



HAL
open science

Développements et nouveaux concepts pour les lasers solides ultraviolets

Loïc Deyra

► **To cite this version:**

Loïc Deyra. Développements et nouveaux concepts pour les lasers solides ultraviolets. Optique [physics.optics]. Institut d'Optique Graduate School, 2014. Français. NNT : 2014IOTA0007 . tel-01080188

HAL Id: tel-01080188

<https://pastel.hal.science/tel-01080188>

Submitted on 4 Nov 2014

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.

INSITUT D'OPTIQUE GRADUATE SCHOOL

ÉCOLE DOCTORALE ONDES ET MATIERE

Discipline : Physique

THÈSE

Pour l'obtention du grade de Docteur en science
de l'Institut d'Optique Graduate School

Préparée au Laboratoire Charles Fabry

Soutenue le 09/10/2014 par
Loïc DEYRA

Développements et nouveaux concepts pour les lasers solides ultraviolets

M.	François	BALEMBOIS	(Directeur de thèse)
M.	Fabien	BREtenAKER	(Président du Jury)
Mme.	Patricia	SEGONDS	(Rapporteur)
M.	Vincent	COUDERC	(Rapporteur)
M.	Pascal	LOISEAU	(Examineur)
M.	Thierry	GEORGES	(Examineur)

Et en la présence de Mr Philippe Adam (Invité)



Thèse préparée au
Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique
Groupe Lasers
2, avenue Augustin Fresnel
91 127 Palaiseau CEDEX

REMERCIEMENTS

Ce paragraphe étant l'une des rares opportunités de remercier toutes les personnes côtoyées au cours de ma thèse, je vais tâcher de n'oublier personne, et de faire rire (ou du moins sourire) les gens qui n'ouvriront ce manuscrit que pour lire ces remerciements (ils se reconnaîtront). Si je vous ai oublié, ou si vous estimez mériter plus de lignes, je m'en excuse profondément et vous offrirait un (ou plusieurs) coups à boire selon la gravité de ma faute.

Je commencerais par remercier les rapporteurs de mon manuscrit Patricia Segonds et Vincent Couderc, pour avoir pris le temps de lire et étudier mon travail. Merci également aux autres membres du jury : Fabien Bretenaker, Philippe Adam, Thierry Georges et Pascal Loiseau, merci pour votre présence et vos remarques.

Ce manuscrit marque la fin d'une aventure de trois ans, qui a démarrée dès janvier 2011 lorsque je contactai l'IOGS au sujet d'une offre de thèse sur le développement de fibres cristallines (et oui, je ne suis pas passé loin du drame !) et rencontra l'illustre François Balembois. Malheureusement, après une discussion poussée, il apparut que mon modeste diplôme en Sciences des Matériaux n'était pas adapté à une thèse sur les Lasers : un chercheur « normal » se serait alors contenté de me souhaiter bonne chance pour mes futures recherches. Mais François n'est pas un chercheur ordinaire, car il aime les défis impossibles, et il s'empressa donc de mentionner mystérieusement « j'aurais peut-être un sujet matériaux révolutionnaire, mais je viens d'en discuter aujourd'hui »... Il n'en fallait pas plus pour titiller ma curiosité, et avec la verve qui le caractérise, il me convainc que l'étude des cristaux non-linéaires pour la conversion de fréquence vers l'UV était l'un des enjeux majeurs de l'industrie mondiale des lasers : « *l'UV, c'est chaud* » F.B. Après des mois de montage de financement de bourse (F.B : « *Loïc, je t'ai trouvé un financement 1/2 DGA, 1/4 IOGS, 1/8 Fibercryst, 1/8 Eolite ça te dit ??* »), nous obtînmes finalement une bourse complète DGA, faisant de moi un patriote assumé et défenseur de la nation. Je débarquai donc à l'IOGS, et découvrit le monde des lasers pour la première fois, monde que j'allais apprendre à dompter le long de trois années de travail (plus ou moins) acharnées...

Durant ces trois années, j'ai eu le privilège de côtoyer des personnes incroyables, à la fois talentueuses et humbles, et sans qui je n'aurais rien pu apprendre. Je me suis appuyé pendant ces trois ans sur les réserves de connaissances de tous les membres du Groupe Lasers, qui ont patiemment supporté toutes mes questions idiotes (*Gaëlle, c'est quoi un faisceau Gaussien ??*), mes deux mains gauches (*Igor, j'ai encore cassé un module*) et mon esprit de contradiction maladif (*Patrick, dans la charte on met le logo IOGS à gauche, je peux le mettre à droite ?*) dans le seul but de me faire progresser. Je tiens sincèrement à remercier sans distinctions tous mes collègues, car cette thèse est autant la leur que la mienne. Merci de m'avoir donné le sourire chaque matin en arrivant au labo, vous avez été une réelle famille ces trois années.

Je commencerais donc par les permanents, qui sont les garants de l'unité et de la personnalité du Groupe Lasers.

Merci tout d'abord à François, qui a eu la lourde tâche de me superviser tout au long de cette aventure. Depuis les premiers jours au labo jusqu'à la fin, tu n'as pas cessé une seconde de croire en moi et de me pousser à faire des choses que je pensais trop difficiles. Je ne sais pas ce qui t'a donné cette confiance aveugle en mes capacités, mais sache que cela m'a permis mainte fois de ne pas abandonner et de me dépasser. Merci de m'avoir abreuvé d'idées toutes les plus saugrenues les unes que les autres : nous avons eu la preuve que certaines finissent par aboutir ! Merci d'avoir encouragé mon côté business/marketing, grâce à toi je n'ai plus honte de faire un diagramme de Gant sur mon tableau blanc pour prévoir nos manips,

ou de passer trois heures à choisir une police de caractère. Vu la suite des évènements pour moi je sens que je te retrouverais très souvent derrière les montages, projets et arrangements les plus farfelus, j'ai hâte de voir ce que tu vas pouvoir nous inventer ! Rendez-vous dans 10 ans en vidéo-conférences par drones interposés ?

Merci ensuite à Patrick, notre grand chef à plumes vénérable. Quand François était l'oncle farfelu m'envoyant dans des directions improbables, tu as été le sage père de famille rassurant durant ma thèse. Une fois que j'ai appris à ne pas tenir compte de ce que tu me racontais (vu que 99% de ce que dit Patrick est une farce destinée à vous faire marcher), on s'est amusé comme des petits fous : je profite de ce document officiel pour noter que Patrick m'a envoyé un rouleau de scotch dans la tête. Je ne pense pas avoir besoin de plus d'exemples pour vous donner une idée du personnage. Merci de m'avoir remonté le moral de si nombreux matins après avoir cassé des modules de fibres cristallines. Merci enfin Patrick pour ta bienveillance à l'égard du Groupe Lasers : tu as beau faire semblant d'être un scientifique sérieux et stricte, dans le fond je pense que tu ne souhaites qu'une chose, c'est que tous les thésards et permanents soient heureux au travail.

Merci énormément à Marc, qui bien que ne m'encadrant pas officiellement, a été mon référent théorique durant toute cette thèse. Merci Marc d'avoir à chaque fois, quel que soit la question, pris le temps de m'expliquer les nombreux concepts que je ne maîtrisais pas, tu es l'un des meilleurs pédagogues qu'il m'a été donné de rencontrer. Grâce à toi je n'ai plus honte de ne pas savoir, et je trouve (presque) la femto intéressante. Au-delà de la science, merci pour nos points geek quasi-journaliers, promis je ne dirais à personne que tu lis gamekult tous les jours et que tu sais donner les specs à la ligne près des dernières consoles. Enfin sache que j'ai rarement trouvé de gens dans mon travail maniant aussi bien l'humour noir et les ragots : c'était un plaisir d'en profiter !

Fred, merci pour avoir mis de la vie et de l'insouciance dans ce monde de scientifiques trop calmes. Te voir arriver le sourire aux oreilles tous les matins aux cafés était la garantie d'un grand nombre d'éclats de rires, parfois (souvent) à mes dépens. Merci pour m'avoir tenu compagnie à CLEO, même si tu m'as fait dormir dans la salle de bain : je te pardonne. J'espère grandement te revoir un jour présenter un nouveau cristal improbable (peut-être à Hawaï si tu arrives à y aller). Merci aussi pour tes conseils sur la photo ! Grâce à toi je m'y suis lancé pour de bon : à quand les photos sous-marines !!

Gaëlle, je peux maintenant te faire une confidence : tu m'as fichu la frousse un bon paquet de mois avant que je n'arrive à te cerner. Il faut dire que ta maîtrise de la physique impressionne, et on se retrouve vraiment à penser que mince, comment va-t-on faire sans comprendre les aberrations ? Mais en creusant un peu plus, j'ai découvert sous le masque de la rigueur une personne fragile et touchante, qui ne fait que reporter sur les autres l'exigence délirante qu'elle a envers elle-même. Tu fais du travail fantastique, et j'espère qu'un jour tu arriveras à être fière de l'ensemble de tes travaux (peut être pourras-tu écrire ton HDR alors haha?).

Xavier, je pense être le premier à pouvoir te placer avec les permanents du groupe, et j'en suis très fier !! Merci infiniment de m'avoir tant coaché dès mon arrivée. Tu avais beau n'être en thèse que depuis un an, tu m'as tellement aidé que ton nom devrait figurer quelque part sur mon manuscrit ! Je te remercie pour les très nombreux moments passés ensemble, que ce soit à faire boire des coups chez toi, boire des coups à Munich, boire des coups à Stuttgart, etc... Merci pour ton appart, j'en ai bien profité. Félicitations en tout cas pour ton poste de maître de conférence : tu avais beau ne pas être confiant, je suis persuadé que tu étais le meilleur candidat de loin, et que tu l'as amplement mérité. J'espère que tu te rends compte que tu es hyper compétent, même si tu es très pessimiste. Beaucoup de choses se sont passées depuis nos réunions ping-pong/montage de boîte : je suis déçu qu'on ne soit pas tous les deux de l'aventure, mais avec les futures collaborations public/privé, ce sera tout comme !

Igor, je voudrais te remercier pour ta patience infinie à mon égard. François m'a confié à toi avec la lourde tâche de me former aux modules de fibre cristalline, et ce ne fût pas la plus facile ! Merci de m'avoir tant aidé à poursuivre mes expériences. Merci pour ton planteur (je découvrirais la recette du pot marron aux épices), et merci pour ce superbe IONS à Zurich : avec Xavier vous m'avez convaincu de l'intérêt de cet évènement scientifique.

Yoann, tu as été dur à cerner au début : il faut dire que tu parles vite, fais des manip comme l'éclair, et a ce petit truc d'industriel qui fait qu'on a l'impression que ce que tu fais est plus important que nous. Mais j'ai découvert au fil des mois quelqu'un d'extrêmement humble, toujours prêt à m'expliquer un concept complexe en 3 mots et qu'en fait « c'est pas si compliqué ». C'est en te côtoyant que j'ai eu envie de travailler à Amplitude, et même si cela ne s'est finalement pas fait, je te remercie infiniment d'avoir tout fait pour m'aider à trouver le poste idéal. Je pense sincèrement qu'on aurait fait une équipe du tonnerre, et j'espère que l'on aura l'occasion de retravailler ensemble dans le futur !

Un grand merci à Nathalie et Sylvie pour leur bonne humeur ! Je n'oublie pas non plus les anciens « permanents » Alain et Dimitris, que j'ai sans remord exploité pour tous mes soucis techniques et scientifiques. Alain en particulier, si tu lis cette ligne merci d'avoir été un super collègue de bureau les pieds sur terre, prêt à passer deux heures à réparer un chiller capricieux ou à me montrer comment percer des trous !

En plus des permanents, le Groupe Laser tire sa force de ses nombreux thésards et post-doctorants, tous plus excellents les uns que les autres.

Merci d'abord aux anciens qui ont quitté le navire, et qui m'ont aidé pour tous les tracas de la vie quotidienne de thésard, vous avez pour moi des modèles à suivre. Sandrine, Patricia, Louis, et Fabiola, bon courage pour votre future carrière ! (Bon Patricia finalement tu es restée, je comprends que l'on te manquait trop)

Un énorme merci aux thésards arrivés (presque) en même temps que moi, Florence et Adrien. Florence, merci d'avoir été une si chouette collègue de bureau et d'avoir supporté le panier de basket et nos jurons constants. Grâce à toi j'ai sorti de ma mémoire le stéréotype de l'allemand rigide : une allemande qui aime le métal tout en faisant de l'équitation le dimanche matin sous la pluie, ce n'est pas courant ! Merci Adrien pour nos nombreuses discussions, grâce à toi j'aurais peut-être un jour un PC sous Linux. On se reverra sûrement à Bordeaux, bon courage à toi !

Je voudrais également remercier tout particulièrement les deux thésards d'Amplitude Florent et Julien. Julien, bon courage pour la fin de ta thèse ; tu as beau douter énormément de tes compétences je me suis senti bien nul à coté de toi. Contrairement à toi je suis sûr que tu seras embauché à Amplitude : je te rappelle que tu m'as promis une initiation à la pêche et des ballades en canoë ! Florent, merci d'avoir été un si formidable collègue de bureau. Bien que l'on se soit fait voler notre balle de basket (les salauds), je n'oublierai pas les parties mémorables gagnées à l'arrachée. Tu m'as convaincu que les fibres ont du potentiel, je vais tacher tant bien que mal de mettre tes enseignements en pratique ! Continu la piscine ça te fera du bien, même si avec Fred ça risque d'être plus sportif... En tout cas les gars j'espère vous revoir très souvent à Bordeaux : avec des guides aussi compétents je déménage l'esprit tranquille !

Enfin, je voudrais remercier tous les nouveaux arrivés après moi, et qui contribuent à faire vivre le groupe (au labo ou à l'ENSTA). Merci à Adrien (j'investie dans ton laser lasso si il marche), Paul (vive les repas gratos à la tour Eiffel), Guillaume (une bise à ta fille), Fabien (je te défie de battre mon record de modules cassés), Aymeric (si tu arrives à t'échapper de Nice).

Merci à tous les personnels de l'IOGS qui ont aidé ma thèse à se dérouler dans les meilleures conditions. Les mentions spéciales vont à : l'atelier Mécanique, et tout particulièrement à André Guilbaud, pour sa bonne humeur constante et son aide indispensable dans les expériences de compression de cristaux ; à Marie-Laure Edwards de la médiathèque, pour son efficacité surnaturelle dans la recherche de publications introuvables ; et enfin à Nathalie Baudry et Ghislaine Théneau de l'administration, pour m'avoir aidé à de multiples reprises dans mes débâcles administratives.

Je souhaiterais maintenant remercier tous mes collègues ayant participé à l'ANR UV-Challenge, qui m'ont fourni de nombreuses expériences et idées nouvelles tout au long de ces trois ans. Merci tout d'abord à Pascal et Gérard du LCMCP de Paris, qui ont répondu à mes nombreuses questions de cristallographie. Merci énormément à Simon : grâce à tes supers cristaux de CBF j'ai pu faire une magnifique conférence, et c'était un vrai plaisir de bosser avec toi ! Merci ensuite à Eolites Systems pour m'avoir accueilli pendant deux semaines et fourni des supers lasers verts, et notamment à François, Pedro et Damien. J'espère que l'on se reverra souvent à Bordeaux ! Merci à Alain et Régine du LMOPS pour s'être si bien occupé des cristaux de BBO en Czochralski, j'espère que cette histoire continuera ! Merci également à Daniel de FEE, j'espère vraiment que vous arriverez à bout de la croissance du YAB, bon courage !

Merci aux employés de Fibercryst ayant contribué à me fournir des modules, et particulièrement à Julien : merci d'avoir continué à me fournir des modules malgré mes échecs répétés !

If they read this, I would like also to thank Fredrik, Carlotta, Peter and Charlotte from KTH in Stockholm for letting me borrow their precious PPRKTP and shoot high power laser in them: I hope our collaborations will continue in the futur.

Merci également à Gabriel Mennerat pour nous avoir soufflé l'idée du RTP, et merci pour les nombreux conseils sur l'optique non-linéaire.

Merci à Philippe Adam pour les nombreuses discussions sur les applications des lasers UV, c'était très agréable d'avoir une vue applicative de nos manips !

Merci enfin à Pascal pour m'avoir fait confiance pour son projet Bordelais : le chemin sera long et difficile, mais je suis persuadé que nous y arriverons !

Pour finir ces remerciements, je voudrais d'abord remercier mes amis de Paris, et tout particulièrement Adrien et Niels, pour m'avoir si souvent accueilli et remonté le moral après une journée de manip infructueuse.

Merci ensuite énormément à ma famille qui m'a encouragé à poursuivre ces études, et sans le soutien desquels je ne serais pas arrivé jusque-là.

Enfin, merci à Cécile, qui a fait preuve d'un soutien, d'une patience et d'une douceur incroyable dans les moments difficiles de ma thèse, je n'y serais pas arrivé sans toi. Je suis chanceux de t'avoir eu à mes côtés tout ce temps, et suis encore plus heureux de poursuivre mes aventures bordelaises à tes côtés.

Table des matières

Remerciements.....	1
Introduction.....	10
I. État de l'art des lasers ultraviolets	13
I.1 Applications des lasers ultraviolets impulsionnels	13
I.2 Systèmes lasers ultraviolets existants	18
I.2.1 Les lasers à excimère	19
I.2.1.a Découverte et principe physique.....	19
I.2.1.b État de l'art des performances des lasers à excimère	20
I.2.2 Les lasers solides pompés par diode.....	21
I.2.2.a Découverte et principe physique.....	21
I.2.2.b Sources laser industrielles	22
II. Théorie de la conversion de fréquence	27
II.1 Effets non-linéaires d'ordre 2.....	27
II.1.1 Principe général.....	27
II.1.2 Coefficient non-linéaire deff.....	28
II.2 Calcul de l'efficacité de conversion d'un processus de SHG.....	29
II.2.1 Expression sans déplétion du signal fondamental.....	30
II.2.2 Expression avec déplétion du signal fondamental.....	31
II.2.3 La vie réelle : faisceaux gaussiens et logiciels de simulation	32
II.3 L'accord de phase.....	33
II.3.1 Le quasi-accord de phase	33
II.3.2 L'accord de phase par biréfringence	35
II.3.3 Paramètres affectant l'accord de phase Δk	37
II.3.3.a L'acceptance angulaire et la double réfraction	37
II.3.3.b L'acceptance spectrale et le walk-off temporel.....	38
II.3.3.c L'acceptance en température.....	39
II.4 Limitations des matériaux non-linéaires	40
II.4.1 Propriétés liées à la croissance cristalline.....	40
II.4.1.a Taille des cristaux disponibles.....	40
II.4.1.b Seuil de dommage.....	41
II.4.1.c Seuil de transparence et absorption.....	42

II.4.2	Effets de dégradation des cristaux non-linéaires.....	44
II.4.2.a	Effets photoréfractifs.....	44
II.4.2.b	Effets photochromiques (gray-tracking).....	45
II.4.2.c	Hygroscopie	46
II.4.2.d	Synthèse sur la dégradation des cristaux UV.....	47
II.4.3	Bilan des propriétés des cristaux non-linéaires	48
III.	Développement d'une source laser a 237 nm	54
III.1	Dimensionnement de la source laser ultraviolette	54
III.1.1	Besoins en sources lasers UV de longueur d'onde non-standard.....	54
III.1.2	Choix de l'architecture.....	55
III.1.3	Choix des technologies	57
III.1.3.a	Oscillateur pur ou MOPA ?	57
III.1.3.b	Q-switch ou verrouillage de mode ?.....	57
III.1.3.c	Choix de la fibre cristalline.....	57
III.1.3.d	Système de conversion de fréquence	58
III.1.3.e	Bilan de l'architecture	58
III.2	Développement de la source laser déclenchée à 946 nm.....	59
III.2.1	Rappel des propriétés spectroscopiques du Nd :YAG.....	59
III.2.2	Architecture finale du laser	61
III.2.3	Design de la cavité laser	63
III.2.3.a	Mesures de lentille thermique	64
III.2.3.b	Design cavité	66
III.2.3.c	Mesures des profils de faisceau.....	68
III.2.4	Dépolarisation dans le Nd:YAG	68
III.2.4.a	Rappels théoriques sur la dépolarisation.....	68
III.2.4.b	Méthodes de compensation de la dépolarisation	69
III.2.4.c	Mesures de dépolarisation	72
III.2.5	Régime déclenché	73
III.2.5.a	Rappels théoriques sur le régime déclenché.....	73
III.2.5.b	Choix du déclencheur	74
III.2.5.c	Gestion du seuil de dommage par le coupleur variable.....	75
III.2.5.d	Caractérisation des impulsions.....	77
III.3	Conversion de fréquence vers l'ultraviolet.....	78
III.3.1	Génération de second harmonique vers 473 nm	78
III.3.1.a	Cristaux non-linéaires disponibles	78

III.3.1.b	Choix des paramètres de conversion	79
III.3.1.c	Expériences de doublement de fréquence vers 473 nm	80
III.3.2	Génération de quatrième harmonique vers 236,5 nm	82
III.3.2.a	Choix des cristaux	82
III.3.2.b	Choix des paramètres.....	83
III.3.2.c	Mesures expérimentales de conversion vers 236,5 nm	84
III.4	Bilan et perspectives	86
IV.	Nouveaux cristaux non-linéaires pour l'UV.....	90
IV.1	Propriétés du CBF pour la THG à 343nm.....	91
IV.1.1	Contexte.....	91
IV.1.2	Croissance de cristaux de CBF.....	91
IV.1.2.a	Structure chimique.....	91
IV.1.2.b	Méthode de croissance cristalline.....	92
IV.1.2.c	Cristaux de CBF réalisés.....	92
IV.1.3	Génération de 3 ^{ème} harmonique à 343 nm.....	94
IV.1.3.a	Propriétés non-linéaires.....	94
IV.1.3.b	Expériences de génération de 3 ^{ème} harmonique à 343 nm	96
IV.1.4	Conclusion et perspectives.....	98
IV.2	Propriétés du BBO en croissance Czochralski pour la FHG à 257 nm.....	100
IV.2.1	Contexte.....	100
IV.2.1.a	Croissance du BBO	100
IV.2.1.b	Propriétés du BBO CZ pour la conversion de fréquence vers l'UV	101
IV.2.1.c	Plan d'expérience	103
IV.2.2	Résultats expérimentaux.....	104
IV.2.2.a	Caractérisation optique des cristaux	104
IV.2.2.b	Génération de quatrième harmonique à basse puissance moyenne.....	105
IV.2.2.c	Génération de 4 ^{ème} harmonique à forte puissance moyenne	107
IV.2.3	Conclusion et perspectives.....	110
V.	Accord de phase par contrainte mécanique.....	112
V.1	Etude théorique de l'accord de phase mécanique.....	113
V.1.1	Etude de la biréfringence de différents accords de phases.....	113
V.1.1.a	Principe général.....	113
V.1.1.b	Calcul des biréfringences correspondantes	114
V.1.1.c	Choix du cristal à contraindre	117
V.1.2	Notions théoriques.....	117

V.1.2.a	Contrainte mécanique et déformation.....	117
V.1.2.b	Déformation et biréfringence induite	121
V.1.2.c	Calcul global et simulation par éléments finis	122
V.2	Mise en contrainte de cristaux non-linéaires	125
V.2.1	Théorie du seuil de dommage d'un cristal	125
V.2.2	Design de la monture de compression.....	126
V.2.2.a	Choix de la technologie	126
V.2.2.b	Compression appliquée par vis	126
V.2.2.c	Design de la monture mécanique.....	127
V.2.2.d	Etalonnage de la monture.....	128
V.2.3	Mesures de photo-élasticimétrie	130
V.2.3.a	Principe général.....	130
V.2.3.b	Mise en place du banc de mesure.....	131
V.2.3.c	Caractérisation de la mise en contrainte.....	132
V.2.4	Estimation de la biréfringence et accord avec la théorie	135
V.3	Accord de phase mécanique	139
V.3.1.a	Schéma expérimental.....	139
V.3.1.b	Résultats expérimentaux.....	140
V.3.1.c	Conclusion sur les mesures	143
V.4	Perspectives et conclusion	144
	Conclusion générale	145
	Annexe 1 - lasers ultraviolets industriels.....	148
	Annexe 2 - Longueurs d'onde accessibles par conversion de fréquence.....	149
	Annexe 3 - SHG à haute puissance dans du PPRKTP	151
	Annexe 4 - Conversions de fréquence vers l'ultraviolet.....	158
	Liste des publications et conférences de l'auteur	168
	Bibliographie.....	170
	Développements et nouveaux concepts pour les lasers solides ultraviolets ...	183

INTRODUCTION

En 1801, Johann Wilhelm Ritter, philosophe et scientifique allemand, étudie activement le chlorure d'argent, un composé chimique ayant la particularité de noircir d'autant plus que la lumière qui l'éclaire se rapproche du bleu. Certainement un peu jaloux de la découverte de son confrère William Herschel en 1800 des rayonnements « calorifiques », aujourd'hui appelés rayonnements infrarouges, il décide d'explorer l'autre partie du spectre de la lumière. Il remarque donc que le chlorure d'argent continue à noircir au-delà du bleu, signe qu'il existe un rayonnement au-delà de celui-ci : le rayonnement ultraviolet fut découvert, mais fut nommé pendant longtemps « rayonnement chimique ».

Aujourd'hui si l'on parle de rayonnements ultraviolets au commun des mortels, on nous conseillera sûrement la crème Nivea Sun 50+ avec protection contre le sable et l'eau. La dangerosité des rayonnements UV¹ est effectivement connue, mais pas les nombreuses applications que le développement de lasers ultraviolets a permis. Que ce soit pour découper les verres de nos magnifiques et fragiles smartphones ou bien corriger une myopie handicapante, les lasers ultraviolets sont aujourd'hui indispensables dans de nombreux procédés industriels, scientifiques et médicaux. La plupart sont encore constitués d'un milieu à gaz pompé électriquement : ce sont les lasers à excimère. Puissants (le VYPER de Coherent est un laser de 1,2 kW à 308 nm) mais très couteux et complexes à opérer, ces lasers tendent de plus en plus à être remplacés par des lasers solides infrarouges pompés par diode, puis convertis en fréquence vers l'ultraviolet dans des cristaux non-linéaires. Les spécifications des sources dans l'UV requises sont de plus très variables selon les applications : selon le domaine, on peut avoir par exemple besoin de lasers à très basse cadence (10-100 Hz pour la spectroscopie) ou de très hautes cadences (centaines de kHz pour le micro-usinage). Les lasers pompés par diode permettent de répondre à ces différents besoins grâce aux nombreuses technologies disponibles.

Si l'on peut aujourd'hui acheter des lasers infrarouges pulsés de plus de 500 W chez nos amis allemands, les spécifications des lasers UV sont bien inférieures. Avec des puissances moyennes faibles de quelques dizaines de watts maximum, voire de quelques watts seulement pour les modèles émettant autour de 260 nm, la fabrication de lasers solides UV puissants et fiables pose toujours problème. Dans ces systèmes, un laser dans le domaine infrarouge est converti en fréquence vers le domaine ultraviolet grâce à deux étages non-linéaires basés le plus souvent sur la somme de fréquences. Et tandis que la conversion de fréquence vers le visible est efficace et bien maîtrisée, celle vers l'UV cristallise² différents problèmes. En effet, le cristal non-linéaire « parfait » doit combiner plusieurs caractéristiques. Tout d'abord, un accord de phase par biréfringence vers l'ultraviolet nécessite des cristaux fortement biréfringents, et l'on verra que cela va en général de pair avec de mauvaises propriétés lors de la conversion de fréquence. De plus, le cristal doit être transparent aux longueurs d'onde générées, or la transparence des matériaux à tendance à chuter dans le domaine ultraviolet pour la majorité des cristaux non-linéaires. Enfin, le cristal doit être résistant aux effets de dégradation qui apparaissent dans de nombreux matériaux lorsqu'on les irradie avec de la lumière ultraviolette. Dans la pratique, on verra dans ce manuscrit que les cristaux non-linéaires pour l'UV combinent rarement toutes ces propriétés, et l'on doit alors réaliser nos expériences dans des conditions plus difficiles qu'une conversion de fréquence vers le visible par exemple.

