S. Guy, C.L. Bonner, D.P. Shepherd, D.C. Hanna, A.C. Tropper, B. Ferrand, "High-Inversion Densities in Nd:YAG: Upconversion and Bleaching", IEEE Journal of Quantum Electronics, **34** (5), 900-909 (1998).

H

[Hue 73] C. Hue and J. R. Whinnery, "New thermooptical measurement method ans a comparison with others methods", Applied Optics **12** (1), 72-79 (1973)

I

[Ito 02] S.Ito, H. Nagaoka, T.Miura, K. Kobayashi, A. Endo, K. Torizuka, "Measurements of thermal lensing in a power amplifier of a terawatt Ti:sapphire laser", Applied Physics B **74**, 343-347 (2002)

J

[Jeong 07] T. M. Jeong, D. -K. Ko, and J. Lee, "Method of reconstructing wavefront aberrations by use of Zernike polynomials in radial shearing interferometers", Opt. Lett. **32**, 232-234 (2007)

K

[Keyes 64] R. J. Keyes, T. M. Quist, "Injection luminescent pumping of $CaF_2:U^{3+}$ with GaAs diode laser", Applied Physics Letters, **4** (3), 51-52 (1964)

[Koechner 70] W. Koechner, "Absorbed pump power, thermal profile and stresses in a CW pumped Nd:YAG crystal", Applied Optics **9** (6), 1429-1434 (1970)

[Koechner 99] W. Koechner, "Solid State Laser Engineering, 5th version, Spinger, 1999

[Kracht 64] D. Kracht, D. freibourg, R. Wilhelm, M. Frede and C. Fallnich, "Core-doped Ceramic Nd:YAG Laser", Optics Express 14 (7), 2690-264 (1964)

L

[Le Boiteux 60] Henri Le Boiteux, Mécanique Physique Volume 1: la mécaniques des solides reels, Béranger, 1960

Μ

[Mangin 93] J. Mangin, P. Strimer, L. Lahlou-Kassi, "An interferometric dilatometer for the determination of thermo-optic coefficients", Measurement Science Technology, **4**, 826-834 (1993)

Ν

[Neuenschwander 95] B. Neuenschwander, R. Weber, H. Weber, "Determination of the thermal lens in solid-state lasers with stable cavities", IEEE J. Quantum Electron. **31** (6), 1082-1087 (1995)

Р

[Pavel 06] N. Pavel, V. Lupei, J. Saikawa, T. Taira, H. Kan, "Neodymium concentration dependence of 0.94-,1.06- and 1.64 μ m laser emission and heating effects under 809- and 885- nm diode laser pumping of Nd:YAG", Applied Physics B **82**, 599-605 (2006)

[Parker 61] W.J. Parker, R.J. Jenkins, C.P. Butler, G.L. Abbot, "Flash Method of Determining Thermal Diffusivity, Heat Capacity, and Thermal Conductivity", Journal of Applied Physics, **32** (9), 1679-1684 (1961)

[Primot 93] J. Primot, "three-wave shearing interferometer", Appl. Opt., **32** (31), 6242-6249 (1993)

[Petit 05] J. Petit, P. Goldner, and B. Viana, "Laser emission with low quantum defect in Yb:CaGdAlO₄," Opt. Lett. 30, 1345-1347 (2005)

[Petit 06] Vincent Petit, "Etude des matériaux dopés Yb^{3+} pour une émission laser large bande autour de 1 µm", thèse de Doctorat de l'Université de Caen/Basse-Normandie (2006)

[Pfitsner 94] C. Pfitsner, R. Weber, H. Weber, S. Merazzi, R. Grube, "Thermal beam distortion in end-pumped Nd:YAG, Nd:GSGG, and Nd:YLF rods", IEEE J. Quantum Electron. **30** (7), 1605-1615 (1994)

[Pittman 02] M. Pittman, S. Ferré, J.P. Rousseau, L. Notebaert, J.P Chambaret, G. Chériaux, "Design and characterization of a near-diffraction-limited femtosecond 100-TW 10Hz highintensity laser system", Applied Physics B 74, 529-535 (2002)

[Pottier 94] L. Pottier, "Micrometer scale visualization of thermal waves by photoreflectance Microscopy", Applied Physics Letters, **64** (13), 1618-1619 (1994)

S

[Salazar 91] A. Salazar, A. Stinchez-Lavega, and J. Fern&tndez, "Thermal diffusivity measurements in solids by the "mirage" technique : Experimental results", Journal of Applied Physics, **69** (3), 1216-1223 (1991)

[Site Flir System inc.] http://www.flir.com/

[Site LASCAD] http://www.las-cad.com/

[Site Phasics] http://www.phasics.fr/fr/index.php

[Svelto 89] O. Svelto, Principi dei laser, traducteur David C. Hanna, 3rd edition, Plenum Press, 1989

W

[Weber 03], Marvin J. Weber, "Handbook of Optical Materials", CRC Press, Edition 2003

Y

[Yang 02] P. Yang, P. Deng, Z. Yin, "Concentration quenching in Yb:YAG", Journal of Luminescence, 97, 51-54 (2002)

[Yin 98] H. B. Yin, P. Z. Deng, F. X. Gan, "Defects in YAG:Yb crystals", Journal of Applied Physics, **83** (7), 3825-3828 (1998)
CHAPITRE 3 :

Cavités laser femtosecondes de puissance à base de Yb:CALGO et Yb:CaF₂

3.1- Introduction

L'évaluation thermique des fluorures et du CALGO a confirmé leurs bonnes conductivités thermiques, mais elle a mis aussi en avant la sensibilité des fluorures aux chocs thermiques. Ces bonnes conductivités thermiques nous ouvrent l'espoir d'obtenir de plus fortes puissances moyennes pour les cristaux de CALGO et de CaF₂. Maintenant, l'objectif de ces travaux de thèse est la réalisation de cavités laser femtosecondes de puissance. Nous avons précédemment remarqué que puissance et impulsions ultra-brèves sont deux notions difficiles à associer. D'ailleurs, aucune démonstration de puissances supérieures à 400 mW pour des impulsions laser sub-100fs n'a été reportée au début de ces travaux. Notre objectif sera donc de développer ces nouvelles sources laser solides femtosecondes. A présent, il faut s'intéresser non seulement au choix de l'architecture de la cavité laser et la procédure pour générer des impulsions femtosecondes mais aussi des méthodes de caractérisation de ces impulsions laser. Comment produire une impulsion femtoseconde ? Quelles sont les optiques et les éléments indispensables dans une cavité laser femtoseconde ? Quelle est l'architecture de la cavité laser ? Comment peut-on caractériser une impulsion laser femtoseconde ?

Objectif de ce chapitre :

Dans un premier temps, nous verrons pourquoi nous choisissons le principe de verrouillage de modes en phase par effet soliton parmi les méthodes existantes pour générer des impulsions laser femtosecondes. Ensuite, nous présenterons les différentes composants optiques et les différentes technologies nécessaires à la réalisation d'une cavité laser à verrouillage par effet soliton et les contraintes que ces éléments nous imposent sur l'architecture de la cavité laser femtoseconde. Puis, différentes méthodes de caractérisation seront présentées et celles utilisées durant ces travaux de thèse seront plus détaillées. Finalement, nous montrerons de manière progressive les problèmes rencontrés et les solutions apportées pour permettre la génération d'impulsions laser femtosecondes de puissance avec le cristal Yb:CALGO. Nous présenterons aussi les cavités femtosecondes et les résultats pour les fluorures.

3.2- Comment produire une impulsion laser femtoseconde ?

Dans cette partie, le verrouillage des modes en phase sera présenté afin de produire des impulsions laser femtosecondes. Ensuite, une succincte comparaison entre les différents mécanismes de verrouillage des modes en phase sera faite pour comprendre notre préférence sur le verrouillage des modes par effet soliton.

3.2.1 - Le principe du verrouillage des modes en phase

Une cavité laser est caractérisée par ses modes propres longitudinaux. Les modes propres sont séparés en fréquence par un terme $\Delta \omega_L = 2. \pi \Delta v_L$ [Dangoisse 01]. Δv_L est l'intervalle spectral libre et vaut c/(2.L) où c est la célérité et L la longueur optique de la cavité laser (*Figure 3.1*). Plusieurs modes longitudinaux peuvent osciller en même temps, le laser a alors un comportement multimode comme c'est le cas pour la *Figure 3.1*.



<u>Figure 3.1:</u> Représentation de N modes propres longitudinaux (traits pleins verts) séparés une fréquence $\Delta \omega_L$ et du gain de la cavité laser (traits en pointillé bleus) et les pertes (traits alternés de points rouges)

Supposons que N modes non-couplés satisfassent la condition d'oscillation et qui ont une même intensité I_0 , l'intensité en sortie du laser sera donc de $N.I_0$. Le champ total E(t) de l'oscillation simultanée de N modes est :

$$E(t) = \sum_{n} E_{n} . \exp\left\{ i . \left[\left(\omega_{0} + n \Delta \omega_{L} \right) . t + \varphi_{n} \right] \right\}$$
(3.1)

où E_n est l'amplitude du champ du mode n et φ_n sa phase. ω_0 est une fréquence de l'un des modes oscillants. Cette valeur est choisie arbitrairement. Il apparaît évident que le champ E(t) est périodique de période (avec l'hypothèse des φ_n constants au cours du temps) :

$$T = \frac{2.\pi}{\Delta\omega_L} = \frac{1}{\Delta\nu_L} = \frac{2.L}{c}$$
(3.2)

Il est alors possible que tous les modes oscillent en phase, donc que φ_n sont égaux. On parle alors de verrouillage des modes en phase ou de « mode-locking ». En supposant que tous les modes ont la même amplitude $E_n = E_0$ et $\varphi_n = 0$ le champ électrique E(t) peut alors s'écrire de la manière suivante :

$$E(t) = \sum_{-(N-I)/2}^{+(N-I)/2} E_0 . exp\left\{ i.[(\omega_0 + n.\Delta\omega_L).t] \right\} = E_0 . exp\left\{i.\omega_0.t\right\} . \frac{sin(N.\pi.\Delta\omega_L.t)}{sin(\pi.\Delta\omega_L.t)}$$
(3.3)

Ceci correspond à une intensité I(t) :

$$I(t) = I_0 \cdot \frac{\sin^2(N \cdot \pi \Delta v_L \cdot t)}{\sin^2(\pi \Delta v_L \cdot t)}$$
(3.4)

La cavité laser émet alors un train d'impulsion de période T et l'intensité crête $I_{crête}$ de l'impulsion peut s'écrire sous la forme :

$$I_{crête} = I_0 \cdot \frac{(N.\pi.\Delta v_L)^2}{(\pi.\Delta v_L)^2} = N^2 \cdot I_0 = N \cdot \langle I \rangle$$
(3.5)

où $\langle I \rangle = N.I_0$. On remarque de suite que la synchronisation de N modes permet l'obtention d'une puissance crête N fois supérieure à l'intensité totale de l'ensemble des modes de la cavité. Pour confirmer cette remarque, les évolutions temporelles d'une cavité laser en verrouillage des modes en phase ont été tracées pour N = 2 et N = 10 sur la *Figure 3.2*.



<u>Figure 3.2</u>: Evolutions temporelles d'impulsions laser pour N = 2 (courbe bleu) et N = 10 (courbe rose)

A la sortie de l'oscillateur laser, on a donc un train d'impulsions de période T. Or d'après l'équation (3.2), on constate que c'est la longueur de la cavité laser L qui va alors définir la cadence ou la fréquence d'un laser femtoseconde fonctionnant sur le principe de verrouillage des modes en phase. Ceci revient à dire que plus la cavité laser est longue, plus la cadence sera faible. Ensuite, l'ordre de grandeur de N est de 1,35 10^4 pour une cavité laser délivrant des impulsions de 100 fs avec une cadence de répétition de 100 MHz.

En pratique, pour synchroniser en phase les différents modes de la cavité laser, il est possible de moduler les pertes de la cavité laser à la fréquence de l'intervalle spectral libre [Hargrove 64]. Une autre méthode consiste en l'introduction dans la cavité laser d'un élément à transmission non-linéaire comme un absorbant saturable par exemple.

3.2.2- Les mécanismes possibles

Les régimes impulsionnels femtosecondes se font principalement sur les méthodes dites de verrouillage des modes en phase actif ou passif. Le « mode-locking » actif est réalisé principalement par l'introduction d'un modulateur acousto-optique dans la cavité laser à titre

d'exemple [Kuizenga 70]. Cette méthode ne sera pas traitée dans le cadre des ces travaux car elle ne permet pas de produire des impulsions femtosecondes.

Trois types de verrouillage des modes en phase passif existent: l'absorbant saturable avec saturation dynamique du gain (*Figure 3.3 (a*)), verrouillage de modes avec un absorbant saturable rapide (*Figure 3.3 (b*)) et verrouillage de modes avec absorbant saturable lent (*Figure 3.3 (c*)). On constate qu'une fenêtre de gain net se crée dans les deux premiers cas et permet ainsi la formation et la stabilisation d'une impulsion ultra-courte.



<u>Figure 3.3:</u> principes de trois verrouillages des modes en phase actif: l'absorbant saturable avec une dynamique de gain (a), verrouillage des modes avec un absorbant saturable (b) et le verrouillage de modes avec absorbant saturable lent [Ippen 94]

Tout d'abord, le premier mécanisme de verrouillage des modes se réalise grâce à une saturation du gain et des pertes (*Figure 3.3 (a)*). Un équilibre entre le gain et les pertes ouvre une fenêtre de gain net dont les bords détermineront la durée de l'impulsion laser. Ce système complexe a fait son apparition avec les lasers impulsionnels à colorant [Valdmanis 85]. Cependant il est impossible d'appliquer ce mécanisme à des milieux amplificateurs dont le temps de vie de l'état excité est trop long. C'est le cas pour les cristaux laser dont la durée de vie de l'état excité est de l'ordre de la milliseconde [Druon 03]. Il faut donc se tourner vers les deux autres mécanismes.

Une solution pour stabiliser les impulsions laser malgré une durée de vie de l'état excité trop longue est l'utilisation d'un absorbant saturable rapide (*Figure 3.3 (b)*) puisque la saturation du gain ne permet plus la formation de l'impulsion laser. Il est possible de créer un tel absorbant saturable dans le cristal laser lui-même: on parle alors de verrouillage de modes par effet Kerr ou KLM (« Kerr Lens Mode-locking »). Ce phénomène est possible car les cristaux laser solides présentent des indices non-linéaires n_2 de l'ordre de quelques 10^{-16} cm²/W. En effet, pour de fortes intensités intracavités, ce coefficient n_2 devient non négligeable. Pour de fortes intensités crêtes, le profil gaussien du mode laser présente une intensité plus forte au centre du cristal que sur les bords et le cristal, alors dit milieu Kerr, se comporte comme une lentille convergente dite lentille de Kerr (*Figure 3.4 (a)*). En introduisant une pupille et en utilisant l'auto-focalisation du faisceau laser par la lentille Kerr, il est possible alors de

défavoriser le régime continu au profit du régime impulsionnel. En effet, si l'auto-focalisation due au milieu Kerr n'a pas lieu (*Figure 3.4 (b)*), la présence de la pupille introduit plus de pertes. C'est le cas pour des faibles intensités crêtes comme pour le régime continu. Au contraire, pour le régime impulsionnel, l'auto-focalisation est importante et les pertes de la cavité sont faibles (*Figure 3.4 (c)*). Un train d'impulsions laser est alors observé. En résumé, le verrouillage des modes en phase se produit par la présence d'un absorbant saturable, suite à la diminution des pertes provenant d'une auto-focalisation au travers d'une ouverture (« hard aperture KLM ») ou par l'augmentation du gain due à l'augmentation du recouvrement (« soft aperture KLM ») du mode laser avec le mode de pompe dans le cristal [Spence 91] [Druon 03].



<u>Figure 3.4:</u> Principe de l'effet Kerr (a), situation en l'absence d'auto-focalisation Kerr (b) et situation en présence d'auto-focalisation Kerr

Finalement, la dernière solution pour générer des impulsions femtosecondes est le verrouillage avec un absorbant saturable lent et assisté par effet soliton (*Figure 3.3 (c)*) La solution stable qui se crée alors dans la cavité laser est une impulsion dite soliton qui correspond à un équilibre entre l'automodulation de phase et la dispersion de vitesse de groupe. Elle correspond à la solution convergente de l'équation de Schrödinger non linéaire. Cette équation décrit la propagation de l'enveloppe A(T,t) lentement variable du champ électrique sur deux bases de temps, t et T défini comme le temps rapide, définie comme suit [Kärtner 95] :

$$\tau_{R} \cdot \frac{\partial A(T,t)}{\partial T} = i \cdot \delta \cdot \left| A(T,t) \right|^{2} \cdot A(T,t) - i \cdot \frac{\phi_{2}^{totale}}{2} \cdot \frac{\partial^{2} A(T,t)}{\partial t^{2}} = \Gamma_{auto \ mod \ ulation} - \Gamma_{dispersion}$$
(3.6)

où τ_R est le temps mis pour un aller-retour dans la cavité, δ le coefficient non-linéaire lié à l'automodulation de phase, ϕ_2^{totale} la dispersion totale intracavité de vitesse de groupe.

Or les cavités laser ne sont pas idéales. En effet, elles introduisent des pertes. De plus, le cristal laser a une bande spectrale finie et tous les éléments optiques introduisent de la dispersion de vitesse de groupe, qui a pour conséquence de rallonger temporellement les impulsions laser. En conséquence, il faut rajouter ces contributions à l'équation de Schrödinger non linéaire, qui s'écrit maintenant de la manière suivante :

$$\tau_{R} \cdot \frac{\partial A(T,t)}{\partial T} = \Gamma_{auto \ mod \ ulation} - \Gamma_{dispersion} + K(T,t) \cdot A(T,t)$$
(3.7)

où K(T,t) tient compte des pertes intracavitées comme les pertes non-linéaires du SESAM ou la bande spectrale finie des optiques de la cavité.