Lors de cette thèse, nous avons voulu étudier de manière globale la problématique de la conversion de fréquence vers l'ultraviolet à forte puissance. Pourquoi est-il si difficile d'obtenir de la puissance dans l'ultraviolet ? Quels sont les problèmes qui apparaissent de manière récurrente ? Sont-ils les mêmes selon le laser source utilisé ? Selon le cristal utilisé ? Peut-on les résoudre ? Plus spécifiquement, c'est la génération de 4^{ème} harmonique qui semblait poser le plus de problèmes : nous avons donc tout

¹ Le mot « ultraviolet » étant inscrit X fois dans ce manuscrit, il sera par la suite remplacé par « UV »

² De nombreux jeux de mots douteux parsèmeront ce récit, à charge au lecteur d'en apprécier la qualité

naturellement choisi de nous concentrer sur ce sujet. Pour ce faire, nous avons voulu aborder le problème sous plusieurs angles. D'abord, pour bien comprendre les sources ultraviolettes, il fallait en construire. Fort heureusement, le groupe Lasers du Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique développe de nombreuses sources laser puissantes, de la femtoseconde à la nanoseconde. Pour se « faire la main », nous avons donc vogué de marbre en marbre, convertissant vers l'ultraviolet toute source laser laissée hors d'attention. Une fois confiant, il fallait se trouver un défi plus intéressant. Nous avons depuis longtemps l'ambition de réaliser des lasers solides émettant aux longueurs d'onde des lasers à excimère. De plus, la DGA nous fit part de son intérêt pour certaines longueurs d'onde ultraviolettes très intéressantes pour la détection de matières dangereuses, qui n'étaient pas accessibles simplement par conversion de fréquence des lasers « standards » infrarouges. Une bande qui les intéressait était par exemple la bande 230-240 nm. L'un de mes prédécesseurs Dr Xavier Délen avait démontré quelques mois auparavant des performances record en continu à 946 nm dans un oscillateur en fibre cristalline. Une expérience se dessinait alors : développer un oscillateur pulsé à 946 nm, et le convertir en fréquence vers 236,5 nm par génération de 4^{ème} harmonique. Ces expériences nous ont permis de comprendre quels étaient les problèmes lors de la conversion de fréquence vers l'UV avec des matériaux « classiques ». Un deuxième volet de cette thèse se construisit par la suite avec notre participation à l'ANR UV-Challenge. Ce projet de recherche, composé de laseristes, chimistes et industriels, s'est donné pour but d'étudier de nouveaux cristaux non-linéaires pour la génération d'ultraviolet. Nous avons donc participé à la caractérisation d'échantillons préliminaires de ces matériaux. Enfin, nous avons eu l'occasion de mettre en œuvre une idée particulièrement saugrenue, qui était de contraindre mécaniquement des cristaux non-linéaires afin de modifier leurs propriétés d'accord de phase. Cette technique n'ayant jamais été démontrée auparavant sur des cristaux non-linéaires, cela fut le prétexte à de nombreuses expériences sur des aspects des cristaux non-linéaires d'habitudes peu étudiés. Ce projet reçut un financement dans le cadre d'un contrat ASTRID à la fin de ma deuxième année.

Après avoir introduit les lasers UV dans le Chapitre I, et détaillé la théorie de la conversion de fréquence dans le Chapitre II, nous séparerons les travaux expérimentaux réalisés lors de cette thèse en trois grands volets, qui constitueront les chapitres III, IV et V de ce manuscrit. Le chapitre 3 sera consacré à la réalisation d'une source laser ultraviolet à 236 nm, comprenant le développement d'un oscillateur nanoseconde à 946 nm basé sur la technologie de la fibre cristalline, ainsi que deux étages de génération de second harmonique. Le chapitre 4 présentera des expériences de conversion de fréquence vers l'ultraviolet réalisées dans des nouveaux cristaux non-linéaires obtenues grâce à diverses collaborations. Nous présenterons d'abord des expériences de génération de troisième harmonique dans un nouveau cristal non-hygroscopique développé par le laboratoire LCMCP de Chimie Paris, le CBF. Puis, nous montrerons que des cristaux de BBO obtenus avec des méthodes de croissances différentes présentent des performances différentes lors d'expériences de génération de quatrième harmonique à forte puissance moyenne.

Pour finir, le cinquième chapitre sera consacré à la technique d'accord de phase mécanique : nous démontrerons un nouveau concept d'accord de phase basé sur la forte compression mécanique de cristaux non-linéaires dans le but de modifier leurs accords de phases.

CHAPITRE I :

Etat de l'art des lasers ultraviolets

I. ÉTAT DE L'ART DES LASERS ULTRAVIOLETS

Comme nous l'avons vu dans l'introduction, nous avons réalisé pendant cette thèse différentes sources laser impulsionnelles UV de forte puissance. Par conséquent, l'état de l'art qui suivra ne traitera pas des sources laser UV continues, bien qu'elles soient utilisées dans l'industrie³. Dans ce chapitre, on cherchera à répondre à trois questions majeures lorsque l'on s'intéresse aux lasers ultraviolets :

- À quoi servent-ils ?
- Quelles technologies sont utilisées pour les réaliser ?
- Quels sont les performances maximales démontrées dans l'industrie ?

On ne traitera dans cette partie que les lasers ultraviolets ; les cristaux non-linéaires pour l'ultraviolet seront abordés dans le chapitre 2.

I.1 Applications des lasers ultraviolets impulsionnels

Un laser ultraviolet solide est dans la majorité des cas plus coûteux et moins efficace qu'un laser infrarouge de même puissance ; en effet, il nécessite la mise en place d'un système de conversion de fréquence ayant une efficacité de 10 à 30 % en moyenne⁴. Un laser à excimère UV quant à lui nécessite des conditions de sécurité particulières, qui le rendent très couteux. Il faut donc justifier ces coûts supplémentaires, et pour cela il faut comprendre en quoi les propriétés d'un laser ultraviolet diffèrent de celles d'un laser infrarouge.

Tout d'abord, un photon ultraviolet a par définition une longueur d'onde plus courte qu'un photon infrarouge. Or, on peut montrer que le diamètre minimal de spot laser que l'on peut focaliser est limité par le principe de diffraction, et qu'il est proche de $\lambda/2$ ⁵. Avec un laser ultraviolet, on va donc pouvoir atteindre des tailles de spot laser plus petites qu'avec un laser infrarouge, et donc imprimer des motifs plus petits dans les matériaux. La figure I-1 illustre la diminution de la taille des composants microélectroniques de 1980 à 2004 ainsi que la longueur d'onde des sources laser utilisées. La diminution de la longueur d'onde des sources laser a été continue au cours du temps, depuis les lignes G (436nm) et I (365nm) des lampes au mercure, jusqu'aux lasers à excimère F₂. Des systèmes dit Extrêmes-UV (EUV) autour de 13 nm sont même actuellement en développement. Les systèmes optiques utilisés ont également progressé pour permettre la réalisation de dispositifs de taille inférieure aux longueurs d'onde utilisées (objectif à immersion).

De plus, l'énergie d'un photon est définie par :

$$E(eV) = \frac{1,24}{\lambda(\mu m)} \quad \text{Eq. I-1}$$

³ Par exemple, les sources lasers ultraviolettes continues permettent de détecter des impuretés de quelques dizaines de nanomètres dans les wafers de silicium (Okamoto et al. 2006), et jouent donc un rôle majeur dans l'industrie de la microélectronique.

⁴ Comme on le verra dans les chapitres suivants, cette valeur est hautement approximative et dépend de nombreux paramètres.

⁵ Même si de nombreuses techniques et systèmes optiques ont été développés pour s'affranchir de ce principe (Anon 2009).

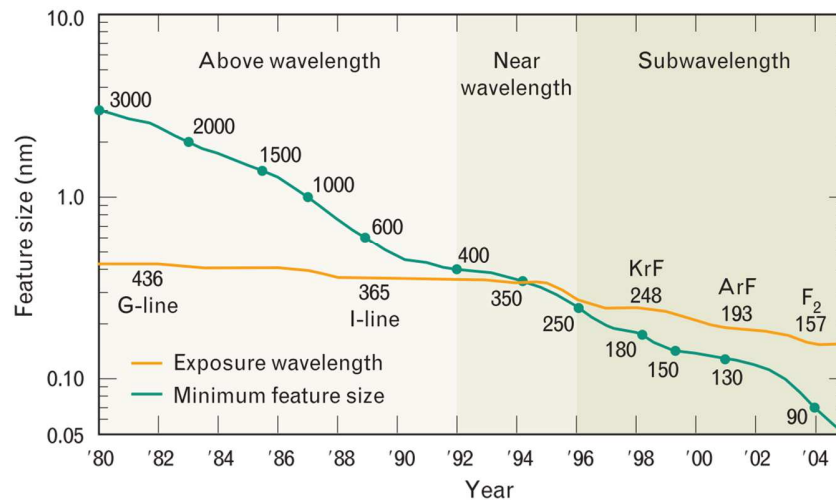


Figure I-1 : Évolution de la taille minimale des structures en microélectronique et de la longueur d'onde des lasers utilisés entre 1980 et 2004 (Rothschild & Bloomstein 2003).

À titre d'exemple, un photon à UV à 355 nm obtenu par la génération de 3^{ème} harmonique d'un laser Nd:YAG à 1064 nm a une énergie trois fois supérieure à son confrère infrarouge. Cette propriété est extrêmement importante car elle est à l'origine de la majeure partie des applications des lasers UV. En effet, elle a plusieurs conséquences.

Tout d'abord, grâce à l'énergie plus importante des photons ultraviolets, on va pouvoir accéder à des niveaux atomiques plus profonds dans les atomes. On peut même dans certaines conditions arracher des électrons à des atomes, et les récupérer pour ensuite les injecter dans des accélérateurs de particules ou des lasers à électrons libres⁶. Les dispositifs produisant ces électrons sont appelés photocathodes : il faut savoir que plus l'on sera capable d'arracher un grand nombre d'électrons aux photocathodes, et plus la brillance de la source d'électrons sera élevée. Dans le cas de l'accélérateur de particules par exemple, cette brillance est extrêmement importante car elle détermine la taille du dispositif d'accélération nécessaire. En effet, les limites des accélérateurs modernes sont imposées par la taille des installations (Par exemple, Le LHC à Genève a une circonférence de 27 km). La figure I-2 ci-dessous indique les longueurs d'onde minimales à atteindre dans l'ultraviolet pour ioniser les matériaux composant les photocathodes (Pimpec et al. 2013) : on y voit qu'il est impératif de disposer d'un laser ultraviolet.

De plus, un photon UV va pouvoir provoquer des transitions électroniques d'énergie plus élevées au sein d'un matériau qu'un photon infrarouge. Certaines molécules biologiques, de par leur structure énergétique complexe, voient leur coefficient d'absorption augmenter fortement dans l'UV. La figure I-3 représente les spectres d'absorption dans l'ultraviolet de quatre des plus dangereux matériaux explosifs, dont la bien connue TNT (Tuschel et al. 2010). On y voit que leur absorption augmente fortement lorsque l'on les illumine avec des sources ultraviolettes de longueur d'onde inférieure à 300 nm. On peut donc utiliser cette propriété afin de détecter de nombreux composés à caractère nucléaire, radiologique, bactériologique ou chimique (NRBC).

⁶ Ce qui n'est pas la première idée qui vient à l'esprit, il faut bien en convenir

Material	Work function (eV)	Wavelength λ (nm)
Mg	3.66	339
Al	4.06–4.26	310–290
Cu	4.53–5.10	274–245
MgO	2.8	443
Al ₂ O ₃	3.9	318
Cu ₂ O	5.2	239
CuO	5.3	234

Figure I-2: Énergies d'ionisation de différents matériaux pour photocathodes et longueurs d'onde correspondantes

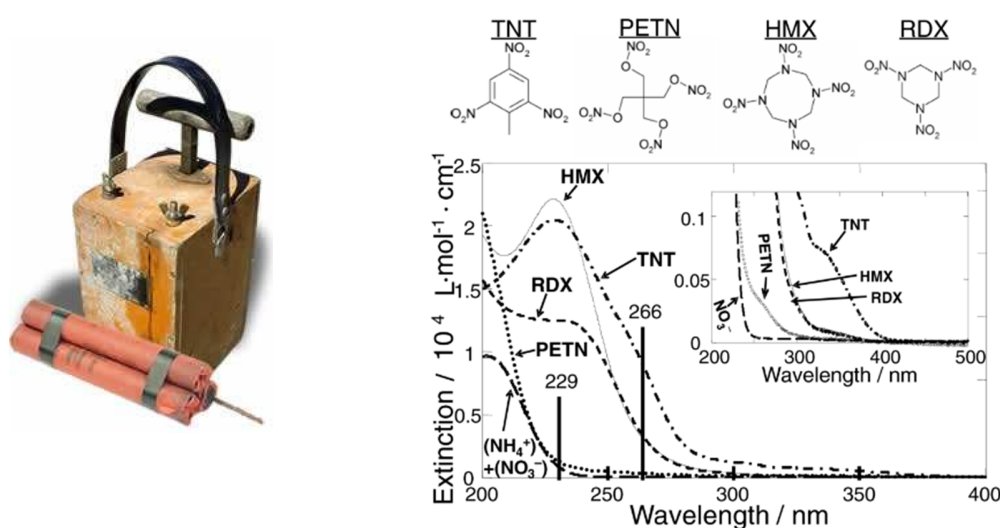


Figure I-3 : Spectres d'absorption dans l'ultraviolet de quatre composés explosifs. L'absorbance des molécules est représentée par un coefficient d'extinction mesuré à l'aide d'un spectrophotomètre.

Plus généralement, de nombreux matériaux voient le coefficient d'absorption des matériaux augmenter fortement dans l'ultraviolet. Cela a deux conséquences sur la manière dont un laser ultraviolet va interagir avec ces matériaux. Premièrement, des matériaux transparents ou peu absorbants dans l'infrarouge vont pouvoir être usinés ou marqués : on retrouve parmi ces matériaux les plastiques, les résines, le verre, le saphir, etc. Le saphir et le verre en particulier n'absorbent efficacement que les longueurs d'onde basses, comme le montre les deux courbes de la figure 4 ci-dessous (Kitamura et al. 2007) : l'utilisation de lasers ultraviolets peut augmenter les coefficients d'absorption de plusieurs ordres de grandeurs. La découpe du verre par laser est un enjeu majeur pour la réalisation des écrans plats, des panneaux solaires, des écrans de smartphones etc... Quand au saphir, il est déjà utilisé en masse comme substrat pour les LED ainsi que dans l'horlogerie. Très résistant aux rayures (c'est le deuxième matériau le plus résistant après le diamant), ce dernier est présenté comme remplacement du verre pour les écrans de

smartphones, comme le montre l'investissement récent d'Apple de 587 millions de dollars dans la société GT Advanced Technology, producteur de saphirs⁷.

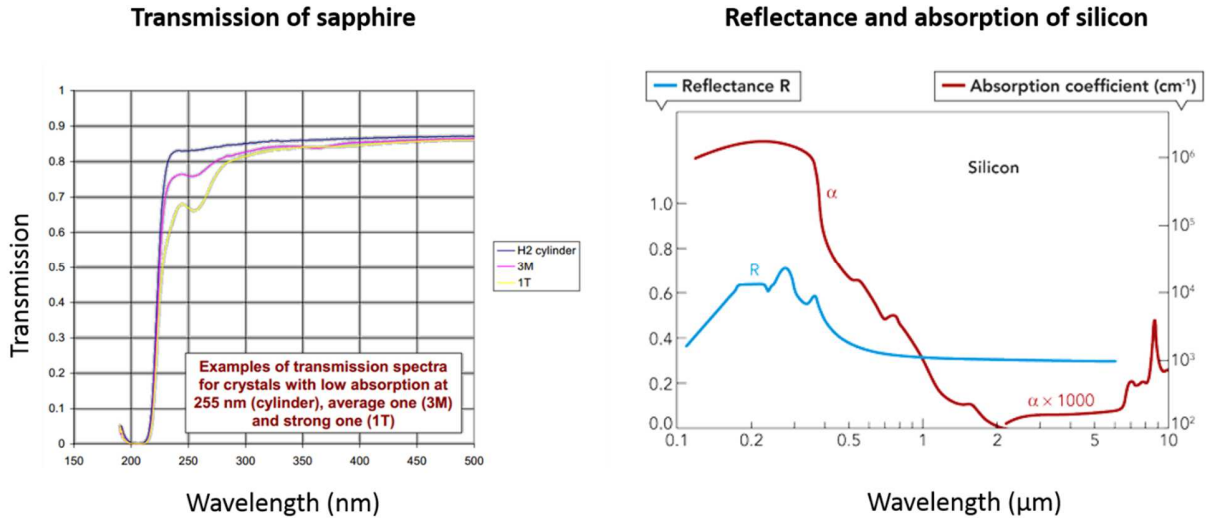


Figure I-4: Transmission du saphir (à gauche) et coefficient d'absorption de la silice (à droite) en fonction de la longueur d'onde

Deuxièmement, l'augmentation du coefficient d'absorption des matériaux dans l'ultraviolet a une autre conséquence bienvenue : les matériaux absorbant la lumière plus efficacement, la profondeur de pénétration d'une impulsion laser ultraviolette y est bien plus réduite. La figure I-5, extraite de mesures

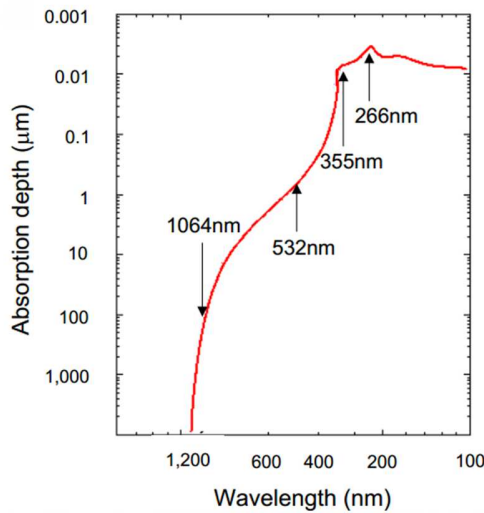


Figure I-5: Profondeur d'absorption du silicium en fonction de la longueur d'onde du laser utilisé

⁷ <http://www.cnet.com/news/apple-inks-578-million-deal-for-sapphire-production/>, cet accord leur assurant vraisemblablement l'approvisionnement pour leur prochaine génération d'iPhones et de l'iWatch

effectuées par Spectra Physics⁸, présente la profondeur de pénétration d'une impulsion laser dans le silicium en fonction de sa longueur d'onde.

Grâce aux lasers ultraviolets, on peut concentrer l'intensité d'une impulsion sur une profondeur d'une dizaine de nanomètres : ces lasers sont donc majoritairement utilisés quand il faut graver ou percer des motifs nanométriques ou micrométriques dans un matériau. Ce domaine est appelé micro-usinage, et couvre un champ d'applications extrêmement vaste : on y retrouve pêle-mêle le perçage des trous de buse des imprimantes à jet d'encre, la fabrication micro-tubes (cathéter) pour l'analyse du sang chez les nourrissons, le marquage de panneaux solaires ou bien la nano-structuration de surface. Toutes ces applications sont illustrées dans la figure I-6.

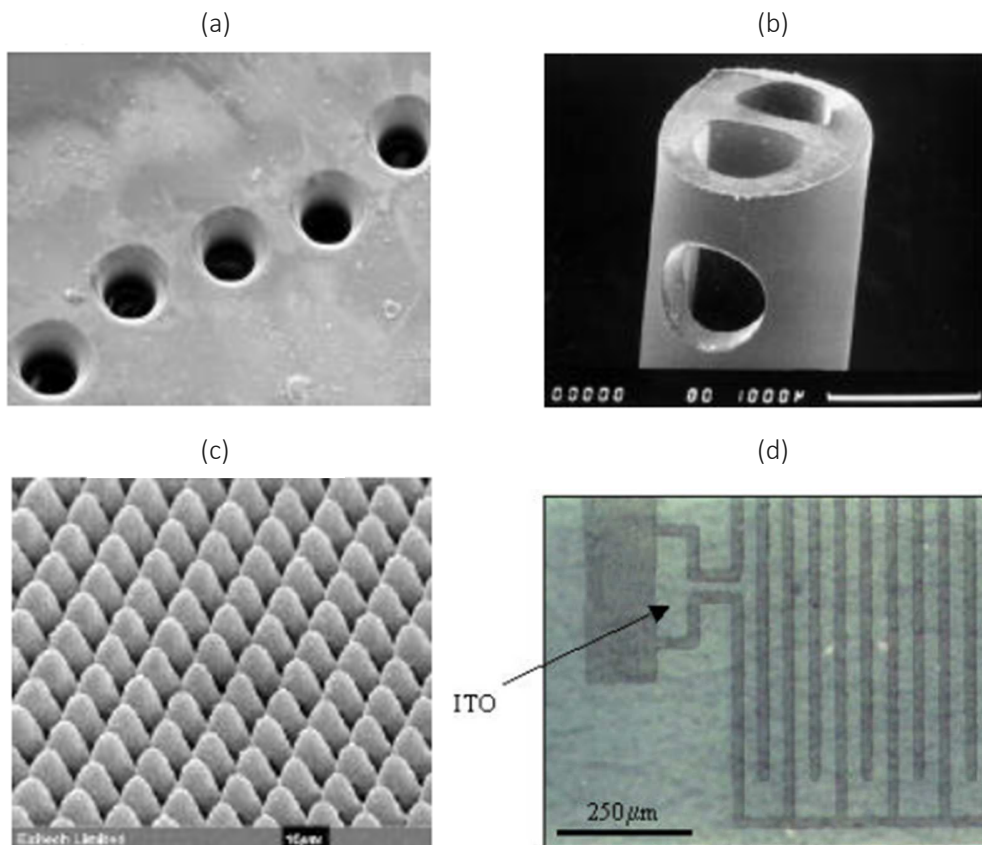


Figure I-6: Illustration des applications des lasers ultraviolets en micro-usinage. (a) Perçage des buses d'imprimantes à encre ; (b) micro-usinage de cathéter pour nourrissons ; (c) micro-texturation de surface anti-réfléctive de type "moth-eye" ; (d) marquage de verre de panneaux solaires

La précision des lasers UV est telle que l'on peut usiner des matériaux très sensibles, comme la cornée de notre œil : la chirurgie réfractive pour la myopie, appelée LASIK, utilise un laser ultraviolet pour corriger la cornée de l'œil (Pallikaris & Siganos 1994).

Sous certaines conditions, la localisation de l'énergie dans le matériau va être si forte qu'un plasma se crée et éjecte des particules du matériau usiné : les défauts dus à un échauffement ou à une craquelure

⁸ <http://www.lia.org/PDF/chapters/LIACA053106.pdf>

sont fortement réduits, et on parle alors de micro-usinage « froid » (*cold ablation*). Il faut noter que le terme d'usinage « froid » est également utilisé pour décrire la cassure directe des liaisons chimiques de certaines molécules sous irradiation UV. Il est donc souvent difficile de différencier ces phénomènes distincts lors des procédés de micro-usinage ; pour plus de détails sur les différents phénomènes se déroulant lors du micro-usinage UV, le lecteur est invité à lire le très intéressant travail de Bityurin sur l'usinage des polymères (Bityurin et al. 2003). Si l'on place un substrat en face du matériau « usiné », on va pouvoir déposer les particules éjectées du matériau sur le substrat avec une épaisseur très fine, c'est le principe du dépôt de couches minces par laser (*PLD, Pulsed laser deposition*) (Ashfold et al. 2004).

Pour conclure, on peut résumer les applications des lasers ultraviolets grâce au diagramme ci-dessous.

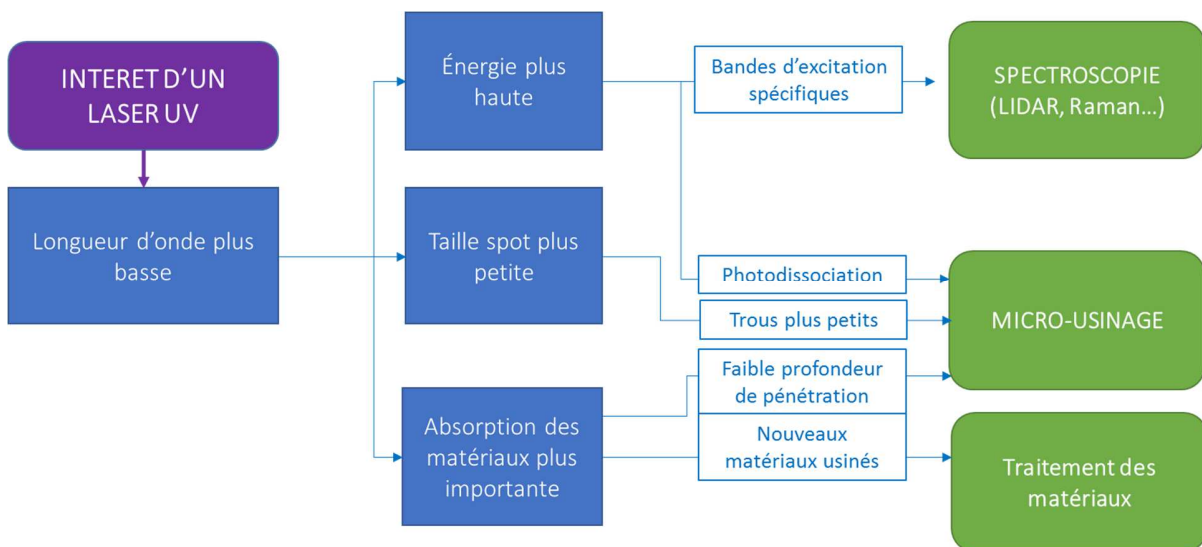


Figure I-7: Résumé des applications des lasers ultraviolets, et intérêt par rapport à un laser infrarouge

Les applications des lasers ultraviolets sont donc très vastes, et couvrent des domaines d'applications allant de la spectroscopie au traitement des matériaux, en passant par le micro-usinage. Dans la partie suivante, nous allons nous intéresser aux différents systèmes lasers ultraviolets existants.

1.2 Systèmes lasers ultraviolets existants

On peut classer la majeure partie des lasers ultraviolets impulsionnels disponibles sur le marché en deux grandes catégories : les lasers à excimère et les lasers solides convertis en fréquence. Pour chaque technologie, nous détaillerons d'abord les principes physiques permettant la génération de rayonnement ultraviolet ; puis, nous donnerons un aperçu des performances des lasers industriels ainsi que des performances démontrées en laboratoire. Nous commencerons par les lasers à excimère : bien que nous ne les ayons pas étudiés dans le cadre de la thèse, ils sont historiquement les premiers lasers ultraviolets développés et les plus performants à l'heure actuelle en termes de puissance moyenne et d'énergie.

I.2.1 Les lasers à excimère

Source: *Excimer Laser Technology*, Dirk Basting, Springer.

I.2.1.a Découverte et principe physique

Les lasers à excimère sont une catégorie particulière des lasers à gaz, dont le principe général est de changer l'état électronique d'une molécule de gaz par une décharge électrique : en revenant à son état initial, la molécule émet un photon de longueur d'onde dépendante de l'énergie de la transition concernée.

Dans un laser à excimère, un gaz noble (argon, krypton...) est mélangé à un halogène (fluore, chlorure). Les deux gaz sont inertes à l'état fondamental, mais peuvent se lier lorsqu'ils sont dans leur état excité à la suite d'une décharge électrique : ils forment alors une molécule appelée excimère, le nom d'« excimère » étant la contraction de « *excited dimer* »⁹. Après une dizaine de nanosecondes environ, l'excimère se dissocie pour retourner à son état stable en émettant une radiation ultraviolette de quelques eV. Le très faible temps de vie du niveau émetteur nécessite des densités de pompage extrêmement importantes pour atteindre une forte inversion de population c'est pourquoi on ne trouve que des lasers à excimère impulsionnel en régime nanoseconde, l'émission en régime continu étant technologiquement très difficile à réaliser¹⁰. La figure I-8, (Basting et al. 2002), présente les différentes longueurs d'onde UV émises par les principaux lasers à excimère ainsi que le diagramme énergétique de l'excimère KrF*.

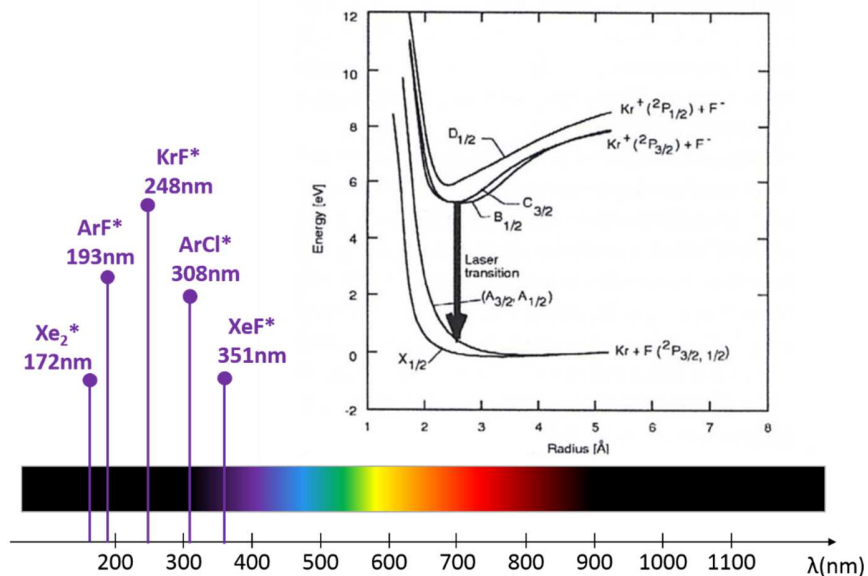


Figure I-8: Longueur d'onde d'émission des principaux excimères et diagramme énergétique de la molécule KrF*

⁹ Rigoureusement parlant, un dimère est normalement une molécule composée de deux atomes identiques, mais l'usage est d'y inclure les composés asymétriques tels que les molécules excimères. Pour être plus rigoureux, il faudrait les appeler exciplexes.

¹⁰ On peut cependant trouver des papiers théoriques (Christensen 1987) et demandes de projet de l'armée américaine en faisant mention (<http://www.sbir.gov/sbirsearch/detail/278871>)

Le premier laser à excimère fut démontré en 1970 dans un dimère de xénon liquide (Xe_2) pompé par un faisceau d'électrons (Basov et al. 1970). La démonstration d'effets laser dans la plupart des autres excimères connus suivirent dès 1975 (Mangano & Jacob 1975; Brau & Ewing 1975; Ewing & Brau 1975; Ault et al. 1975).

1.2.1.b État de l'art des performances des lasers à excimère

La forte demande du marché du traitement et de l'usinage des matériaux a poussé le développement des lasers à excimère. Ils sont aujourd'hui construits dans des matériaux très résistants à la corrosion, et ne nécessitent que peu d'entretien à l'exception du gaz qui reste à remplacer tous les mois environ¹¹. Le marché industriel des lasers à excimère est dominé par Coherent¹², qui dispose des records de puissance moyenne dans toutes les longueurs d'onde. Le tableau ci-dessous résume les performances maximales des lasers de Coherent et de l'un de leur concurrent, AMS Technology.

Maximum average power (W)					
Wavelength(nm)	157	193	248	308	351
AMS		20	60	50	30
COHERENT	2,5	50	300	1200	26

Tableau I-1 : Puissance moyenne des lasers à excimère industriels

On notera notamment l'impressionnant modèle VYPER de Coherent émettant 2 J à 600 Hz à 308 nm, soit une puissance moyenne de 1,2 kW ! Ce laser est destiné au micro-usinage de matériaux et à la microélectronique, il est illustré dans la figure I-9 ci-dessous.

Pour un grand nombre d'applications nécessitant des fortes puissances moyennes, des énergies élevées ou des longueurs d'onde courtes dans l'ultraviolet, les lasers à excimère sont incontournables. Solides et fiables, leur durée de vie n'est aujourd'hui limitée que par les optiques utilisées, si l'on exclut le remplacement du gaz qui est un consommable dans ces lasers (la durée de vie du gaz du modèle VYPER ci-dessus est de 45 min environ à utilisation maximale). Néanmoins, ces lasers nécessitent des conditions de sécurité très strictes, liées à la fois à la présence de gaz très toxiques (le fluor ou le chlore par exemple peuvent avec l'hydrogène former les acides chlorhydriques et fluorhydrique, qui sont parmi les acides les plus dangereux) et aux très forts courants électriques nécessaire à l'obtention de fortes puissances. Pour toutes ces raisons, la majeure partie des applications nécessitant de plus faibles puissances ont remplacé les lasers à excimère par des lasers solides pompés par diode convertis en fréquence vers l'ultraviolet, que nous allons présenter dans la partie suivante.

¹¹ Dans un laser à excimère, le gaz doit être remplacé pour deux raisons. Premièrement, les chambres ne sont généralement pas scellées, et des impuretés viennent se mélanger au gaz de la chambre, impuretés qui peuvent absorber les longueurs d'ondes lasers en présence. De plus, l'interaction des gaz avec les matériaux de la chambre laser peut conduire à des réactions diminuant la concentration des composés utiles à l'effet laser ; ces deux phénomènes conduisent à une baisse de l'efficacité du laser dans le temps

¹² Principalement depuis leur rachat de la société Lambda Physics



Figure I-9 : Photo du laser VYPER de 1,2 kW à 308 nm de Coherent

I.2.2 Les lasers solides pompés par diode

I.2.2.a Découverte et principe physique

Quelques années seulement après l'invention du laser en 1960 fut démontré la possibilité de convertir un rayonnement infrarouge en rayonnement visible, voir ultraviolet, par somme de fréquences (Franken & Hill 1961; Ashkin *et al.* 1963). Il fut dès lors possible d'utiliser les caractéristiques très intéressantes des lasers solides pompés optiquement, plus sûrs et plus efficaces que les lasers à excimère, et de les transposer dans l'ultraviolet. Dans un laser solide ultraviolet, on retrouve toujours la même architecture¹³ : un laser solide, souvent basé sur l'ion Néodyme ou Ytterbium, émet un faisceau dans l'infrarouge d'une puissance suffisante pour permettre la génération d'harmonique dans un cristal non-

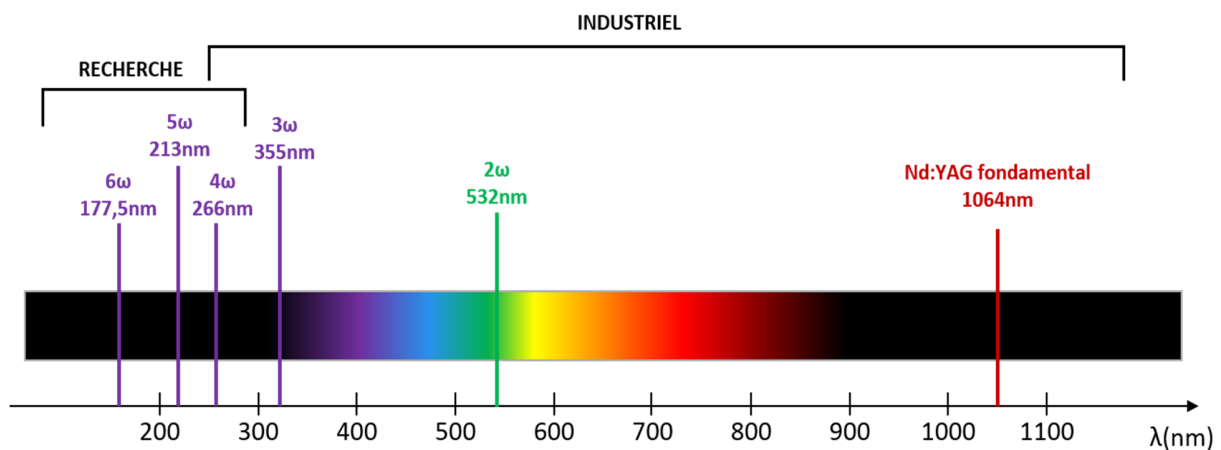


Figure I-10: Longueurs d'onde accessible par conversion de fréquence d'un laser Nd:YAG émettant à 1064 nm

¹³ On pourrait citer comme contre-exemple les lasers basé sur l'ion Cérium, qui possède des bandes de transition dans l'ultraviolet, mais dans ce cas la source de pompe doit être aussi dans l'ultraviolet, et est souvent un laser converti en fréquence : on se mord un peu la queue...

linéaire¹⁴. Si l'on prend l'exemple d'un laser Néodyme émettant à 1064 nm, on peut accéder par conversion de fréquence dans des cristaux non-linéaires aux longueurs d'onde présentées en Figure I-10 :

On peut évidemment changer la source laser fondamentale, ce qui peut permettre d'accéder à des longueurs d'onde dans l'UV légèrement différentes : en passant par exemple à l'ion Ytterbium (1030nm), on accèdera à des harmoniques plus bas en longueur d'onde. Le principal problème des lasers solides ultraviolets a toujours été leur montée en puissance par rapport aux lasers à excimère : en effet, alors qu'un laser infrarouge a généralement une efficacité à la prise meilleure qu'un laser à gaz (de l'ordre de 20% pour un laser impulsif), les étages successifs de conversion de fréquence font chuter les efficacités finales¹⁵. Les caractéristiques des lasers ultraviolets disponibles dépendent donc en grande partie du laser fondamental utilisé. On cherchera notamment à avoir la plus grande puissance crête possible, la meilleure qualité de faisceau, etc. Dans les deux sous-chapitres suivants, on détaillera les différentes sources disponibles dans le commerce ainsi que les meilleurs travaux de recherche publiés. Le but n'étant pas de faire un inventaire exhaustif de toutes les sources disponibles, on se concentrera sur les sources ultraviolettes impulsives les plus puissantes¹⁶.

1.2.2.b Sources laser industrielles

Comme on l'a vu dans le chapitre « application », les sources ultraviolettes sont majoritairement utilisées pour le micro-usinage, ainsi que pour la spectroscopie. Leur montée en puissance va donc être conditionnée par les paramètres à augmenter. Pour la spectroscopie, le besoin en cadence des sources laser est généralement limité, tandis que le besoin en énergie est fort afin d'augmenter l'intensité des signaux reçus en réponse à l'impulsion. Pour répondre à ces besoins, il existe sur le marché des sources basses cadences (de 10 à 100 Hz) atteignant la centaine de millijoules sans problème. Le cas du micro-usinage est différent : une fois le seuil d'intensité crête d'usinage du matériau atteint, il est moins intéressant d'augmenter l'énergie de la source. Par contre, la cadence est extrêmement importante car elle définit la vitesse à laquelle on va pouvoir effectuer plusieurs opérations de micro-usinage successives : comme on le sait, le temps c'est de l'argent...

La plupart des industriels des lasers proposent des systèmes de conversion de fréquence vers l'ultraviolet, souvent selon le modèle « laser+ module de conversion » : cette approche permet de garder une certaine modularité dans les produits proposés. Seuls des lasers dont le marché principal est dans l'ultraviolet disposent de produits spécifiques : Spectra Physics par exemple, possède une gamme de lasers UV nanoseconde spécifique¹⁷, comme le QUASAR (355nm) ou le HIPPO (266nm), qui font partie des lasers UV les plus puissants du marché¹⁸, illustré ci-dessous en Figure I-11.

En régime nanoseconde, on trouve également des sources à très basses cadences (quelques dizaines de Hz) qui permettent d'atteindre des énergies dans l'UV de plusieurs centaines de mJ (Modèle YG980 de Quantel par exemple : 850 mJ à 10 Hz à 355nm).

¹⁴ Le sujet de la conversion de fréquence sera traité à part entière dans le chapitre suivant

¹⁵ Pourquoi ? De combien ? C'est l'un des thèmes de la suite de ce manuscrit.

¹⁶ Le terme « puissant » pourra s'appliquer aux fortes puissances moyennes ou aux fortes énergies.

¹⁷ Il faut noter que contrairement à d'autres industriels, c'est leur marché principal.

¹⁸ Le record officiel de 80 W est détenu par la société Powerlase, qui commercialise des lasers multimodes nanosecondes, mais nous avons mis en avant Spectra Physics car ce sont les leaders du marché en termes de volume.

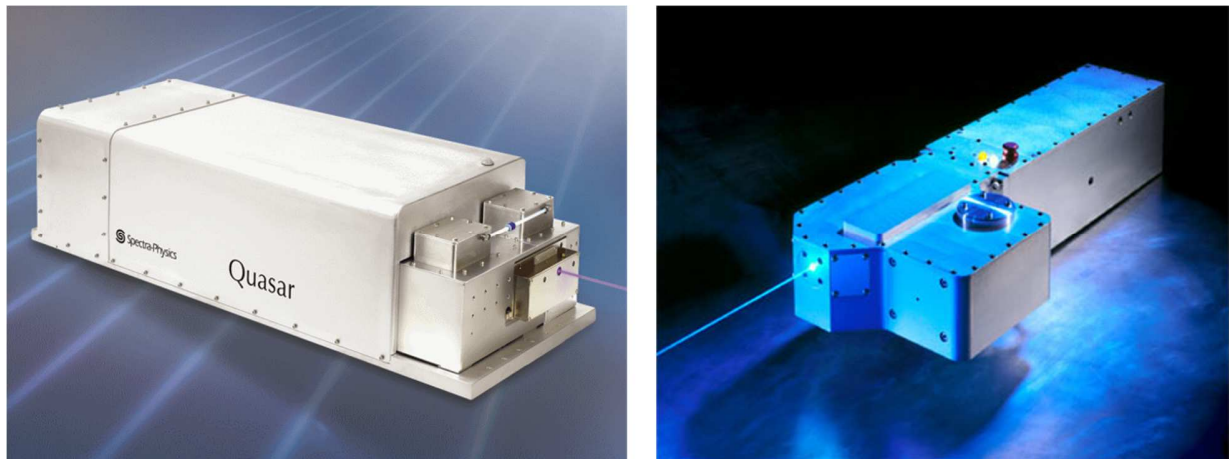


Figure I-11: Lasers QUASAR (60W, 355nm) et HIPPO (2W, 266nm) de chez Spectra Physics

En régime picoseconde, La société Eolite Systems également propose des sources ultraviolettes picosecondes basées sur la technologie des fibres dopées Ytterbium à mode large de type barreau (rod-type). Elle commercialise notamment le modèle Sirroco, qui avec une puissance moyenne de 20 W à 15 MHz en régime picoseconde représente l'un des meilleurs lasers UV picoseconde en termes de compromis puissance moyenne/ puissance crête. (Figure I-12).



Figure I-12: Laser UV Sirroco d'Eolite Systems, 20W à 15 MHz en régime picoseconde

Enfin, en régime femtoseconde, la majeure partie des constructeurs propose en option des systèmes de conversion de fréquence, les meilleures performances étant donc obtenues par les sources laser femtoseconde les plus puissantes : on pourra citer par exemple Light Conversion et Amplitude Systèmes, qui proposent des modules de conversion industriels allant de la quatrième harmonique (pour Amplitude Systèmes) à la cinquième harmonique (pour Light Conversion)¹⁹. Il existe donc de nombreux lasers UV disponibles : plutôt que de faire une liste exhaustive (et potentiellement ennuyeuse) de toutes les sources existantes, elles sont regroupées dans la Figure I-13, qui présente la répartition des sources commerciales UV en fonction de leur puissance moyenne et de leur puissance crête. Les points sont classés en 3 catégories de couleurs représentant la gamme de longueur d'onde caractéristique de l'harmonique généré, et en trois types de symboles indiquant le régime temporel des impulsions produites.

¹⁹ Selon leur stratégie commerciale, certaines entreprises ne proposent pas de « lasers UV », mais des modules annexes de conversion de fréquence

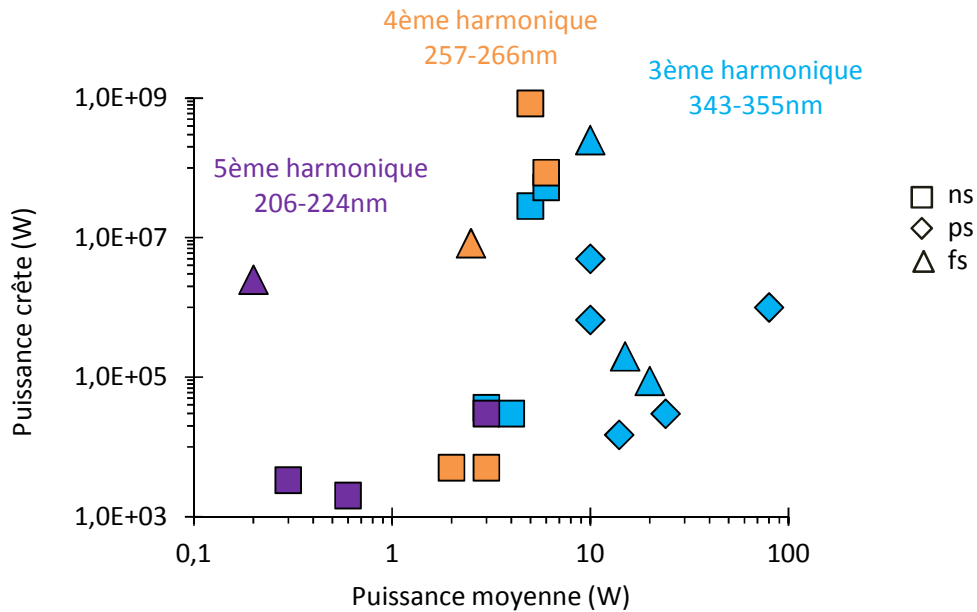


Figure I-13: Répartition des sources lasers UV industrielles en fonction de leur puissance moyenne et puissance crête. Les couleurs représentent les longueurs d'onde : bleu=343-355nm ; orange=257-266nm ; violet=206-224nm. Les symboles représentent le régime temporel de la source laser : triangle= femtoseconde ; losanges=picoseconde ; carré=nanoseconde.

Ce diagramme n'indique volontairement pas les constructeurs : en effet il sert uniquement à illustrer la tendance de la montée en puissance moyenne et puissance crête des sources UV en fonction de leur longueur d'onde. L'annexe 1 liste les différents modèles de lasers utilisés pour ce comparatif. Comme on peut le voir sur la figure ci-dessus, la montée en puissance crête ne semble pas dépendre de la longueur d'onde UV générée. La puissance moyenne par contre, semble se heurter à une barrière lorsque l'on descend vers les courtes longueurs d'onde. Alors que l'on trouve aujourd'hui de nombreux lasers à 355nm émettant plus de 20 W en régime impulsionnel, cette puissance chute à 3 W pour les lasers à 266 nm et à quelques centaines de milliwatts pour la cinquième harmonique²⁰. Ce phénomène ne peut être uniquement expliqué par les efficacités de conversion réduites lorsque l'on descend en longueur d'onde. Comme on le verra dans la suite du manuscrit, elle est la combinaison de facteurs scientifiques (des effets parasites apparaissent lors de conversions de fréquence aux courtes longueurs d'onde) et industriels (les composants des lasers UV se dégradent sur le long-terme).

On pourrait lister également les travaux démontrés dans les laboratoires de recherche, mais étant donné leur nombre et leur diversité, ils seront abordés séparément pour chaque partie de présentation des travaux de thèse.

En conclusion de ce chapitre, nous rappellerons donc tout d'abord que les lasers ultraviolets existent depuis longtemps, et sont couramment utilisés dans l'industrie pour de nombreuses applications. Les évolutions majeures qui ont eu lieu au fil des années ont concerné la montée en puissance moyenne, la

²⁰ Exception faite du module 5w de Light Conversion car il n'est à notre connaissance que très peu vendu.

montée en énergie, la fiabilité, ainsi que la longueur d'onde produite. On constate en étudiant les lasers UV disponibles qu'alors que les lasers à excimère permettent d'atteindre de très courtes longueurs d'onde, il semble difficile de réaliser des lasers solides puissants en dessous de 300 nm. Lorsque l'on va vers les courtes longueurs d'onde, la montée en puissance des lasers UV ne semble plus suivre la montée en puissance des lasers infrarouges, alors qu'ils sont théoriquement liés par une simple efficacité de conversion. L'un des sujets de cette thèse fût d'étudier et de comprendre cette problématique. Pour cela, nous allons maintenant nous plonger dans la théorie et la pratique de la conversion de fréquence vers l'ultraviolet, en essayant d'identifier ses spécificités, ses problèmes, afin d'en déduire des axes de travail.

CHAPITRE II :

Théorie de la conversion de fréquence

II. THEORIE DE LA CONVERSION DE FREQUENCE

Ce chapitre a pour but de présenter les concepts nécessaires au choix d'un cristal non-linéaire pour une expérience de conversion de fréquence vers le visible et l'ultraviolet. On étudiera tout d'abord brièvement la théorie de la conversion de fréquence, en s'appuyant sur les nombreux ouvrages disponibles dans la littérature. Le but étant de pouvoir répondre à la question : « Je connais mon laser, quelle efficacité de conversion théorique puis-je espérer ? ». Puis, nous aborderons dans un deuxième temps le sujet du choix du cristal non-linéaire. En effet, de nombreux types de cristaux sont disponibles dans le commerce, et il est parfois difficile de choisir entre toutes les possibilités. On montrera notamment qu'en plus des propriétés non-linéaires de ces cristaux, d'autres paramètres liés aux matériaux doivent être pris en compte²¹. Ce chapitre débouchera sur un tableau comparatif des différents cristaux non-linéaires disponibles, ainsi que d'une procédure de sélection d'un cristal non-linéaire, et cela afin que le lecteur ait un point de vue « global » si d'aventure il devait réaliser des expériences similaires.

Ce chapitre étant très théorique, nous ne redémontrons pas toutes les équations, et nous nous appuyons fortement sur trois livres références :

- *Nonlinear Optics*, by Robert Boyd
- *Solid-State Engineering*, by Walter Koechner
- *Springer Handbook of Condensed Matter and Materials Data*, by W. Martienssen and H. Warlimont

II.1 Effets non-linéaires d'ordre 2

II.1.1 Principe général

La plupart des phénomènes d'interaction de la lumière avec la matière peuvent être expliqués en considérant la réponse d'un matériau à un intense champ électrique (d'un laser par exemple). Cette réponse peut être exprimée par un champ de polarisation, dont l'amplitude P peut être écrite comme suit :

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E + \epsilon_0 \chi^{(2)} EE + \epsilon_0 \chi^{(3)} EEE + \dots \quad \text{Eq. II-1}$$

Où E est l'amplitude champ électrique incident, ϵ_0 la permittivité du vide, et $\chi^{(n)}$ le tenseur de susceptibilité d'ordre n . Les effets liés à $\chi^{(1)}$ sont les effets « linéaires » tels que la réflexion, la diffusion, etc. Les effets non-linéaires sont les phénomènes liés à $\chi^{(n>1)}$, et impliquent plusieurs fois un terme de champ électrique E ; ce sont donc des interactions à plusieurs ondes. Les effets non-linéaires d'ordre 3 sont par exemple à l'origine de l'effet Kerr, de l'effet Raman ou de la diffusion Brillouin. Dans ce manuscrit, nous ne nous intéresserons qu'aux effets d'ordre 2, qui expliquent notamment les phénomènes non-linéaires de somme, de différence et de doublement de fréquences.

On peut montrer que l'existence d'un tenseur de susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 dans un matériau nécessite que celui-ci ne soit pas centrosymétrique, c'est-à-dire que sa maille cristalline ne possède pas de symétrie d'inversion. Cela exclu immédiatement les liquides, les gaz et les solides amorphes qui sont tous centrosymétriques et ne pourront donc pas être utilisés comme matériaux non-linéaires d'ordre 2.

²¹ Nous montrerons par exemple que non, il ne suffit pas de prendre « celui avec le plus grand d_{eff} »

Dans le cas d'un matériau présentant une non-linéarité d'ordre 2, on observe donc une réponse à un champ électrique de la forme :

$$P(\omega_3) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E(\omega_1) E(\omega_2) \quad \text{Eq. II-2}$$

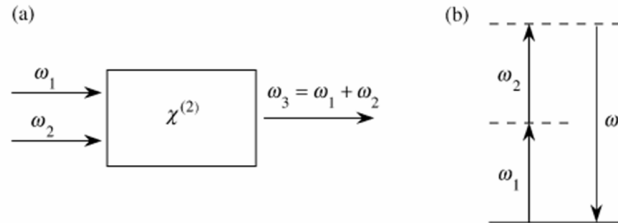


Figure II-1: (a) schéma du processus de somme de fréquences, (b) diagramme énergétique correspondant

Dans ce manuscrit, nous nous limiterons à la somme de fréquences, pour laquelle $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, phénomène schématisé ci-dessous en figure II-1. De plus, pour simplifier les équations mathématiques, on prendra le cas de la somme de fréquence de Type-I (voir définition plus bas en II-3-2)

Le doublement de fréquences (SHG en anglais) est un cas particulier de la somme de fréquences dans lequel $\omega_1 = \omega_2$. Dans ce cas-là, l'interaction d'une impulsion laser à une fréquence ω dans un matériau non-linéaire produit un nouveau rayonnement de fréquence 2ω . La majorité des expériences de conversion de fréquences présentées dans ce manuscrit est basée sur ce phénomène.

Le procédé de conversion de fréquence est extrêmement dépendant de la notion d'accord de phase : ici, on introduira d'abord l'expression des rendements de conversion et des coefficients non-linéaires, avant de définir pleinement l'accord de phase par biréfringence.

II.1.2 Coefficient non-linéaire d_{eff}

On a vu que le tenseur non-linéaire $\chi^{(2)}$ était lié à l'amplitude de la réponse non-linéaire d'un matériau. On le trouve plus fréquemment sous sa forme contractée d_{ij} , qui est une matrice 3x6 dans laquelle on trouve les différents coefficients non-linéaires, exprimés en pm/V le plus souvent. On peut alors exprimer la réponse complète de polarisation du matériau à n'importe quel champ électrique incident par l'équation :

$$\begin{bmatrix} P_x(2\omega) \\ P_y(2\omega) \\ P_z(2\omega) \end{bmatrix} = 2\varepsilon_0 \begin{bmatrix} d_{11} & \cdots & d_{16} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ d_{31} & \cdots & d_{36} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x(\omega)^2 \\ E_y(\omega)^2 \\ E_z(\omega)^2 \\ 2E_y(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_y(\omega) \end{bmatrix} \quad \text{Eq. II-3}$$

Pour une interaction non-linéaire donnée, la polarisation du champ électrique fondamental par rapport aux axes propres du cristal permet de développer cette expression (voir Boyd, NonlinearOptics). On simplifie généralement cette équation en définissant un coefficient d_{eff} unique correspondant.

Le coefficient non-linéaire effectif d_{eff} intervient directement dans l'expression du rendement de conversion (voir plus bas). Comme les coefficients d_{ij} , il est le plus souvent exprimé en pm/V, et a des valeurs comprises entre 0,1 pm/V et 15 pm/V pour les cristaux couramment utilisés en conversion de fréquence

vers le visible et l'ultraviolet²². Plus il est important, plus la conversion sera efficace. Un d_{eff} important permet d'utiliser des cristaux plus courts et des diamètres de focalisation plus importants.

Il est important de ne pas confondre le coefficient non-linéaire effectif d_{eff} avec les différents coefficients non-linéaires d_{ijk} du tenseur non-linéaire d'un cristal. En effet, le d_{eff} est la projection du tenseur non-linéaire pour un angle de coupe donné. Il varie donc selon la longueur d'onde à laquelle on souhaite obtenir l'accord de phase, et au type de cristal considéré²³. Ceci explique pourquoi les cristaux à quasi-accord de phase ont généralement des coefficients non-linéaires effectifs très importants : étant donné que l'on n'a pas de contraintes sur l'angle de coupe du cristal, on peut se permettre de choisir l'axe cristallin ayant le coefficient non-linéaire d_{ijk} le plus important.

À titre d'exemple, on peut citer le très connu beta-borate de barium BaB_2O_4 (BBO) : utilisé en doublement de fréquences à 1030 nm, il possède un coefficient non-linéaire effectif de 2,01 pm/V lorsqu'il est utilisé en type-I (à $\theta=23.4^\circ$), alors que ce coefficient chute à 1,24 pm/V lorsque le BBO est en configuration de type-II. Les configurations Type-I et Type-II seront définies par la suite.

On pourrait également citer comme exemple de l'importance de la distinction entre d_{eff} et d_{ijk} la démonstration de cristaux UV de $\text{LuAl}_3(\text{BO}_3)_4$ (Fang et al. 2013). Dans cette étude, un nouveau cristal UV est présenté : les auteurs notent sa capacité à effectuer la génération de second harmonique du vert vers l'UV (ce qui est vrai), ainsi que son coefficient non-linéaire $d_{11}=1,1$ pm/V (ce qui est également vrai). Cependant on remarque que le coefficient d_{eff} lui chute de 1,1pm/V à 0 pm/V lorsque l'on oriente le cristal pour des courtes longueurs d'onde. Ce cristal aura donc un d_{eff} très faible dans l'UV, ce qui diminue largement son intérêt.

II.2 Calcul de l'efficacité de conversion d'un processus de SHG

L'efficacité de conversion d'un processus non-linéaire de génération de second harmonique (SHG) est définie comme le rapport entre l'intensité $I_{2\omega}$ du signal généré à 2ω et l'intensité I_ω de l'onde fondamentale avant la conversion. Elle peut se calculer de différentes manières selon la précision nécessaire des résultats. En effet, si l'on veut rendre compte de tous les effets physiques, il n'existe pas de solution analytique au calcul de l'efficacité de conversion. Cependant, on peut faire plusieurs approximations permettant d'obtenir des résultats relativement précis. Plutôt que de détailler précisément le traitement théorique complet de la SHG, nous allons plutôt détailler les différents « niveaux de calculs » pouvant être utilisés et les conditions nécessaires à leur utilisation. Le but est au terme de ce chapitre d'avoir une vision précise des paramètres pouvant augmenter l'efficacité de conversion, ainsi que ceux pouvant la réduire. Pour simplifier les notations, on n'étudiera que le cas de la SHG.

Le couple d'équations régissant le transfert d'énergie entre une onde fondamentale ω et l'onde à 2ω générée par second harmonique de type-I dans un matériau non-linéaire est le suivant :

²² On ne parlera pas ici des cristaux non-linéaires de semi-conducteurs en quasi-accord de phase pour l'infrarouge, qui peuvent avoir des coefficients non-linéaires supérieurs à la centaine de pm/V

²³ Par exemple, pour un cristal uniaxial de classe 3m coupé à des angles θ et ϕ , le coefficient d_{eff} est donnée par : $d_{\text{eff}} = d_{31}\sin\theta - d_{22}\cos(\theta)\sin(3\phi)$. Le détail de ce calcul est disponible dans la littérature (Midwinter & Warner 1965)

$$\begin{cases} \frac{dE_\omega}{dz} = i\omega\sqrt{\mu_0\varepsilon_0} d_{eff} E_{2\omega} E_\omega^* e^{-i\Delta kz} \\ \frac{dE_{2\omega}}{dz} = -\frac{1}{2} i2\omega\sqrt{\mu_0\varepsilon_0} d_{eff} E_\omega^2 e^{i\Delta kz} \end{cases} \quad \text{Eq. II-4}$$

$$\text{avec } \Delta k = \frac{4\pi}{\lambda_0} (n_\omega - n_{2\omega})$$

Ici, E est l'amplitude du champ électrique, ω la fréquence de l'onde fondamentale, μ_0 la permittivité du vide, ε_ω la constante diélectrique à ω , d_{ijk} le coefficient non-linéaire du cristal, Δk le désaccord de phase et z étant la position longitudinale dans le cristal et la direction de propagation de l'onde fondamentale. Il existe plusieurs hypothèses permettant d'obtenir une solution analytique à ces équations.