Toutes ces perturbations peuvent faire apparaître une autre solution qui est une impulsion bien plus longue et de puissance moyenne plus faible que le soliton, appelée continuum en théorie perturbative des solitons. La largeur spectrale du continuum étant plus étroite, son gain effectif est en conséquence plus important. Donc, s'il ne rencontre aucune perte, le continuum croit jusqu'à atteindre le seuil laser et élimine au final l'impulsion soliton. Un absorbant saturable lent permet d'introduire suffisamment de pertes pour empêcher le continuum de laser et un minimum de pertes pour l'impulsion soliton pour la favoriser. Ainsi le régime impulsionnel est favorisé et le soliton participera alors à la formation de l'impulsion laser finale. Pour privilégier le régime soliton, de nouvelles technologies ont faits leurs apparitions en particulier les SESAMs (« Semi-conductor Saturable Absorbant Mirror »).

3.2.3 – Discussion

Il existe donc trois mécanismes pour favoriser le régime impulsionnel. Nous avons vu précédemment qu'il est impossible d'utiliser la saturation du gain pour former des impulsions laser à cause de la durée de vie de l'état excité trop longue chez les cristaux laser dopés ytterbium, contrairement aux lasers à colorant. Nous devons alors faire un choix entre les verrouillages des modes par effet Kerr et effet soliton. Mais quelle méthode choisir ? Tout d'abord, le verrouillage des modes par effet Kerr impose une variation importante entre les tailles de faisceau en présence et absence de lentille Kerr. Pour cela, la cavité laser doit être en limite de stabilité, donc un alignement critique de la cavité laser est nécessaire. A titre d'exemple, une précision de quelques centaines de micromètres sur la position des miroirs et du milieu amplificateur est impérative. Malgré ces contraintes de stabilité, le régime impulsionnel ainsi généré est très stable. Puis, le régime KLM est plus difficile à obtenir pour des cristaux dopés ytterbium en raison de leurs temps de vie de l'état excité longs qui favorisent le régime Q-Switch. Finalement, le régime KLM demande des faisceaux de pompe de très petites tailles, impossibles à obtenir par pompage par diode laser. Au contraire, le verrouillage par effet soliton ne requiert pas d'alignement critique de la cavité et le régime impulsionnel s'auto-initialise par la formation du soliton au sein de la cavité laser. En

conclusion, le verrouillage de modes par effet soliton sera préféré car il est adapté pour des pompages par diode laser et il impose moins de contraintes d'alignement de la cavité laser.

Encadré 3.1 : Solutions de la cavité laser femtoseconde.

En résolvant l'équation de Schrödinger définie (3.6), la solution stationnaire est de forme sécante hyperbolique appelé soliton où le déphasage non-linéaire est compensé par la dispersion. Cette équation définit également nos oscillateurs et donc nos impulsions présenteront un profil temporel de type sécante hyperbolique. Nous chercherons alors à obtenir des régimes solitoniques.

3.3- Architecture de nos cavités laser femtosecondes

Pour pouvoir produire expérimentalement un train d'impulsions femtosecondes grâce au verrouillage par effet soliton, la cavité laser doit être composée de trois blocs principaux illustrés sur la *Figure 3.5*. Nous remarquons que le premier élément indispensable pour n'importe quelle cavité laser est le milieu amplificateur. Puisque nos études se tournent sur les cavités laser solides, le milieu amplificateur sera le cristal laser dopé à l'ytterbium. Les chapitres précédents ont permis de mettre en avant la manière de choisir judicieusement le cristal laser donc CALGO et les fluorures en particulier le CaF₂.



Figure 3.5: Les trois principaux blocs pour produire une impulsion femtoseconde laser

Cette partie aura pour objectif de détailler les deux autres blocs principaux d'une cavité laser femtoseconde. Tout d'abord, la technologie SESAM permettant le verrouillage des modes par effet soliton sera présentée ainsi que les contraintes qu'impose la présence d'un SESAM dans sur l'architecture d'une telle cavité laser. Ensuite, après un petit rappel de la définition des dispersions de groupe et des ordres de dispersions supérieurs, nous préciserons pourquoi nous sommes obligés de compenser la dispersion de vitesse de groupe introduite par le cristal laser et quels sont les systèmes existants et connus pour y remédier. Ensuite une rapide comparaison entre ces différents systèmes nous aidera à faire notre choix. Finalement, l'automodulation de phase tout aussi importante que la dispersion de vitesse de groupe sera introduite pour expliquer la formation du soliton dans la cavité.

3.3.1- Le verrouillage par effet soliton grâce au SESAM

3.3.1.1- Le mode de fonctionnement

Pour favoriser le verrouillage par effet soliton, nous avons noté précédemment qu'un absorbant saturable doit être impérativement introduit dans la cavité laser. Une première solution serait l'insertion d'un cristal Cr:YAG (Cr⁴⁺: Y₂Al₅O₁₂) comme absorbant saturable. Mais cet absorbant saturable est inadapté pour un régime « mode-locking ». En effet, c'est le régime « Q-Switch » qui sera observé à cause de sa durée de vie de l'état excité trop longue. Il faut se tourner vers une autre solution : les matériaux semi-conducteurs. Tout d'abord, ils présentent l'avantage d'une transmission non-linéaire suivant l'intensité incidente. Cette transmission non-linéaire leur confère les propriétés d'un absorbant saturable. En effet, en l'absence de saturation du semi-conducteur, celui-ci introduit de fortes pertes pour le régime continu. Par contre, de fortes intensités incidentes provoquent une saturation de l'absorption du matériau semi-conducteur et introduisent en conséquence moins de pertes pour le régime impulsionnel. De plus, pour s'adapter à nos configuration d'études, il est possible de jouer sur les valeurs de certaines caractéristiques des semi-conducteurs comme le « gap », la profondeur de modulation en variant l'épaisseur du matériau, et le temps de réponse en variant la température de croissance du matériau [Brovelli 95]. Il est alors possible d'obtenir des temps de réponses inférieurs à la période du train d'impulsion, et ainsi d'éviter les problèmes de «Q-Switch». Il devient maintenant concevable de favoriser le régime impulsionnel au détriment du régime continu et du « Q-Switch ». Malheureusement, les semiconducteurs ont des sections efficaces d'absorption de l'ordre de 10^{-16} cm², très supérieures aux sections efficaces du milieu amplificateur de l'ordre de 10^{-19} - 10^{-20} cm². En conséquence, le semi-conducteur massif sature déjà en régime continu et il ne peut en conséquence avoir un comportement non-linéaire. Finalement, le dernier inconvénient des semi-conducteurs est l'introduction de pertes trop importantes intracavités.

Pour passer outre ces problèmes de sections efficaces d'absorption importantes du semiconducteur et des pertes intracavitées trop fortes, Keller *et al* ont développé des miroirs absorbants saturables à semi-conducteur ou couramment appelés SESAM [Keller 92]. Il s'agit d'un absorbant saturant placé entre deux miroirs. Le miroir de fond du cristal est un miroir de Bragg hautement réfléchissant. Ce miroir de Bragg est la succession d'une vingtaine de paires de couches GaAs/AlAs d'épaisseur optique²⁷ $\lambda/4$, présentant une réflectivité maximale, de plus de 99 %. En comparaison, la réflectivité du second miroir du résonateur Pérot-Fabry peut être variable. La réflectivité du second miroir définit la finesse de Fabry Perrot du SESAM. Une haute réflectivité signifiera une structure de haute finesse et une faible réflectivité une structure de basse finesse.

Pour que la condition antirésonance soit vérifiée, il faut que le FP soit d'épaisseur optique de $\lambda/2$. Ceci nous permet de nous assurer que l'absorbant soit large bande et qu'il n'introduise aucune dispersion de vitesse de groupe.

Pour un SESAM basse finesse, la réflectivité du miroir d'entrée est due à la réflexion de Fresnel sur l'interface air/semi-conducteur (*Figure 3.6 (a*)). Etant donné que l'indice de réfraction du GaAs est de 3,5 dans la plage de longueurs d'onde proches infrarouges, la réflexion de Fresnel est proche de 30 %. Cette première couche de GaAs permet également au

 $^{^{27}}$ Epaisseur optique est définie comme le produit de l'indice de réfraction *n* du milieu par la longueur physique du milieu traversé.

champ électrique d'être sur un ventre (ou anti-nœud) au niveau de la très fine épaisseur (un ou plusieurs puits quantiques) d'absorbant saturable (*Figure 3.6 (b)*). Cette configuration permet de réduire l'intensité de saturation du SESAM. La fluence de saturation peut varier suivant les configurations de quelques dizaines à la centaine de μ J.cm⁻².



<u>Figure 3.6:</u> Schéma représentatif d'une structure SESAM classique basse finesse (a) et zoom sur l'entrée du SESAM (b)

Dans de telles conditions, le SESAM est cavité Pérot-Fabry à la condition d'antirésonance [Fabry 1923]. Une telle cavité introduit à l'antirésonance peu de dispersion de vitesse de groupe (*Figure 3.7*) : la dispersion de vitesse de groupe étire temporellement l'impulsion laser. De plus, la cavité Pérot-Fabry est hautement réfléchissante à l'antirésonance (*Figure 3.7*). L'intensité lumineuse sur la couche AS peut donc être contrôlée par la géométrie du FP. Cette cavité permet ainsi de réduire les pertes et d'accroître l'énergie de saturation à volonté.



<u>Figure 3.7:</u> Caractéristiques d'un Pérot-Fabry à la condition d'antirésonance. La dispersion de vitesse de groupe (bas) et la réflectivité (haut) en fonction de la longueur d'onde.

Mais que se passe-t-il dynamiquement au sein de ces SESAMs? La fonction AS est réalisé dans le ou les puits quantique en InGaAs du SESAM. La lumière incidente sur l'AS excite les porteurs de charges vers les niveaux d'énergie supérieurs. Si tous les niveaux d'énergie supérieurs sont occupés, il y a blanchissement de l'absorbant saturable : il n'absorbe plus. On peut aussi définir le temps de réponse de l'absorbant saturable comme étant le temps de retour à l'équilibre. Ce temps est déterminé par la dynamique des porteurs de charge. La réponse temporelle est en fait une réponse bi-exponentielle (*Figure 3.8*) avec un temps de retour à l'équilibre des porteurs.



<u>Figure 3.8:</u> Mode d'un absorbant saturable d'un semi-conducteur. La réponse bi-temporelle usuelle de ce dispositif à une excitation E_{ex} énergie d'excitation, $D(E_{ex})$ densité d'état est également représentée [Aus der Au, 2001]

Elle est la succession dans un premier temps d'une thermalisation intra-bande et ensuite d'une recombinaison interbande. Tout d'abord, la thermalisation des porteurs est liée à la désexcitation des électrons Cette diffusion correspond à une rapide réponse temporelle rapide de l'ordre de la centaine de femtosecondes (*Figure 3.8*). Ensuite, la recombinaison interbande participe à une contribution beaucoup plus longue variant de la picoseconde à la nanoseconde dans la réponse temporelle (*Figure 3.8*). Elle peut être accélérée par l'introduction d'impuretés dans la structure (par une croissance à basse température) afin de créer des pièges entre les bandes de conduction et de valence.

3.3.1.2- Propriétés macroscopiques du SESAM

Les caractéristiques macroscopique principales d'un SESAM sont la fluence de saturation F_{sat} (en J.m⁻²), la profondeur de modulation ΔR et les pertes non-saturable ΔR_{ns} , (ou de manière équivalente les réflectivités minimale et maximale du dispositif R_{lin} et R_{ns}), et enfin le temps de recouvrement τ . A l'exception du temps de recouvrement, toutes les autres caractéristiques

peuvent être aisément déterminées par la mesure de la réflectivité non-linéaire statique du SESAM (*Figure 3.9*).



<u>Figure 3.9:</u> Représentation de la réflectivité non-linéaire en fonction de la fluence incidente sur le SESAM et définition des principales caractéristiques du SESAM

La profondeur de modulation ΔR représente le maximum de changement de la réflectivité du SESAM. La fluence de saturation F_{sat} représente la fluence incidente nécessaire pour blanchir le dispositif à 1/e de la profondeur de modulation. R_{ns} et R_{lin} définissent les réflectivités maximale et minimale du SESAM. Les pertes non-saturables ΔR_{ns} incluent les pertes par diffusion à la surface de l'échantillon, les phénomènes d'absorptions résiduelles dans le semiconducteur, les pertes par absorption à deux photons et la réflectivité du miroir de Bragg

3.3.1.4- Le choix du SESAM

Pour saturer le SESAM, il faut s'assurer que la fluence incidente soit supérieure à la fluence de saturation. Pour cela, la fluence incidente sur le SESAM est reliée avec le rayon du faisceau laser par la formule suivante :

$$F = \frac{P_{sortie} t_{sortie}^{-1}}{f_{res} \cdot \pi \cdot w^2}$$
(3.8)

où F est la fluence incidente, P_{sortie} la puissance moyenne en sortie de l'oscillateur, t_{sortie} la transmission du miroir ou coupleur de sortie, f_{res} la fréquence du résonateur et w le rayon du faisceau laser. Pour rappel, la fréquence du résonateur laser correspond à la cadence de répétition des impulsions pour un laser femtoseconde à verrouillage des modes en phase, définie équation (3.2)

Pour obtenir une fluence sur le SESAM de 600 μ J.cm² pour une puissance moyenne souhaitée de 500 mW après un coupleur de sortie de 5 % et une fréquence de répétition de 100 MHz, la taille du faisceau laser doit être égale à 73 μ m. Il faut choisir au préalable le miroir de focalisation sur le SESAM.

Cette partie s'est principalement axée sur la description et le principe de fonctionnement d'un SESAM et également le choix du SESAM dans une cavité laser femtoseconde. Ceci nous montrera l'importance de simuler au préalable les rayons du faisceau laser grâce à des logiciels comme LASCAD [LASCAD] ou Paraxia [Paraxia] basés sur le principe de l'optique matricielle adaptée aux faisceaux gaussiens [Caperson 81].

3.3.2- Compensation de la dispersion de vitesse de groupe

3.3.2.1- La notion de dispersion

1) Introduction de la notion de dispersion

Lorsqu'une impulsion traverse un milieu dit dispersif, c'est-à-dire que l'indice de réfraction du milieu varie avec la longueur d'onde $n(\lambda)$, sa durée temporelle se trouve alors modifiée (sans changement de sa largeur spectrale). Cette effet sera d'autant plus important que son spectre sera large.

Pour comprendre au mieux le principe physique et pour définir la notion de dispersion, prenons les hypothèses suivantes: soit une onde électromagnétique de pulsation ω traverse un milieu dispersif $n(\omega)$ d'épaisseur *e*, il est connu que l'onde électromagnétique connaîtra un déphasage $\phi(\omega)$ qui s'exprimera de la manière suivante :

$$\phi(\omega) = k(\omega).e = \frac{\omega}{c}.n(\omega).e$$
(3.9)

où $k(\omega)$ est le vecteur d'onde et *c* la célérité. On remarque de suite que si l'indice de réfraction est différent pour chaque composante spectrale, un déphasage entre les différentes composantes spectrales sera observé.

Le vecteur d'onde $k(\omega)$ peut alors s'écrire autour d'une pulsation centrale notée ω_0 grâce à un développement de Taylor :

$$k(\omega) = k(\omega_0) + k'(\omega).(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2!}.k''(\omega).(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{3!}.k'''(\omega).(\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (3.10)$$

où $k'(\omega)$, $k''(\omega)$ et $k'''(\omega)$ représentent les dérivés successives du vecteur d'onde $k(\omega)$ par rapport à la pulsion ω définies par les relations (3.11):

$$k'(\omega) = \left(\frac{dk(\omega)}{d\omega}\Big|_{\omega = \omega_0}\right), \ k''(\omega) = \left(\frac{d^2k(\omega)}{d\omega^2}\Big|_{\omega = \omega_0}\right), \ k'''(\omega) = \left(\frac{d^3k(\omega)}{d\omega^3}\Big|_{\omega = \omega_0}\right) \ \text{et} \ \dots \ (3.11)$$

On remarque que les deux premiers termes de l'équation (3.8) n'ont aucune influence sur la largeur temporelle d'une impulsion laser. En effet, ils vont déterminer le décalage temporel instauré par la traversée du matériau dispersif.

A partir de l'équation (3.8), on peut alors définir la dispersion de vitesse de groupe, nommé ϕ_2 (GDD pour « group delay dispersion » ou GVD pour « group velocity dispersion ») et la dispersion cubique, nommé ϕ_3 (TOD pour « third order of dispersion ») par les expressions suivantes :

$$\phi_2 = k''(\omega).e$$

$$\phi_3 = k'''(\omega).e$$
(3.12)

Lorsque les impulsions deviennent de plus en plus courtes et donc de plus en plus larges spectralement, les dispersions d'ordres élevés sont de plus en plus importantes. De plus, par définition, on parle de milieu dispersif normal lorsque le signe de ϕ_2 est positif. Dans le cas contraire, on parle de milieu dispersif anormal.

La dispersion de vitesse de groupe ϕ_2 introduite par le matériau dispersif d'une épaisseur *e* peut être écrite en fonction de l'indice de réfraction $n(\lambda)$ et de λ_0 la longueur d'onde centrale de l'impulsion laser :

$$\phi_2 = \frac{\lambda_0^3 . e}{2.\pi . c^2} \left(\frac{d^2 n(\lambda)}{d\lambda^2} \Big|_{\lambda = \lambda_0} \right)$$
(3.13)

Pour pouvoir calculer les dérivées de l'indice de réfraction par rapport à la longueur d'onde, Sellmeier a montré que l'indice de réfraction dépendante de la longueur d'onde peut s'exprimer par la relation suivante [Sellmeier 1872]:

$$n^{2}(\lambda) = I + \sum_{i} \frac{A_{i} \cdot \lambda^{2}}{\lambda^{2} - B_{i}}$$
(3.14)

où A_i/B_i sont les coefficients de Sellmeier, déterminés expérimentalement et tabulés pour les principaux matériaux utilisés dans l'ajout de dispersion de vitesse de groupe.