II.2.1 Expression sans déplétion du signal fondamental

Pour simplifier les calculs, on peut supposer que le signal ne diminue pas au cours de la conversion, c'est-à-dire que l'efficacité de conversion est suffisamment faible pour que l'on puisse considérer l'amplitude du champ électrique fondamental comme constante tout au long de la génération de second harmonique. Si l'on considère E_ω constant, c'est-à-dire $dE_\omega/dz=0$, on a alors :

$$\eta = \frac{I_{2\omega}}{I_\omega} = \eta_0 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \quad \text{Eq. II-5}$$

$$\text{avec } d_{eff} = \frac{d_{ijk}}{\varepsilon_0}, \quad C^2 = \frac{8\pi^2 d_{eff}^2}{\varepsilon_0 c \lambda_0^2 n_0^3}, \quad \text{et } \eta_0 = C^2 L^2 I_\omega$$

Ici η est l'efficacité de conversion, n_0 est l'indice optique du matériau non-linéaire pour l'onde fondamentale. On remarque que le rendement de conversion en fonction de la longueur du cristal est une fonction périodique de période $\Delta k L_c / 2 = \pi$. La longueur de cristal L_c correspondant à cette période est appelée longueur de cohérence, et est égale à $2\pi/\Delta k$. La figure II-2 ci-dessous, extraite de (Koechner, Solid-state Lasers) représente l'efficacité de conversion d'un processus de SHG en fonction de la longueur du cristal pour différentes longueurs de cohérence (et donc différentes valeurs de désaccord de phase).

On voit que pour des désaccords de phase importants, l'énergie oscille entre les ondes à ω et à 2ω . Si l'on suppose qu'il y a accord de phase ($\Delta k=0$), l'efficacité de conversion augmente de manière quadratique. Dans cette équation, on reste dans l'approximation des ondes planes, c'est-à-dire que l'intensité du faisceau est considérée constante au cours du temps, et que celui-ci n'est pas focalisé. Cette équation donne des résultats corrects tant que l'on ne dépasse pas quelques pourcents d'efficacité de conversion. En effet, cette équation n'est pas valable pour les forts rendements de conversion. Pour qu'elle le soit, il faut tenir compte en premier lieu de la déplétion du faisceau fondamental lors de la conversion.

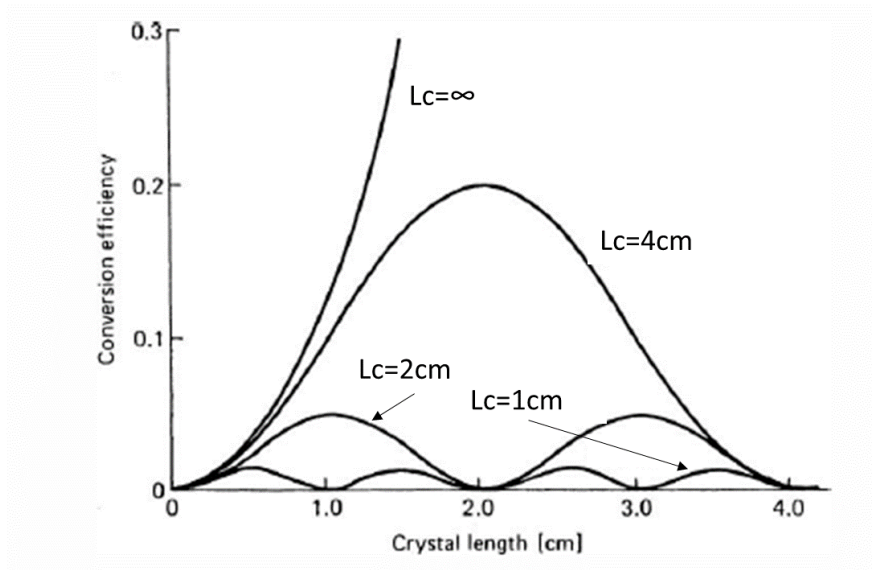


Figure II-2 : Efficacité de conversion en fonction de la longueur du cristal pour différentes longueurs de cohérence L_c . Les valeurs utilisées pour le calcul sont prises arbitrairement, et correspondent à des cas proches de l'accord de phase. Dans un matériau isotrope, la longueur de cohérence n'est que de quelques dizaines de microns.

II.2.2 Expression avec déplétion du signal fondamental

Si l'on tient compte de la déplétion du signal fondamental ($dE_\omega/dz \neq 0$), et que l'on suppose en plus que l'accord de phase est parfait ($\Delta k = 0$), on obtient une expression analytique simple :

$$\eta = \frac{I_{2\omega}}{I_\omega} = \tanh^2(\sqrt{\eta_0}) \quad \text{Eq. II-6}$$

On a alors une équation qui ne dépend que de η_0 , dans lequel sont réunis l'intensité du faisceau fondamental incident I_ω , la longueur du cristal non-linéaire L et son coefficient non-linéaire d_{eff}

Si l'on considère maintenant un déphasage non nul entre les deux ondes ($\Delta k \neq 0$), il faut résoudre le système d'équation II-1 dans le cas général. En 1966, Kleinman *et al* proposent une solution semi-analytique, basée sur l'utilisation d'une fonction « h » tabulée (Kleinman et al. 1966). D'autres travaux initiés par Armstrong *et al* en 1962 (Armstrong et al. 1962) proposent une solution analytique à l'aide des fonctions analytiques de Jacobi²⁴. Cette solution peut se résumer comme suit :

²⁴ Les fonctions elliptiques de Jacobi ont des similitudes avec les fonctions trigonométriques « classiques » sinus, cosinus et tangente, dans le sens où ce sont toutes des fonctions périodiques. On notera par exemple que le sinus elliptique de Jacobi, noté $\text{sn}(u, v)$, a comme propriété $\text{sn}(u, 1) = \tan(u)$. Elles sont intégrées dans les logiciels de calculs mathématiques tels que MATLAB. Pour plus d'informations, se reporter par exemple à : http://fr.wikipedia.org/wiki/Fonction_elliptique_de_Jacobi

$$\eta = \eta_m s n^2 \left(\sqrt{\frac{\eta_0}{\eta_m}}, \eta_m^2 \right) \quad \text{Eq. II-7}$$

$$\text{avec } \eta_m = 1 + \frac{\delta^2}{2\eta_0} \left(\sqrt{\frac{\eta_0}{\eta_m}}, \eta_m^2 \right) \quad \text{Eq. II-8}$$

$$\text{et } \delta = \frac{\Delta k L}{2} \quad \text{Eq. II-9}$$

On peut donc grâce à ces équations calculer l'efficacité de conversion d'un processus à l'accord de phase, en tenant compte de la déplétion du faisceau fondamental. Malheureusement, il manque à ces équations certains paramètres.

II.2.3 La vie réelle : faisceaux gaussiens et logiciels de simulation

Toutes les équations évoquées précédemment ne suffisent malheureusement pas à modéliser correctement la majorité des expériences de conversion de fréquence. En effet, elles ne tiennent pas compte du profil gaussien de l'impulsion laser dans le domaine spatial et dans le domaine temporel. Ce problème peut être résolu en utilisant un code de simulation pas à pas (tel que MATLAB), dans lequel on séparera notre impulsion laser en différents pas dans l'espace et dans le temps.

Dans le domaine spatial, il faut séparer notre faisceau gaussien en pas selon la largeur du cristal, chaque pas voyant une divergence différente liée à la courbure du front d'onde de l'impulsion. Dans le domaine temporel, il convient de séparer dans le temps le profil gaussien de l'impulsion en pas d'amplitude constante, auxquels on pourra appliquer les équations analytiques vues précédemment.

Il existe plusieurs logiciels de simulation pouvant modéliser ces phénomènes. Le plus connu est développé par Arles Smith des Laboratoires Sandia (USA) et est appelé SNLO (Smith 1997) ; il a le grand avantage d'être complètement gratuit, ainsi que d'être extrêmement complet. Il prend en compte le profil spatial et temporel d'une impulsion fondamentale et donne des résultats très comparables aux expériences pratiques. Il a cependant un défaut : il ne permet pas de modéliser des effets de gradient thermique, effets qui apparaissent régulièrement dans le cadre de la conversion de fréquence vers l'ultraviolet. Malgré cela, et sauf indication contraire, toutes les simulations de conversion de fréquence réalisées dans ce manuscrit ont été réalisées avec ce logiciel.

II.3 L'accord de phase

On a vu précédemment que l'on peut définir pour le processus de génération de second harmonique une longueur de cohérence, c'est-à-dire la distance sur laquelle l'amplitude du champ à 2ω augmente de manière continue. On peut montrer que pour un doublage de fréquence « standard » de 1064 nm vers 532 nm par exemple, elle n'est que de l'ordre d'une petite dizaine de microns²⁵. Cette longueur correspond, on le rappelle, à la distance à laquelle on obtient un déphasage de π entre l'onde fondamentale et la polarisation non-linéaire générée. Après cette distance, les interférences entre les deux ondes deviennent destructives et l'on inverse le transfert d'énergie : l'onde doublée est reconvertie vers l'onde fondamentale. La figure II-3 ci-dessous, extraite du cours d'Optique Non-Linéaire de Nicolas Dubreuil de l'IOGS, illustre la longueur de cohérence réduite de l'onde à 2ω à un angle proche de l'accord de phase.

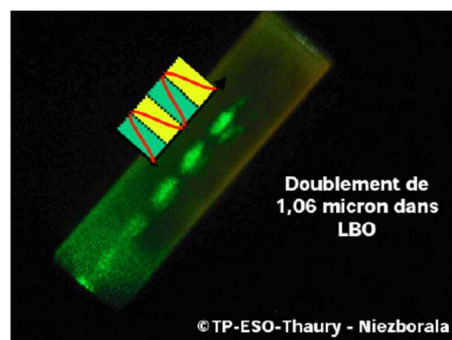


Figure II-3: Onde à 2ω générée dans un cristal de LBO orienté à un angle proche de l'accord de phase

On peut augmenter cette longueur de cohérence en minimisant le déphasage entre les deux ondes, c'est-à-dire en minimisant Δk , la différence entre les vecteurs d'onde du fondamental et du second harmonique. Lorsque l'on a $\Delta k=0$, on dit que l'on a un accord de phase entre l'onde fondamentale et l'onde à 2ω , c'est-à-dire égalité des vitesses de propagation des ondes dans le cristal.

Deux techniques sont utilisées, le quasi-accord de phase (QPM en anglais) et l'accord de phase par biréfringence collinéaire. Nous ne traiterons les cristaux en QPM que brièvement, étant donné que nous avons utilisé quasi-exclusivement des cristaux à accord de phase par biréfringence.

II.3.1 Le quasi-accord de phase

Le principe du quasi-accord de phase fut théorisé rapidement après l'invention du laser par Armstrong *et al.* (Armstrong *et al.* 1962). Afin de diminuer le désaccord de phase de deux ondes dans un matériau non-linéaire, il proposa d'inverser la phase vue par les impulsions lasers de manière périodique, et cela à chaque moitié de longueur de cohérence. Ainsi, la polarisation non-linéaire générée ne voit que des interférences constructives le long du cristal, ce qui permet potentiellement de forts rendements de conversion (illustration ci-dessous en Figure II-4).

²⁵ Calcul fait pour un processus de SHG dans un BBO taillé à 0°

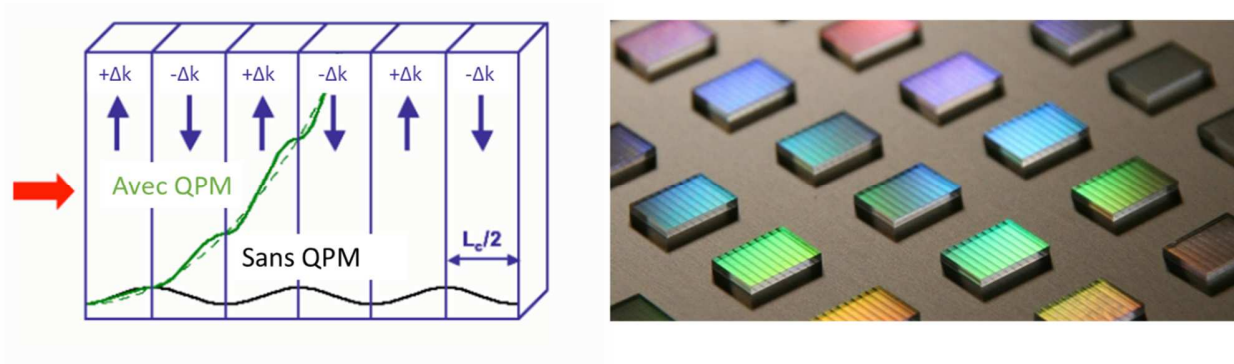


Figure II-4: Principe du quasi-accord de phase (gauche) et photos de cristaux QPM de PPLN (droite, Covesion)

De plus, cette technique a l'avantage de ne pas imposer une orientation particulière au cristal non-linéaire, et de pouvoir ainsi utiliser son plus fort coefficient non-linéaire. Les cristaux compatibles avec cette technique sont généralement ferroélectriques. Il a fallu attendre de nombreuses années avant de voir apparaître les premiers cristaux QPM. À titre d'exemple, le niobate de lithium (LiNbO_3), qui est le cristal QPM le plus utilisé actuellement, ne fut démontré en QPM qu'en 1976 (Okada et al. 1976). À cette époque, l'inversion des domaines est encore faite par collage de plaques de matériaux inversés spatialement, ce qui induisait beaucoup d'erreurs et de pertes aux interfaces. Il faut attendre 1993 pour voir apparaître l'inversion de domaine permanente par champ électrique, avec la première démonstration de SHG dans un PPLN inversé électriquement (Yamada et al. 1993).

Les cristaux QPM sont extrêmement efficaces mais souffrent de défauts rédhibitoires pour une utilisation en conversion de fréquence de forte puissance vers l'ultraviolet : les matériaux pouvant être inversés sont en effet peu transparents dans le domaine ultraviolet, les seuils de dommage sont relativement faibles, et les périodes nécessaires pour obtenir un accord de phase dans l'ultraviolet sont faibles²⁶. Pour ces raisons, toutes les expériences de génération de second harmonique à haute puissance utilisent des cristaux dont l'accord de phase est obtenu par biréfringence.

Nous avons choisi dans ce chapitre d'ignorer plusieurs pans de la conversion de fréquence qui auraient complexifié les différents bilans et résumés des différentes propriétés. Nous avons par exemple fait l'impasse sur tous les cristaux à quasi-accord de phase, qui sont utilisés dans de nombreux dispositifs continus ou à faible puissance crête et permettent d'obtenir malgré cela des rendements de conversion significatifs. Un exemple que je trouve significatif du potentiel de ces cristaux est celui de l'entreprise Azure Light Systems. Cette entreprise commercialise des lasers à fibres continues visibles de forte puissance (jusqu'à 2 W à 488 nm et 10 W à 515 nm), et a choisi d'utiliser comme système de conversion de fréquence des cristaux à quasi-accord de phase utilisés en simple passage. Ils obtiennent ainsi des efficacités de conversion satisfaisantes (entre 10 et 20 %) sans utiliser de doublage intracavité ou de cavités résonnantes, comme le font tous leurs concurrents (on pense notamment au système Verdi de Cohérent).

²⁶ Plusieurs travaux ont été publiés sur des QPM pour la conversion de fréquence vers l'ultraviolet, mais pour des applications de faible puissance. On peut noter par exemple la réalisation d'un cristal QPM en quartz pour la SHG vers 194 nm (Kurimura et al. 2011).

II.3.2 L'accord de phase par biréfringence

Un autre moyen d'obtenir l'accord de phase lors de la génération d'harmonique est d'utiliser les propriétés optiques des cristaux biréfringents. Un cristal biréfringent a un indice optique qui dépend de la polarisation du champ incident : à chaque axe cristallographique du cristal correspond un indice optique caractéristique. Il existe deux catégories de cristaux biréfringents, représentées ci-dessous Figure II-5 :

- Un cristal **uniaxe** possède deux indices optiques identiques (axes ordinaires), le troisième axe d'indice différent étant appelé axe extraordinaire. Son axe optique est situé le long d'un des axes diélectrique. Il est appelé uniaxe positif si $n_e > n_o$, et uniaxe négatif si $n_e < n_o$.
- Un cristal **biaxe** a des indices optiques différents pour chacun de ses trois axes. On parle de biaxe négatif si $n_z < n_y < n_x$, et de biaxe positif si $n_z > n_y > n_x$. Comme son nom l'indique, un cristal biaxe possède deux axes optiques qui ne sont pas placés selon l'un des axes diélectriques.

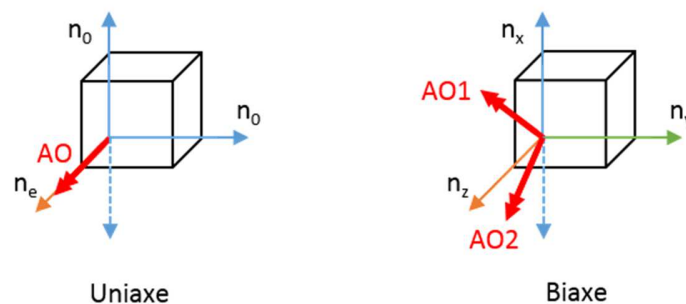


Figure II-5: Schéma de nomenclature des cristaux uniaxes et biaxes. L'orientation des axes diélectriques est arbitraire et dépend des cristaux considérés. AO désigne l'axe optique

En faisant varier l'angle d'incidence du faisceau incident par rapport au repère diélectrique (par exemple en coupant le cristal pour qu'une de ses faces optiques fasse un angle θ avec l'un des axes diélectriques), on peut trouver des conditions selon lesquelles le rayonnement généré par second harmonique aura la même vitesse de phase dans le cristal que le rayonnement fondamental. On distingue deux configurations de génération de second harmonique (SHG) :

- On parle de SHG en **Type-I** lorsque les 2 photons à la longueur d'onde fondamentale ont la même direction de polarisation. Dans ce cas, par exemple, l'onde fondamentale est polarisée sur l'axe ordinaire et l'onde doublée sur l'axe extraordinaire.
- On parle de SHG en **Type-II** lorsque les 2 photons à la longueur d'onde fondamentale ont des directions de polarisation perpendiculaires. En pratique, cela revient à orienter le champ incident à 45° des deux axes diélectriques considérés, le rayonnement doublé étant polarisé selon l'un de ces axes diélectriques.

Ces deux configurations sont illustrées en Figure II-6 ci-dessous pour un uniaxe négatif. Pour plus de détails sur le calcul des conditions d'accord de phase pour les cristaux uniaxes/biaxes, positif/négatifs et Type-I/Type-II, le lecteur peut se rapporter aux nombreux ouvrages disponibles dans la littérature.

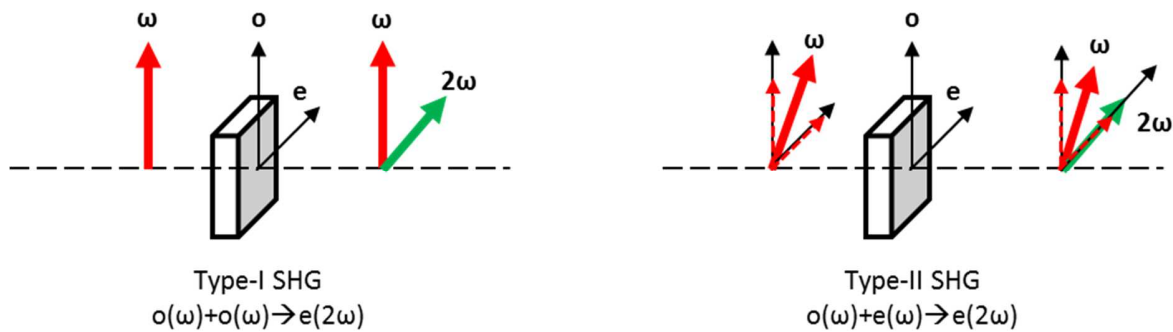


Figure II-7: Schéma représentant la SHG en Type-I et Type-II dans un uniaxe négatif. La direction des flèches de couleur indique la direction du champ électrique correspondant

Quand le cristal est coupé selon un certain angle (et c'est le cas dans les majeures partie des expériences), le vecteur de Poynting de l'onde à 2ω ne se propage pas dans la même direction que l'onde fondamentale. Ce phénomène, appelé double réfraction (ou *spatial walk-off* en anglais), limite la longueur « utile » du cristal non-linéaire durant laquelle les 2 ondes peuvent échanger de l'énergie de manière effective. Il est illustré ci-dessous en Figure II-7. Il se définit grâce à la variation du vecteur k avec l'angle d'incidence θ sur le cristal.

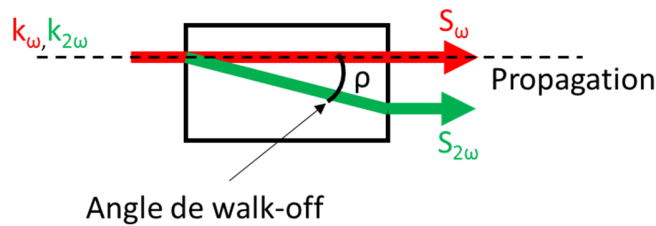


Figure II-6: Illustration du phénomène de walk-off spatial dans le cas de la SHG : le vecteur de Poynting $S_{2\omega}$ se propage dans le cristal avec un angle ρ par rapport au vecteur de Poynting S_ω

Le walk-off est nul si les 2 ondes participant au processus non-linéaire se propagent selon des axes diélectriques du cristal ou dans le plan perpendiculaire à l'axe optique de l'uniaxe. Pour certains cristaux, il existe des couples de longueurs d'ondes qui satisfont ces conditions. On parle alors d'accord de phase non-critique en angle : le phénomène de double réfraction est nul, et les faisceaux restent superposés spatialement tout le long du cristal. Cela permet d'utiliser des cristaux beaucoup plus longs qu'en accord de phase critique. En ajustant la température du cristal, on peut faire varier ses indices optiques suffisamment pour obtenir ce comportement d'accord de phase non-critique à différentes longueurs d'onde. À titre d'exemple, un cristal très utilisé pour la SHG comme le triborate de lithium (LiB_3O_5 , LBO), peut être utilisé en accord de phase non-critique (NCPM) pour la SHG de 1000 à 1200 nm en ajustant sa température de 30°C à 200°C (Ukachi et al. 1990).

II.3.3 Paramètres affectant l'accord de phase Δk

Dans les parties précédentes, on a vu que l'efficacité de conversion dépendait fortement du désaccord de phase ΔkL , selon une équation de forme de sinc^2 . Ce désaccord de phase est exprimé comme le produit du désaccord de phase « brut » Δk multiplié par la longueur du cristal. Si l'on prend la solution analytique la plus simple (sans déplétion de la pompe), l'efficacité de conversion en fonction du déphasage pour une longueur de cristal donnée a une forme illustrée ci-dessous Figure II-8. À partir de cette courbe, on peut définir la notion d'acceptance, qui correspond au déphasage ΔkL diminuant l'efficacité de conversion de moitié.

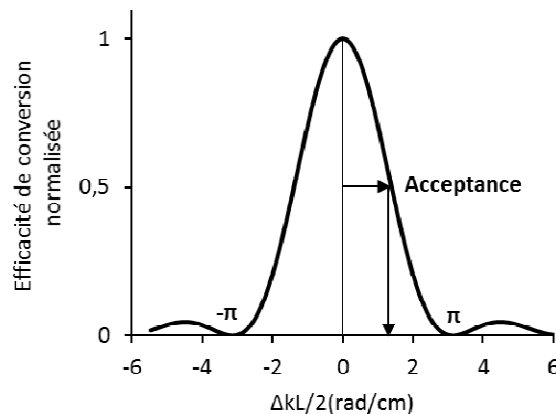


Figure II-8 : Dépendance du rendement de conversion en fonction du désaccord de phase $\Delta kL/2$

Ce déphasage ΔkL est lié à la variation de l'indice de réfraction $n(\lambda, \theta, T)$ en fonction de différents paramètres. Il faut bien rappeler que les calculs de conversion détaillés plus haut ne sont valables que pour des faisceaux monochromatiques et collimatés. En pratique, même si l'on est à l'accord de phase, il existe toujours un déphasage entre l'onde fondamentale et la polarisation non-linéaire. On peut lister 3 sources de ΔkL différentes, provenant toutes de la variation de l'indice de réfraction n du cristal non-linéaire en fonction de différents paramètres : la divergence du faisceau, sa longueur d'onde et la température du cristal.

II.3.3.a L'acceptance angulaire et la double réfraction

L'acceptance angulaire et la double réfraction (walk-off) sont deux phénomènes liés à la variation de l'indice de réfraction du matériau avec l'angle de propagation du faisceau fondamental. En effet, un faisceau gaussien comprend des rayons ayant chacun des angles de propagation différents. Si le faisceau est très focalisé, certains rayons auront un angle de propagation très éloigné de celui de l'accord de phase.

On définit ainsi l'acceptance angulaire $L\Delta\theta$ comme l'angle selon lequel le cristal doit être tourné pour réduire de moitié l'efficacité de conversion. Elle est parfois appelée tolérance angulaire. Cette acceptance est donnée en mrad.cm : en effet, plus la longueur du cristal est grande, plus l'acceptance

angulaire est faible. Cette limitation n'existe que selon la direction d'accord de phase. Par conséquent la SHG de type-I produit des faisceaux elliptiques lorsque la divergence du faisceau est supérieure à celle définie par l'acceptance angulaire et le walk-off.

Pour une divergence de faisceau donnée, on peut définir la longueur maximale du cristal non-linéaire avant que les faisceaux ne se séparent spatialement dans le cristal. Cette longueur est donnée par la formule suivante :

$$l_a = \frac{w_0 \sqrt{\pi}}{\rho} \quad \text{Eq. II-10}$$

Dans cette équation, w_0 est le rayon du faisceau au waist en mm, ρ la valeur du walk-off en rad, et l_a (pour « aperture length ») la longueur maximale du cristal en mm. Si l'on utilise un cristal plus long que cette longueur, on continuera à augmenter l'efficacité de conversion, car bien que moins de rayons soient en accord de phase, ceux qui le sont verront une plus grande longueur d'interaction. À titre d'exemple, si l'on choisit d'effectuer un doublement de fréquence de type-I de 532 nm vers 266 nm dans du BBO (avec un angle de walk-off de 85 mrad) avec un faisceau laser focalisé à $w_0 = 100 \mu\text{m}$, la longueur limite du BBO n'est que de 2 mm environ. L'acceptance angulaire pose donc des problèmes lorsqu'il faudra focaliser fortement le faisceau fondamental, par exemple dans le cas où l'on ne dispose que de peu de puissance crête.

Il faut bien noter qu'acceptance angulaire et walk-off sont deux termes désignant le même phénomène, et l'on peut passer de l'un à l'autre par une transformée de Fourier (Smith et al. 1998).

L'acceptance angulaire et le walk-off dépendent beaucoup de la coupe du cristal ; un cas particulier est celui de l'accord de phase non-critique, dans lequel l'accord de phase est réalisé selon l'un des axes diélectrique. Dans ce cas, le walk-off devient nul, et l'acceptance angulaire devient infinie au premier ordre (en réalité elle ne devient pas infinie car un terme du second ordre intervient, mais elle augmente d'environ deux ordres de grandeurs). On peut alors augmenter la longueur du cristal sans dégrader l'ellipticité du faisceau : malheureusement, tous les cristaux ne disposent pas d'accord de phase non-critique à des longueurs d'onde intéressantes. Le triborate de lithium, LiB_3O_5 (LBO) permet par exemple l'accord de phase non-critique de 1064 nm à 532 nm²⁷.

II.3.3.b L'acceptance spectrale et le walk-off temporel

La définition de l'accord de phase implique que les indices optiques vus par les deux ondes à deux longueurs d'onde différentes soient égaux. Par contre, la dérivée de l'indice optique par rapport à la longueur d'onde, aussi appelée vitesse de groupe, n'est pas égale pour différentes longueurs d'onde. Dans le domaine temporel, cela signifie que les enveloppes d'impulsions très courtes (à spectre très large) ne voyageront pas à la même vitesse au sein du cristal non-linéaire (phénomène de walk-off temporel). Cela créera un retard entre les deux ondes à la sortie du cristal, qui peut par exemple être problématique si l'on compte effectuer une somme de fréquences entre les ondes fondamentales et doublées (on réalise alors un triplement de fréquence). Vu dans le domaine spectral, cette limitation signifie que certaines longueurs d'onde du spectre ne seront pas doublées, ce qui peut conduire à un élargissement temporel des impulsions finales générées. L'acceptance spectrale $L\Delta\lambda$ est définie comme la déviation en longueur d'onde par rapport à la longueur d'onde d'accord de phase nécessaire pour réduire l'efficacité de conversion de moitié (elle est

²⁷ Il doit par contre être alors régulé autour de 150 °C

parfois appelée la tolérance spectrale). Elle est exprimée en nm.cm^{28} : en effet, plus la longueur du cristal est grande, plus l'acceptance spectrale est faible. Dans le cas de la somme de fréquences d'impulsions très courtes (les problèmes apparaissent généralement pour des impulsions de durées inférieures à la picoseconde), la longueur du cristal non-linéaire sera également limitée. La longueur de cristal correspondant à l'acceptance spectrale est donnée par la formule suivante :

$$l_t = \frac{\Delta\tau}{\frac{1}{v_\omega^g} - \frac{1}{v_{2\omega}^g}} \quad \text{Eq. II-11}$$

Dans cette équation, l_t est la longueur maximale du cristal, $\Delta\tau$ la durée d'impulsion à mi-hauteur, et v_ω^g et $v_{2\omega}^g$ les vitesses de groupes à ω et 2ω . À titre d'exemple, si l'on reprend le cas précédent d'un BBO en accord de phase pour la SHG Type-I de 532 nm à 266 nm, et une impulsion de 500 fs, on obtient une longueur de cristal limite de 800 μm .

De la même manière qu'on a noté l'existence d'accords de phase non-critiques en angle, il existe des configurations d'accords de phase non-critiques en spectre : l'exemple le plus connu est sans conteste le « magic angle » du BBO pour l'amplification paramétrique non-colinéaire (un BBO taillé à $\theta=23.4^\circ$ avec un angle non-colinéaire de 2.6° permet d'obtenir une bande d'accord de phase de plusieurs centaines de nanomètres avec un pompage à 515 nm)(Gale et al. 1995).

II.3.3.c L'acceptance en température

L'indice optique des matériaux variant également avec la température, on peut définir une variation de température ΔT provoquant une baisse de moitié de l'efficacité de conversion : on parle alors d'acceptance thermique. On peut également définir l'acceptance thermique $L\Delta T$, exprimée en $^\circ\text{C.cm}$. Dans la plupart des cas, cette acceptance sert uniquement à définir si un système de régulation de température pour le cristal est nécessaire, et si oui quelle doit en être sa précision. Les acceptances thermiques sont généralement de l'ordre de la dizaine de degrés par centimètre de cristal : pour garder une efficacité de conversion constante, il convient de réguler un cristal à au moins un dixième de cette valeur.

L'acceptance thermique peut devenir un vrai problème si des gradients de température sont présents dans le cristal, à cause par exemple de l'absorption de la longueur d'onde générée²⁹.

Il existe cependant des cristaux présentant des accords de phase non-critiques en températures. On pourra par exemple citer le cas du $\text{Ca}_4\text{GdB}_3\text{O}_{10}$ (GdCOB), qui utilisé pour la génération de second harmonique de 1064 nm vers 532 nm, possède une acceptance thermique de plus de 80°C.cm (Umamura et al. 2006; Aka et al. 1997). On peut également citer certains travaux utilisant la variation de l'indice optique avec la température pour augmenter l'acceptance spectrale d'un LBO (Regelskis et al. 2012).

Pour plus de détails sur le calcul des Δk induit par les variations d'indices optiques, le lecteur est invité à se reporter au livre « Solid State Lasers, W. Koechner » d'où est extrait la majeure partie du contenu théorique de ce chapitre.

²⁸ Dans le logiciel SNLO, l'acceptance spectrale est exprimée en nombre d'onde multiplié par des cm ($\text{cm}^{-1}.\text{cm}$)

²⁹ On verra par la suite que c'est un problème récurrent de la conversion de fréquence vers l'ultraviolet

II.4 Limitations des matériaux non-linéaires

Nous avons vu dans la partie précédente qu'en connaissant les paramètres d'un laser et d'un cristal non-linéaire, on pouvait calculer l'efficacité de conversion d'un processus tel que la SHG avec précision. La difficulté dans les expériences de conversion de fréquence n'est donc pas de prévoir le résultat de l'expérience, mais de choisir les bons paramètres qui vont permettre d'optimiser le résultat final. En effet, il existe de très nombreux cristaux non-linéaires, chacun ayant des propriétés particulières, ainsi que des avantages et des inconvénients à leur utilisation. Malheureusement, il n'existe pas de cristal non-linéaire « idéal », capable de répondre à toutes les applications ; dans ce chapitre, on va donc lister les différentes propriétés qu'il convient de connaître pour effectuer correctement le choix d'un cristal.

Certaines propriétés des cristaux non-linéaires seront communes à deux cristaux de même formule chimique quelle que soit la méthode ou les conditions de croissance cristalline. On va retrouver dans ces propriétés le coefficient non-linéaire, ainsi que les diverses acceptances dépendantes de l'indice de réfraction du cristal³⁰. Dans le cadre du développement d'un nouveau cristal non-linéaire par exemple, ces différents paramètres peuvent être déterminés expérimentalement à des stades très préliminaires de leur développement, afin d'évaluer leur potentiel.

D'autres paramètres dépendent fortement du type et de la qualité de la croissance cristalline. On trouve parmi eux notamment l'absorption, la taille des cristaux ainsi que leur seuil de dommage : ce sont ces problèmes que nous allons étudier spécifiquement dans cette partie.

II.4.1 Propriétés liées à la croissance cristalline

Le cycle de développement d'un nouveau cristal non-linéaire est très long : il faut souvent plusieurs dizaines d'années afin d'amener un cristal fraîchement développé à un stade de production industrielle. Les propriétés que nous allons maintenant présenter sont plus difficiles à décrire que les propriétés non-linéaires « théoriques », car elles varient fortement selon les fabricants et les méthodes de croissance. On essaiera quand même de dégager des tendances générales, car ce sont des paramètres souvent cruciaux pour la conversion de fréquence.

II.4.1.a Taille des cristaux disponibles

Lorsque l'on cherche à dimensionner un cristal non-linéaire, on doit déterminer sa longueur et sa section. On a vu dans les parties précédentes qu'une longueur accrue va augmenter l'efficacité de conversion (jusqu'à une certaine limite). La section du cristal est quant à elle très importante lorsque l'on travaille avec des lasers très énergétiques : en effet, il faut alors utiliser des faisceaux de diamètres très importants afin de ne pas endommager les cristaux.

La longueur et la section maximale d'un cristal non-linéaire dépendent directement de la taille du cristal brut pouvant être réalisé. Cette taille dépend de la nature du cristal, de la méthode de croissance utilisée, et est régulièrement augmentée par les industriels.

Le dihydrogène phosphate de potassium KH_2PO_4 (KDP) est un cristal non-linéaire reconnu pour la taille des cristaux qu'il permet d'obtenir : les plus grands cristaux, utilisés pour la conversion de fréquence des lasers MégaJoule en France et NIF à Livermore³¹ aux Etats Unis, ont des sections de plus de 40 cm (Stolz

³⁰ Il faudra bien évidemment nuancer ce propos : au fur et à mesure de l'amélioration des techniques de croissance, ces paramètres peuvent légèrement évoluer, mais avec une amplitude bien moindre que les paramètres des parties suivantes.

³¹ Ces deux installations ont initialement été conçues pour simuler les bombes H, et ont maintenant pour but de réaliser la fusion inertielle par laser.

2007; Takamoto SASAKI 1990) : un exemple de cristal développé pour le NIF est présenté ci-dessous en figure II-9.



Figure II-9: Photo d'un cristal brut de KDP développé pour le NIF à Livermore

On peut également noter les récents progrès réalisés sur la croissance des cristaux de LBO, qui atteignent maintenant des diamètres de plus de 30 cm (Kokh et al. 2010).

On verra par la suite que la longueur « disponible » des cristaux est rarement un problème. En effet, dans la plupart des cas, la longueur de notre cristal non-linéaire sera plus rapidement limitée par les acceptances spectrales et angulaires que par la longueur maximale disponible dans le commerce.

II.4.1.b Seuil de dommage

Le seuil de dommage d'un cristal est un paramètre important à prendre en compte lorsque l'on cherche à dimensionner une expérience de conversion de fréquence. En effet, une conversion de fréquence extra-cavité nécessite l'utilisation d'intensités élevées : on va souvent être amené à focaliser un faisceau laser énergétique sur une surface : il est alors très facile de dépasser le seuil de dommage des cristaux. Sur ce point, tous les cristaux ne se valent pas. Si l'on compare par exemple deux cristaux doubleurs de fréquences de l'IR vers le vert, le KTP et le LBO, le premier aura un seuil de dommage de 15 J/cm^2 tandis que le second ira jusqu'à 70 J/cm^2 .³² Il faut également prendre en compte le seuil de dommage en intensité crête. Ces seuils de dommage varient avec la longueur d'onde, avec la durée d'impulsion... De manière générale, il faut apporter une attention particulière au seuil de dommage lorsque le laser à convertir possède une forte énergie (à partir de centaines de μJ par exemple) et une puissance crête modérée (de l'ordre de 10-100 kW) : dans ce cas-là, on va devoir fortement focaliser le faisceau, et le seuil de dommage devient un facteur limitant.

Plusieurs études ont montré que le seuil de dommage des matériaux dépend fortement de la qualité des surfaces optiques (Gallais & Commandré 2014; Liu et al. 2014; Negres et al. 2014): aussi, il dépend fortement de la provenance du cristal non-linéaire considéré, et on doit donc prendre avec précaution toute donnée trouvée dans la littérature.

³² Données issues des constructeurs, mesurées dans l'infrarouge avec des impulsions de 10 ns, 10 Hz. Ce chiffre est donné à titre d'ordre de grandeur, la détermination des seuils de dommage étant un domaine scientifique complexe. Pour plus d'informations, on peut par exemple se rapporter à (Wagner et al. 2011; Wagner et al. 2010; Hildenbrand et al. 2009). De plus, les seuils de dommage des traitements antireflets sont généralement plus bas ($\sim 5 \text{ J/cm}^2$)

II.4.1.c Seuil de transparence et absorption

Tout cristal, de par sa nature chimique, possède une fenêtre de transparence, que l'on définit généralement comme la gamme de longueur d'onde dans laquelle la transmission du matériau est non-nulle. De manière générale, il est important que les longueurs d'onde en jeu dans le processus non-linéaire ne soient pas réabsorbées dans le cristal : ce paramètre a donné lieu au développement de nombreux cristaux non-linéaires. À titre d'exemple, considérons le cristal de titanyl phosphate de potassium KTiOPO_4 (KTP), utilisé de manière massive pour les oscillateurs paramétriques optiques vers $1,57 \mu\text{m}$ ($1064 \text{ nm} \rightarrow 1,57 \mu\text{m} + 3,3 \mu\text{m}$) afin de réaliser des dispositifs de visée à sécurité oculaire³³. Bien qu'ayant d'excellentes propriétés non-linéaires pour cette conversion de fréquence (il est très proche de l'accord de phase non-critique en angle), le KTP a un problème : il absorbe une part non-négligeable de l'onde à $3,3 \mu\text{m}$ générée, ce qui entraîne des problèmes de gradient thermique, de stabilité, etc. Pour régler ce problème, un nouveau cristal fût développé, le titanyl arséniate de potassium KTiOAsO_4 (KTA) : il possède les mêmes propriétés d'accord de phase que le KTP, mais a une fenêtre de transmission plus étendue dans l'infrarouge, et est donc transparent à $3,3 \mu\text{m}$ (voir ci-dessous Figure II-10). (Bosenberg et al. 1994; Cheng et al. 1994)

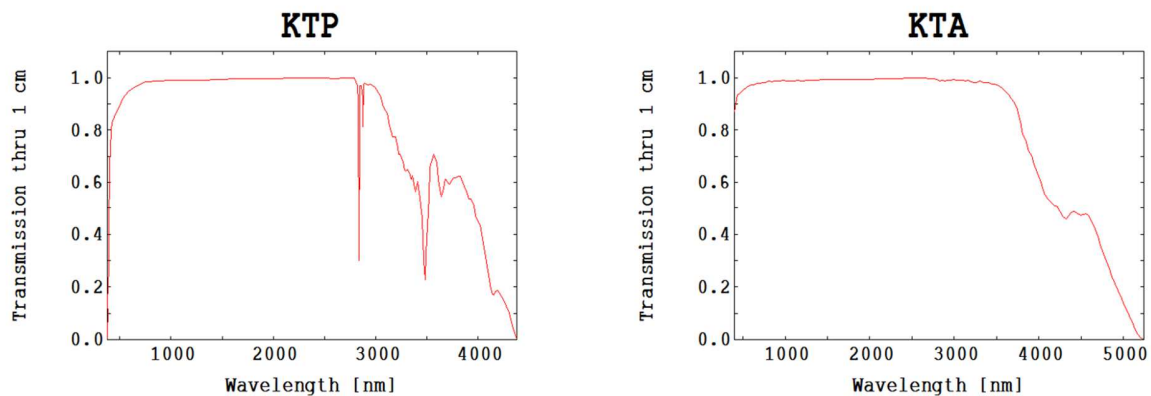


Figure II-10 : courbes de transmission du KTP et du KTA, tirées de la base de données du logiciel SNLO.

Dans le cas de la génération d'ultraviolet, la transparence du matériau est un problème majeur : en effet, alors que la plupart des cristaux sont transparents dans l'infrarouge, peu ont une transmission de 100% dans l'ultraviolet. On définit généralement le seuil de coupure comme la longueur d'onde à laquelle la transparence devient nulle. Au-dessus de ce seuil de coupure, il y évidemment une gamme de longueur d'onde dans laquelle la transparence est non-nulle mais pas de 100 %. La figure II-11 ci-dessous, extraite d'une présentation de Pascal Loiseau à l'ENSCP, présente les principaux cristaux possédant des seuils de coupure dans l'ultraviolet, tous faisant partie de la famille des borates. On y indique non seulement le seuil de coupure du cristal, mais également les longueurs d'onde UV minimales accessibles par génération de second harmonique. Attention, ce graphique n'indique pas les longueurs d'onde minimales pouvant être générées par somme de fréquence (par exemple en $\omega+3\omega$), qui sont généralement plus basses, car cela sort du cadre de cette thèse.

Cette figure montre qu'il existe des cristaux transparents en dessous de 200 nm ; ce qu'elle ne montre pas en revanche, c'est que l'absorption du cristal augmente bien avant cette longueur d'onde

³³ Par nos amis des industriels de la défense

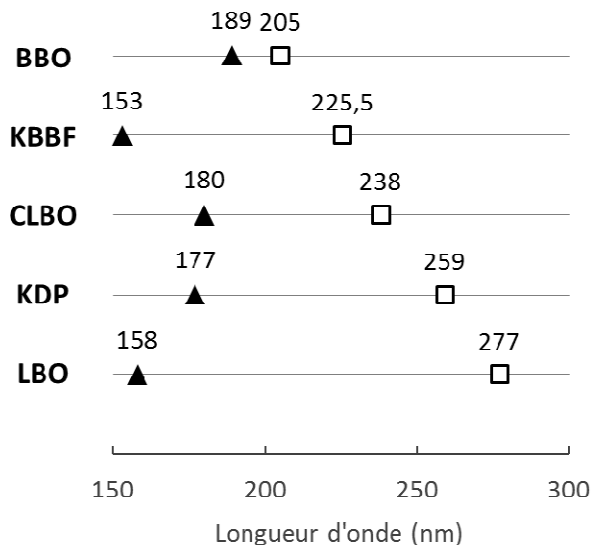


Figure II-11: Seuil de coupure (triangles pleins) et longueur d'onde minimale pouvant être générée par SHG (carrés vides) des principaux cristaux non-linéaires pour l'UV : BaB_2O_4 (BBO), $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ (KBBF), $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ (CLBO), KH_2PO_4 (KDP), LiB_3O_5 (LBO)

limite³⁴. En effet, la présence d'impuretés dans le cristal contribue à augmenter l'absorption aux longueurs d'onde basses ; ce taux d'impuretés dépend directement de la qualité de la croissance cristalline, et peut varier fortement entre différents fabricants et laboratoires. C'est souvent ce paramètre qui est très problématique au début du développement d'un nouveau cristal non-linéaire. Un exemple « emblématique » de cet aspect est sans conteste le développement du borate d'yttrium aluminium $\text{YAl}_3(\text{BO}_3)_4$ (YAB). Ce cristal possède d'excellentes propriétés non-linéaires pour la génération de 4^{ème} harmonique (Dekker & Dawes 2004; Liu et al. 2011; Yu et al. 2010), parmi lesquelles un seuil de transparence bas (173 nm) mais des problèmes d'impuretés lors de sa croissance empêche l'obtention de cristaux transparents dans l'UV. La figure II-12, extraite de (Yu et al. 2011), montre les différences de transmission de cristaux de YAB obtenues avec différentes conditions de croissance cristalline : dans un cas, l'environnement utilisé est de l'air, dans l'autre l'environnement est un gaz sans oxygène.

Les cristaux ultraviolets commerciaux tels que le BBO ou le CLBO n'ont évidemment pas des absorptions aussi mauvaises que celles du YAB données en exemple. Mais elles sont rarement spécifiées, et peuvent varier de manière importante entre les fabricants. Le paramètre de l'absorption est donc difficile

³⁴ Par contre, la tendance du seuil de coupure se retrouve sur les coefficients d'absorption dans l'UV. Sauf cas particuliers, plus un cristal a un seuil de coupure bas, plus il est facile d'obtenir des coefficients d'absorption dans l'UV faibles.

à connaître. S'il est disponible, on choisira le cristal ayant l'absorption la plus faible possible afin de minimiser les effets thermiques.

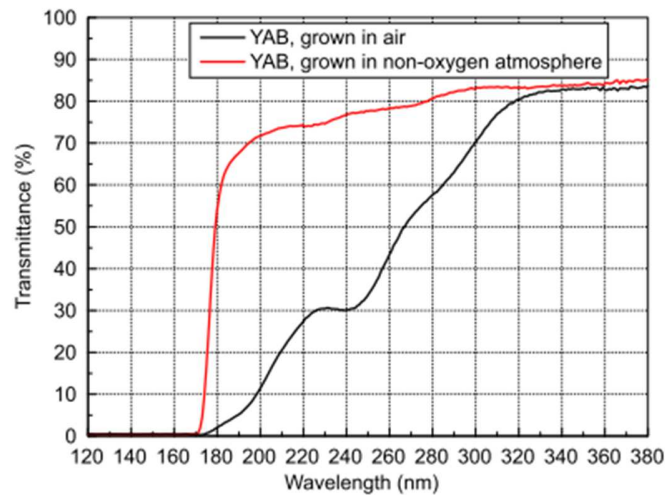


Figure II-12 : Transmission d'échantillons de YAB en fonction de l'atmosphère de croissance

Nous allons maintenant aborder une dernière série de propriétés liées au matériau, qui concerne les effets de dégradation des cristaux non-linéaires. Ce sont des problématiques principalement industrielles, les lasers UV utilisés dans l'industrie devant fonctionner des milliers d'heures sans rencontrer de problèmes. Nous essayerons tant bien que mal de donner un « aperçu » des problématiques sans rentrer en profondeur dans les détails physiques des effets concernés. L'idée de cette partie étant encore une fois de donner les concepts de base nécessaires au choix d'un cristal non-linéaire.

II.4.2 Effets de dégradation des cristaux non-linéaires

II.4.2.a Effets photoréfractifs

Un cristal souffrant d'effets photoréfractifs verra son indice de réfraction changer sous l'effet d'un champ électrique intense, tel que ceux caractérisant les faisceaux lasers. Ce phénomène peut conduire à la dégradation du cristal, à l'apparition d'une lentille parasite, et à la perturbation des domaines dans les cristaux à quasi-accord de phase³⁵. On peut expliquer l'effet photoréfractif simplement selon le schéma ci-dessous Figure II-13. Le cristal le plus connu souffrant d'effets photoréfractifs est sans conteste le niobate de lithium LiNbO_3 (LN). Le dopage de ce cristal à l'oxyde de magnésium (MgO) a permis de diminuer fortement l'influence de ce phénomène. De plus, l'effet photoréfractif est réversible en chauffant le cristal à plus de 170 °C (Zhang & Yin 1998; Villarroel et al. 2010).

³⁵ Il faut cependant noter que ces effets sont parfois utilisés pour réaliser des dispositifs tels que les mémoires holographiques : on va alors « enregistrer » une information en changeant localement l'indice optique du cristal

Le CLBO, cristal utilisé pour la conversion dans l'ultraviolet, souffre également d'effets photoréfractifs qui limitent sa durée de vie (Takachiho & Yoshimura 2014) : des chercheurs ont montré qu'en le dopant à l'aluminium, on pouvait augmenter sa résistance à ce phénomène (Takachiho et al. 2013).

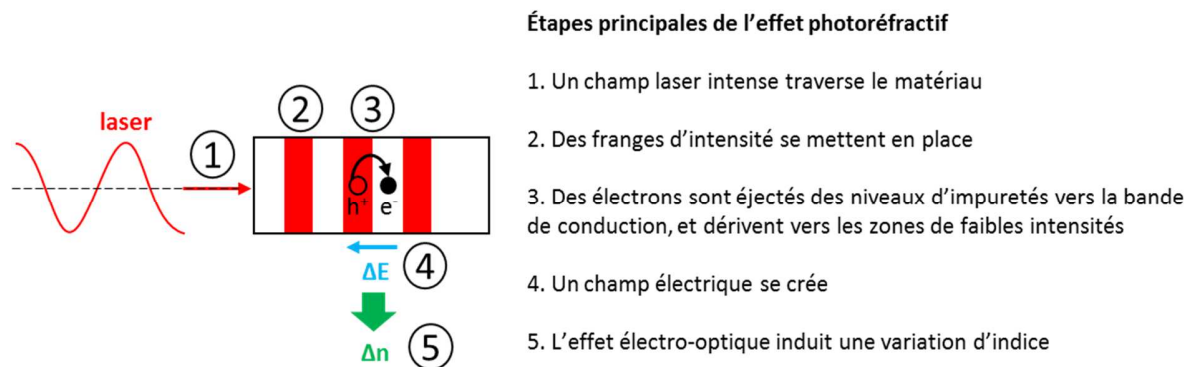


Figure II-13 : Schéma de principe expliquant l'effet photoréfractif

II.4.2.b Effets photochromiques (gray-tracking)

Un matériau sujet aux effets photochromiques va, sous certaines conditions, voir sa structure chimique changer sous irradiation lumineuse. Ce processus est appelé différemment selon le matériau considéré. Il est connu sous le nom de photo-noircissement (*photodarkening*) dans certaines fibres optiques ; dans les cristaux non-linéaires, il est plus connu sous le nom de *gray-tracking*. Il s'identifie par l'augmentation de l'absorption du matériau au cours du temps. Cet effet est lié à l'apparition de centres colorés ayant des bandes d'absorption étendues dans l'infrarouge et le visible. Dans les cristaux de KTP, on parle par exemple de Green Induced InfraRed Absorption (GIIRA). La création de ces centres colorés est le plus souvent induite par un phénomène d'absorption à deux photons, qui va venir peupler des niveaux d'impuretés présents dans le matériau. Ce phénomène est fortement dépendant des intensités laser en jeu ; son seuil d'apparition dépend du matériau, de la longueur d'onde, du taux de répétition de la qualité cristalline etc... Pour le KTP utilisé en génération de second harmonique, on peut considérer que le seuil de *gray-tracking* se situe autour de 80 MW/cm^2 à 532 nm ³⁶(Boulanger & Fejer 1994). De manière pratique, on constate l'apparition de ce phénomène par une diminution graduelle de la transmission de l'échantillon. Ce phénomène est en général réversible, la vitesse de récupération de l'échantillon dépendant de la température du cristal. On peut également « nettoyer » les cristaux avec un laser ultraviolet. En ce qui concerne le choix d'un cristal, il faut éviter les cristaux présentant des effets de dommages photochromiques quand c'est possible.

On parle souvent de *gray-tracking* lorsque ce phénomène apparaît sous irradiation visible. Dans l'ultraviolet, la plupart des cristaux souffrent aussi d'absorption à deux photons dont la valeur dépend de plusieurs paramètres tels que la température du cristal, le taux de répétition du laser, la qualité cristalline etc.

³⁶ Mesure faite à 10 Hz avec des impulsions de 10 ns. Il faut prendre cette valeur avec des pincettes, car elle est fortement dépendante de la qualité cristalline du cristal considéré. La société Cristal Laser commercialise par exemple un cristal de « KTP.fr » développé spécialement pour augmenter le seuil de *gray-tracking*

II.4.2.c Hygroscopie

Un matériau hygroscopique a la particularité d'absorber l'humidité de l'air ambiant. Exposé à un air humide, un cristal hygroscopique va progressivement incorporer de l'eau dans sa structure, ce qui dans certains cas change sa composition chimique, induisant des stress dans le cristal et modifiant ses propriétés d'absorption. On observera alors un blanchissement du cristal, qui réduira sa transparence avant de le rendre complètement opaque. L'hygroscopie est particulièrement problématique lors de la fabrication des cristaux : en effet, de nombreuses techniques de polissage impliquent par exemple l'utilisation d'eau ; pour les cristaux hygroscopiques, d'autres procédés doivent être développés ce qui peut être coûteux en main d'œuvre, temps et argent.

La plupart des cristaux non-linéaires pour la génération d'ultraviolet (LBO, BBO, KDP, CLBO) ont la mauvaise idée d'être hygroscopiques, mais ils ne le sont pas tous à la même intensité. Le LBO et BBO sont modérément hygroscopiques : on observe leur dégradation après plusieurs mois d'exposition à l'air libre. Le CLBO représente le cas extrême : c'est un cristal non-linéaire qui a d'excellentes propriétés non-linéaires pour la génération de 4^{ème} harmonique du Nd :YAG, mais qui est extrêmement hygroscopique (Morimoto et al. 2001; Pan et al. 2002). En contact avec l'air ambiant humide, il peut blanchir complètement en quelques heures, comme le montre la photo ci-dessous (Figure II-14) d'un cristal de CLBO extrêmement dégradé et fracturé après exposition à l'humidité de l'air ambiant et ouverture du four.

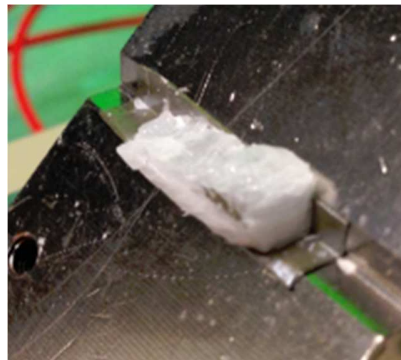


Figure II-14: Photo d'un cristal de CLBO exposé à l'air libre pendant une nuit, n'ayant pas survécu à l'ouverture de son four. Initialement transparent, il est maintenant complètement blanchi et s'est fracturé lors de l'ouverture du four.

Pour les cristaux hygroscopiques, il est nécessaire de prendre quelques précautions d'usage : les maintenir dans un air sec si possible, apposer un traitement protecteur sur les faces optiques (les traitements antireflets sont souvent adjoint d'une couche de MgF_2 qui a un rôle de protection). Dans les dispositifs industriels, on peut par exemple utiliser des sachets de dessiccant afin de diminuer l'humidité dans le boîtier. Réguler le cristal à haute température ($>100\text{ °C}$) permet également de diminuer le taux d'humidité de l'air dans le boîtier.

Il est intéressant de voir que de nombreux développements de nouveaux cristaux non-linéaires ont été réalisés dans le but d'obtenir des cristaux non-linéaires non-hygroscopiques, tels que le $Ca_5(BO_3)_3F$ (CBF) ou le YAB³⁷.

³⁷ Ces cristaux ne sont pas choisis au hasard, puisque leur développement est le thème de recherche d'un projet ANR dont nous avons fait partie ; des résultats sur le CBF seront notamment présentés dans la suite du manuscrit.

II.4.2.d Synthèse sur la dégradation des cristaux UV

La dégradation des cristaux non-linéaires dans l'ultraviolet est probablement le point le plus critique des lasers ultraviolets. Elle limite fortement la puissance et la durée de vie des systèmes disponibles. Bien que ce point soit plus une problématique industrielle que scientifique, nous tacherons ici de décrire brièvement les phénomènes majeurs, ainsi que les solutions développées pour y répondre.

On peut partir de la constatation du phénomène : lors de la conversion de fréquence vers l'ultraviolet, on observe de manière systématique que la puissance UV générée dans le cristal diminue au cours du temps. On constate en général que l'on peut retrouver partiellement la puissance maximale en se déplaçant dans le cristal non-linéaire.

Il est extrêmement difficile de donner une explication simple à la dégradation UV des cristaux non-linéaires, car elle résulte de multiples phénomènes que l'on peut classer en deux grandes catégories : les phénomènes de dégradation « intrinsèques » des cristaux, et les phénomènes de pollution par l'environnement.

La dégradation intrinsèque des cristaux non-linéaires peut être reliée aux effets « parasites » des matériaux présentés dans la partie précédente, tel que les effets photoréfractifs ou photochromiques. Takachicho *et al.* ont notamment montré que la dégradation dans le CLBO était associée à des dommages de type photoréfractifs, tandis que la dégradation du BBO pouvait être reliée à des mécanismes d'absorption à deux photons (Takachiho & Yoshimura 2014).

Il a été également montré que la qualité de polissage des surfaces des cristaux influait fortement sur la dégradation de cristaux LBO utilisés en conversion de fréquence vers l'UV (Hong *et al.* 2013)³⁸. D'autres auteurs ont montré que les impuretés de silice utilisées lors du polissage jouaient un rôle dans la formation de dépôts sur les surfaces optiques (Möller *et al.* 2007).

Les effets de pollution par l'environnement sont prépondérants dans la dégradation des cristaux ultraviolets. De manière générale, la lumière ultraviolette va induire des dépôts de composés chimiques sur la surface des optiques qui peut entraîner une diminution de leur transparence. Parmi les contaminants, on peut citer en premier lieu l'eau contenue dans l'air, qui par effet hygroscopique dégrade les surfaces (Kawamura *et al.* 2009). De plus, de nombreux matériaux utilisés dans les boîtiers lasers relâchent des gaz au cours du temps, qui vont former des dépôts sur les surfaces optiques. On trouve parmi ces matériaux les graisses, les plastiques, certains métaux, etc. Un exemple de matériau non adapté à l'ultraviolet est l'aluminium anodisé (présent sur la totalité des montures mécaniques bon marché) : les couches d'oxydes formant ce revêtement ont en effet tendance à piéger et à dégazer de nombreux composés chimiques. Ces phénomènes sont particulièrement étudiés lors de missions spatiales : en effet, les contaminations chimiques sont bien plus faciles sous vide, et la NASA met par exemple à disposition du grand public une liste de matériaux spécifiés pour dégazer peu de composés chimiques³⁹.