Il est possible d'exprimer la dispersion cubique en fonction de l'indice de réfraction $n(\lambda)$:

$$\phi_{3} = -\frac{\lambda_{0}^{4}.e}{4.\pi^{2}.c^{3}} \left[3 \left(\frac{d^{2}n(\lambda)}{d\lambda^{2}} \Big|_{\lambda=\lambda_{0}} \right) + \lambda_{0} \frac{d^{3}n(\lambda)}{d\lambda^{3}} \Big|_{\lambda=\lambda_{0}} \right]$$
(3.15)

Le tableau 3.1 réunit les différentes valeurs de la dispersion de vitesse de groupe ϕ_2 (vers 1 μ m) pour la traversée d'une épaisseur de 10 cm pour les cristaux CaF₂, SrF₂ et CALGO

| | Indice de réfraction <i>n</i> | | dispersion de vitesse de groupe $\phi_2(fs^2)$ | |
|------------------|-------------------------------|-------|--|-------|
| CaF ₂ | 1, | 43 | 19 | 956 |
| CALGO | 1,893 | 1,892 | 4969 | 4721 |
| | axe a | axe c | axe a | axe c |

tableau 3.1: Exemples de dispersion d'ordre 2 vers 1µm introduite par la traversée de fluorures et le CALGO sur une longueur de 10 cm

Ce tableau montre les différences de dispersion d'ordre 2 introduites par les deux cristaux choisis pour les cavités laser femtosecondes.

Il est possible d'exprimer la dispersion cubique en fonction de l'indice de réfraction $n(\lambda)$:

$$\phi_{3} = -\frac{\lambda_{0}^{4} \cdot e}{4 \cdot \pi^{2} \cdot c^{3}} \left[\left. 3 \cdot \left(\frac{d^{2} n(\lambda)}{d\lambda^{2}} \right|_{\lambda = \lambda_{0}} \right) + \lambda_{0} \frac{d^{3} n(\lambda)}{d\lambda^{3}} \right|_{\lambda = \lambda_{0}} \right]$$
(3.16)

2) Que se passe-t-il si une impulsion large spectre rencontre un milieu dispersif?

Supposons maintenant qu'une impulsion femtoseconde gaussienne limitée par la transformée de Fourier rencontre un milieu dispersif. Il est possible de relier la largeur temporelle de l'impulsion laser en entrée du milieu dispersif $\Delta t_{entrée}$ et la durée en sortie du milieu dispersif Δt_{sortie} [Reid 00]:

$$\frac{\Delta t_{sortie}}{\Delta t_{entrée}} = \sqrt{I + \left(4.\ln(2) \cdot \frac{\phi_2}{\left(\Delta t_{entrée}\right)^2}\right)^2}$$
(3.17)

où ϕ_2 est la dispersion de vitesse de groupe introduite par le milieu dispersif.

Si le milieu est un milieu dispersif normal donc un terme $\phi_2 > 0$, ceci revient à dire que les composantes spectrales rouges auront une vitesse de propagation supérieure aux composantes bleues. L'impulsion est alors étirée temporellement (*Figure 3.10*).



Figure 3.10: Passage d'une impulsion laser dans un milieu dispersif normal

Ce phénomène est très présent dans les cavités laser femtosecondes puisque l'impulsion laser devra impérativement traverser le cristal laser. La majorité des cristaux laser étant des milieux

dispersifs normaux pour des longueurs d'onde autour de 1 μ m, l'impulsion laser femtoseconde sera étirée temporellement avec un front-avant rouge. En régime soliton où le ϕ_2 global de la cavité doit être négatif, il faudra donc compenser la dispersion introduite par le cristal laser.

3.3.2.2- Les méthodes de compensation de la dispersion de vitesse de

groupe

Pour compenser la dispersion positive introduite par le cristal laser, plusieurs solutions pour introduire une dispersion négative ont été étudiées et sont décrites ci-après :

1) Les primes

La méthode la plus répandue et la plus connue est l'utilisation de quatre prismes identiques, placés au minimum de déviation et à angle de Brewster pour introduire le minimum de pertes. L'arrangement des quatre prismes le plus judicieux est représenté sur la *Figure 3.11*. On remarque que la face de sortie du prisme 1 est parallèle à la face d'entrée du prisme 2 et il en est de même pour les prismes 3 et 4 [Fork 84].



Figure 3.11: Arrangement des 4 prismes pour ajouter de la dispersion négative

Cependant, ce système est relativement encombrant. Il existe en conséquence un système équivalent replié à l'arrangement des 4 primes mais en n'utilisant que 2 prismes. Il suffit simplement de mettre un dièdre droit ou un simple miroir hautement réfléchissant entre les prismes 2 et 3 comme le montre la *Figure 3.12*²⁸. Les prismes 1/2 et 3/4 sont séparés par une distance d, distance entres les arrêtes de la paire de prismes.

²⁸ Le miroir droit peut être remplacé par de deux miroirs réfléchissants à 45° placés tous les deux avec un angle droit et permet donc de séparer spatialement les faisceaux incident et réfléchi pour éviter toute superposition et pour caractériser le faisceau réfléchi plus facilement. Cette méthode est opté pour une compression extra-cavité.



Figure 3.12: Schéma équivalent en ne prenant en compte que 2 prismes

Il est démontré qu'il est alors possible d'exprimer la dispersion ϕ_2^{totale} ajoutée par la relation suivante [Fork 84] aussi bien pour la configuration '4 prismes' que sa configuration équivalente:

$$\phi_2^{totale} = 2.\phi_2^{prismes} + \sum_i \phi_{2_i}^{materiau}$$
 (3.18)

Le terme de ϕ_{2i} ^{matériau} a la même expression que (3.12). En effet, ce terme tient compte de la dispersion introduite par la traversée de chaque prisme sur une épaisseur e_i de l'impulsion laser. Comme les matériaux utilisés couramment pour les prismes sont des milieux dispersifs normaux. Le terme ϕ_{2i} ^{matériau} introduit forcément de la dispersion positive. On peut ajuster la valeur de ϕ_{2i} ^{matériau} en translatant un des prismes pour jouer ainsi sur la valeur de l'épaisseur traversée e_i .

Le tableau 3.2 présente quelques exemples de valeur dispersions $\phi_2^{matériau}$ pour différents matériaux couramment utilisées pour les compresseurs à prismes après traversée d'une épaisseur de 10 cm et pour une longueur d'onde de 1050 nm.

| | Indice de réfraction <i>n</i> | dispersion de vitesse de groupe ϕ_2 (fs ²) |
|--------|-------------------------------|---|
| Silice | 1,45 | 1721 |
| BK7 | 1,51 | 2341 |
| LAK21 | 1,63 | 3482 |
| SF 10 | 1,70 | 10402 |

tableau 3.2 : Exemples de valeurs de dispersion (à 1050 nm) pour quelques matériaux d'épaisseur 10 cm.

Le terme $\phi_2^{prismes}$ est la dispersion introduite par la différence des chemins optiques entre les différentes composantes spectrales sur la distance *d*. On parle alors de dispersion angulaire. Il est possible d'exprimer $\phi_2^{prismes}$ en fonction de la distance séparant les deux prismes *d* de la manière suivante, pour un compresseur à double paires de prismes :

$$\phi_2^{\text{prismes}} = \frac{2.\lambda_0^3}{\pi.c^2} \left[\left(\frac{d^2n}{d\lambda^2} \Big|_{\lambda=\lambda_0} + \left(2.n - \frac{1}{n^3} \right) \left(\frac{dn}{d\lambda} \Big|_{\lambda=\lambda_0} \right)^2 \right] d.\sin\theta - 2 \left(\frac{dn}{d\lambda} \Big|_{\lambda=\lambda_0} \right)^2 d.\cos\theta \right] \quad (3.19)$$

où λ_0 est le longueur centrale de l'impulsion laser, *n* l'indice de réfraction dépendant de la longueur d'onde, θ l'angle entre les deux longueurs d'onde la moins et la plus réfractée. Dans la configuration choisie, les prismes sont taillés à l'angle de Brewster et au minimum de déviation, l'expression (3.19) peut être approximée l'expression suivante :

$$\phi_2^{\text{prismes}} = -\frac{4.\lambda_0^3.d}{\pi.c^2} \left(\frac{dn}{d\lambda}\Big|_{\lambda=\lambda_0}\right)^2$$
(3.20)

Le terme $\phi_2^{prismes}$ permet d'apporter une valeur négative de la dispersion, ajustable en faisant simplement varier la distance *d* entre les deux prismes.

La dispersion totale ϕ_2^{totale} dans une configuration '4 prismes' à angle de Brewster et au minimum de déviation a pour expression :

$$\phi_2^{totale} = -\frac{4.\lambda_0^3}{\pi.c^2} \left(\frac{dn}{d\lambda} \Big|_{\lambda=\lambda_0} \right)^2 .d + \frac{\lambda_0^3}{2.\pi.c^2} .\left(\frac{d^2n}{d\lambda^2} \Big|_{\lambda=\lambda_0} \right) .e$$
(3.21)

Où *e* est l'épaisseur total de matière traversée, à savoir $e = \sum_{i} e_{i}$.

Il est également possible de calculer la dispersion cubique totale ϕ_3 dans cette même configuration. Il a été démontré que la dispersion cubique a pour expression (3.22) :

$$\phi_{3}^{totale} = \frac{6.\lambda_{0}^{4}}{\pi^{2}.c^{3}} \cdot \left(\frac{dn}{d\lambda}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) \cdot \left[\left(\frac{dn}{d\lambda}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) + \lambda_{0} \cdot \left(\frac{d^{2}n}{d\lambda^{2}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right)\right] \cdot d - \frac{\lambda_{0}^{4}}{4.\pi^{2}.c^{3}} \cdot \left[3 \cdot \left(\frac{d^{2}n}{d\lambda^{2}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) + \lambda_{0} \cdot \left(\frac{d^{3}n}{d\lambda^{3}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right)\right] \cdot d - \frac{\lambda_{0}^{4}}{4.\pi^{2}.c^{3}} \cdot \left[3 \cdot \left(\frac{d^{2}n}{d\lambda^{2}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) + \lambda_{0} \cdot \left(\frac{d^{3}n}{d\lambda^{3}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right)\right] \cdot d - \frac{\lambda_{0}^{4}}{4.\pi^{2}.c^{3}} \cdot \left[3 \cdot \left(\frac{d^{2}n}{d\lambda^{2}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) + \lambda_{0} \cdot \left(\frac{d^{3}n}{d\lambda^{3}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right)\right] \cdot d - \frac{\lambda_{0}^{4}}{4.\pi^{2}.c^{3}} \cdot \left[3 \cdot \left(\frac{d^{2}n}{d\lambda^{2}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) + \lambda_{0} \cdot \left(\frac{d^{3}n}{d\lambda^{3}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right)\right] \cdot d - \frac{\lambda_{0}^{4}}{4.\pi^{2}.c^{3}} \cdot \left[3 \cdot \left(\frac{d^{2}n}{d\lambda^{2}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) + \lambda_{0} \cdot \left(\frac{d^{3}n}{d\lambda^{3}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right)\right] \cdot d - \frac{\lambda_{0}^{4}}{4.\pi^{2}.c^{3}} \cdot \left[3 \cdot \left(\frac{d^{2}n}{d\lambda^{2}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) + \lambda_{0} \cdot \left(\frac{d^{3}n}{d\lambda^{3}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right)\right] \cdot d - \frac{\lambda_{0}^{4}}{4.\pi^{2}.c^{3}} \cdot \left[3 \cdot \left(\frac{d^{2}n}{d\lambda^{2}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) + \lambda_{0} \cdot \left(\frac{d^{3}n}{d\lambda^{3}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right)\right] \cdot d - \frac{\lambda_{0}^{4}}{4.\pi^{2}.c^{3}} \cdot \left[3 \cdot \left(\frac{d^{2}n}{d\lambda^{2}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) + \lambda_{0} \cdot \left(\frac{d^{3}n}{d\lambda^{3}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right)\right] \cdot d - \frac{\lambda_{0}^{4}}{4.\pi^{2}.c^{3}} \cdot \left[3 \cdot \left(\frac{d^{2}n}{d\lambda^{2}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) + \lambda_{0} \cdot \left(\frac{d^{3}n}{d\lambda^{3}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right)\right] \cdot d - \frac{\lambda_{0}^{4}}{4.\pi^{2}.c^{3}} \cdot \left(\frac{d^{2}n}{d\lambda^{2}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) + \lambda_{0} \cdot \left(\frac{d^{3}n}{d\lambda^{3}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) \cdot \left(\frac{d^{3}n}{d\lambda^{3}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) + \lambda_{0} \cdot \left(\frac{d^{3}n}{d\lambda^{3}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) \cdot \left(\frac{d^{3}n}{d\lambda^{3}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0}}\right) + \lambda_{0} \cdot \left(\frac{d^{3}n}{d\lambda^{3}}\Big|_{\lambda=\lambda_{0$$

La contribution de la dispersion angulaire dans un compresseur '4 prismes' est plus importante que celle apportée par la traversée du matériau. Après traversée des prismes, il est donc naturel de trouver un terme $\phi_2 < 0$ et un terme $\phi_3 > 0$.

Cependant, l'insertion des prismes pour compenser la dispersion positive du cristal laser doit impérativement se faire dans un bras collimaté de la cavité laser. De plus, l'insertion des prismes introduit des pertes intracavitées relativement élevées (en partie liées probablement à des problèmes de dépolarisation thermique).

2) Le GTI (« Gires-Tournois Interferometer »)

Les interféromètres de Gires-Tournois (GTI pour *Gires-Tournois Interferometer*) sont l'un des premiers dispositifs optiques trouvés pour comprimer une impulsion lumineuse modulée en fréquence en 1964 par Gires et Tournois [Gires 64]. Un GTI est une cavité Pérot-Fabry dont l'un des miroirs présente une réflectivité idéale de 100 % et l'autre miroir une

réflectivité comprise entre 20 et 90 %. Un matériau d'indice de réfraction n et de longueur d est placé entre ces deux miroirs. Un GTI est schématisé *Fgure 3.13*.



Figure 3.13 : Schéma représentatif d'un GTI

Si aucune perte ne se produit dans le résonateur, la réflectivité est maximale à toutes les longueurs d'onde. Cependant, la phase du faisceau réfléchi est devenue dépendante de la fréquence due à l'effet de résonance de la cavité Pérot-Fabry ce qui permet d'introduire de la dispersion de vitesse de groupe. La phase du faisceau réfléchi et les dispersions de groupe mais également d'ordre supérieur, varie périodiquement avec la pulsation, si la dispersion du matériau est négligeable. Il n'y a donc pas de dispersion aux conditions de résonance et d'antirésonances, mais introduction de la dispersion positive ou négative entre ces résonances.

L'expression de la dispersion de vitesse de groupe rajoutée dans cette configuration a pour expression [Gagnon 96] :

$$\phi_{2} = -\left\{\frac{\sqrt{R}.\tau_{0}^{2}.sin(\omega.\tau_{0}).(r_{2}^{2}-r_{1}^{2})}{(r_{1}^{2}+r_{2}^{2}+2.\sqrt{R}.cos(\omega.\tau_{0}))^{2}} + \frac{\sqrt{R}.\tau_{0}^{2}.sin(\omega.\tau_{0}).(1-R)}{(1+R-2.\sqrt{R}.cos(\omega.\tau_{0}))^{2}}\right\}$$
(3.23)

où r_1 représente le coefficient de réflexion du miroir semi-transparent et r_2 celui du miroir hautement réfléchissant, $R = (r_1.r_2)^2$ le coefficient de réflexion total en intensité, ω la pulsation de l'onde incidente, $\tau_0 = (2.n.\cos\theta.d)/c$ qui définit le temps d'aller-retour du faisceau laser sur une distance $\cos\theta.d$ dans le GTI et où θ désigne l'angle du faisceau incident sur le miroir GTI [Cotel 07].

Si $r_2 = 1$, dans le cas idéal, alors on peut écrire l'équation (3.23) de manière plus simplifiée :

$$\phi_2 = -\frac{2.\sqrt{R}.\tau_0^2.\sin(\omega.\tau_0).(1-R)}{((1+R)^2 - (2.\sqrt{R}.\cos(\omega.\tau_0))^2)}$$
(3.24)

La *Figure 3.14* montre la valeur de la dispersion de vitesse de groupe ajoutée à chaque rebond suivant la longueur d'onde *(a)* et la réflectivité du miroir suivant la longueur d'onde *(b)* pour un miroir GTI commercial [Layertec]. Ce miroir plan est réfléchissant à hauteur de 99,85 % pour des longueurs d'onde comprises entre 950 nm et 1170 nm et introduit une valeur de dispersion de vitesse de groupe de -250 fs² ± 50 fs² pour une longueur d'onde de 1020 nm.



<u>Figure 3.14:</u> Dispersion de vitesse de groupe en fonction de la longueur d'onde (a) et la réflectivité en fonction de la longueur d'onde (b) pour un miroir GTI introduisant une dispersion de vitesse de groupe de -250 fs² pour une longueur d'onde de 1020 nm [Layertec]

En résumé, les miroirs GTIs présentent de fortes réflectivités et peuvent être insérées comme de « simples » miroirs dans la cavité laser. Ces miroirs ne demandent donc pas autant de contraintes comme un bras collimaté pour les prismes. Puis les GTIs introduisent peu de pertes intracavités contrairement aux prismes. En revanche, chaque rebond sur le miroir GTI introduit une valeur fixe de dispersion négative, non ajustable contrairement au système à base de prismes. De plus, les deux autres inconvénients sont dus à la bande spectrale relativement étroite et à la difficulté de contrôler les dispersions d'ordre supérieur comme la dispersion cubique.

3) Le miroir « chirpés »

Des traitements diélectriques sur les miroirs ont permis de développer des optiques compensant non seulement la dispersion de vitesse de groupe mais également la dispersion cubique. On parle alors de miroirs dits «chirpés». Le miroir «chirpés», représenté *Figure 3.15*, est composé d'une succession périodique des couches diélectriques de haut (n_1) et bas (n_2) indices pour obtenir une épaisseur optique de $\lambda/4$. La réflectivité du miroir «chirpés» est définie par la réflexion de Fresnel à l'interface matériau/air.



Figure 3.15: Schéma représentatif d'un miroir «chirpés»

La période des couches diélectriques s'accroît progressivement avec la profondeur. De cette manière, les longueurs d'onde rouges vont rentrer plus profondément dans le miroir chirpé que les longueurs d'onde bleues. En conséquence, le miroir chirpé va introduire une dispersion de vitesse de groupe négative et l'impulsion laser sera alors « recomprimée ». La valeur maximale d'ajout de la dispersion de vitesse de groupe dans cette méthode est limitée

par le maximum de différence de vitesse de groupe $\Delta \tau_{max}$ que l'on puisse obtenir entre les deux extrémités de la bande de réflectivité. Szipöcs *et al* ont démontré qu'il est possible de relier $\Delta \tau_{max}$ à l'épaisseur optique du traitement multicouche diélectrique $t_{chirpé}$ par la formule suivante[Szipöcs 94] :

$$\Delta \tau_{\max} = \frac{2.(t_{chirpé} - t_{\lambda/4})}{c}$$
(3.25)

où $t_{\lambda/4}$ est l'épaisseur standard d'un haut réflecteur d'épaisseur optique $\lambda/4$ et *c* la célérité de la lumière.

Le premier miroir chirpé réalisé possédait une succession de 42 couches diélectriques périodiques de TiO₂ avec un indice de réfraction de $n_1 = 2,3$ et de SiO₂ avec un indice de réfraction de $n_2 = 1,45$. Une dispersion de vitesse de groupe de - 45 fs² à la longueur d'onde de 800 nm a été introduite dans la cavité laser à chaque rebond sur une fréquence de 80 THz et une dispersion cubique de -33 fs³ [Szipöcs 94].

Cependant, ce genre de miroirs chirpés présente de fortes oscillations de la dispersion de vitesse de groupe. Pour pallier à ce problème, les « double-chirped » miroirs ont alors fait leurs apparitions [Kärtner 97]. La réflexion de Fresnel est remplacée par une structure antiréflexion à la surface du « double-chirped » miroirs et une optimisation est faite entre l'épaisseur optique et le nombre de couches haut et bas indices. Il est possible d'optimiser numériquement la structure multicouche. Ces miroirs permettent d'introduire des dispersions contrôlées de différents ordres [Paschotta 99] [Matuschek 99]. La seule contrainte actuellement est la technologique de fabrication car certains miroirs chirpés demandent des couches diélectriques dont l'épaisseur est maîtrisé avec une précision de l'ordre de quelques nanomètres.

3.3.2.3- Comparaison entre les méthodes de compensation

Après avoir présenté les méthodes d'ajout de dispersion négative, une rapide comparaison nous permettra de choisir parmi l'une des méthodes. Le tableau 3.2 résume les avantages et les inconvénients de ces trois techniques.

| | Prismes | GTIs | miroirs « chirpés » | |
|-----------------|-----------------------|----------------------------|-----------------------|--|
| avantage(s) | dispersion variable | peu de pertes | large bande spectrale | |
| | large bande spectrale | haute réflectivité | haute réflectivité | |
| | | Dispersion discrète | contrôle de β_3 | |
| inconvénient(s) | | étroite bande spectrale | non-commercialisé | |
| | fortes pertes | pas de contrôle de eta_3 | vers 1 µm | |

tableau 3.2: tableau récapitulatif des avantages et inconvénients des prismes, des GTIs et des miroirs chirpés.

En comparant ce tableau, les miroirs chirpés, faute de pouvoir en disposer commercialement pour des longueurs d'onde autour de 1050 nm, ne seront pas choisis. Il ne reste en compétition que plus que deux méthodes. Les prismes présentent l'avantage de l'ajout d'une dispersion négative continument variable et donc ajustable, contrairement aux miroirs GTIs. Mais les prismes introduisent beaucoup de pertes intracavitées, contrairement aux miroirs GTIs. Or dans le premier chapitre, nous avons précisé que les sections efficaces de gain sont relativement faibles dans l'ion ytterbium et donc les pertes seraient un enjeu majeur pour une bonne efficacité laser. Il faut impérativement minimiser les pertes intracavités, les miroirs GTIs seront donc, pour certaines applications, préférés aux prismes, malgré une valeur fixe d'ajout de dispersion négative.

3.3.3- Un autre phénomène à prendre en compte

On parle d'effet Kerr lorsque l'indice de réfraction d'un matériau varie lorsque ce dernier est soumis à un faisceau laser intense (voir partie 3.2.2). L'indice de réfraction s'écrit alors de la manière suivante :

$$n(t) = n_0 + n_2 I(t)$$
(3.26)

où n_0 est l'indice de réfraction, n_2 l'indice de réfraction non-linéaire et I(t) l'intensité du faisceau laser intense. $I(t)=P_i(t)/S_{cristal}$ est le rapport entre la puissance laser intracavité $P_i(t)$ sur la surface du faisceau laser sur le cristal $S_{cristal}$. Cette variation de l'indice de réfraction est observable quand une impulsion laser intense va traverser le cristal laser. A cause de cet effet Kerr, le phénomène d'automodulation de la phase (ou « SPM » pour Self Phase Modulation) est un autre phénomène déterminant dans la formation de l'impulsion femtoseconde. Cette variation de l'indice de réfraction induit un décalage de phase dans l'impulsion temporelle et en conséquence entraine une modification du spectre de l'impulsion laser.

Pour pouvoir quantifier cette modification de la largeur spectrale, écrivons la fréquence de l'impulsion f(t) ainsi temporellement modulée par l'impulsion elle-même :

$$f(t) = \frac{d\phi(t)}{dt} = \frac{d(k_0.n(t).e)}{dt} = \frac{2.\pi.e.n_2}{\lambda_0} \cdot \frac{dI(t)}{dt} = \frac{2.\pi.e.n_2}{\lambda_0.S_c} \cdot \frac{dP_i(t)}{dt} = \gamma \cdot \frac{dP_i(t)}{dt}$$
(3.27)

où $\phi(t)$ est la phase instantanée, k_0 le vecteur d'onde, λ_0 la longueur d'onde centrale de l'impulsion laser, *e* l'épaisseur du cristal laser et γ le coefficient de non-linéarité Kerr. La modulation de la phase temporelle ne modifie en rien la durée temporelle de l'impulsion mais change la largeur spectrale de l'impulsion en générant de nouvelles composantes spectrales.

L'élargissement spectral est alors donné par la formule ci-jointe :

$$\frac{\Delta v_{sortie}}{\Delta v_{entrée}} = \sqrt{1 + \frac{4}{3.\sqrt{3}} \cdot (\gamma \cdot P_{crête} \cdot e)^2}$$
(3.28)

où $\Delta v_{entrée}$ et Δv_{sortie} sont les largeurs spectrales de l'impulsion laser à l'entrée et à la sortie du cristal laser, $P_{crête}$ la puissance crête de l'impulsion laser.

La compensation entre la dispersion de vitesse de groupe et l'automodulation de phase crée un soliton temporel. Dans un verrouillage des modes par effet soliton, cette compensation est un point clé pour la génération d'impulsions laser femtosecondes. Il a été prouvé que le soliton temporel va définir la forme temporelle de l'impulsion laser qui s'écrit en sech² (où sech est une sécante hyperbolique), comme le montre l'équation (3.25) :

$$P_{i}(t) = \frac{P_{cr\hat{e}te}}{\cosh^{2}\left(\frac{t}{1,76.\Delta t}\right)}$$
(3.29)

où Δt est la durée temporelle de l'impulsion laser à mi-hauteur. De plus, la compensation entre la dispersion de vitesse de groupe et l'automodulation de phase nous permet de donner une relation intéressante entre la dispersion totale de la cavité laser ϕ_{total} , la puissance crête de l'impulsion et la durée de l'impulsion laser :

$$\Delta t = \sqrt{\frac{-\phi_{total}}{\gamma . P_{crête}}}$$
(3.30)

Bien que ce modèle prenne en compte la dispersion de vitesse de groupe et l'automodulation de phase et nous permet de comprendre au mieux la formation du soliton, elle ne tient pas en considération les limitations spectrales dues au SESAM et au milieu amplificateur mais également les dispersions d'ordre supérieur.

3.3.4- Conclusions

Pour l'architecture de nos cavités laser femtosecondes, deux éléments sont essentiels. En premier, un SESAM est inséré pour générer l'impulsion femtoseconde. Ensuite, il faut un système de compensation de dispersion du cristal. Deux solutions s'offrent à nous : les miroirs GTIs et les prismes.

3.4- Comment caractériser un train d'impulsions femtosecondes ?

Les premiers lasers crées étaient des lasers impulsionnels dont les durées temporelles des impulsions variaient entre la milliseconde et la nanoseconde. Pour caractériser ces impulsions, la photodiode permettait de mesurer la durée temporelle des impulsions et le spectromètre leur largeur spectrale. Cependant, pour la mesure des durées de l'ordre de la centaine de femtosecondes, les instruments électroniques sont inadaptés. En effet, les temps de réponse des composants électroniques sont trop longs devant la durée temporelle à mesurer. A titre d'exemple, l'InGaAs (Indium-Gallium-Arsenic), matériau semi-conducteur couramment utilisé dans les photodiodes, permet de mesurer des impulsions avec une durée temporelle de l'ordre de 10 ps. C'est la raison pour laquelle la caractérisation d'impulsion femtoseconde a nécessité des systèmes optiques plus complexes. Une des premières caractérisations optiques utilisées est l'autocorrélation grâce à un interféromètre de Michelson.

3.4.1- L'autocorrélation

Il existe deux types d'autocorrélation : les autocorrélations « intensimétrique » et interférométrique. Nous ne développerons dans la suite que l'autocorrélation intensimétrique, car cette méthode est celle que nous avons utilisée.

1) Principe de l'autocorrélation du second ordre

Le principe consiste à faire interférer un signal avec une réplique de lui-même décalée dans le temps par un retard τ et de mesurer le recouvrement temporel entre l'impulsion et sa réplique grâce à un effet non-linéaire. Cet effet non-linéaire peut être le doublage de fréquence ou de l'absorption à deux photons par exemple. Le principe de l'autocorrélation intensimétrique est alors représenté sur la Figure 3.16.



Figure 3.16: Principe de fonctionnement d'une autocorrélation

Le signal alors mesuré $C(\tau)$ est le produit de convolution entre le champ du signal E(t) et celui de sa réplique décalée temporellement $E(t-\tau)$ et s'écrit de la manière suivante :

$$C(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} |E(t)|^2 |E(t-\tau)|^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t) J(t-\tau) d\tau$$
(3.31)

où I(t) et $I(t-\tau)$ représentent les intensités de l'impulsion non-retardée et de celle retardée d'un temps τ . En regardant la formule (3.31), nous remarquons de suite que le signal mesuré est le produit des modules des champs E(t) et $E(t-\tau)$. Le terme en exponentiel imaginaire contenant la phase de l'impulsion disparaît, il est en conséquence impossible de mesurer dans ces conditions la phase de l'impulsion laser et ne donne aucune information au sujet d'un potentiel chirp (ou dérive de fréquence) de l'impulsion. Il n'y a pas unicité de la solution. Pourtant l'information sur la phase permet de connaître des caractéristiques déterminantes de l'impulsion. En effet, si la phase spectrale n'est pas constante, les différents composantes arrivent à des instants différents et donc tient compte de la dispersion. La mesure de la phase de l'impulsion se rélève être riche en information mais impossible à mesurer par une autocorrélation.

Ensuite, suivant la forme temporelle de l'impulsion caractérisée, on doit tenir compte d'un facteur de déconvolution, noté D, lors de la mesure de la durée temporelle. En effet, nous devons noter que $\Delta t_{mesurée} = D.\Delta t_{temporelle}$. Le facteur D vaut 1,41 dans le cas d'une impulsion gaussienne et 1,54 dans le cas d'une impulsion sécante hyperbolique. Ceci pose un second inconvénient de l'autocorrélation. En effet, pour mesurer la durée temporelle, il faut alors faire une hypothèse sur la forme de l'impulsion. Aucune mesure directe de la forme de l'impulsion ne peut être réalisée via cette méthode de caractérisation. De plus, l'autocorrelation est une fonction symétrique qui ne permet pas de mesurer les éventuelles dissymétries temporelles.

2) Montage expérimental

Le montage expérimental, basé sur un interféromètre de Michelson, est représenté *Figure 3.17*. Un train d'impulsions femtosecondes à caractériser est envoyé sur une lame séparatrice placée à 45 °.



Figure 3.17: Montage expérimental d'un autocorrélateur

Une partie de l'impulsion est réfléchie sur un coin cube fixe, mais qui peut être cependant déplacé pour calibrer le montage grâce à une vis micrométrique. Par contre, l'autre partie de l'impulsion est transmise sur un coin cube monté sur un pot vibrant qui permet d'introduire un retard $\tau(t)$ (lentement variable) par rapport à l'impulsion de l'autre bras. Le choix de coin cube nous permet de séparer spatialement l'impulsion non-retardée et celle retardée d'un temps τ . Les deux impulsions sont ensuite focalisées sur un cristal doubleur non linéaire grâce à une lentille et le photodétecteur mesure alors la puissance de l'onde doublée en fréquence.

En résumé, cette méthode de caractérisation ne permet donc pas de faire une mesure complète de l'impulsion laser. En effet, aucune mesure de la phase de l'impulsion ne peut être réalisée. Ensuite, aucune information sur la forme de l'impulsion laser à caractériser ne peut être mesurée car l'autocorrélation est symétrique. Il faut donc émettre une hypothèse sur la forme de l'impulsion pour mesurer la durée temporelle de l'impulsion. En conclusion, il faut impérativement trouver une autre méthode capable de caractériser entièrement l'impulsion, durée temporelle, spectre et phase contrairement à l'autocorrélation. C'est la raison pour laquelle une mesure de type FROG a été construite durant ces travaux de thèse.

3.4.2- Le FROG

La technique FROG pour « Frequency Resolved Optical Gating » a été inventée par Trebino dans les années 90 [Trebino 02]. Cette méthode de caractérisation indirecte permet non seulement de mesurer la durée temporelle de l'impulsion laser mais également sa phase. On en déduit donc le profil temporel réel de l'impulsion laser. En conclusion, elle permet une caractérisation complète de l'impulsion.

1) Principe du FROG

Le principe expérimental de la méthode consiste à filtrer le champ E(t) inconnu de l'impulsion à caractériser par une porte $g(t, \tau)$. Ensuite, il suffit de mesurer le champ ainsi filtré $E'(t, \tau)$. Le signal mesuré d'intensité $S(\omega, \tau)$, appelé trace FROG (*Figure 3.18*), s'exprime de la manière suivante :

$$S(\omega,\tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} E'(t,\tau) dt \right|^2 = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} g(t,\tau) E(t,\tau) dt \right|^2$$
(3.32)

Nous remarquons que contrairement à l'expression (3.31), nous ne perdons pas l'information sur la phase de l'impulsion puisqu'il s'agit du module au carré de l'intégrale du champ et non l'intégrale du module au carré du champ.

Pour trouver alors le champ E(t), il convient de trouver le champ satisfaisant pour $E'(t, \tau)$. On part de la mesure de la trace FROG $S(\omega, \tau)$ pour reconstruire une trace FROG dite reconstruite $S'(\omega, \tau)$ similaire à la mesure $S(\omega, \tau)$ par une méthode itérative sur E(t) et ainsi mesurer la phase initialement inconnue (*Figure 3.18*) (voir encadré 3.1). On alors deux contraintes pour résoudre le problème, il y a la contrainte de la forme de l'impulsion signal mais il y a aussi la contrainte des données apportées par $S(\omega, \tau)$, puisque la trace FROG retrouvée doit être proche de celle mesurée.



<u>Figure 3.18</u>: *Exemple de trace FROG reconstruite par méthode itérative sur E(t) à partir d'une trace mesurée*

Encadré 3.2: La méthode itérative sur E(t), algorithme

L'algorithme mathématique utilisé pour retrouver les informations sur la phase inconnue est schématisé *Figure 3.19* et expliqué rapidement ci-après :

1) Débuter avec une valeur initiale de E(t)

2) Création de $E_{sig}(t, \tau) = E(t).g(t, \tau)$ à partir de E(t)

3) Passage de $E_{sig}(t, \tau)$ dans l'espace de fréquence par transformée de Fourier $E'_{sig}(\omega, \tau)$

4) Remplacement de l'amplitude mais en conservant la phase de $E'_{sig}(\omega, \tau)$ avec l'amplitude mesure $I_{sig}(\omega, \tau)$. Le signal ainsi crée est $E''_{sig}(\omega, \tau)$.