³⁸ Travaux qui ont vraisemblablement conduit à la commercialisation du « super-LBO » par l'entreprise japonaise Kogakugiken. <http://www.kogakugiken.com/products/crystals/01.html>

³⁹ Liste disponible à l'adresse : <http://outgassing.nasa.gov/>. Une présentation sur la contamination laser des optiques dans le domaine spatiale est également disponible à l'adresse suivante : <http://www.synchrotron-soleil.fr/images/File/soleil/ToutesActualites/Workshops/2012/SRI2012/Abstracts/RIEDE.pdf>

La dégradation des cristaux ultraviolets résulte donc de nombreux paramètres ; il est intéressant de constater les nombreuses solutions technologiques mises en place par les industriels pour limiter ces effets :

- **Translation du cristal** : La plupart des lasers industriels UV font mention d'un « *crystal shifter* ». Le cristal est placé sur des translations motorisées, afin de pouvoir utiliser plusieurs points à la suite. Ce dispositif est indispensable pour atteindre des durées de vie importantes, la durée de vie d'un point en génération de troisième harmonique à 355 nm n'excédant par quelques centaines d'heures par exemple.
- **Protection des surfaces optiques** : Il est possible de déposer des traitements optiques sur la surface des cristaux pour empêcher partiellement ce type de contaminations.
- **Environnement contrôlé** : les lasers de Spectra Physics disposent de la technologie APLS pour *Active Purification Laser system* ; elle consiste à introduire un flux de gaz dans la chambre laser afin d'en contrôler la composition exacte et l'humidité. Ce gaz peut être de l'oxygène sec, de l'azote, etc.... Le choix de l'environnement n'est pas évident : mettre sous vide par exemple, pose des problèmes de gestion thermique et de dégazage des matériaux.
- **Changement des cristaux** : des industriels comme Trumpf ont même organisé le remplacement systématique des cristaux non-linéaires : le cristal est placé dans une « cassette » remplaçable par l'utilisateur⁴⁰. Il est intéressant de voir qu'alors le cristal non-linéaire est vu comme un consommable, ce qui rapproche un peu le fonctionnement du système de celui des lasers à excimères (sans les contraintes de sécurité bien entendu).

Pour conclure, on peut résumer en quelques points les moyens d'optimiser la durée de vie des cristaux non-linéaires. Tout d'abord, le cristal doit être de bonne qualité optique afin de limiter les effets liés aux impuretés. De plus, ses surfaces doivent être correctement polies et traités afin d'être protégées des espèces chimiques environnantes : on peut par exemple trouver des traitements de surface transparents à l'UV et qui ne réagissent pas avec les espèces chimiques polluantes. Enfin, l'environnement doit être le plus pur possible, et les contaminations chimiques doivent être évitées.

II.4.3 Bilan des propriétés des cristaux non-linéaires

Au terme de ce chapitre, j'ai donc listé les différentes propriétés des cristaux non-linéaires qu'il faut connaître lors du dimensionnement d'une expérience de conversion de fréquence. Il est évidemment tentant de comparer tous les cristaux disponibles commercialement ; il faut cependant se méfier des tableaux comparatifs. En effet, on a vu dans les parties précédentes qu'une grande partie des propriétés des cristaux non-linéaires dépendent fortement de l'interaction considérée (et donc de la coupe du cristal). Il est donc difficile de définir « le » cristal parfait.

Un principe général peut cependant être appliqué en premier lors du choix d'un cristal non-linéaire : en premier lieu, on cherchera toujours à utiliser un cristal ne présentant pas d'effets parasites de dégradation tels que l'hygroscopie, les effets photoréfractifs ou photochromiques. Ces effets sont en pratique difficile à mitiger, et l'on risque des pertes de stabilité à long terme. Une fois le cristal choisi, on optimisera ensuite les paramètres tels que la taille du cristal et la taille de faisceau afin de maximiser le rendement de conversion tout en restant en dessous des seuils de dommages. Si l'on conclut ensuite que ce cristal ne permet pas un rendement suffisant, on ira alors chercher des cristaux ayant plus de problèmes mais permettant peut être d'atteindre des efficacités de conversion suffisantes.

⁴⁰ <http://www.laserfocusworld.com/articles/2014/02/trumpf-to-debut-nanosecond-laser-at-spie-photonics-west-2014.html>

Pour conclure ce chapitre, nous avons donc réalisé plusieurs tableaux et figures résumant les points abordés, situés ci-dessous en Figure II-15 et II-16. La première liste les propriétés des cristaux non-linéaires commerciaux pour deux conversions « classiques » abordées au cours de cette thèse : la génération de second harmonique de 1064 nm à 532 nm, et la génération de quatrième harmonique de 532 nm vers 266 nm.

Le diagramme schématique présente un protocole de choix d'un cristal non-linéaire en plusieurs étapes : elle a pour but de donner une démarche générale lors de la conception d'une expérience de conversion de fréquence vers le visible ou l'ultraviolet.

Figure II-15 : Tableau récapitulatif des différentes propriétés des cristaux non-linéaires pour la génération de second harmonique vers le visible et l'ultraviolet

Cristal	KTP	BiBO		LBO			KDP		DKDP			BBO		CLBO		KBBF	
Formule Chimique	KTiOPO4	BiB3O6		LiB3O5			KH2PO4		KD2PO4			BaB2O4		CsLiB6O10		KBe2BO3F2	
Type	biaxe positif	biaxe négatif		biaxe négatif			uniaxe négatif		uniaxe négatif			uniaxe négatif		uniaxe négatif		uniaxe négatif	
Seuil de transparence (nm)	350	286		160			177		200			189		180		147	
Dimensions maximale en cm (section x longueur)	3x3x4	1x1x1,5		5x5x6			50x50x50		50x50x50			2x2x2		3x3x4		1x1x0,3	
Seuil de dommage à 1064 nm (J/cm²) at 10 Hz, 10 ns	15	3		70			10		10			5		25		40	
Hygroscopie	aucune	aucune		faible			forte		forte			faible		très forte		non	
Effets photoréfractifs	non	oui		non			non		non			oui		oui		non	
Effets photochromiques	oui	non		non			non		non			non		non		non	
Utilisé en	Type-II	Type-I	Type-II	Type-I	Type-I NCPM à 150°C	Type-II	Type-I	Type-II	Type-I	Type-I NCPM à 50°C	Type-II	Type-I	Type-II	Type-I	Type-II	Type-I	Type-II
Longueur d'onde minimale atteignable par SHG (nm)	500	286	398	278	512	396	259	367	266	266	371	205	236	237	319	161	216
Génération de 2nd harmonique de 1064 nm à 532 nm																	
Coefficient non linéaire deff (pm/V)	3,58	2,97	1,83	0,83	0,85	0,63	0,26	0,34	0,22		0,34	2	1,41	0,38	0,675	0,44	0,34
Acceptance angulaire (mrad.cm)	14,1	2,28	0,67	9,63	>300	10,7	2,54	2,9	2,81		2,86	1,15	0,92	2,28	2	1,81	1,41
Walk-off (mrad)	4	26	85	7	0	6	28	24	25		25	56	68	31	35	40	50
Acceptance angulaire (nm.cm)	0,9	2,15	1,13	8,5	8,5	4,2	46,5	5	15		5	4,4	2,6	9,5	4,5	11,9	5,5
Acceptance thermique (K.cm)	25,4	2,9	11	7	5,4	7,1	11,4	13,3	37,2		33,4	40,7	42,6	57,5	57,6	?	?
Génération de 4ème harmonique de 532 nm à 266 nm																	
Coefficient non linéaire deff (pm/V)							0,46		0,43	0,43		1,75		0,79		0,41	0,15
Acceptance angulaire (mrad.cm)							2,48		8,38	>300		0,37		1,08		0,58	0,61
Walk-off (mrad)							14		4	0		85		33		62	56
Acceptance angulaire (nm.cm)							0,3		0,3	0,3		0,16		0,28		0,4	0,28
Acceptance thermique (K.cm)							2,55		3,43	3,33		6		6,8		?	?

Précisions sur le tableau

¹Le KBBF n'est disponible commercialement qu'en Chine : la Chine a en effet interdit ce matériau de toute exportation. Cette histoire très intéressante est racontée dans cet article : <http://www.nature.com/news/2009/090218/full/457953a.html>

²On a choisi de ne pas afficher les valeurs d'absorption, trop variables en fonction des sources.

³Dimensions données à titre indicatif, peut dépendre des fournisseurs

⁴Pour le BiBO, le CLBO et le BBO, les effets photoréfractifs apparaissent dans l'ultraviolet par absorption multiphotons et sont d'importance moindre que les effets de gray-tracking du KTP notamment

⁵Il existe d'autres configurations que celles mentionnées dans le tableau, mais qui sont moins intéressantes à tous les points de vue

⁶Les configurations suivantes : LBO Type I, LBO Type I, BiBO Type II, KDP Type-II, DKDP Type-II, BBO Type-II, CLBO Type-II, KBBF Type-I, KBBF Type-2, ont un coefficient non-linéaire qui diminue jusqu'à 0 lorsque l'on s'approche de leur longueur d'onde minimale doublée. Les longueurs d'onde minimales sont données à température ambiante

⁷Pour les cristaux en Type-II, l'acceptance spectrale et l'acceptance angulaire peut varier grandement entre les deux axes, on a pris la valeur la plus mauvaise.

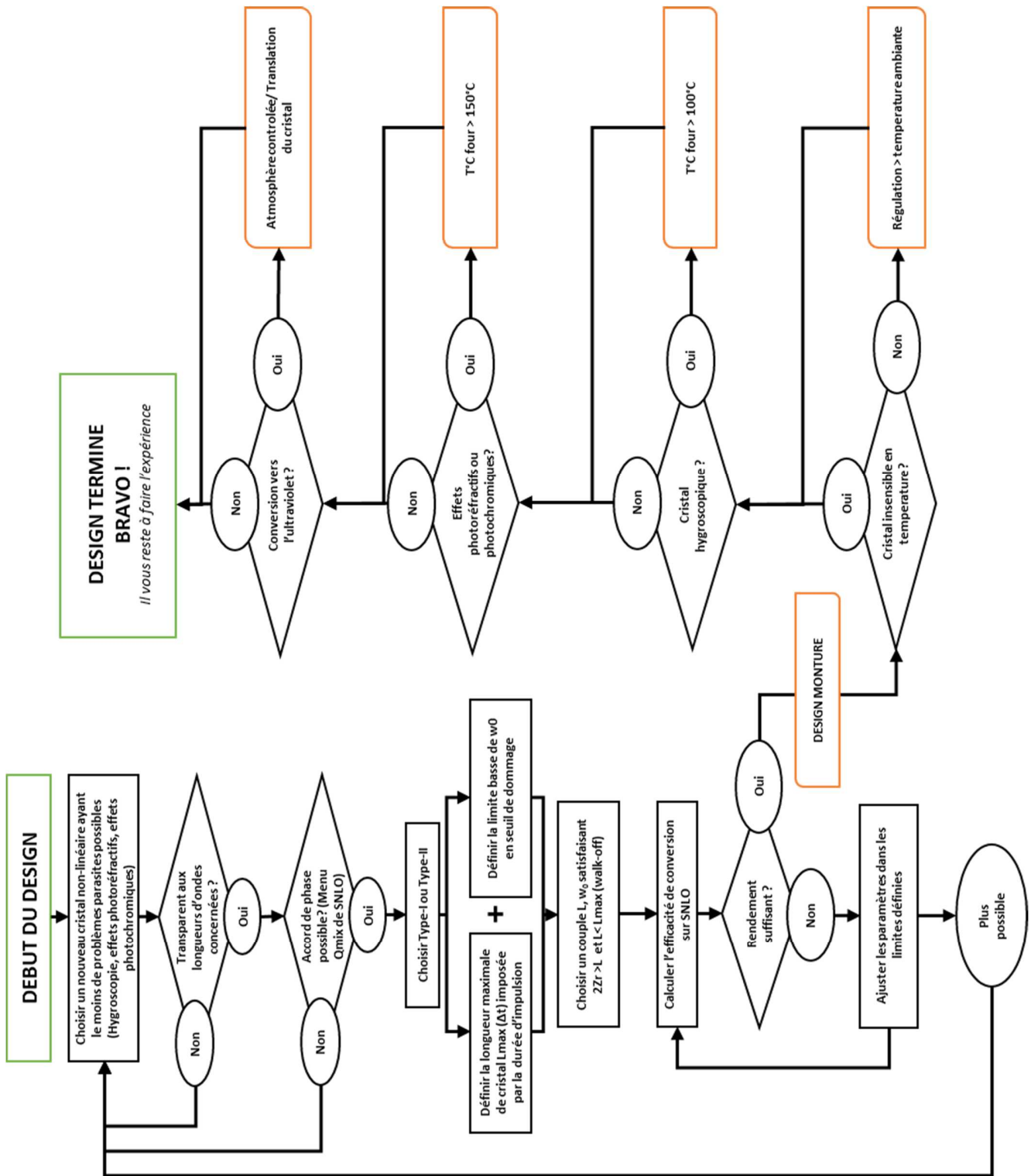


Figure II-16 : Diagramme de choix d'un cristal non-linéaire

CHAPITRE III :

Développement d'une source laser
à 236,5 nm

III. DEVELOPPEMENT D'UNE SOURCE LASER A 237 NM

Le développement d'une source laser à 237 nm fut l'objectif principal de cette thèse. Le choix de cette source a été motivé par plusieurs aspects. Nous avons d'abord constaté que les lasers solides ultraviolets se développaient à grande vitesse, et grignotaient progressivement les marchés autrefois réservés aux lasers à excimère. Mais dans le même temps, leur développement semblait difficile dans l'ultraviolet lointain (<300 nm), où les puissances moyennes des lasers disponibles sont limitées à quelques Watts (voir Chapitre I). Notre premier objectif, très général, était de contribuer au développement de ces sources afin qu'elles puissent un jour servir de vraie alternative aux lasers à excimère. Pour cela, nous avons décidé de développer des sources lasers à basse longueur d'onde (<250 nm) et de travailler sur leur montée en puissance moyenne et en énergie. En parallèle, nous nous sommes également intéressé aux besoins laser de la DGA qui a financé cette thèse. Il se trouve qu'il existe des molécules chimiques spécifiques (contenues dans les explosifs, les agents contaminants, les armes bactériologiques, etc.) dont la détection nécessite des lasers impulsionsnels à des longueurs d'onde particulières dans l'ultraviolet, longueurs d'onde différentes de celles des lasers ultraviolets « classiques » (voir encore Chapitre I). Bien que ces besoins soient couverts par les lasers accordables tels que ceux basés sur le saphir dopé au titane, ces derniers sont très coûteux et encombrants.

De nombreux travaux ont été réalisés par le groupe Lasers du Laboratoire Charles Fabry sur le développement de sources lasers à longueur d'onde non-standard, en utilisant par exemple les nombreuses raies d'émission de l'ion Néodyme (Balembois et al. 2011). Nous avons donc choisi de développer une source laser originale basée sur la conversion de fréquence vers l'ultraviolet des raies exotiques du Néodyme, afin d'atteindre des longueurs d'onde des lasers à excimère et de répondre aux besoins de la DGA.

La première partie de ce chapitre détaillera le choix de l'architecture laser développée, depuis l'identification des besoins jusqu'aux choix technologiques du laser final. Dans la deuxième partie, nous présenterons les différentes étapes expérimentales ayant conduit à l'obtention des performances finales de la source laser.

III.1 Dimensionnement de la source laser ultraviolette

III.1.1 Besoins en sources lasers UV de longueur d'onde non-standard

Comme nous l'avons vu dans le chapitre I, de nombreuses applications telles que l'ablation laser ou la chirurgie réfractive utilisent des lasers à excimères. Les longueurs d'onde principales des lasers à excimères sont rappelées dans la Figure III-1.

Excimère	F ₂ *	Xe ₂ *	ArF*	KrF*	ArCl*	XeF*
Longueur d'onde d'émission (nm)	157	175	193	248	308	351

Figure III-1 : Longueur d'onde principale des différents types de laser à excimère

Historiquement, de nombreuses applications ont été développées avec ces lasers ; pour cette raison, il peut être intéressant de développer un laser solide à la même longueur d'onde que les lasers à excimère, car la

réponse des matériaux par exemple sera bien connue. Si cela est possible, on va donc chercher à trouver une architecture laser permettant de s'approcher au plus près de ces longueurs d'onde particulières.

Le deuxième type de besoin que nous avons rapidement identifié est celui de la spectroscopie de composés dangereux. La DGA, qui finance cette thèse, nous a fourni des bandes spectrales d'« intérêt défense »⁴¹ :

- <240 nm
- 280 nm-290 nm
- 330 nm-340 nm

Il existe deux types d'applications dans ces gammes de longueurs d'onde, la détection locale et la détection à distance de molécules dangereuses. Ces deux applications nécessitent des caractéristiques lasers dans l'UV différentes, résumées dans le tableau de la Figure III-2.

	Détection locale	Détection à distance
Énergie par impulsion	> 1 μ J	> 1 mJ
Durée d'impulsion	< 100 ns	< 10-20 ns
Cadence	> 100 kHz	> 20 Hz
Qualité de faisceau	++	+

Figure III-2 : Spécifications nécessaires des lasers UV pour la détection de molécules dangereuses

Dans le cas de la détection locale, c'est la cadence qui est privilégiée car on souhaite pouvoir exciter plusieurs fois la même particule, avec un ou plusieurs lasers UV (à terme, avec des longueurs d'onde différentes). Des durées d'impulsions inférieures à la centaine de nanosecondes sont nécessaires afin d'avoir accès au temps de décroissance de la fluorescence des molécules lourdes (type hydrocarbure, à temps de décroissance long > 100 ns), ce qui permettrait de trier ces interférents potentiels. Les temps de décroissance des matériaux biologiques d'intérêt sont de l'ordre de quelques nanosecondes, donc nécessiteraient des lasers sub-nanoseconde. La qualité de faisceau doit être très bonne car on souhaite adresser particule par particule et donc utiliser des taches focales très petites.

Dans le cas de la détection à distance, on parle d'application type LIDAR. On privilégie alors l'énergie par impulsion et la durée des impulsions, la première fixant la sensibilité et la seconde la résolution spatiale longitudinale du LIDAR (à titre d'ordre de grandeur, 10 ns => 1,5 m). La cadence n'est pas importante : chaque tir est censé fournir "la même" information et la cadence est utilisée pour augmenter le rapport signal sur bruit (classiquement, de tels systèmes fonctionnent à quelques dizaines de Hz). La qualité de faisceau n'est pas non plus très importante car la propagation atmosphérique va la dégrader, ces fluctuations étant minimisées/intégrées par moyennage.

III.1.2 Choix de l'architecture

Nous avons donc cherché une architecture laser permettant de répondre à la fois au besoin de sources à longueur d'onde excimère, ainsi qu'aux besoins de la DGA. Si l'on s'autorise à effectuer la somme de fréquences de plusieurs lasers de longueurs d'onde différentes, en utilisant différents matrices et ions

⁴¹ Nous n'avons malheureusement pas eu à notre disposition les molécules correspondantes à chaque bande spectrale ; on verra que dans le cas de notre laser, nous avons pu cependant identifier certains des composés concernés

dopants, on aboutit à un nombre très important de configurations possibles (voir Annexe 3). Pour des raisons de praticité, nous nous sommes imposé plusieurs contraintes :

- Utiliser un laser unique : pour garder un système compact et limiter les coûts de réalisation, nous n'avons gardé que les architectures basées sur la génération d'harmonique (SHG, THG, FHG⁴²) d'un laser unique
- N'utiliser que des matrices laser commerciales : obtenir l'émission de raies non-standards étant difficile, inutile de complexifier davantage le problème.
- Utiliser si possible l'ion Néodyme : cela permettrait en effet d'utiliser les nombreux travaux de mes prédécesseurs (Balembois et al. 2011; Yiou et al. 2001; Herault et al. 2005; Délen et al. 2011).

De ces contraintes, une architecture satisfaisante émergea, qui consistait à effectuer la génération de 4^{ème} harmonique (FHG) de la raie à 946 nm du Nd:YAG, ce qui conduirait à obtenir une émission à 236,5 nm (Figure III-3). Cette raie laser UV est en effet située dans une bande d'intérêt militaire (<240 nm), et il existait déjà plusieurs travaux de détection d'explosifs concluants réalisés à cette longueur d'onde (Tuschel et al. 2010; Wynn et al. 2008; Wynn et al. 2010; Kavita & Das 2001). Ces travaux ont notamment démontré que les composés contenus dans la TNT pouvaient être détectés avec un laser situé dans la bande 230-240 nm par fluorescence ou bien par effet Raman. De plus, une longueur d'onde excimère peut être atteinte à partir d'un laser à 236,5 nm. La somme de fréquences entre 236,5 nm et un laser à 1064 nm conduit en effet à une longueur d'onde de 193,5 nm, soit la longueur d'onde d'un des lasers à excimère le plus utilisé, le laser ArF* (L'annexe 2 présente d'autres combinaisons de fréquence permettant d'atteindre les longueurs d'onde excimère qui n'ont pas été réalisées lors de cette thèse).

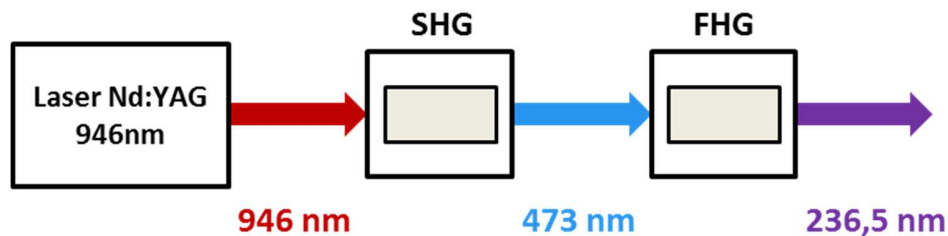


Figure III-3: Architecture laser vers 237 nm

Seuls quelques travaux ont été réalisés auparavant sur cette architecture : en 2003, Gerstenberger *et al* réalisèrent un laser à 236,5 nm en Q-switch actif ayant une puissance moyenne de 20 mW à 30 kHz ($\sim 1,5 \mu\text{J}$), avec des durées d'impulsions dans l'UV d'environ 60 ns (Gerstenberger et al. 2003). En 2007, Johansson *et al* réalisèrent un laser à 236,5 nm en Q-switch passif de 20 mW à 22 kHz ($\sim 1 \mu\text{J}$) avec des durées d'impulsions d'environ 10 ns. En 2008, Kimmelman *et al* réalisèrent également un laser à 236,5 nm de 7.6 mW à 35 kHz ($\sim 220 \text{ nJ}$) avec des durées d'impulsions de 2 ns. Dans les 3 cas, le laser à 946 nm avait une puissance moyenne inférieure à 3 W. Or, Xavier Délen avait lors de sa thèse⁴³ démontré un oscillateur continu à 946 nm de plus de 30 W (Délen et al. 2011) basé sur la technologie de la fibre cristalline : nous étions donc confiants dans la possibilité d'obtenir des performances bien supérieures à l'état de l'art.

⁴² SHG : Second Harmonic Generation, THG : Third Harmonic Generation, FHG : Fourth Harmonic Generation

⁴³ Thèse effectuée à l'IOGS, Université Paris-Sud (Paris XI)

III.1.3 Choix des technologies

Plusieurs choix technologiques étaient possibles pour la réalisation de ce laser, nous allons dans ce paragraphe détailler brièvement les choix que nous avons effectué.

III.1.3.a Oscillateur pur ou MOPA ?

On peut séparer les lasers solides en 2 grandes familles : les oscillateurs lasers « purs », où les performances maximales sont obtenues directement en sortie d'oscillateur laser, et les systèmes dit MOPA (*Master Oscillator Power Amplifier*), où un oscillateur laser de faible puissance est amplifié dans un ou plusieurs étages de conversion. Nous avons choisi d'utiliser un oscillateur unique à 946 nm pour deux raisons. D'une part, nous souhaitons développer l'architecture la plus simple possible, le sujet de thèse n'étant pas axé sur les lasers à 946 nm : à ce titre, n'avoir qu'un seul oscillateur laser simplifie le design et la réalisation. D'autre part, les travaux réalisés par Xavier Délen sur l'oscillateur à 946 nm peuvent être réutilisés facilement.

III.1.3.b Q-switch ou verrouillage de mode ?

Le verrouillage de mode permet d'obtenir des durées d'impulsions courtes (bien inférieures à la nanoseconde), ce qui aurait été un avantage pour une application défense. Néanmoins, ces applications nécessitent des énergies importantes en sortie d'oscillateur : les applications de détection d'explosifs par exemple nécessitent une énergie de l'ordre du millijoule dans l'UV. Ce niveau d'énergie n'est pas atteignable en sortie d'un oscillateur en verrouillage de mode et nécessitent d'ajouter un amplificateur de type régénératif. Nous avons donc choisi d'utiliser une cavité laser déclenchée, qui permet en théorie d'obtenir directement des énergies importantes de l'ordre du millijoule⁴⁴.

III.1.3.c Choix de la fibre cristalline

Les travaux précédant ma thèse du Laboratoire Charles Fabry sur la raie à 946nm ont utilisé des cristaux laser sous forme de fibre cristalline. Cette géométrie a été développée au sein de l'Institut d'Optique et par la société Fibercryst à Lyon. Elle consiste à fabriquer des cristaux laser cylindriques de grande longueur (> 40 mm) et de faible diamètre (< 1 mm). Ce cristal est ensuite intégré dans une monture mécanique de refroidissement très performante, qui permet de diminuer les gradients thermiques de plus de 100°C à l'intérieur du cristal (Délen et al. 2011). Cette architecture laser a également la particularité de guider la pompe dans la fibre cristalline, et ainsi d'augmenter le recouvrement pompe/signal. Le principe général d'un laser à fibre cristalline est illustré Figure III-4.

Pour plus de détails sur les propriétés de guidage de la fibre cristalline, le lecteur est invité à lire précédentes thèses sur le sujet (Didierjean 2007; Martial 2011; Damien 2009). Des fibres cristallines et un module de refroidissement sont illustrés sur la Figure III-5.

⁴⁴ C'est un ordre de grandeur, l'énergie extraite en régime déclenchée dépendant de nombreux paramètres

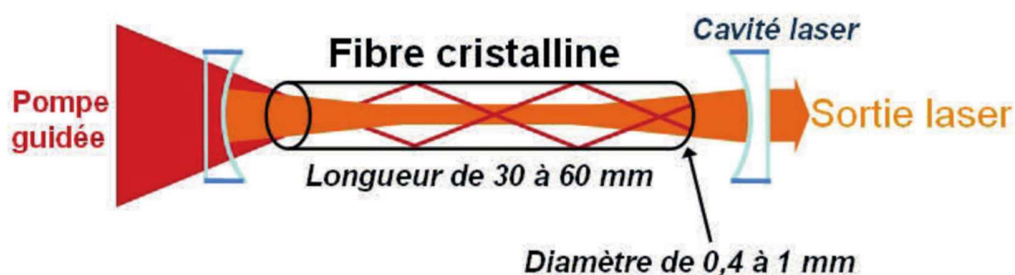


Figure III-5 : Principe général d'un laser à fibre cristalline. Le signal de pompe est guidé dans la fibre tandis que le signal laser s'y propage librement

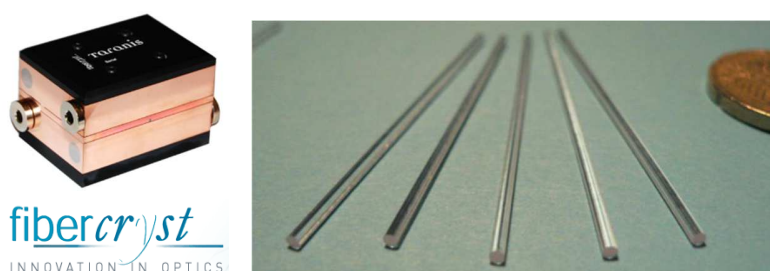


Figure III-4 : (gauche) Photo d'un module Taranis de fibre cristalline ; (droite) Fibres cristallines

III.1.3.d Système de conversion de fréquence

Étant donné que l'on réalisera un oscillateur déclenché à forte énergie, la puissance crête sera suffisante pour effectuer les conversions de fréquence à l'extérieur de la cavité en simple passage sans la complexité des cavités résonnantes.

III.1.3.e Bilan de l'architecture

En conclusion, nous avons donc choisi de réaliser un oscillateur laser impulsionnel ns à 946 nm, converti en fréquence vers 236,5 nm. Il devra satisfaire les besoins suivants :

- **Obtenir une forte puissance moyenne à 946 nm** : pour cela, on utilisera un module de fibre cristalline de Nd:YAG
- **Avoir une bonne qualité spatiale** : on devra optimiser la cavité pour obtenir un faisceau gaussien en sortie si possible
- **Être polarisé** : les conversions de fréquence sont bien plus efficaces et simples à mettre en œuvre si le rayonnement est polarisé linéairement ; on devra donc insérer un élément polarisant dans la cavité laser
- **Fonctionner en régime déclenché** : la cavité devra intégrer un élément forçant le laser de fonctionner en régime déclenché ; comme un acousto-optique ou un électro-optique. Pour obtenir les impulsions les plus courtes possibles, la longueur de la cavité devra être minimisée⁴⁵

⁴⁵ Ce point sera détaillé dans la partie consacrée au régime déclenché ; pour l'instant on l'admettra.

- **Être converti en fréquence vers 236,5 nm** : on cherchera donc à maximiser les efficacités de conversion vers l'ultraviolet

Lors du développement du laser, tous ces points ont été abordés de manière successive. Les parties suivantes suivront donc naturellement ces différents besoins, en détaillant les différentes techniques mises en œuvre pour y répondre.