5) Faire la transformé de Fourier inverse de $E''_{sig}(\omega, \tau)$ pour obtenir $E''_{sig}(t, \tau)$

- 6) Extraire de $E''_{sig}(\tau, t)$ la meilleure valeur de E(t)
- 7) Créer synthétiquement $E_{sig}(t, \tau)$ à partir de E(t)

8) Passage de $E_{sig}(t, \tau)$ dans l'espace de fréquence par transformée de Fourier $E'_{sig}(\omega, \tau)$

9) Comparer $|E'_{sig}(\omega, \tau)|^2$ à $I_{sig}(\omega, \tau)$ (généralement la différence RMS). Si l'erreur est petite alors la boucle peut être arrêtée.



2) Montage expérimental du SHG-FROG

La mesure expérimentale peut être aisément construite puisqu'il s'agit de remplacer le photodétecteur de l'autocorrélateur par un spectromètre (*Figure 3.20*). Il s'agit donc d'un autocorrélateur avec un spectromètre comme détecteur. On parle alors de méthode FROG par génération de seconde harmonique²⁹.

²⁹ Il existe aussi d'autres méthodes FROG comme la méthode FROG par porte en polarisation, (cristal présentant une non-linéarité d'ordre 3), où dans cette configuration, le champ filtré $E(t, \tau)$ vaut $|E(t-\tau)|^2 \cdot E(t)$



Figure 3.20: Montage expérimental de la mesure SHG-FROG

Dans cette configuration de montage, la porte $g(t, \tau)$ est alors une réplique de l'impulsion à caractériser retardée d'un temps τ , à savoir $E(t-\tau)$. Le champ ainsi filtré $E'(t, \tau)$ a pour expression :

$$E'(t,\tau) = E(t).E(t-\tau) \tag{3.33}$$

Les données expérimentales obtenues par le spectromètre $S(\omega, \tau)$ sont représentées sous forme de trace FROG. Une projection verticale de la trace FROG reconstruite $S'(\omega, \tau)$ nous permet de remonter à la mesure du spectre à la fréquence 2. ω , alors qu'une projection horizontale de cette même trace permet d'obtenir l'autocorrélation de l'impulsion à caractériser

D'autres techniques ont été développées pour mesurer la phase d'une impulsion femtoseconde. Tout d'abord, il existe des méthodes utilisant une impulsion de référence comme la spectrométrie par transformée de Fourier ou l'interférométrie spectrale. Ensuite, les technique comme le SPIDER (« Spectral Phase Interferometry for Direct Electric Field Reconstruction ») [Iaconis 99] ou le SPIRIT (« SPectral Interferometry Resolved In Time ») [Lelek 07] sont deux méthodes ne demandant pas d'impulsion de référence pour mesure la phase tout comme la méthode FROG. Ces autres méthodes ne sont pas détaillées car elles ne serviront pas à caractériser les impulsions laser des oscillateurs réalisées durant mes travaux de thèse.

3.5- Vers la puissance avec le cristal de CALGO

Maintenant, focalisons-nous sur les résultats expérimentaux obtenus pour des cavités laser femtosecondes à base d'un cristal Yb:CALGO pour produire de fortes puissances moyennes et des impulsions dont la durée temporelle est inférieure à 100 fs. Cette partie aura pour but

de montrer chronologiquement les démarches progressives et technologiques apportées sur l'amélioration de l'architecture de la cavité laser femtoseconde. Les différents problèmes rencontrés expérimentaux seront évoqués et on présentera les solutions apportées pour chacun d'entre eux.

3.5.1- Oscillateur de génération 1

3.5.1.1- La cavité laser

L'architecture de la cavité laser est représentée *Figure 3.21*. Nous avons précisé précédemment que la cavité laser doit comporter trois blocs. Intéressons-nous bloc par bloc.



Figure 3.21: Cavité femtoseconde laser pour la génération 1

1) Le milieu amplificateur

Le milieu amplificateur est un cristal laser Yb(2%):CALGO d'une épaisseur de 2,5 mm. Le cristal laser possède un traitement antireflet sur ses faces pour un minimum de pertes. Le cristal laser est monté sur un bloc de refroidissement à eau et entouré d'une fine feuille d'indium. Le cristal laser est directement pompé par une diode laser fibrée LIMO [LIMO] dont le diamètre de cœur vaut 200 μ m avec une ouverture numérique de 0,22. La diode laser fibrée délivre sur une puissance maximale de 15 W à la longueur d'onde de 980 nm. Le faisceau de pompe est collimaté puis focalisé sur le milieu amplificateur grâce à deux doublets de 60 mm de focale. La présence du miroir dichroïque, le miroir M₃, permet de pomper longitudinalement le cristal laser. En effet, le miroir dichroïque est hautement réfléchissant à la longueur d'onde de 1050 nm mais hautement transparent à la longueur d'onde de miroirs

concaves, les miroirs M_2 et M_4 , avec un rayon de courbure de 300 mm. La taille du faisceau est ainsi de 200 μ m sur le cristal laser, calcul effectué grâce au logiciel LASCAD.

2) Le SESAM

Le temps de vie de l'état excité pour les cristaux dopés ytterbium est supérieur à la centaine de µs, le SESAM doit être choisi avec précaution [Hönninger 99] pour éviter tout phénomène de O-Switch qui risquerait de brûler le SESAM en générant des impulsions très énergétiques. Pour l'optimisation, plusieurs SESAMs ont été testés, surtout des SESAMs provenant d'Amplitude Systèmes [Amplitude Systèmes] et de Batop [Batop]. Différentes focalisations ont également été testées en variant le rayon du faisceau laser entre typiquement 50 et 250 µm afin d'ajuster la fluence incidente sur le SESAM. Les profondeurs de modulation varient entre 0,5 et 2 %. Les fluences de saturation sont supérieures à 120 µJ.cm⁻² pour les SESAMs d'Amplitude Systèmes et à 70 µJ.cm⁻² pour les SESAMs Batop. Aucune impulsion laser ne fut produite par un SESAM dont la profondeur de modulation ΔR vallait 0,5%. Ensuite, en optant pour un ΔR de 1 % pour les SESAMs Batop, les régimes impulsionnels étaient instables, alors que un ΔR de 2 %, pour les SESAMs Batop et Amplitudes Systèmes les régimes étaient multi-impulsionnels. En conclusion, le SESAM choisi est un SESAM d'amplitude Systèmes fonctionnant à 1040 nm avec une profondeur de modulation de 1 % et une fluence de saturation supérieure à 120 μ J.cm⁻². Un miroir de focalisation, miroir M₁, de rayon de courbure de 300 mm permet de focaliser le faisceau laser sur le SESAM avec une taille de 82 µm.

3) La compensation de la dispersion du cristal laser.

Les miroirs GTIs, à savoir les miroirs M_5 et M_6 , ont donc été insérés comme deux miroirs dans la cavité laser. Les GTIs introduisent chacun à chaque rebond du faisceau laser une dispersion négative de -550 fs² [Layertec]. Les deux miroirs GTIs doivent être associés par paire car ils ont des phases non plates qui se compensent mutuellement. Ne connaissant pas parfaitement la dispersion introduite par le cristal laser, différentes combinaisons de GTIs ont été testées pour mener à la décision finale de cette combinaison.

La plus haute puissance moyenne, correspondant à la meilleure efficacité laser, est associée au coupleur de sortie (M7) avec une transmission de 5%.

3.5.1.2 – Résultats

Les impulsions femtosecondes ainsi générées sont centrées à 1049 nm avec une largeur spectrale de 18,8 nm. Le spectre est représenté *Figure 3.22 (a)*. On remarque un pic secondaire dans le spectre dans les basses longueurs d'onde, à 1007 nm. Cette présence correspond à la longueur d'onde de coupure du miroir dichroïque. Dans cette région de longueurs d'onde, l'absorption et les dispersions d'ordre supérieures peuvent être responsables d'un début de continuum, expliqué partie 3.2.2 dans le spectre. Des impulsions de 97 fs ont été mesurées grâce à l'autocorrélateur (en supposant une forme en sech²) (*Figure 3.22 (b)*). La puissance moyenne mesurée est de 530 mW pour une cadence de 68 MHz. Ceci correspond à une énergie par impulsion de 7,8 nJ et une puissance crête de 71 kW.



Figure 3.22: Spectre de l'impulsion laser femtoseconde (a) et son autocorrélation (b)

Le produit $\Delta v.\Delta t$ vaut respectivement 0,50 valeur bien supérieure comparée à la valeur de 0,315 en limite de Fourier. Les impulsions laser ne sont pas en limite de Fourier. Ceci signifie qu'il est encore possible de comprimer les impulsions laser en sortie de l'oscillateur. Peut-on alors introduire un système de post-compression en sortie de l'oscillateur ?

Pour pouvoir comprimer l'impulsion en sortie de l'oscillateur, une des solutions possibles est d'utiliser un système à prismes comme système de post-compression. Les prismes présentent l'avantage d'un ajustement continu de la dispersion pour compenser au mieux la dispersion résiduelle.

3.5.1.3- Evaluation de la dispersion à introduire

Avant de s'intéresser à la construction du système de post-compression, il est nécessaire d'évaluer la valeur de la dispersion négative à rajouter pour obtenir des impulsions en limite de Fourier. Pour cela, il suffit de reprendre l'équation (3.11) en écrivant la dispersion de vitesse de groupe en fonction de la durée temporelle obtenue de l'impulsion de Fourier en sortie de l'oscillateur Δt_0 et la durée temporelle de la même impulsion en limite de Fourier Δt_f . On obtient alors :

$$\phi_2 = \frac{\Delta t_f \cdot \sqrt{\Delta t_{i0} - \Delta t_f}}{4.\ln(2)} \tag{3.35}$$

Pour une impulsion centrée à 1049 nm avec une largeur spectrale de 18,8 nm, la durée temporelle minimale que l'on puisse atteindre est 62 fs. La dispersion de vitesse de groupe de l'impulsion en sortie de l'oscillateur est de 132 fs². Il faut introduire donc - 132 fs² pour recomprimer les impulsions en limite de Fourier.

3.5.1.4- Le système de post-compression

La cavité laser femtoseconde, inchangée, et son système de post-compression extracavité sont représentés *Figure 3.23*.

La post-compression s'effectue grâce à deux prismes en SF10 et un dièdre composé de deux miroirs à 45 ° hautement réfléchissants à la longueur d'onde laser. Les deux prismes sont séparés par une distance d.



Figure 3.23: Représentation du système de post-compression à prismes

3.5.1.5- Les résultats

Les prismes n'ayant aucune influence sur le spectre de l'impulsion laser, le spectre est toujours centré à 1049 nm avec une largeur spectrale de 18,8 nm (*Figure 3.24 (a)*). Par contre, les impulsions ont été comprimées pour obtenir des impulsions laser d'une durée de 66 fs au lieu des 97 fs initiales pour une distance d de 31 cm entre les deux prismes (*Figure 3.25 (b)*). Le produit $\Delta v.\Delta t$ vaut alors 0,34 proche de la limite de Fourier. La cadence étant toujours de 68 MHz, l'énergie par impulsion est de 6,5 nJ et la puissance crête de 68 kW.



Figure 3.24: Spectre (a) et l'autocorrélation (b) des impulsions 66 fs 480 mW

Malheureusement, la puissance moyenne en sortie du système de post-compression n'est que de 440 mW. Suite à l'introduction des prismes, la puissance moyenne chute de 16 % à cause des pertes dues aux prismes, surement dues à un problème de dépolarisation thermique (à confirmer). Il va falloir alors trouver une solution pour avoir directement en sortie des impulsions quasiment en limite de Fourier à la sortie de l'oscillateur.

3.5.2- Oscillateur de génération 2

Le cristal laser n'est pas le seul composant dans la cavité laser à introduire de la dispersion positive. En effet, chaque rebond du faisceau laser sur les miroirs présents dans la cavité laser (autres que les GTI) introduit de la dispersion supplémentaire. Est-il alors possible de contrôler cette dispersion ? Existe-t-il des miroirs capables d'introduire peu de dispersion à chaque rebond du faisceau laser sur ce miroir ?

3.5.2.1- Contrôle de la dispersion des différentes optiques

La technologie actuelle, permet de produire des miroirs, plans ou concaves, introduisant une dispersion inférieure à 20 fs² dès rebond du faisceau laser sur ces miroirs.

Tous les miroirs de la cavité, excepté les miroirs GTIs et le miroir dichroïque, ont été remplacés par des miroirs avec un $\beta_2 < 20$ fs² [Layertec]. Sur la *Figure 3.25*, un exemple de miroir hautement réfléchissant entre 900 nm et 1100 nm (*a*) et introduisant une dispersion de vitesse de groupe inférieure à 20 fs² (*b*) est présenté.



<u>Figure 3.25:</u> Réflectivité (a) et dispersion de vitesse de groupe (b) d'un miroir plan ayant une réflectivité de 99,9% pour des longueurs d'onde comprises en $900 - 1100 \pm 10$ nm, $GVD < 20 fs^2$ [Layertec]

3.5.2.2- La cavité laser

La cavité laser femtoseconde est schématisée *Figure 3.26*. La cavité étant très semblable vis à vis de la cavité précédente, nous allons présenter les évolutions et les changements de cette cavité laser.



Figure 3.26: Cavité laser femtoseconde pour la génération 3

1) Le milieu amplificateur

Le milieu amplificateur reste le même cristal utilisé pour la cavité laser précédente. Cependant quelques modifications ont été faites par rapport à la première cavité laser. Tout d'abord la diode laser délivre une puissance maximale de 15 W à la longueur d'onde de 980 nm mais le diamètre de cœur de la fibre de sortie n'est plus de 200 μ m mais de 100 μ m ce qui permet d'obtenir un faisceau de pompe plus brillant. Etant donné que nous avons changé la taille de focalisation de la pompe aux alentours de 100 μ m, les miroirs de focalisation, miroir M₂-M₄, sur le cristal doivent être remplacés pour un bon recouvrement entre les faisceaux de pompe et de sonde. Des miroirs concaves avec un rayon de courbure de 200 mm ont été choisis de telle façon à avoir une taille de faisceau laser de 60 μ m au niveau du cristal. Le cristal laser absorbe environ 50 % de la puissance de pompe incidente. Ensuite, les doublets de focalisation ont été remplacés par des triplets de focalisation ayant chacun une focale de 76 mm. Les triplets introduisent moins d'aberrations sphériques que les doublets. Le choix des triplets s'est imposé car la taille du faisceau laser sur le cristal est deux plus petite que pour la cavité précédente. Finalement, le miroir dichroïque, miroir M₃, permettant de pomper longitudinalement le cristal laser a été gardé.

2) Le SESAM

Nous avons conservé le même SESAM que la cavité précédente. Les meilleurs résultats ont été obtenus pour une taille du faisceau laser de 46 μ m sur le SESAM en utilisant un miroir concave, miroir M₁, avec un rayon de courbure de 300 mm.

L'optimisation de la cavité laser porte sur un miroir de sortie, miroir M_7 , ayant une transmission de 5%. La compensation de la dispersion négative consiste en la même combinaison des deux miroirs GTIs introduisant chacun -550 fs².

3.5.3.3- Résultats

Ne pouvant avoir accès à la valeur de la phase avec simplement l'autocorrélation et le spectromètre, une mesure de type "FROG" a été mise ne place en parallèle de cette expérience. La technique FROG sera donc maintenant choisie systématiquement pour caractériser plus précisément les impulsions laser femtosecondes.

Pour obtenir un régime impulsionnel stable, la puissance de sortie doit être supérieure à 140 mW, correspondant à une puissance intracavité de 7 W. Le spectre mesuré indépendamment de la mesure FROG ainsi que le spectre et la phase spectrale issus de la trace FROG sont représenté *Figure 3.27* Un bon accord est observé entre le spectre FROG et le spectre mesuré indépendamment. Le spectre est centré à la longueur d'onde de 1050 nm avec une largeur spectrale de 18,5 nm. Pour les mêmes raisons que précédemment, nous retrouvons le pic secondaire à 1007 nm [Boudeile 07].



Figure 3.27: Spectre de l'impulsion de 68 fs 520 mW

La trace FROG est représentée *Figure 3.28 (a)* ainsi que le profil temporel de l'impulsion. Le profil temporel (*Figure 3.28 (b)*) montre une impulsion avec une durée temporelle de 68 fs. Le produit $\Delta v.\Delta t$ vaut 0,34 proche de la limite de Fourier. Finalement, une puissance moyenne de 520 mW a été mesurée pour une cadence de 105 MHz, soit une énergie par impulsion de 5 nJ et une puissance crête de 64 kW.



Figure 3.28: Trace FROG (a), profil temporel et la phase (b) de l'impulsion laser de 68 fs

Les valeurs des dérivées seconde, tierce et quatrième de la phase ont été mesurées à -33 fs², -3,05 10^{-41} s³ and 5,3 10^{-55} s⁴ respectivement. Ces valeurs sont dérivées d'un développement en série de Taylor autour de la longueur d'onde centrale de 1050 nm. La seconde dérivée de la phase correspondant naturellement à la dispersion de vitesse de groupe est faible et donc le régime impulsionnel s'effectue proche du régime solitonique. L'insertion des miroirs à faible dispersion de vitesse de groupe nous a permis de supprimer efficacement la dispersion résiduelle intracavité. Maintenant, le terme cubique est prédominant dans les aberrations spectrales, mais il est très faible. Pour compenser cette dispersion d'ordre 3, l'utilisation de miroirs chirpés permettrait de compenser cette valeur.
3.5.3- Oscillateur de génération 3

Pour encore augmenter la puissance crête des impulsions femtosecondes tout en sachant qu'il est difficile de réduire la durée des impulsions laser, nous avons exploré la solution qui consiste à baisser la cadence f_{rep} du laser donc augmenté la longueur L de la cavité.

3.5.3.1- La cavité laser

Le montage expérimental de la cavité laser est représenté Figure 3.29. Le banc de pompe, le SESAM, le cristal, les miroirs de focalisation (M_2 et M_4) du faisceau laser sur le cristal et le miroir dichroïque (M_3) sont inchangés par rapport à la cavité précédente. Le premier changement s'opère par le remplacement du miroir de focalisation du SESAM de R = 300 mm par un miroir de R = 800 mm (M_1). Ensuite, la compensation de dispersion est la combinaison de 3 miroirs GTI introduisant chacun une dispersion négative de -550 fs². La longueur de la cavité laser est maintenant de 5,55 m permettant une cadence de 27 MHz. Le coupleur de sortie (M_8) a une transmission de 5 %. Le régime impulsionnel est observé pour des énergies intracavité par impulsion comprises entre 0,3 et 0,5 µJ



Figure 3.29 : Cavité laser femtoseconde d'une longueur de 5 m.

3.5.4.2- Les résultats

La trace FROG de l'impulsion est représentée *Figure 3.30 (a)*. Le profil temporel, *Figure 3.30 (b)*, montre une impulsion avec une durée temporelle de 145 fs. La plus forte puissance obtenue est de 650 mW pour une cadence de 27 MHz, correspondant à une énergie par impulsion de 24 nJ. Le spectre, mesuré via la trace FROG, est montré *Figure 3.30 (c)*. Le spectre de l'impulsion est centré à 1043 nm avec une largeur spectrale de 15 nm. Le produit $\Delta v.\Delta t$ vaut alors 0,6 et la trace FROG nous indique clairement une phase parabolique. Les impulsions ne sont pas en limite de Fourier, un étage de post-compression extracavité à prismes a permis de réduire les impulsions laser à une durée temporelle de 93 fs pour une puissance de 460 mW, correspondant à une énergie par impulsion de 17 nJ et une puissance crête de 161 kW.



<u>Figure 3.30 :</u> Trace FROG (a), profil temporel et la phase de l'impulsion (b) et le spectre et la phase de l'impulsion (c)

3.5.4.3- Un laser bi-couleur

En modifiant légèrement le montage expérimental précédent, il est possible de générer un train de doubles impulsions. En effet, en augmentant la puissance intracavité (remplacement du coupleur de sortir M_8 de 5 % par un 2 %, *Figure 3.31*) et en modifiant la dispersion (remplacement d'un GTI -500 fs² par un GTI -250 fs² et remplacement du miroir plan M_6 par un GTI - 250 fs², *Figure 3.31*), le soliton se sépare naturellement en de multiples impulsions.



Figure 3.31 : Cavité laser femtoseconde bi-couleur

Ceci est potentiellement dû au spectre d'émission très atypique du cristal Yb:CALGO. Il est possible de générer alors des doubles impulsions avec des longueurs d'onde différentes. Il

s'agit à notre connaissance de la première démonstration d'un laser femtoseconde bi-couleur à base d'un cristal dopé ytterbium. La trace FROG est représentée *Figure 3.32 (a)* où on observe bien 4 pics. Le spectre présente une large bande spectrale de 30 nm (*Figure 3.3 (b*) et *Figure 3.3 (d*)). Le spectre peut être approximé grâce à deux Gaussiennes (*Figure 3.32 (b*)) : l'une centrée à 1040 nm avec une largeur spectrale de 21 nm et une autre centrée à 1057 nm avec une largeur spectrale de 10 nm et une amplitude plus faible (60 %). Même si la convergence de l'algorithme du logiciel FROG est faible, les durées temporelles ont été évaluées à 80 fs et 130 fs (*Figure 3.32 (c*)) respectivement avec une séparation entre impulsions de 200 fs. Les produits $\Delta v.\Delta t$ correspondant valent 0,45 et 0,35. Le régime bicouleur peut être expliqué par le gain constant et plat qui est inhomogène due à la contribution de deux sites cristallographiques différents Gd^{III} et Al^{III} du Yb:CALGO.



Figure 3.32 : Trace FROG (a), Spectre expérimental (courbe bleue) fitté (courbe rose) de la double impulsion (b), profil temporel et phase de la double impulsion (c) et Spectre FROG et phase de la double impulsion (c) et spectre FROG et phase de la double impulsion (c) et spectre FROG et phase de la double impulsion (c) et spectre FROG et phase de la double impulsion (c) et spectre FROG et phase de la double impulsion (c) et spectre FROG et phase de la double impulsion (c) et spectre FROG et phase de la double impulsion (c) et spectre FROG et phase de la double impulsion (c) et spectre FROG et phase de la double impulsion (c) et spectre FROG et phase de la double impulsion (c) et spectre FROG et phase de la double impulsion (c) et spectre FROG et phase de la double impulsion (c) et spectre FROG et phase de la double impulsion (c) et spectre FROG et phase de la double impulsion (c) et spec

3.6- Vers la puissance avec le cristal CaF₂

D'après l'évaluation thermique du chapitre précédent, la fluorine dopée ytterbium apparaissait également comme un bon candidat pour le développement de nouvelles sources femtosecondes de puissance, en raison de sa large bande d'émission, malgré une plus faible résistance aux chocs thermiques.

3.6.1- La cavité laser

Le schéma de la cavité laser à base du cristal Yb: CaF_2 est représenté *Figure 3.33*. Les différentes composantes de la cavité sont détaillées ci-après :

1) Le milieu amplificateur :

Le milieu amplificateur est un cristal Yb(2,8%):CaF₂. Le cristal laser ne possède pas de traitement antireflet sur ses faces, on choisit en conséquence de le placer à angle de Brewster. Le cristal est monté sur un bloc de refroidissement à eau et entouré de graisse thermique. Le cristal laser est directement pompé par une diode laser fibrée Unique mode [JENOPTIK Laserdiode] dont le diamètre de cœur vaut 50 μ m avec une ouverture numérique de 0,22. La diode laser émet une puissance maximale de 7 W à la longueur d'onde de 980 nm. Le faisceau de pompe est collimaté puis focalisé sur le milieu amplificateur grâce à deux triplets de focale de 72 mm. Le waist du mode laser sur le cristal est ajusté à une taille de 40 x 30 μ m [calculé à l'aide du logiciel Paraxia] avec deux miroirs (M₂-M₃) de rayons de courbure de 100 mm, dont l'un est dichroïque (M₃) permettant ainsi de pomper longitudinalement le cristal.



Figure 3.33 : Cavité laser femtoseconde pour le cristal Yb:CaF₂

2) Le SESAM :

Les meilleures performances ont été obtenues pour un SESAM Batop [Batop] avec une profondeur de modulation de 0,5 % pour une longueur d'onde de 1045 nm. La fluence de saturation du SESAM est alors de 90 μ J.cm². Un miroir dont le rayon (M₁) de courbure vaut 300 mm a été utilisé pour focaliser le faisceau laser sur le SESAM avec une taille de 333 x 340 μ m [LASCAD].

3) Compensation de la dispersion :

Contrairement pour le cristal de CALGO, le souhait est d'essayer de privilégier la durée des impulsions laser. Le choix le plus judicieux est donc d'opter pour un compresseur à prismes intracavité pour ajuster continument la dispersion positive de la cavité laser. Les prismes choisis sont deux prismes SF 10.

Les meilleures puissances de sortie ont été obtenues avec un coupleur de sortie (M_4) dont la transmission vaut 1,6 %.

3.6.2- Les résultats

Les impulsions générées pour une distance entre les prismes de 31 cm sont centrées sur une longueur d'onde centrale de 1053 nm et ont une largeur spectrale de 15 nm, comme le montre la *Figure 3.34 (a)*. Le régime impulsionnel est obtenu pour une puissance intracavité de 23,8 W. Le pic sur le sommet du spectre montre le début d'un phénomène de régime Q-Switch et met en avant l'instabilité du régime impulsionnel. Des impulsions de la forme sech² ont été mesurées grâce à l'autocorrélateur (en supposant une forme en sech²) pour une durée temporelle de 99 fs (*Figue 3.34 (b)*). Il s'agit des impulsions femtosecondes les plus courtes jamais obtenues par un oscillateur à base d'un cristal Yb:CaF₂. Dans ces conditions, la puissance moyenne de sortie est de 380 mW pour une cadence de 112 MHz. Donc l'énergie par impulsion est de 3,4 nJ et une puissance crête correspondante de 30 kW. Le produit $\Delta v.\Delta t$ vaut 0,4, proche de la limite de Fourier.



Figure 3.34 : Spectre de l'impulsion (a) et autocorrélation de l'impulsion (b)

3.7- Conclusions

3.7.1- Conclusions sur les oscillateurs à base de Yb:CALGO et de Yb:CaF_2

La *Figure 3.35* représente les meilleures performances des lasers femtosecondes à base de cristaux dopés ytterbium.

Le cristal Yb:CALGO a permis de générer des impulsions de 68 fs pour une puissance moyenne de 520 mW et une cadence de 105 MHz, correspondant à une énergie par impulsion de 5 nJ et une puissance crête de 64 kW et les impulsions sont en limite de Fourier. Pour augmenter l'énergie par impulsion, nous avons réduit la cadence de l'oscillateur tout en conservant des impulsions sub-100 fs et de fortes puissances moyennes. En effet, des impulsions de 93 fs ont été obtenues pour une puissance moyenne de 460 mW et une cadence de 27 MHz. L'énergie par impulsion et la puissance crête passent à 17 nJ et 161 kW

respectivement. Ces performances font parties des meilleurs résultats obtenus pour un laser solide à base de cristal dopé ytterbium pompé par diode laser.

Grâce à son excellente conductivité thermique et son spectre d'émission atypique, le Yb:CALGO est un cristal des plus intéressants. Tout d'abord, il détient le record des impulsions les plus courtes [Zaouter 06] avec des impulsions de 47 fs. Ensuite, grâce à mes travaux, nous avons démontré la possibilité d'associer avec ce cristal de fortes puissances avec des impulsions sub-100 fs, parmi les meilleures performances pour un laser solide à base de cristaux dopés ytterbium. On peut aisément conclure que l'Yb:CALGO est un cristal prometteur pour de futurs développements qui pourraient déboucher sur un produit commercial.



<u>Figure 3.35:</u> Présentation de ces travaux comparés aux résultats du Yb:SYS [Druon 02], Yb:CaF₂ [Lucca 04], Yb:BOYS [Druon 02], Yb:verre [Hönninger 98], Yb:GdCOB [Druon 00],Yb:YVO₄ [Kisel 05], Yb:KYW [Klopp 02], Yb :Lu₂O₃ [Kuurosakawa 08], Yb :LSO et Yb :YSO [Thibault 06]

La large bande d'émission du cristal Yb:CaF₂ a permis la génération d'impulsions de 99 fs pour une puissance moyenne de 360 mW. A ce jour, il s'agit de la première démonstration d'impulsions sub-100 fs pour un cristal Yb:CaF₂.

Le cristal Yb:CaF₂ présente un potentiel intéressant car ce dernier peut être produit en très grande quantité. Cependant, il faut tenir compte de sa sensibilité aux chocs thermiques lors de toutes expériences.

3.7.2- Perspectives

L'un des principaux inconvénients de la méthode par verrouillage par effet soliton est l'impossibilité d'utiliser au maximum la largeur de la bande spectrale d'émission du cristal laser pour celle de l'impulsion laser. Cette incapacité est due à la présence du SESAM et du miroir dichroïque de la cavité laser. En effet, le SESAM et le miroir dichroïque ont une bande spectrale plus étroite que le spectre d'émission du cristal. Pour rappel, la largeur spectrale de fluorescence du cristal Yb:CALGO est plus du double de la largeur spectrale de 18,8 nm mesurée de l'impulsion laser. Il en est de même pour le cristal Yb:CaF₂ avec un spectre d'émission de 70 nm et seulement un spectre des impulsions de 15 nm. Il faut donc trouver des solutions pour éliminer soit les miroirs dichroïques soit le SESAM.

3.7.2.1- Suppression du miroir dichroïque

1) Le pompage « hors-axe »

1Une solution pour supprimer la présence du miroir dichroïque est d'utiliser un pompage longitudinal « hors-axe », dont le principe est représenté *Figure 3.36*.



Figure 3.36: Représentation d'une cavité laser avec un pompage « hors-axe »

Cependant, il faut impérativement garder un bon recouvrement entre les tailles de faisceaux laser et de pompe dans le cristal. Pour pouvoir s'assurer d'un bon recouvrement entre les deux faisceaux, l'épaisseur du cristal doit naturellement être diminuée avec l'inconvénient de devoir augmenter l'absorption intrinsèque du cristal et aussi les problèmes thermiques liés à un volume d'échauffement plus réduit.

2) La technologie « thin-disk »

Une autre perspective tout à fait intéressante pour obtenir de plus fortes puissances en régime femtoseconde est l'utilisation de la technologie « Thin-Disk », technologie apparue dans les années 90 [Giesen 94]. Le principe du « Thin-Disk » est représenté *Figure 3.37*.

Cette récente technologie joue sur la géométrie du milieu amplificateur. En effet, l'épaisseur du cristal doit être fortement inférieure au diamètre du faisceau laser. Cette petite épaisseur permet une évacuation de la chaleur par l'une des faces du cristal laser et non une évacuation transverse, comme c'était le cas dans nos configurations laser. La face du cristal refroidie par le bloc de refroidissement a un traitement pour permettre de réfléchir les longueurs d'onde de

pompe et laser. Le cristal est appelé « miroir actif » (ou « active mirror ») puisqu'il joue non seulement le rôle de miroir mais également celui du milieu à gain. Ce miroir actif va servir de miroir de fond de cavité ou de miroir de repliement de cavité pour former l'oscillateur laser. Dans le cas du miroir de repliement, il y a un double passage dans le milieu à gain lors d'un aller-retour dans la cavité laser, donc une augmentation du gain laser et une baisse du seuil laser. Cependant, l'épaisseur du milieu à gain rend inefficace l'absorption de la pompe avec un simple ou un double passage de la pompe sur le cristal. Pour pallier ce problème, la pompe effectue 8 à 16 doubles passages sur le milieu à gain.



Figure 3.37: Représentation de la technologie « thin-disk »

Le principal avantage de cette configuration est une baisse significative des effets thermiques et donc de la présence d'une faible lentille thermique, de peu de pertes par dépolarisation et surtout un pompage très fort de 100 W au kW. La qualité du faisceau s'en trouve améliorer et il est alors possible d'obtenir de fortes puissances moyennes. Le système de pompage pour un « thin-disk » est un pompage « hors-axe » et ne requiert en conséquence pas de miroir dichroïque.

Il existe des « thin disk » commerciales délivrant jusqu'à 8 kW en régime continu pour une qualité de faisceau de 8 mm.mrad [Trumpf]

Cette technologie parait très intéressante pour des lasers femtosecondes délivrant de très fortes puissances de pompe. Grâce à des « mode-locked thin-disk lasers », des puissances moyennes de 45 W pour des impulsions de 791 fs ont déjà été démontrés récemment avec un cristal de YAG dopé ytterbium. La cadence du laser est de 4 MHz, correspondant à une énergie par impulsion de 11,3 μ J [Marschene 08]. Des impulsions de 370 fs ont été démontées avec un cristal Yb:Lu₂O₃ avec une puissance moyenne de 20,5 W. La cadence de ce laser impulsionnel est de 65 MHz, ce qui correspond à une énergie par impulsion de 0,32 μ J et une puissance crête de 0,75 MW [Marschene 07].

Prochainement cette technologie sera testée sur les deux cristaux étudiés dans ma thèse.