III.2 Développement de la source laser déclenchée à 946 nm

III.2.1 Rappel des propriétés spectroscopiques du Nd :YAG

La transition laser à 946 nm du Nd:YAG est illustrée en Figure III-6, en comparaison avec la transition à 1064nm.

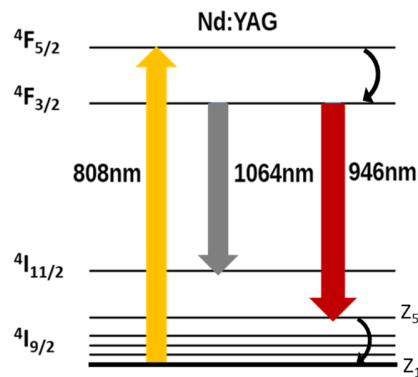


Figure III-6: Transition laser à 946 nm et 1064 nm du Nd:YAG

Le pompage à 808 nm excite les électrons du niveau fondamental $^4I_{9/2}$ vers le niveau $^4F_{5/2}$. Ceux-ci subissent ensuite une transition non radiative vers le niveau $^4F_{3/2}$. La transition radiative à 946 nm se fait alors vers le niveau « fondamental » $^4I_{9/2}$. Le terme « fondamental » est mis entre guillemets car le niveau $^4I_{9/2}$ est en fait divisé en 5 sous-niveaux Z_1, \dots, Z_5 par effet Stark⁴⁶. Chacun de ces sous-niveaux présente une occupation thermique différente à l'état fondamental, déterminée par l'équation de population de Boltzman. Si l'on admet que tous les sous-niveaux Stark du niveau $^4I_{9/2}$ ont le même facteur de dégénérescence g , le facteur d'occupation f_i du niveau i vaut alors :

$$f_i = \frac{e^{-\frac{E_i}{kT}}}{\sum_i e^{-\frac{E_i}{kT}}} \quad \text{Eq. III-1}$$

⁴⁶ L'effet Stark est la séparation d'un niveau d'énergie en plusieurs sous-niveaux sous l'effet d'un champ électrique externe ; dans le cas d'un cristal laser, ce champ provient de la matrice cristalline.

Avec E_i l'énergie du niveau considéré, k la constante de Boltzmann et T la température. Pour les niveaux Z_1 à Z_5 du niveau ${}^4I_{9/2}$ (Z_5 étant le niveau bas de la transition à 946 nm), les facteurs d'occupation à température ambiante sont donnés dans la Figure III-7:

Niveau ${}^4I_{9/2}$	Énergie E_i (cm^{-1})	Facteur d'occupation f_i (%)
Z_5	848	0,78
Z_4	311	10,4
Z_3	197	18,0
Z_2	134	24,4
Z_1	0	46,5

Figure III-7 : Facteurs d'occupation des sous-niveaux ${}^4I_{9/2}$, le niveau Z_5 étant le niveau bas de la transition à 946 nm

La transition à 946 nm du Nd:YAG est donc une transition que l'on appelle communément « quasi-trois niveaux » : le niveau bas de la transition laser est si proche du niveau fondamental qu'il possède une population thermique dont on doit tenir compte. En effet, bien que faible, cette population thermique introduit une probabilité de réabsorption du signal laser, ce qui conduit à augmenter le seuil d'inversion de population (l'efficacité du laser, elle, ne change pas).

Propriétés spectroscopiques		
Formule	$\text{Nd}^{3+}:\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$	
Structure	Cubique	
Biréfringence	Isotrope	
Temps de vie du niveau émetteur (μs)	230	
Densité d'ions Nd^{3+} pour un dopage 0,2% (cm^{-3})	$2,70\text{E}+19$	
Emission laser		
	1064nm	946nm
Défaut quantique (%)	32	17
Section efficace d'émission (m^2)	$1,7\text{E}-23$	$3,0\text{E}-24$
Section efficace d'absorption (m^2)	$5,0\text{E}-28$	$3,7\text{E}-26$
Pompage		
Longueur d'onde (nm)	808	
Section efficace d'absorption (m^2)	$2,6\text{E}-24$	

Figure III-8 : Propriétés spectroscopiques principales du Nd:YAG à 1064 nm et 946 nm

Les propriétés spectroscopiques du Nd:YAG sont indiquées dans la Figure III-8, et sont comparées à celle de la raie à 1064 nm afin d'avoir un point de référence. Premièrement, le défaut quantique de la transition à 946 nm est 2 fois inférieur à celui de la transition à 1064 nm. Deuxièmement, la section efficace d'émission laser de la transition à 946 nm est plus de 5 fois inférieure à celle à 1064 nm. Enfin, la section efficace de réabsorption laser à 946 nm est bien supérieure à celle à 1064 nm ; en effet, le niveau bas de la transition laser à 1064 nm n'est quasiment pas peuplé thermiquement.

III.2.2 Architecture finale du laser

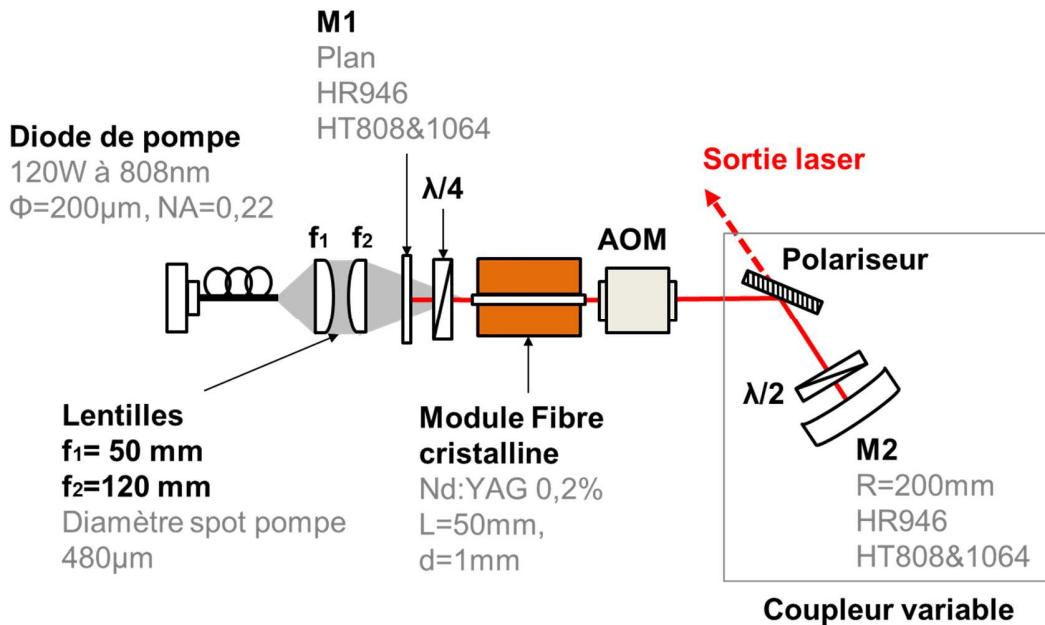
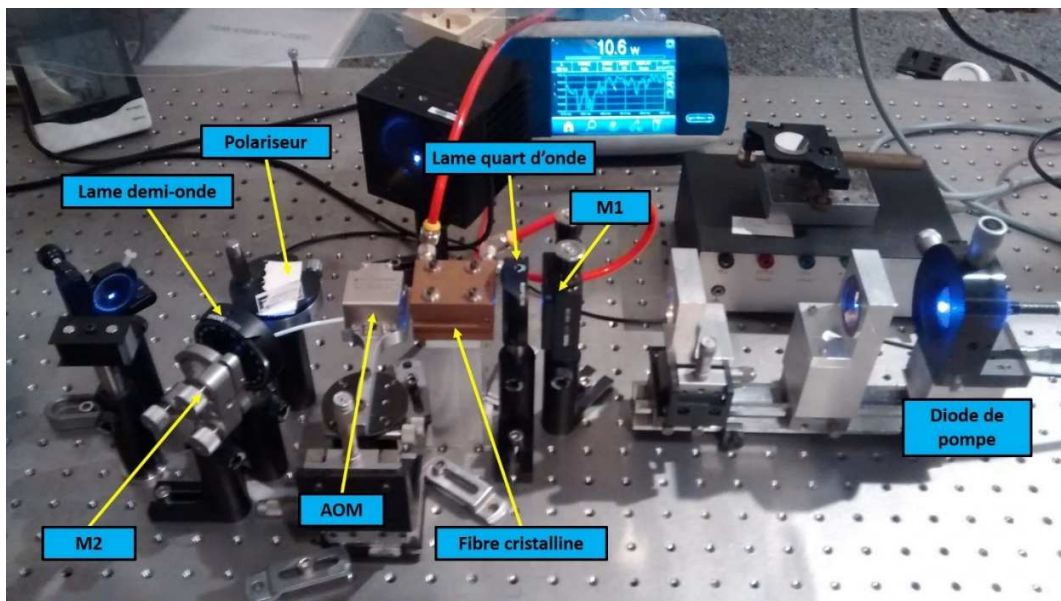


Figure III-9 : Schéma expérimental de l'oscillateur déclenché à 946 nm et photo

Le développement du laser à 946 nm fut le fruit de nombreuses étapes. Pour simplifier la lecture de cette partie, nous présenterons d'abord l'architecture finale de l'oscillateur déclenché à 946 nm ainsi que ses performances. Puis, nous détaillerons trois points ayant posé des problèmes lors du développement du laser : le dimensionnement de la cavité, la polarisation du laser, ainsi que le passage au régime déclenché. Le schéma expérimental de l'oscillateur laser est donné dans la Figure III-9. On utilise une diode de pompe LIMO de 120 W de puissance moyenne à 808 nm, couplée dans une fibre de 200 μm de cœur et ayant une ouverture numérique de 0,22. La sortie de la diode est collimatée et focalisée dans le milieu amplificateur sur un diamètre de 480 μm au waist à l'aide d'un doublet de lentilles convergentes $f_1=50$ mm et $f_2=120$ mm. Le milieu amplificateur est une fibre cristalline de Nd:YAG dopé à 0,2% en ions néodyme ; la fibre cristalline est un barreau monocristallin de 50 mm de long et de 1 mm de diamètre. La pompe est absorbée à plus de 98% dans la fibre cristalline. La cavité laser est formée par deux miroirs M1 et M2 ayant tous les deux un traitement à haute réflectivité à 946 nm (>99,9%) et une haute transmission à 1064 nm et 808 nm (<1%). Le miroir M1 est plan, tandis que le miroir M2 est plan-concave avec un rayon de courbure de 200 mm. La polarisation du laser est assurée par un polariseur (EK SMA) en film mince utilisé en réflexion dans la cavité. Le polariseur réfléchit la polarisation S à plus de 99,5% et transmet la polarisation P à plus de 95 %. Ce polariseur joue également le rôle de coupleur variable de sortie de la cavité laser, en combinaison avec une lame demi-onde placée entre le polariseur et le miroir M2. Pour compenser les pertes induites par la dépolarisation dans le barreau de Nd:YAG, on a introduit une lame quart d'onde entre le miroir d'entrée M1 et la fibre cristalline⁴⁷. La sortie laser à 946 nm se fait donc par transmission dans le polariseur, illustré dans le schéma expérimental. Enfin, un modulateur acousto-optique (AOM) est placé entre la sortie de la fibre cristalline et le polariseur. La longueur totale de la cavité laser est de 210 mm.

Dans sa configuration finale, l'oscillateur laser fonctionne avec des performances résumées dans le tableau de la Figure III-10.

Performances de l'oscillateur à 946 nm	
Puissance de pompe (W)	90
Longueur d'onde (nm)	946
Puissance moyenne (W)	9
Cadence (kHz)	20
Durée d'impulsion (ns)	45
Energie (μJ)	450
M^2	<1,2
Largeur spectrale (nm) ⁴⁸	0,03

Figure III-10 : performances principales de l'oscillateur déclenché à 946 nm

Notre laser à 946 nm a une puissance moyenne de 9 W en régime déclenché pour 90 W de pompe. Le faisceau de sortie est polarisé à plus de 99 %. Les impulsions ont une durée de 45 ns à un taux de répétition de 20 kHz, soit une énergie par impulsion de 450 μJ : on obtient donc au total une puissance crête de 10 kW. Le mode laser est gaussien avec un M^2 mesuré inférieur à 1.2 pour les deux axes (photos

⁴⁷ Ce point sera détaillé plus tard

⁴⁸ Mesuré avec un analyseur de spectre optique ; résolution de la mesure $\pm 0,01\text{nm}$

du profil en Figure III-11). La stabilité de la puissance moyenne a été également mesurée et est indiquée en Figure III-11. Elle a été mesurée à 3% en valeur RMS⁴⁹. Ces performances sont très satisfaisantes, car au-dessus de l'état l'art (la comparaison des résultats obtenus à la littérature sera faite dans la conclusion)

Si l'on compare nos performances aux spécifications requises pour une application défense⁵⁰, on remarque que notre configuration se situe à un niveau intermédiaire entre la détection locale et à distance : la détection locale nécessite des cadences plus élevées, que l'on peut atteindre en régime déclenché au prix d'une durée d'impulsion plus longue. La détection à distance requière des impulsions plus énergétiques et un peu plus courtes que celles démontrées ici, mais nous restons proches des spécifications. Il faut bien noter que ce laser a été réalisé dans le but premier d'obtenir des performances supérieures à l'état de l'art, et seulement dans un second temps de s'approcher des spécifications défense.

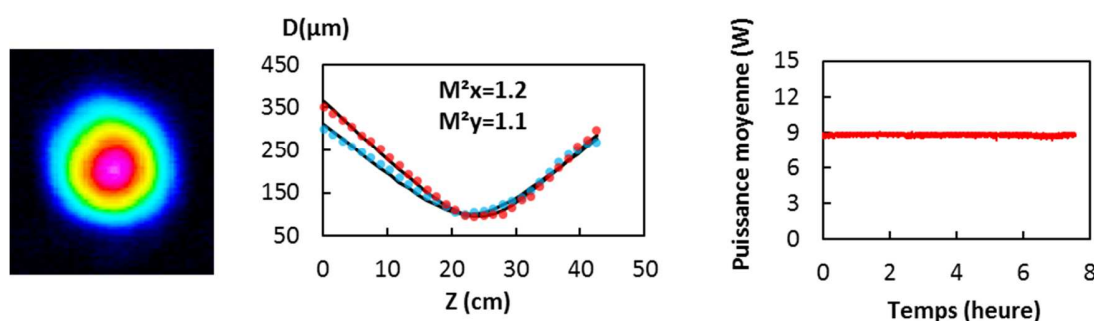


Figure III-11: (gauche) Profil de faisceau à 946nm ; (droite) Qualité de faisceau à 946 nm mesurée

Les caractéristiques de l'oscillateur n'ont été que volontairement très peu détaillées. En effet, on va par la suite étudier plus en profondeur les points cruciaux pour la réalisation de ce laser. On va en premier lieu s'intéresser au design de la cavité, et montrer comment nous avons obtenu une bonne qualité de faisceau malgré la forte lentille thermique dans notre milieu amplificateur ; puis, nous montrerons comment nous avons géré la dépolarisation dans le cristal de Nd:YAG. Enfin, nous détaillerons le passage en régime déclenché et la caractérisation des impulsions laser obtenues.

III.2.3 Design de la cavité laser

L'un des premiers challenges à relever fût de concevoir une cavité laser simple pour l'oscillateur. Nous nous sommes fixés plusieurs contraintes en fonction des paramètres finaux auxquels nous souhaitons aboutir :

- La cavité doit être simple à réaliser et à aligner
- Le mode laser doit être gaussien avec un M^2 le plus petit possible

⁴⁹ Plus précisément, on a calculé l'écart de chaque point à la valeur RMS en pourcentage. On a ensuite calculé que 99% des points de mesure avaient un écart à la valeur RMS inférieur à 3%.

⁵⁰ Notons bien que les spécifications sont données dans l'UV, alors que l'on parle dans cette partie uniquement des performances de l'oscillateur infrarouge

- Le diamètre du faisceau de pompe doit être le plus large possible afin de limiter les effets thermiques (lentille thermique, dépolarisation,...)⁵¹
- La cavité doit être la plus courte possible pour minimiser la durée d'impulsion en régime déclenché⁵²

Afin de choisir le type et les paramètres de cavité, on doit connaître un paramètre essentiel : la valeur de la lentille thermique dans le milieu amplificateur.

III.2.3.a Mesures de lentille thermique

La lentille thermique est un phénomène physique apparaissant dans les cristaux lasers lorsqu'ils sont soumis à un pompage optique important. Dans ce cas, une partie de l'énergie de la pompe est dissipée dans le cristal sous forme de chaleur (pertes non-radiatives et défaut quantique) : le cristal se comporte alors comme une lentille parasite, perturbant ainsi les conditions de stabilité de la cavité. Plus précisément, on peut citer trois effets physiques aux origines de la lentille thermique :

- La variation de l'indice de réfraction avec la température
- La déformation des faces du cristal par dilatation thermique
- La variation de l'indice de réfraction avec les gradients de contraintes provenant de la dilatation thermique (biréfringence induite)

Pour plus de détails sur les origines de la lentille thermique, le lecteur est invité à lire les excellentes thèses de Sébastien Chenais et Julien Didierjean, toutes deux réalisées au Laboratoire Charles Fabry (IOGS, Université Paris-Sud).

Il existe de nombreuses manières de caractériser la lentille thermique, qui diffèrent par leur complexité de mise œuvre et par la précision des résultats obtenus. Dans notre cas, nous ne souhaitons avoir qu'un ordre de grandeur de la lentille thermique dans notre fibre cristalline, et souhaitons utiliser une méthode très simple à mettre en œuvre.

Une des méthodes classiques de détermination expérimentale de la lentille thermique consiste à mesurer l'étendue de la zone de stabilité d'une cavité composée de deux miroirs plans entourant le cristal (Neuenschwander et al. 1995). Le schéma expérimental de cette mesure est illustré en Figure III-12. Le

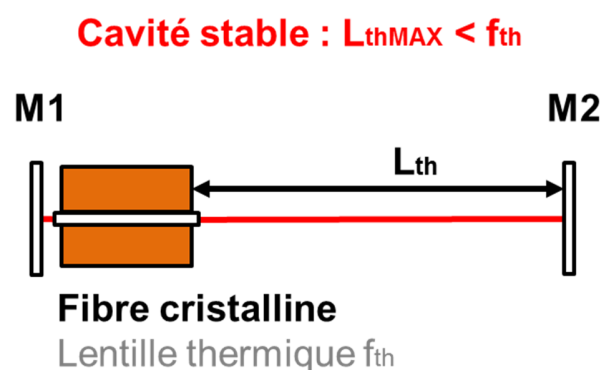


Figure III-12: Principe de la mesure de lentille thermique par perte de stabilité de cavité laser

⁵¹ Expliqué dans les parties suivantes

⁵² Expliqué dans le chapitre sur le régime déclenché

premier miroir M1 est collé au cristal, le deuxième M2 est éloigné le plus possible en gardant l'émission laser. On peut alors montrer que la distance focale de la lentille thermique, approximée par une lentille simple, est égale à la longueur maximale L_{th} de la cavité.

Plus précisément, notre protocole expérimental comporte plusieurs étapes :

- Déterminer expérimentalement pour une puissance de pompe donnée la distance maximale du miroir de fond de cavité avant la perte de stabilité de la cavité
- Simuler la cavité sur un logiciel de calcul matriciel (ici ReZonator) en approximant la fibre cristalline par un milieu d'indice n comportant une lentille mince en son milieu
- Simuler la lentille thermique équivalente correspondant à la perte de stabilité de la cavité

En utilisant une fibre cristalline de 50 mm de long, pompée sur $460 \mu\text{m}$ par une diode 60 W^{53} , $100 \mu\text{m}$, NA 0,22, on obtient les résultats illustrées dans la Figure III-13. Dans le cas d'un cristal massif de quelques millimètres de long, simuler le gradient d'indice provoqué par l'élévation de température dans le cristal par une lentille mince est assez réaliste, car le milieu actif est peu épais par rapport à la longueur de la cavité. Dans le cas des fibres cristallines, la charge thermique est répartie sur plusieurs centimètres de long, et par conséquent simuler une fibre par une lentille mince est une approximation.

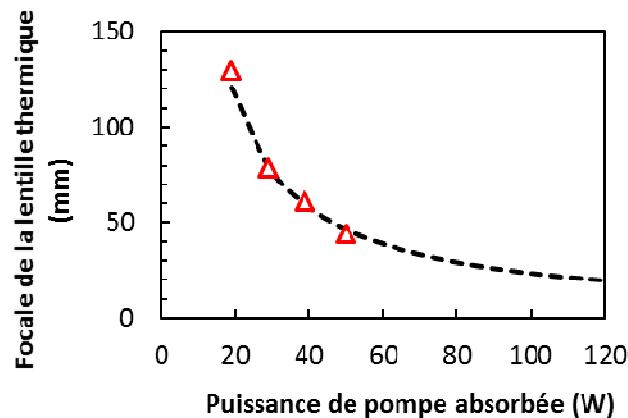


Figure III-13 : Mesures de la lentille thermique (triangles rouges) ; estimation théorique (trait noir pointillé)

On a également voulu valider nos résultats théoriquement. Sur le graphique, on a également tracé une estimation théorique de la lentille thermique dans le cas d'une lentille mince, selon la formule suivante⁵⁴ :

$$f_{th} = \frac{2K_c \pi \omega_p^2}{\eta_h R P_{abs} \chi} \quad \text{Eq. III-2}$$

Dans cette formule, K_c désigne la conductivité thermique du Nd:YAG, comprise entre 10 et $12 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ selon le dopage (Didierjean et al. 2008), ω_p désigne le rayon du faisceau de pompe au waist, ici égal à

⁵³ A l'époque des mesures, la diode de $120 \text{ W}/200\mu\text{m}/0.22$ utilisée dans la configuration finale n'était pas encore achetée

⁵⁴ Tirée encore une fois des thèses de J.Didierjean et S.Chenais

9), a été simulée grâce au logiciel ReZonator⁵⁶. La Figure III-14 montre les paramètres de simulation utilisés pour le calcul, tandis que la Figure III-15 représente le rayon du mode fondamental laser au centre de la fibre cristalline pour différentes valeurs de lentille thermiques. On rappelle que dans notre cas, on a fixé le diamètre du mode de pompe à 500 μm . Sur la Figure III-15, on voit que le rayon du mode fondamental approche les 250 μm pour des valeurs de la distance focale de la lentille thermique entre 30 et 40 mm, puis atteint rapidement la limite de stabilité. Cela signifie qu'on devrait observer la qualité spatiale s'améliorer lorsque l'on augmente la puissance de pompe.

L'introduction par la suite de milieu d'indice différent de 1 tels que l'AOM va changer légèrement les distances définies dans les paramètres de simulations ; pour ne pas alourdir le manuscrit, on ne fera pas tous les calculs dans ce cas.

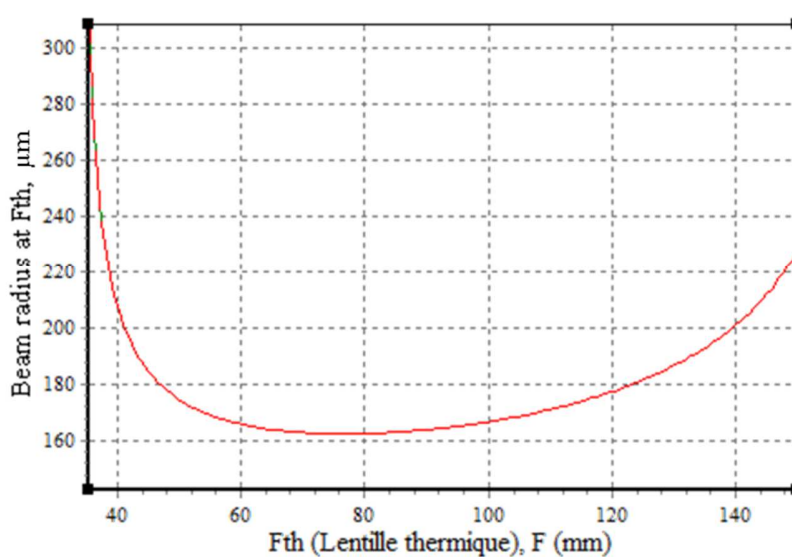


Figure III-15: Evolution du rayon du mode laser fondamental avec la lentille thermique. Le rayon du mode laser approche le rayon du faisceau de pompe (250 μm) pour une lentille thermique comprise entre 30 et 40 mm

⁵⁶ Rezonator est un logiciel gratuit de calcul matriciel, permettant de concevoir facilement des cavités laser

III.2.3.c Mesures des profils de faisceau

Nous avons vérifié expérimentalement le comportement du profil de faisceau avec la puissance de pompe. La Figure III-16 présente différents profils de faisceau correspondant à des puissances de pompe croissantes, ainsi que les puissances moyennes laser correspondantes.

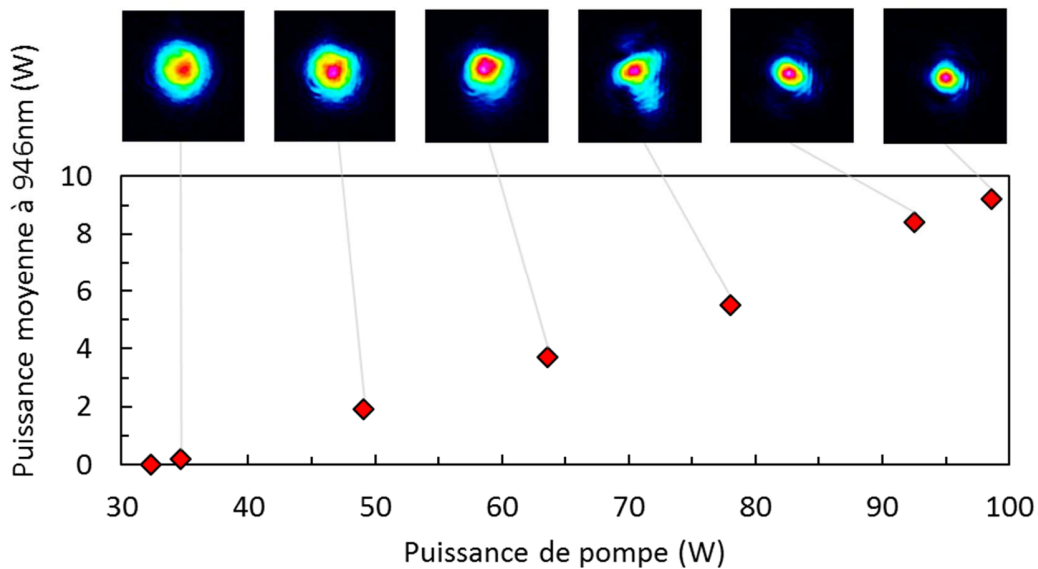


Figure III-16 : Profils de faisceau à 946 nm en fonction de la puissance de pompe

On remarque que l'évolution du profil de faisceau en fonction de la puissance de pompe suit bien le comportement défini théoriquement. A basse puissance de pompe, le profil de faisceau n'est pas parfaitement gaussien. La taille du faisceau diminue lorsque la puissance de pompe augmente, signe que la divergence du faisceau diminue, et on observe que la qualité spatiale du faisceau augmente.

III.2.4 Dépolarisation dans le Nd:YAG

L'oscillateur que nous avons développé se devait d'être polarisé, car le processus de génération de second harmonique nécessite un faisceau polarisé linéairement afin de maximiser l'efficacité de conversion. Dans cette partie, nous verrons en quoi la gestion de la polarisation dans du Nd:YAG pompé à forte puissance est problématique, et les moyens que nous avons mis en œuvre pour résoudre ce problème.

III.2.4.a Rappels théoriques sur la dépolarisation

La dépolarisation est un phénomène physique introduisant des pertes dans la cavité laser. Il se produit lorsque le milieu laser est soumis à un fort gradient thermique, qui dans le cas d'un faisceau gaussien traversant un milieu refroidi de manière homogène (cas de la fibre cristalline) correspond à un gradient thermique orienté radialement par rapport à l'axe de propagation dans le cristal.

Sous l'effet du phénomène de photoélasticité, une biréfringence parasite apparaît alors en tout point du cristal ; les indices de réfraction induits sont orientés radialement et tangentiellement au gradient thermique, et leur amplitude relative dépend du point considéré. Ce principe est illustré Figure III-17. Si un faisceau polarisé linéairement traverse ce milieu, les composantes radiales et tangentielles aux nouveaux axes biréfringents créés subiront des déphasages différents : la polarisation sera alors elliptique en sortie du cristal. Lorsque ce faisceau elliptique passe dans le polariseur, la partie dépolarisée est extraite par transmission : c'est l'origine des pertes par dépolarisation. Sur notre schéma, si l'on suppose que la polarisation incidente est horizontale, la dépolarisation sera maximale pour les points situés à 45° des axes : c'est l'origine des « fleurs » de dépolarisation illustrées Figure III-17.