3.7.2.2- Suppression du SESAM : régime KLM

Le deuxième élément limitant le spectre de l'impulsion est le SESAM. Il est possible de supprimer le SESAM en optant pour le verrouillage des modes par effet Kerr. Le verrouillage par effet Kerr se base sur l'auto-focalisation du faisceau laser par effet Kerr et donc par la présence d'un indice non-linéaire n_2 non négligeable en présence de fortes intensités. C'est la raison pour laquelle des mesures de n_2 ont été réalisées pour les cristaux Yb:CALGO, et Yb:CaF₂ par l'équipe Propriétés Optiques des Matériaux et Applications (POMA)³⁰ de l'Université d'Angers par la méthode de z-scan [Sheik-Bahae 89]. Les indices non linéaire pour le Yb:CALGO, notés n_{2a} et n_{2c} car ce cristal est uniaxe, ont été mesurés à 11,5 ± 4 10⁻²⁰ et 13,5 \pm 5 10⁻²⁰ m².W⁻¹ respectivement. Ces valeurs intéressantes et suffisamment importantes permettraient d'opter pour le verrouillage des modes par effet Kerr et de réduire potentiellement la durée des impulsions laser. Pour augmenter les effets non-linéaires dans le cristal, ce régime requiert une taille de faisceau de pompe petite dans le cristal. L'utilisation de diode laser s'en trouve impossible. La puissance de pompe dans le régime KLM en est alors un facteur limitant pour générer de la puissance. De plus il y a des problèmes de régime Q-Switch dus à la durée de vie trop longue de l'état excité des cristaux dopés ytterbium. Pour le cristal Yb:CaF₂, l'indice non linéaire n'a pu être mesuré précisément car les mesures sont trop bruitées, traduisant une valeur assez faible de l'indice non-linéaire. Pour un cristal CaF2 non dopé, une valeur de $1,90 \pm 0,26 \ 10^{-20} \ m^2$.W⁻¹a été mesurée pour l'indice de réfraction non-linéaire [Milan 77]

³⁰ Site web: http://www.univ-angers.fr/laboratoire.asp?ID=1

Bibliographie

A

[Amplitude Systèmes] http://www.amplitude-systemes.com/

B

[Batop] http://www.batop.com/

[Boudeile 07] J. Boudeile, F. Druon, M. Hanna, P. Georges, Y. Zaouter, E. Cormier, J. Petit, P. Goldner, and B. Viana, "Continuous-wave and femtosecond laser operation of Yb:CaGdAlO₄ under high-power diode pumping", Opt. Lett. **32**, 1962-1964 (2007)

[Brovelli 95] L. R. Brovelli, U. Keller, T. H. Chiu, "Design and operation of antiresonant Fabry-Pérot saturable semiconductor absorbers for mode-locked solid-state lasers, ", J. Opt. Soc. Am. B **12** (2), 311-322 (1995)

С

[Casperson 81] L. W. Casperson, "Synthesis of Gaussian Beams Optical Systems", Applied Physics **20** (13), 2243-2249 (1981)

D

[Dangoisse 01] D. Dangoisse, D. Hennequin et V. Zenhlé, "Les lasers", Edition DUNOD (1991)

[Druon 00] F. Druon, F. Balembois, P. Georges, A. Brun, A. Courjaud, C. Hönninger, F. Salin, A. Aron, F. Mougel, G. Aka, and D. Vivien, "Generation of 90-fs pulses from a mode-locked diode-pumped Yb^{3+} :Ca₄GdO(BO₃)₃ laser," Opt. Lett. **25**, 423-425 (2000)

[Druon 02] F. Druon, S. Chénais, P. Raybaut, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, G. Aka, B. Viana, S. Mohr, and D. Kopf, "Diode-pumped Yb:Sr₃Y(BO₃)₃ femtosecond laser", Opt. Lett. **27**, 197-199 (2002)

[Druon 03] F. Druon, F. Balembois and P. Georges, "Laser crystals for the production of ultra-short laser pulses", Ann. Chim. Sci. Mat. **28**, 47-72 (2003)

[Druon 05] F. Druon, S. Chénais, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, and B. Viana, "Diode-pumped continuous-wave and femtosecond laser operations of a heterocomposite crystal Yb3+:SrY4(SiO4)30||Y2A15O12," Opt. Lett. **30**, 857-859 (2005)

F

[Fabry 1923] C. Fabry, "Les applications des interférences lumineuses" Editions de la Revue d'optique théorique et instrumentale, 1923

[Fork 84] R. L. Fork and O. E. Martinez, "Negative dispersion using pairs of prisms", Opt. Lett. 9, 150-152 (1984)

[Fujimoto 84] J. G. Fujimoto, A. M. Weiner and E. P. Ippen, "Generation and measurement of optical pulses as short as 16 fs", Appl. Phys. Lett. 44 (9), 832-834 (1984)

G

[Gires 64] F. Gires, and P. Tournois (1964). "Interféromètre utilisable pour la compression d'impulsions lumineuses modulées en fréquence ». C. R. Acad. Sci. Paris **258**, 6112–6115 (1964)

[Giesen 94] A. Giesen *et al.*, "Scalable concept for diode-pumped high-power solid-state lasers", Appl. Phys. B **58**, 363 (1994)

[Giesen 07] A. Giesen and J. Speiser, "Fifteen years of work on thin-disk lasers: results and scaling laws", IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **13** (3), 598 (2007)

H

[Hargrove 64] L. E. Hargrove, R. L. Fork, and M. A. Pollack, "Locking of He–Ne laser modes induced by synchronous intracavity modulation", Appl. Phys. Lett. **5**, 4 (1964)

[Hönninger 99] C. Hönninger, "Ultrafast Ytterbium-doped bulk lasers and laser amplifiers", Series in Quantum Electronics, **9** (1999)

I

[Iaconis 99] C. Iaconis, I.A. Walmsley, "Self-referencing interferometry for measuring ultrashort optical pulses", IEEE J. Quantum Electon. **35** (4), 501-509 (1999)

[Ippen 94] E. P. Ippen, "Principles of passive mode locking", Appl. Phys. B 58, 159 (1994)

[JENOPTIK Laserdiode] http://www.jold.de/

K

[Kärtner 95] F. X. Kärtner and U. Keller, "Stabilization of solitonlike pulses with a slow saturable absorber," Opt. Lett. **20**, 16-18 (1995)

[Keller 92] U. Keller, D. A. B. Miller, G. D. Boyd, T. H. Chiu, J. F Fergusson, M. T. Asom, "Solid-state low-loss intrcavity saturable absorber for Nd:YLF lasers: an antiresonant semiconductor Fabry-Perot saturable absorber", Opt. Lett. **17**, 505-507 (1992)

[Keller 96] U. Keller, K. J. Weingarten, F. X. Kärtner, D. Kopf, B. Braun, I. D. Jung, R. Fluck, C. Hönninger, N. Matuschek, J. Aus der Au, Invited Paper, "Semiconductor saturable absorber mirrors (SESAMs) for femtosecond to nanosecond pulse generation in solid-state lasers", IEEE J. Selected Topics in Quantum Electronics (JSTQE) **2**, 435-453 (1996)

[Kuizenga 70] D. J. Kuizenga and A. E. Siegman, "FM and AM mode locking of the homogeneous laser – Part I: theory", IEEE J. Quantum Electron. 6, 694 (1970)

[Kisel 05] V. E. Kisel, A. E. Troshin, V. G. Shcherbitsky, N. V. Kuleshov, V. N. Matrosov, T. A. Matrosova, M. I. Kupchenko, F. Brunner, R. Paschotta, F. Morier-Genoud, and U. Keller, "Femtosecond pulse generation with a diode-pumped Yb3+:YVO4 laser," Opt. Lett. **30**, 1150-1152 (2005)

[Kohler 95] B. Kohler, V. V. Yakovlev, K. R. Wilson, J. Squier, K. W. DeLong, and R. Trebino, "Phase and intensity characterization of femtosecond pulses from a chirped-pulse amplifier by frequency-resolved optical gating," Opt. Lett. **20**, 483- (1995) L

[Layertec] http://www.layertec.de/

[Lelek 07] M. Lelek, E. Suran, F. Louradour, A. Barthelemy, B. Viellerobe, and F. Lacombe, "Coherent femtosecond pulse shaping for the optimization of a non-linear micro-endoscope," Opt. Express **15**, 10154-10162 (2007)

[Lucca 04] A. Lucca, G. Debourg, M. Jacquemet, F. Druon, F. Balembois, P. Georges, P. Camy, J. L. Doualan, and R. Moncorgé, "High-power diode-pumped $Yb^{3+}:CaF_2$ femtosecond laser," Opt. Lett. **29**, 2767-2769 (2004)

Μ

[Marchese 08] S. V. Marchese, C. R. Baer, A. G. Engqvist, S. Hashimoto, D. J. Maas, M. Golling, T. Südmeyer, and U. Keller, "Femtosecond thin disk laser oscillator with pulse energy beyond the 10-microjoule level," Opt. Express **16**, 6397-6407 (2008)

[Marchese 07] S. V. Marchese, C. R. E. Baer, R. Peters, C. Kränkel, A. G. Engqvist, M. Golling, D. J. H. C. Maas, K. Petermann, T. Südmeyer, G. Huber, and U. Keller, "Efficient femtosecond high power Yb:Lu₂O₃ thin disk laser," Opt. Express **15**, 16966-16971 (2007)

[Milan 77] D. Milan, M. J. Weber and A. J. Glass, "Nonlinear refractive index of fluoride crystals", Appl. Phys. Lett. **31** (12), 822-825 (1977)

Ν

[Newport] http://www.newport.com/

P

[Paraxia] http://www.sciopt.com/paraxpls.htm

R

[Richman 97] B. A. Richman, M. A. Krumbügel, and R. Trebino, "Temporal characterization of mid-IR free-electron-laser pulses by frequency-resolved optical gating," Opt. Lett. **22**, 721-723 (1997)

S

[Sellmeier 1872] W. Sellmeier, "Uber die durch Aetherschwingungen erregten Mitschwingungen der Körpertheilchen und deren Rückwirkung auf die erstern, besonders zur Erklärung der Dispersion und ihrer Anomalien" Ann. Phys. **145**, 399-421, 520-549 and **147**, 386-403, 525-539 [1872]

[Sheik-Bahae 89] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, and E. W. Van Stryland, "High-sensitivity, single-beam n2 measurements," Opt. Lett. 14, 955- (1989)

[Spence 91] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett, "60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser," Opt. Lett. 16, 42- (1991)

Т

[Trebino 02] R. Trebino, "Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses", Kluwer Academic Publishers, Boston (2002).

[Thibault 06] F. Thibault, D. Pelenc, F. Druon, Y. Zaouter, M. Jacquemet, and P. Georges, "Efficient diode-pumped $Yb^{3+}:Y_2SiO_5$ and $Yb^{3+}:Lu_2SiO_5$ high-power femtosecond laser operation," Opt. Lett. **31**, 1555-1557 (2006)

[Trumpf] http://www.trumpf-laser.com/

V

[Valdmanis 85] J. A. Valdmanis, R. L. Fork, and J. P. Gordon, "Generation of optical pulses as short as 27 femtoseconds directly from a laser balancing self-phase modulation, group-velocity dispersion, saturable absorption, and saturable gain," Opt. Lett. **10**, 131-133 (1985)

Z

[Zaouter 06] Y. Zaouter, J. Didierjean, F. Balembois, G. L. Leclin, F. Druon, P. Georges, J. Petit, P. Goldner, and B. Viana, "47-fs diode-pumped Yb³⁺:CaGdAlO₄ laser," Opt. Lett. **31**, 119-121 (2006)

Conclusion générale

153

L'objectif de cette thèse était de développer de nouvelles sources femtosecondes de puissance à base de cristaux dopés ytterbium et pompées par diode laser. Cette étude s'est orientée autour de deux axes principaux :

-- une étude thermique pour évaluer la résistance des cristaux dopés ytterbium à de fortes puissances incidentes

-- la montée en puissance pour des cavités produisant des impulsions de moins de 100 fs

Le premier chapitre était axé sur un état de l'art des familles de cristaux dopés ytterbium utilisés pour les oscillateurs femtosecondes. Pour choisir nos cristaux pour la montée en puissance, deux critères sont essentiels :

-- une large bande d'émission pour favoriser les impulsions femtosecondes

-- une excellente conductivité thermique pour pomper avec de fortes puissances

De manière générale, ces deux critères sont antagonistes. Une large bande d'émission demande une structure désordonnée de la maille cristalline (une maille complexe) et une excellente conductivité thermique est synonyme d'ordre (une maille simple). Il faut alors choisir des cristaux qui n'obéissent pas à cette règle générale. Tout d'abord, nous nous sommes intéressés aux fluorures de calcium (CaF₂) et de strontium (SrF₂). En effet, ces cristaux à la maille simple présente des agrégats à forts dopages en ions ytterbium qui élargissent la bande spectrale d'émission. Ensuite, le CALGO (CaGdAlO₄) est apparu prometteur grâce à une complémentarité des deux sites de substitution (calcium et gadolinium) qui permet l'obtention d'un spectre d'émission large et plat tout en conservant une excellente conductivité thermique.

Le tableau C.1 suivant résume les principales caractéristiques des cristaux laser étudiées dans le cadre de ces travaux de thèse :

| | Yb:CaF ₂ Yb:SrF ₂ | | Yb:CALGO | |
|--|---|-------------|-------------------|--|
| | | | axe a axe c | |
| largeur spectrale à mi-hauteur du spectre d'émission $\Delta\lambda$ (nm) | 70 | 70 | 80 | |
| conductivité thermique non dopé κ_0 (W.m ⁻¹ .K ⁻¹) | 9,7 | 8,3 | 7-6 | |
| conductivité thermique dopé $\kappa_c (W.m^{-1}.K^{-1})$ | 6,06 (2,6%) | 3,31 (2,9%) | 6,9 (2%) 6,3 (2%) | |

tableau C.1 : La largeur à mi-hauteur du spectre d'émission et les conductivités thermiques dopés et non dopés pour les Yb:flurorures et Yb:CALGO

Le chapitre 2 a concerné l'étude les propriétés thermiques des cristaux pompés longitudinalement par diode laser. Lors du pompage optique, de la chaleur est générée provoquant ainsi une distribution inhomogène de la chaleur dans le cristal qui aura des conséquences thermomécaniques et thermo-optiques. Pour l'étude de ces matériaux, un banc de caractérisation thermique associant en parallèle une caméra thermique pour la mesure de la température et un analyseur de front d'onde de type Shack-Hartmann pour la mesure de la focale de la lentille thermique a été développé. Des modélisations analytiques de la distribution de la température et de la lentille thermique ont été proposées dans un cristal isotrope. Cette modélisation nous a permis de corréler des paramètres thermiques intéressants comme la conductivité thermique et le coefficient thermo-optique à des mesures expérimentales du gradient de température et de la focale de la lentille thermique.

L'étude thermique des fluorures dopés ytterbium a mis en avant un rendement quantique de fluorescence proche de l'unité permettant d'affirmer que la charge thermique en l'absence d'effet laser est faible. Mais les fluorures restent cependant très sensibles aux chocs thermiques. Grâce à ces mesures, les coefficients thermo-optiques mesurées sont de $\chi(Yb(2,6\%):CaF_2) = -17,8 \ 10^{-6} \ K^{-1}$ et $\chi(Yb(2,9\%):SrF_2) = -20,5 \ 10^{-6} \ K^{-1}$. Nous avons déduit une sous-estimation de l'effet de lentille thermique en prenant en compte les valeurs de coefficient thermo-optiques tabulées pour des fluorures non dopés. Il y a quasiment un rapport 1/3 dans les sous-estimations des puissances dioptriques. Finalement, une première mesure expérimentale de la conductivité thermique pour ces fluorures a été réalisée. Les conductivités thermiques sont mesurées à 5,4 W.m⁻¹.K⁻¹ et 3,1 W.m⁻¹.K⁻¹ pour les cristaux Yb(2,6%):CaF_2 et Yb(2,6%):CaF_2 respectivement. Ces valeurs sont en accord avec les valeurs estimées par le modèle théorique de la conductivité thermique de R. Gaumé (tableau C.1).

L'étude thermique du CALGO dopé ytterbium a permis de mesurer des très faibles gradients thermiques corroborant l'excellente conductivité thermique de l'ordre de 6 W.m⁻¹.K⁻¹ suivant les axes *a* et *c* du cristal. Cependant, ce cristal présente actuellement une faible absorption de la pompe de seulement 50 %. Un travail supplémentaire doit être réalisé pour optimiser le dopage en ions ytterbium en conservant cette forme atypique pour le spectre d'émission et une excellente conductivité thermique.

Une comparaison entre les cristaux choisis devient alors possible mettant en valeur le cristal Yb:CALGO face aux Yb:fluorures à cause de leur sensibilité plus importante aux chocs thermiques.

En conclusion, nous avons développé un banc de caractérisation thermique complet et unique permettant la détermination de la lentille thermique grâce à des propriétés thermomécaniques et thermo-optiques issues de l'expérience. Ce banc peut ainsi permettre l'étude thermique de nouveaux cristaux et la conception de cavités laser femtosecondes ou continues de fortes puissances moyennes.

Le chapitre 3 explique la conception d'une cavité laser femtoseconde. Pour obtenir des impulsions femtosecondes, nous instaurons un régime « mode-locked » (ou verrouillage de modes en phase) grâce à un absorbant saturable semi-conducteur appelé un SESAM. Pour compenser la dispersion positive de la cavité laser, deux choix s'offrent à nous : le miroir GTI introduisant peu de pertes et une dispersion négative fixe ou les prismes insérant d'avantage de pertes mais permettant d'obtenir une dispersion négative continument ajustable.

Pour la montée en puissance ces cavités femtosecondes Yb:CALGO, nous avons opté pour des miroirs GTIs, introduisant un minimum de pertes. Des impulsions de 68 fs ont été mesurées pour une puissance moyenne de 520 mW. Il s'agit à l'heure actuelle une des meilleures performances au niveau puissance de sortie pour des oscillateurs solides sub-100 fs à base de cristaux dopés ytterbium. Les impulsions sont en limite de Fourier. Pour augmenter l'énergie par impulsion, la cavité CALGO a été allongée pour obtenir une cavité de 5,55 m pour réduire la cadence à 27 MHz et augmenter l'énergie par impulsion. Dans de telles conditions, l'énergie par impulsion est passée de 5 nJ à 17 nJ. Le cristal Yb:CALGO a fait ses preuves en régime femtoseconde de puissance et a un avenir commercial. Pour augmenter encore la puissance et conserver la durée des impulsions et grâce à ses propriétés thermiques intéressantes, une technologie semble très prometteur pour le CALGO : la technologie « thindisk ».

Pour réduire la durée temporelle des impulsions pour le cristal Yb:CaF₂, l'option de la dispersion négative s'est portée sur des primes tout en conservant un SESAM pour générer les

impulsions. Grâce à cette configuration, des impulsions de 99 fs pour une puissance moyenne de 380 mW ont été obtenues durant ces travaux pour une cadence de 112 MHz. Ceci correspond à une énergie par impulsion de 3,4 nJ et à une puissance crête de 30 kW. C'est la première démonstration d'impulsions sub-100 fs pour ce cristal. Il semble dur de pouvoir obtenir des impulsions plus courtes ou de plus fortes puissances pour ce cristal. Son indice non-linéaire trop faible rend le cristal inadapté pour le régime à verrouillage de mode par lentille de Kerr et son extrême sensibilité aux chocs thermiques risque de rendre son utilisation en technologie « thin-disk » assez compliquée, mais des tests vont avoir lieu dans les prochains mois.

Les résultats expérimentaux obtenus pour les cristaux Yb:CALGO et Yb:CaF₂ sont réunis dans le tableau C.2.

| Cristal | Absorbant Saturable/Compensation de la dispersion | Δt (fs) | Puissance moyenne (mW) | Cadence (MHz) | Energie par impulsion (nJ) | Puissance crête (kW) | |
|---|---|-----------------|------------------------------|------------------|-------------------------------------|----------------------------|--|
| Yb:CALGO | SESAM/GTIs | 97 | 530 | 68 | 7,7 | 70 | |
| courte cavité | | 66 | 460 | 68 | 6,4 | 86 | |
| | | 68 | 520 | 105 | 5 | 64 | |
| Yb:CALGO | SESAM/GTIs | 145 | 650 | 27 | 24 | 146 | |
| longue cavité | | 93 | 460 | 27 | 17 | 161 | |
| Yb:CaF ₂ | SESAM/Prismes | 99 | 360 | 112 | 3,4 | 19,5 | |
| tableau C 2 · Résultats expérimentaux nour les cristaux Yh: CALGO et Yh: CaE, en régime | | | | | | | |

<u>tableau C.2</u>: Résultats expérimentaux pour les cristaux Yb:CALGO et Yb:CaF₂ en régime femtoseconde

Tableau récapitulatif des caractéristiques des principaux cristaux laser dans la génération d'impulsions femtosecondes

| | Emission | | | | | Absorption | |
|--|----------------------------|--|------------------------------|--|------------------------------|---|--|
| Matériau (nom et formule) | Longueur d'onde (nm) | Section efficace σ_{em} 10^{-20} cm ² | Largeur spectrale (nm) | Temps de vie de l'état excité τ (ms) | Produit τ.σ _{em} | Longueurs d'onde usuelles (nm) | Conductivité thermique (non dopé) (W/m/K) |
| Yb:YAG Yb:Y ₃ Al ₅ O ₁₂ | 1031 | 2,1 | 9 | 0,951 | 2 | 942 968 | 11 |
| Yb:GGG Yb:Gd ₃ Al ₅ O ₁₂ | 1025 | 2 | 10 | 0,8 | 1,6 | 971 | 8 |
| Yb:Y ₂ O ₃ | 1076 | 0,4 | 14,5 | 0,82 | 0,33 | 979 | 13,6 |
| Yb:Sc ₂ O ₃ | 1041 | 1,44 | 11,6 | 0,8 | 1,52 | 979 | 16,5 |
| Yb:Lu ₂ O ₃ | 1034 | 1,25 | 12 | 0,82 | 1,02 | 976 | 12,2 |
| Yb:CaF ₂ | 1045 | 0,25 | 60 | 2,4 | 0,6 | 979 | 9,7 |
| Yb:SrF ₂ | 1046 | 0,15 | 60 | 2,9 | 0,44 | 976 | 8,3 |
| Yb:CALGO | 1050 | 0,8 | 80 | 0,42 | 0,34 | 980 | 6,5 |
| Yb:GdVO ₄ | 1020 | 0,9 | 34 | 0,26 | 0,23 | 985 | 7,8 |
| Yb:YVO4 | 1020 | 0,9 | 40 | 0,25 | 0,23 | 985 | 5,1 |
| Yb:LSO Yb:Lu ₂ SiO ₅ | 1040 | 0,6 | 35 | 0,95 | 0,57 | 978 | 5,3 |
| Yb:YSO Yb:Y ₂ SiO ₅ | 1042 | 0,6 | 40 | 0,67 | 0,4 | 978 | 4,4 |
| Yb:YLF Yb:YLiF ₄ | 1030 | 0,81 | 14 | 2,21 | 1,8 | 940 | 4,3 |
| Yb:KGW Yb:KGd(WO ₄) ₂ | 1023 | 2,8 | 20 | 0,3 | 0,84 | 981 | 3,3 |
| Yb:KYW Yb:KY(WO ₄) ₂ | 1025 | 3,0 | 24 | 0,3 | 0,9 | 981 | 3,3 |
| Yb:KLuW Yb:KLu(WO ₄) ₂ | 1050 | 1,0 | 24 | 0,38 | 0,38 | 981 | 3 |
| Yb:SYS Yb:SrY ₄ (SiO ₄) ₃ O | 1065 | 0,44 | 73 | 0,8 | 0,36 | 980 | 2 |
| Yb:GdCOB Yb:Ca ₄ GdO(BO ₃) ₃ | 1044 | 0,35 | 44 | 2,6 | 0,91 | 976 | 2,1 |

Annexe A – Tableau récapitulatif des caractéristiques des principaux cristaux laser dans la génération d'impulsions femtosecondes

| Yb:YCOB Yb:Ca ₄ YO(BO ₃) ₃ | 1082 | 0,12 | 40 | 2,4 | 0,3 | 900 976 | 2 |
|---|------|------|----|------|-------|------------|-----|
| Yb:BOYS Yb:Sr ₃ Y(BO ₃) ₃ | 1060 | 0,3 | 60 | 1,1 | 0,33 | 975 | 1,8 |
| Yb:verre (phosphate verre) | 1020 | 0,05 | 35 | 1,3 | 0,065 | 975 | 0,8 |
| Yb:FAP Yb:Ca ₅ (PO ₄) ₅ F | 1042 | 3,7 | 4 | 0,46 | 1,69 | 982 | 2 |
| Yb:S-FAP Yb:Sr ₅ (PO ₄) ₅ F | 1047 | 7,3 | 4 | 1,26 | 9,1 | 899 | 2 |

Expressions analytiques de l'absorption dans une structure électronique quasi-trois niveaux

B.1- Le seuil de transparence, phénomène de réabsorption

Dans un schéma électronique quasi-trois niveaux, le niveau bas de la transition laser correspond à un niveau d'énergie très proche du fondamental. A température ambiante, de part les lois statistiques, le niveau fondamental et les niveaux d'énergie proches du fondamental sont peuplés thermiquement. Dans de telles conditions, les photons laser peuvent être réabsorbés permettant d'exciter les électrons du niveau bas de la transition laser vers le niveau haut de la transition laser. On parle alors du phénomène de réabsorption. Un schéma quasi-trois niveaux, représentatif de l'ion ytterbium Yb dans le cadre de nos travaux, est schématisé *Figure Annexe B.1*.



Figure Annexe.B.1: Schéma électronique quasi-trois niveaux de l'ion ytterbium

Pour s'affranchir du phénomène de réabsorption, il faut apporter une certaine intensité de pompe, appelé intensité de transparence. Pour des intensités supérieures à l'intensité de transparence, le cristal laser devient transparent et apporte du gain à la longueur d'onde laser et donc participe au rayonnement laser. Il est possible de définir l'intensité de transparence d'un cristal laser dopé ytterbium I_{trans} .

Pour cela, il faut chercher les expressions des populations en régime stationnaire des deux niveaux de la transition laser. Les évolutions temporelles des populations du niveau bas de la

transition laser N_1 et du niveau haut de la transition laser N_2 s'expriment de la manière suivante :

$$\frac{dN_{1}(t)}{dt} = -\frac{dN_{2}}{dt} = \left[\sigma_{ep}.I_{p} + \sigma_{el}.I_{l}\right]N_{2} - \left[\sigma_{ap}.I_{p} + \sigma_{al}.I_{l}\right]N_{1} + \frac{N_{2}}{\tau} = 0$$
(B.1)

où σ_{ep} , σ_{al} et σ_{al} sont respectivement les sections efficaces d'émission de la pompe et du laser et les sections efficaces d'absorption de la pompe et du laser, I_p et I_l les intensités de pompe et intracavité laser et τ le temps de vie du niveau haut de la transition laser. En utilisant le principe que ce système étudié soit un système fermé, à savoir $N_l+N_2=N$, l'inversion de population β a pour expression :

$$\beta = \frac{N_2}{N} = \frac{\left(\sigma_{ap}.I_p + \sigma_{al}.I_l\right)}{I + \frac{I_p}{I_{psat}} + \frac{I_l}{I_{lsat}}}$$
(B.2)

où I_{lsat} et I_{psat} sont les intensités de saturation de l'onde de pompe et de l'onde laser. Ils ont pour expressions :

$$I_{psat} = \frac{l}{(\sigma_{ep} + \sigma_{ap})\tau} \qquad I_{lsat} = \frac{l}{(\sigma_{el} + \sigma_{al})\tau}$$
(B.3)

L'évolution de l'intensité de l'onde laser suivant les axes radial *r* et de propagation *z* laser $dI_l(r,z)/dz = g_l(r,z).I_l(r,z)$ permet de définir le gain linéique s'écrit de la manière suivante :

$$g_{l} = -(\sigma_{ap}.N_{l} - \sigma_{el}.N_{2}) = (\beta . \sigma_{al} - (l - \beta) . \sigma_{el}).N = \sigma_{g}.N$$
(B.4)

où σ_g est une section efficace de gain. A partir de cette expression, on peut définir l'intensité nécessaire pour rendre transparent le milieu. Pour cela, il faut de chercher l'expression de I_p lorsque la section efficace de gain est nulle pour une intensité laser nulle. L'intensité de transparence I_{trans} s'écrit comme suit :

$$I_{trans} = \frac{\sigma_{al}}{\left(\sigma_{ap}.\sigma_{el} - \sigma_{al}.\sigma_{ep}\right)}$$
(B.5)

En résumé, il faut donner une intensité de pompe supérieure à l'intensité de transparence pour éviter les problèmes de réabsorption et commencer à avoir du gain à la longueur d'onde laser. De plus, il faut conserver une intensité de pompe supérieure à l'intensité de transparence sur toute la longueur du cristal pour éviter les problèmes de réabsorption à la longueur d'onde laser à la fin du cristal laser. Finalement, il faut faire particulièrement attention aux fortes absorptions au début du cristal laser. La pompe est alors intégralement absorbée au début du cristal laser et il n'est plus possible de rendre transparent la fin du cristal laser. Des problèmes de réabsorption à la longueur d'onde laser sont dans ces conditions inévitables à la fin du cristal laser.

B.2- La saturation d'absorption

Pour décrire la saturation d'absorption, il faut s'intéresser à l'évolution de la pompe $I_p(r,z)$ dans le cristal suivant les axes radial r et de propagation z :

$$\frac{dI_p(r,z)}{dz} = -\alpha_p(r,z) I_p(r,z)$$
(B.6)

où $\alpha_p(r,z)$ est le coefficient d'absorption de la pompe suivant les axes r et z. En l'absence d'effet laser, l'évolution de la pompe peut s'écrire comme suit :

$$\frac{dI_p(r,z)}{dz} = -\frac{\alpha_{NS}}{I + \frac{I_p(r,z)}{I_{psat}}} I_p(r,z)$$
(B.7)

où $\alpha_{NS} = \sigma_{ap}N$ est le coefficient d'absorption non saturé à la longueur d'onde de pompe. Pour réaliser cette mesure, il suffit d'atténuer significativement la puissance de pompe et mesurer ainsi le coefficient d'absorption du cristal.

Par contre, en présence de l'effet laser, il faut tenir compte que l'émission laser va permettre un débit de désexcitations d'électrons du niveau haut vers le niveau bas de la transition laser. L'évolution de l'intensité de la pompe a alors l'expression suivante :

$$\frac{dI_p(r,z)}{dz} = -\frac{\alpha_{NS} + \alpha_{NS}^l \cdot \frac{I_l(r,z)}{I_{trans}(r,z)}}{1 + \frac{I_p(r,z)}{I_{psat}} + \frac{I_l(r,z)}{I_{lsat}}} I_p(r,z)$$
(B.8)

où $\alpha_{NS}^{l} = \sigma_{al}N$ est le coefficient d'absorption non saturée à la longueur d'onde laser. Le débit supplémentaire responsable du dépeuplement du niveau haut de la transition laser est pris en compte dans l'expression (A.8). Ce débit permet une « désaturation » de l'absorption.

En remplaçant $\alpha_{NS}^{l} = \sigma_{al} \cdot N = \sigma_{al} \cdot \alpha_{NS} / \sigma_{ap}$ et l'expression de I_{trans} , l'équation (A.8) peut alors prendre la forme suivante :

$$\frac{dI_{p}(r,z)}{dz} = -\frac{\alpha_{NS} \left(I + \frac{I_{l}(r,z)}{\sigma_{ap}} \cdot (\sigma_{ap} \cdot \sigma_{el} - \sigma_{al} \cdot \sigma_{ep}) \tau \right)}{I + \frac{I_{p}(r,z)}{I_{psat}} + \frac{I_{l}(r,z)}{I_{lsat}}} \cdot I_{p}(r,z)$$
(B.9)

B.3- Simulation numérique sous mathematica

Pour faire des calculs de la puissance de pompe absorbée par le cristal par simulation numérique, nous avons fractionné le cristal en N tranches fines d'épaisseur dz. On calcule

alors l'absorption dans une première tranche grâce à l'équation (B.9) et ainsi de suite. On peut alors savoir la puissance incidente sur la tranche suivante en tenant compte bien entendu de la divergence du faisceau de pompe. Ainsi de suite, il est possible de savoir la valeur de la puissance absorbée par le cristal laser et calculer le dP(z)/dz en z = 0 grâce à la formule suivante :

$$\left. \frac{dP(z)}{dz} \right|_{z=0} = \alpha_p . P_0 \tag{B.10}$$

où α_p est le coefficient tenant compte de la saturation d'absorption en l'absence d'effet laser, toujours inférieur à α_{NS} et P_0 la puissance incidente sur le cristal.

Liste des différentes publications et conférences liées à ces travaux de thèse

Publications dans des revues scientifiques à comités de lecture:

"Continuous-wave and femtosecond laser operation of Yb:CaGdAlO₄ under high-power diode-pumping", J. Boudeile, F. Druon, M. Hanna, P. Georges, J. Petit, P. Goldner, B. Viana Optics Letters, Vol. 32, p 1962-1964 (Juin 2007)

"Thermal behaviour of ytterbium-doped fluorite crystals under high power pumping", J. Boudeile, J. Didierjean, P. Camy, J. L. Doualan, A. Benayad, V. Ménard, R. Moncorgé, F. Druon, F. Balembois, and P. Georges Opt. Express **16**, 10098-10109 (2008)

Congrès internationaux avec publications des actes:

"New Yb-doped crystals for high-power and ultrashort lasers", <u>F. Druon</u>, J. Boudeile, Y. Zaouter, M. Hanna, F. Balembois, P. Georges, J. Petit, P. Goldner, B. Viana Femtosecond Phenomena and Nonlinear Optics III Volume 6400 pages: U94-U109 (2006) *Présentation orale*

"Generation of 47-fs pulses from a diode-pumped Yb³⁺:CaGdAlO₄ femtosecond laser", <u>Y. Zaouter</u>, J. Boudeile, F. Druon, P. Georges Proceedings of the Society of Photo-optical Instrumentation Engineers (SPIE) Volume 6100 pages:J1000-J1000 (2006) *Présentation orale*

"Generation of 66-fs 440 mW average power pulses from a diode pumped Yb³⁺:CaGdAlO₄ laser", <u>J. Boudeile</u>, Y. Zaouter, F. Druon, M. Hanna, P. Georges, J. Petit, P. Goldner, B. Viana Advanced Solid-State Photonics (ASSP) proceedings 2007 *Présentation orale*

"High power diode pumped Yb³⁺:CaGdAlO₄", J. Boudeile, J. Didierjean, <u>F. Druon</u>, F. Balembois, P. Georges, P.O. Petit, P. Goldner, B. Viana Advanced Solid-State Photonics (ASSP), WE 28, (2008) *Poster*

"Simultaneous Measurement of Thermal Lens and Temperature Map in Ytterbium-doped Fluoride Crystals", J. Boudeile, J. Didierjean, <u>F. Druon</u>, F. Balembois, P. Georges, Advanced Solid-State Photonics (ASSP), WE 8, (2008) *Poster*

Congrès internationaux sans publications des actes:

"440 mW average power 66-fs diode pumped Yb³⁺:CaGdAlO₄ laser", <u>J. Boudeile</u>, F. Druon, M. Hanna, p. Georges, J. Petit, P. Goldner, B. Viana Europhoton (2006) *Présentation orale* "530 mW average power 76-fs diode pumped Yb³⁺:CaGdAlO₄ laser", <u>J. Boudeile</u>, F. Druon, M. Hanna, P. Georges, J. Petit, P. Golner and B. Viana European Optical Society (EOS) (2006) *Poster*

"520 mW average power 68-fs diode pumped Yb³⁺:CaGdAlO₄ laser", J. Boudeile, <u>F. Druon</u>, M. Hanna, P. Georges, J. Petit, P. Goldner, B. Viana Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO-Europe) (2007) *Présentation orale*

"Development of new femtosecond diode-pumped Ytterbium-doped laser", <u>J. Boudeile</u>, F. Druon, M. Hanna, P. Georges, J. Petit, B. Viana and P. Goldner CEFIPRA, Centre Franco-Indien Pour la Recherche Avancée Worshop « Lasers, Quantum Optics and Biophysics » (Novembre 2007) *Présentation orale*

"Yb-doped fluorite lasers under 100W diode pumping and in situ measurement of their thermal constants", J. Boudeile, J. Didierjean, P. Camy, J.L. Doualan, A. Benayad, V. Ménard, R. Moncorgé, F. Balembois, <u>F. Druon</u>, P. Georges Europhoton (2008) *Poster*

"Femtosecond modelocked Yb:CALGO laser at low-repetition-rate", J. Boudeile, D. Papadopoulos, M. Hanna, P.O. Petit, P. Goldner, B. Viana, <u>F. Druon</u>, P. Georges Europhoton (2008) *Présentation orale*

"Low-repetition-rate femtosecond operation in long cavity modelocked Yb:CALGO laser", J. Boudeile, <u>D. Papadopoulos</u>, F. Druon, M. Hanna, P. Georges, P.O. Petit, P. Goldner, B. Viana Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO-US) (2008) *Présentation orale*

<u>Congrès nationaux :</u>

"Laser femtoseconde de forte puissance à base de cristaux d'Yb3+:CaGdAlO4 pompé par diode", J. Boudeile, F. Druon, M. Hanna, P. Georges, Y. Zaouter, E. Cormier, J. Petit, P. Goldner et B. Viana COLOQ'10 Dixième COlloque sur les Lasers et l'Optique Quantique (Grenoble 2007)

Poster