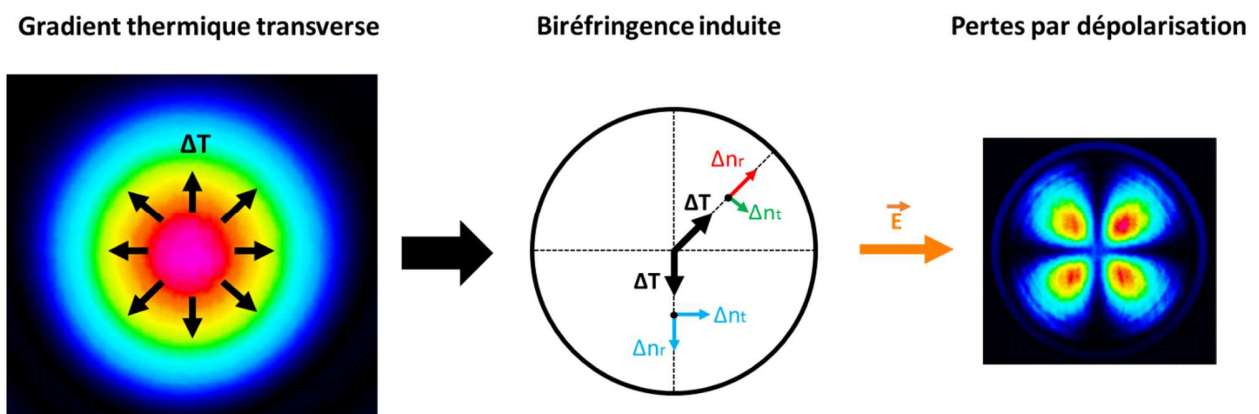


Figure III-17 : Gradient thermique causé par l'absorption du faisceau de pompe (gauche) ; Biréfringence induite en 2 points du cristal. L'amplitude relative des composantes radiales et tangentielles dépend du point considéré (milieu) ; « Fleur » de dépolarisation observée par transmission après le polariseur (Puncken et al. 2010)

III.2.4.b Méthodes de compensation de la dépolarisation

Il existe plusieurs manières de compenser les pertes par dépolarisation, nous allons en expliquer brièvement trois. La première méthode consiste à choisir une coupe de cristal autre que la coupe classique [111] pour le Nd:YAG : on peut en effet trouver des combinaisons d'orientation de la polarisation imposée et de coupe du cristal pour réduire très fortement la dépolarisation (principe illustré Figure III-18). On trouve notamment que la dépolarisation est minimale quand le cristal est coupé selon l'un de ses axes cristallins (001, 010 ou 100) : on peut alors montrer que les indices de biréfringence induite ont la même amplitude, et n'introduisent pas de phase parasite (Puncken et al. 2010). Par contre, pour ces orientations particulières, et contrairement à la coupe « standard » [111] du Nd:YAG, la dépolarisation dépend alors de l'orientation du champ électrique incident par rapport à la maille cristalline. L'inconvénient de cette technique pour notre oscillateur est donc double : d'une part, il faudrait pouvoir obtenir des fibres cristallines à coupe non-standard, qui ne sont pas produites actuellement ; d'autre part, il faudrait pouvoir orienter la polarisation imposée par rapport à celle de la fibre dans la monture, ce qui nécessiterait un nouveau type de monture de refroidissement pour la fibre cristalline.

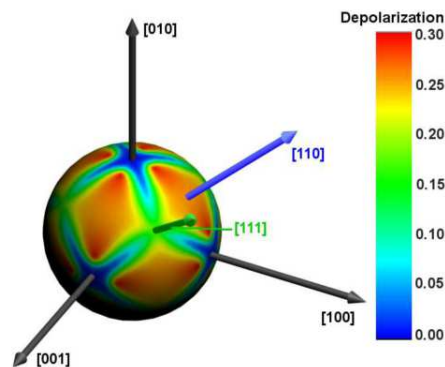


Figure III-18 : Minimum de dépolarisation en fonction de l'orientation cristalline, calculé pour 180 W de pompe (Puncken et al. 2010)

Une deuxième méthode consiste à placer dans la cavité un élément rotateur de polarisation. En effet, la dépolarisation consiste en une phase induite dans le milieu amplificateur entre les deux axes de la biréfringence induite. Si l'on dispose d'un moyen pour faire tourner la polarisation du laser de 90° entre deux passages dans le cristal, les indices optiques vus par le laser après un double passage dans le cristal seront les mêmes : il n'y aura alors pas de différence de phase induite et la dépolarisation sera fortement réduite (principe illustré Figure III-19).

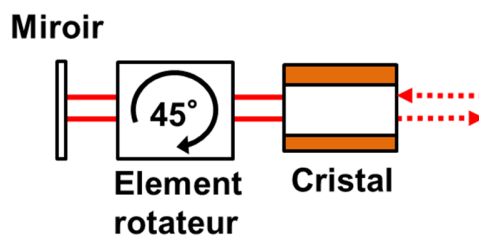


Figure III-19 : Principe de la compensation de dépolarisation par élément rotateur

Dans un oscillateur comprenant un cristal laser unique, cette méthode peut être implémentée en plaçant un rotateur de Faraday⁵⁷ de 45° entre le cristal et le miroir d'entrée (Scott 1971). L'avantage de cette méthode est que la dépolarisation est compensée en tout point du faisceau ; de plus, il existe des rotateurs pouvant supporter de hautes puissances. Par contre, ces composants ont une taille importante (longueur souvent supérieure à 5-6 cm), et sont très onéreux (> 3000 €).

⁵⁷ Un rotateur de Faraday est un composant magnéto-optique permettant de faire tourner la polarisation linéaire d'un faisceau laser le traversant. Il diffère des lames d'ondes et des polariseurs par le fait que le sens de rotation de la polarisation est toujours le même quel que soit le sens de propagation dans le rotateur : si après un passage dans le rotateur, on renvoie le faisceau laser dans ce même rotateur, les rotations de la polarisation s'additionnent au lieu de se compenser.

Enfin, une troisième solution est une version moins onéreuse de la technique précédente : elle consiste à utiliser une lame quart d'onde ($\lambda/4$) comme élément rotateur (Clarkson et al. 1999). En effet, la majeure partie de la dépolarisation dans le milieu laser a lieu à 45° de la polarisation imposée dans la cavité. Si on aligne les axes neutres d'une lame quart d'onde avec ces axes de dépolarisation maximale, la polarisation sur les axes subira alors une rotation de 90° après un double passage. Par contre, la dépolarisation n'est compensée correctement que sur les axes neutres de la $\lambda/4$: comme le montre la Figure III-20 (Kandasamay et al. 2000). On peut montrer que l'efficacité de cette technique diminue lorsque la puissance thermique dissipée dans le cristal augmente.

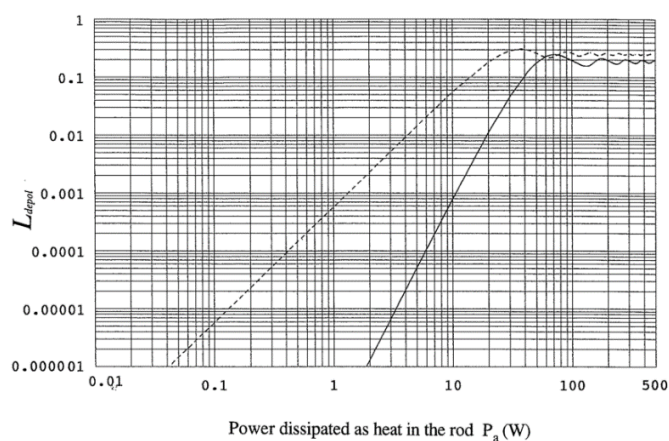


Figure III-20 : Pertes par dépolarisation calculées en fonction de la puissance thermique dissipée dans le cristal sans compensation (pointillé) et avec compensation d'une $\lambda/4$ (plein)

Etant donné notre puissance de pompe modérée (une centaine de watts, soit entre 10 et 20 W de puissance thermique déposée), ainsi que le coût et l'encombrement réduits d'une lame quart d'onde, c'est cette méthode que nous avons choisi de mettre en œuvre.

III.2.4.c Mesures de dépolarisation

Nous présentons ici les mesures de compensation de dépolarisation à l'aide d'une lame quart d'onde. Le schéma expérimental de mesure est présenté Figure III-21. Il est très similaire au schéma expérimental final de l'oscillateur, à quelques modifications près :

- L'AOM a été retiré
- Le miroir M2 n'est plus HR à 946 nm, mais a une réflectivité de 98% (+/- 0,5%) à 946 nm
- On a supprimé le coupleur variable en retirant la lame demi-onde

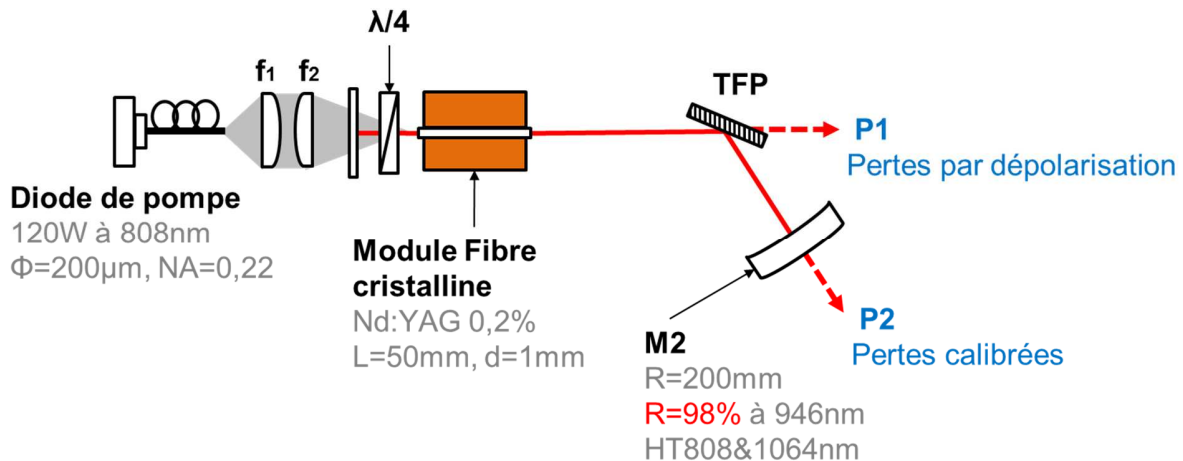


Figure III-21 : Schéma expérimental de mesure des pertes par dépolarisation

On mesure simultanément deux puissances : la puissance P1 transmise par le polariseur, qui correspond aux pertes par dépolarisation, ainsi que la puissance P2 qui est un coupleur calibré. En supposant que le polariseur réfléchit la polarisation S à 99,9% et transmet la polarisation P à 95%, on peut facilement en déduire la valeur des pertes par dépolarisation en fonction de la puissance de pompe du laser. Cette mesure est présentée Figure III-22 pour deux configurations : dans la première, on ne met pas de lame quart d'onde ; dans la deuxième, on introduit la lame quart d'onde comme indiquée sur le schéma et on ajuste son orientation pour minimiser les pertes par dépolarisation. On observe comme prévu que la compensation de la biréfringence induite fonctionne jusqu'à une certaine puissance de pompe, dans notre cas jusqu'à 120 W de pompe. Notons que dans le cas sans $\lambda/4$, on observe une saturation des pertes par dépolarisation : elles correspondent au moment où les pertes par dépolarisation deviennent supérieures à la transparence du coupleur de sortie, perturbant fortement le fonctionnement du laser. Dans la configuration finale, l'oscillateur fonctionne à une puissance de pompe de 100 W, et on a donc réduit de moitié les pertes par dépolarisation. Notons ici que la limite expérimentale de puissance de pompe à laquelle nous n'observons plus de compensation de dépolarisation par la $\lambda/4$ est plus basse que celle rapportée dans l'article théorique cité précédemment (Kandasamay et al. 2000). Nous attribuons cette différence à une configuration de cavité différente (section de cristal et taille de mode laser différentes).

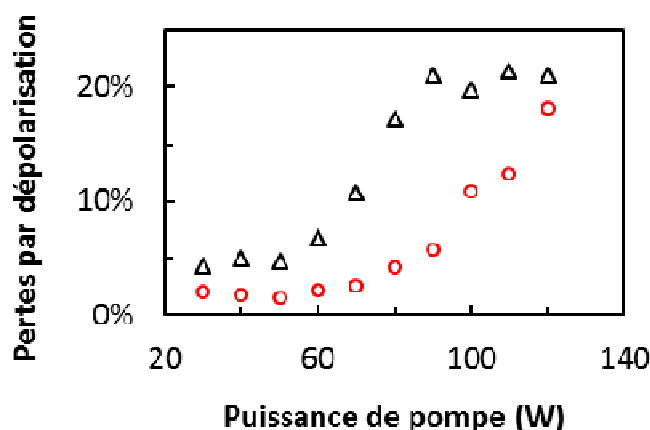


Figure III-22 : Pertes par dépolarisation sans $\lambda/4$ (triangles noirs) et avec $\lambda/4$ (cercles rouges)

III.2.5 Régime déclenché

Dans cette partie, nous allons nous intéresser au déclenchement actif de la cavité. Nous commencerons par rappeler très brièvement la théorie du déclenchement de cavité, pour ensuite s'intéresser à sa mise en place expérimentale. On cherchera notamment à obtenir des impulsions les plus énergétiques et les plus courtes possibles.

III.2.5.a Rappels théoriques sur le régime déclenché

Le principe du déclenchement de cavité laser (plus communément appelé « Q-switching » en anglais) consiste à alterner deux étapes de manière rapide. Dans la première, on empêche l'effet laser dans la cavité en introduisant des pertes importantes, tout en maintenant un pompage optique important. L'inversion de population (et donc le gain) augmente alors fortement dans le milieu amplificateur. A un instant donné, on supprime les pertes dans la cavité, ce qui permet l'oscillation laser. L'impulsion créée voit une inversion de population bien plus importante qu'en régime continu, et est amplifiée très fortement jusqu'à l'arrêt de l'effet laser ou du cycle de déclenchement suivant. On obtient ainsi des impulsions ayant des durées de quelques nanosecondes à plusieurs dizaines de nanosecondes. La Figure III-23, extraite du site RP Photonics, illustre le phénomène de création d'une impulsion en régime déclenché.

La théorie complète du régime déclenché peut se trouver dans la quasi-totalité des ouvrages théoriques sur les lasers et dans de nombreuses thèses sur le sujet⁵⁸. A ce titre, on ne détaillera pas ces équations ici, et on se contentera de rappeler trois principes du régime déclenché qui auront une influence directe sur les performances de notre oscillateur :

- Plus la longueur de cavité laser est faible, plus la durée d'impulsion Δt théorique diminue⁵⁹.
- La durée d'impulsion Δt diminue également avec l'énergie stockée dans le milieu laser, et donc diminue lorsque le taux de répétition du dispositif déclencheur diminue.

⁵⁸ Pour un non-initié, je recommande fortement le livre *Solid-State Lasers* de W.Koechner, qui a une approche très industrielle de la physique des lasers tout en fournissant une base théorique solide.

⁵⁹ Le cas extrême de ce principe est celui des lasers dit « microchip » : dans leur cas, un cristal laser d'une épaisseur de quelques centaines de microns ainsi qu'un absorbant saturable de quelques centaines de microns également forment une cavité laser, et permettent d'obtenir des impulsions de plusieurs centaines de picoseconde.

- Le deuxième point n'est valide que jusqu'à une certaine cadence dépendant du temps de vie des ions néodyme dans le niveau émetteur. En dessous d'une cadence f_{lim} que l'on peut considérer égale à l'inverse du temps de vie dans le niveau émetteur⁶⁰, l'énergie stockée n'augmente plus et on observera une baisse de la puissance moyenne en sortie du laser⁶¹, ainsi que l'arrêt de la diminution de la durée d'impulsion.

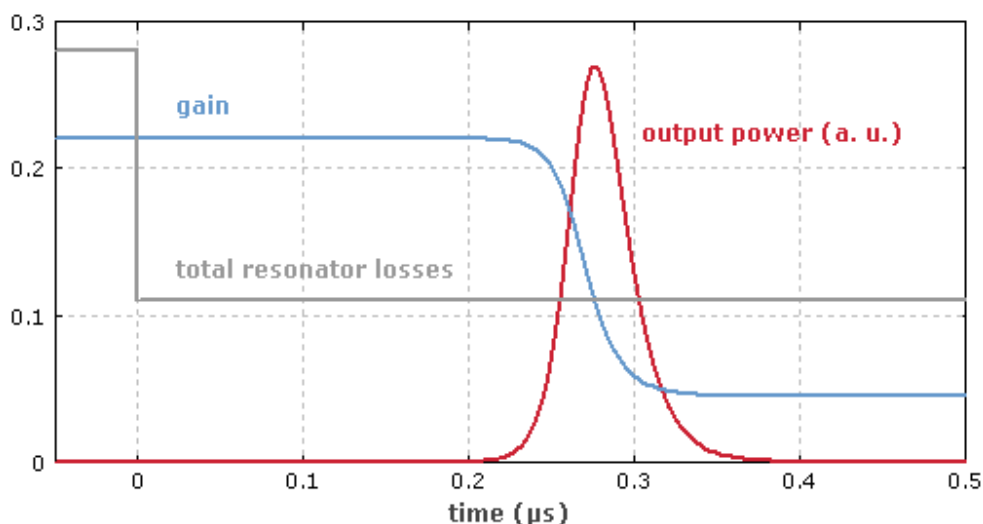


Figure III-23: Création d'une impulsion en régime déclenché. Les 3 courbes grise, bleu et rouge correspondent respectivement aux pertes dans la cavité, au gain vu par l'impulsion et à la puissance instantanée du laser en fonction du temps

III.2.5.b Choix du déclencheur

Nous avons considéré les différents éléments déclencheurs pour la cavité disponibles sur le marché :

- Le **absorbant saturable**⁶², ou Q-switch passif, a l'avantage d'avoir un encombrement extrêmement réduit (quelques millimètres d'épaisseur tout au plus). De plus, c'est un dispositif passif qui ne nécessite ni alimentation, ni contrôle électronique. L'énergie obtenue en régime déclenché est fixée par les propriétés de l'absorbant saturable ; pour ajuster la cadence du laser, il faut changer la puissance de pompe. Ce dernier point est rédhibitoire pour notre laser : en effet il est stabilisé par la lentille thermique, et on ne peut donc pas ajuster la puissance de pompe. On ne pourra donc pas ajuster le taux de répétition du laser. D'autre part, l'absorbant saturable introduit un jitter temporel gênant pour les applications de spectroscopie. Enfin, par principe ces cristaux absorbent une partie du rayonnement et donc chauffent à haute puissance.
- Le **modulateur acousto-optique**, est un cristal auquel on vient appliquer une onde radiofréquence (RF) créant un réseau de diffraction. En modulant la fréquence à laquelle on

⁶⁰ Pour le Nd:YAG qui a un temps de vie de 230 μ s, on obtient une cadence limite f_{lim} de 4,35 kHz.

⁶¹ En pratique, la puissance moyenne commence à diminuer avant cette cadence limite f_{lim}

⁶² On ne détaillera pas ici le principe d'un absorbant saturable ; il est basé sur une structure énergétique à 2 niveaux : l'absorbant saturable absorbe le rayonnement incident jusqu'à ce que son niveau du haut soit saturé, où il devient transparent

envoie cette onde RF, on ouvre ou ferme la cavité. L'avantage de ce dispositif est qu'il permet de choisir précisément la cadence du laser sans toucher à la puissance de pompe du laser. Bien que ces dispositifs aient une longueur non-négligeable, il en existe aujourd'hui des modèles très compacts (quelques centimètres d'épaisseur). **C'est ce dispositif que nous avons choisi pour notre laser.**

- **Le modulateur électro-optique** est basé sur l'effet Pockels : on vient appliquer de manière séquentielle une forte tension sur un cristal non-linéaire, qui va alors tourner la polarisation du champ incident. Combiné à un polariseur intracavité, il permet d'obtenir un régime déclenché de manière comparable au modulateur électro-optique. Il a comme avantage de permettre des extinctions que ne peuvent atteindre les modulateurs acousto-optiques. Par contre, c'est un dispositif plus coûteux et plus encombrant.

Nous avons donc choisi d'utiliser un modulateur acousto-optique (AO) compact (I-QS080-1.5C10Y-4-SO5) de la marque Gooch & Housego, d'une longueur de 3,5 cm (photo Figure III-24). Il contient un cristal

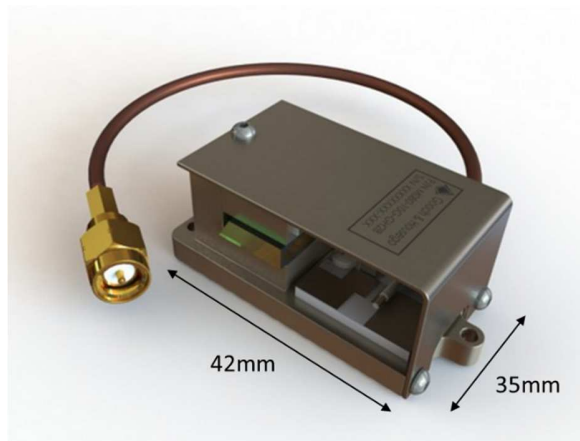


Figure III-24 : Modulateur acousto-optique Gooch utilisé pour l'oscillateur

de quartz traité AR à 946 nm, ce qui confère à l'AO une transmission en simple passage supérieure à 99,6 %. L'onde RF utilisée a une puissance de 15 W et une fréquence de 80 MHz, et les pertes par modulation sont supérieures à 85 %. L'AO fonctionne en polarisation linéaire. C'est le plus petit modèle que nous pouvons utiliser, qui nous a permis de minimiser l'encombrement final de la cavité afin de réduire les durées d'impulsions.

III.2.5.c Gestion du seuil de dommage par le coupleur variable

Avant d'aborder la caractérisation expérimentale du régime déclenché, il est important de considérer le seuil de dommage des composants à l'intérieur de la cavité afin de connaître l'énergie maximale que nous pouvons réellement obtenir en sortie d'oscillateur. Dans notre cas, le composant le plus sensible est la fibre cristalline, dont le traitement antireflet des faces a un seuil de dommage d'environ 4 J/cm²⁶³. L'énergie intracavité dépend fortement du coupleur de sortie utilisé. Dans la plupart des travaux similaires rapportés dans la littérature, le coupleur utilisé est celui correspondant à l'optimum d'extraction de puissance moyenne en régime continu, et varie entre 7 et 12 % selon les articles (Chen et al. 2010; Yan

⁶³ Donnée fourni par le constructeur

et al. 2012). Si on suppose que le diamètre de notre mode laser est d'environ $400 \mu\text{m}$ ⁶⁴, et que le coupleur de sortie a une transmission de 10 %, on atteint le seuil de dommage des faces de la fibre cristalline pour une énergie extraite d'environ $500 \mu\text{J}$ ⁶⁵.

Cette valeur n'étant pas assez élevée à nos yeux (nous souhaitons atteindre le millijoule), nous avons mis en place un coupleur variable dans la cavité, composé du polariseur et d'une lame demi-onde. En faisant tourner la lame demi-onde, on projette une partie de la polarisation linéaire sur l'axe de transmission du polariseur. Nous avons pu ainsi, en régime continu, tracer la puissance moyenne extraite en fonction de la transmission du coupleur variable pour une puissance de pompe de 100 W. Les résultats sont détaillés Figure III-25.

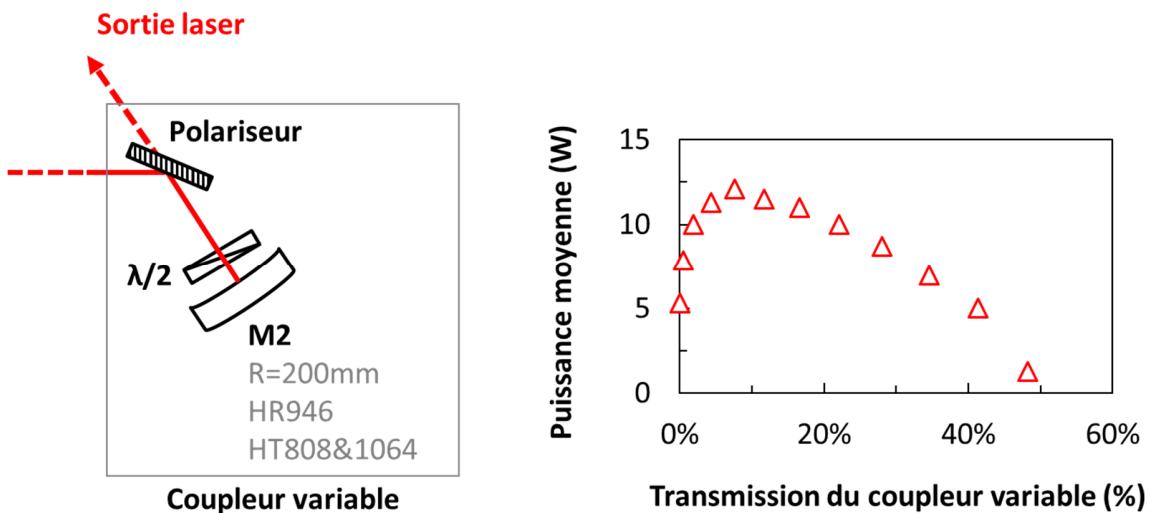


Figure III-25 : Rappel du schéma expérimental du coupleur variable dans la cavité (gauche) ; Mesures de la puissance moyenne extraite en fonction de la transmission du coupleur variable pour une puissance de pompe de 100 W (droite).

On retrouve sur cette figure la valeur du coupleur optimal en puissance moyenne qui est de l'ordre de 10 %. Le point intéressant est que pour un coupleur de 30 % de transmission, on observe une baisse de la puissance moyenne d'environ 30 % (de 12W à 9W), **mais on a alors une puissance intracavité 3 fois plus faible**, ce qui nous permet en théorie d'extraire jusqu'à 1,5 mJ sans dépasser le seuil de dommage des faces de la fibre cristalline. **Nous avons donc fixé le coupleur variable à 30 % de transmission pour le reste des expériences.** On aurait pu augmenter encore la transmission du coupleur de sortie, mais nous souhaitons garder une puissance moyenne non-négligeable en sortie d'oscillateur.

⁶⁴ On se permet cette approximation car on connaît le diamètre du spot de pompe, $480 \mu\text{m}$, et on sait que notre faisceau de sortie est gaussien ($M^2 < 1.2$) : on en déduit donc que le mode laser doit être de taille comparable. On a choisi $400 \mu\text{m}$ pour garder une marge de sûreté.

⁶⁵ Toujours dans l'idée de garder une marge de sûreté sur les seuils de dommages, on a négligé dans ce calcul la baisse de la puissance intracavité causée par les pertes de dépolarisation.

III.2.5.d Caractérisation des impulsions

Nous pouvons maintenant étudier le laser en régime déclenché. La puissance de pompe est toujours de 100 W, et la transmission du coupleur variable est fixée à 30%. La durée des impulsions de sorties est mesurée à l'aide d'une photodiode. On a mesuré l'énergie des impulsions, leur durée et la puissance moyenne correspondante pour des cadences de 6,5 kHz à 50 kHz. Les résultats figurent en Figure III-26. On retrouve le comportement défini théoriquement au début du chapitre : lorsque la cadence diminue, l'énergie extraite augmente, la durée d'impulsion diminue, et la puissance moyenne commence à chuter à partir d'une dizaine de kHz. Une énergie maximale d'1 mJ et une durée d'impulsion minimale de 25 ns ont été obtenues à une cadence de 6,5 kHz. A cette énergie, nous avons endommagé au bout de quelques jours l'une des faces de la fibre cristalline.

La trace caractéristique d'une impulsion de 30 ns est représentée Figure III-27. Les points entourés correspondent à une cadence de 18kHz, qui est la configuration la plus proche de celle que nous avons utilisé par la suite. Pour la suite des expériences de conversion de fréquence, nous avons en effet préféré utiliser l'oscillateur dans un régime sûr en énergie : on a donc fixé la cadence de l'oscillateur à 20 kHz, soit une énergie de 450 μJ et des durées d'impulsion d'environ 45 ns.

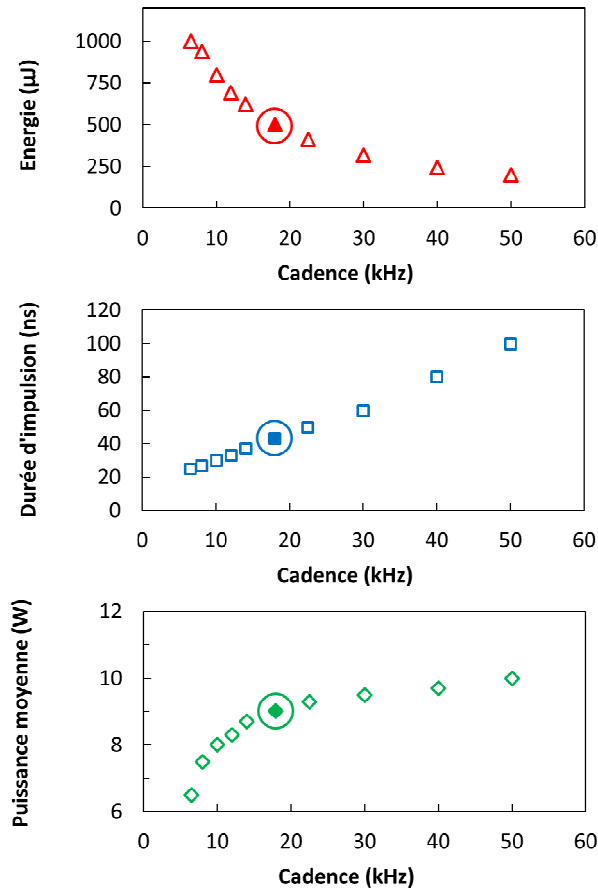


Figure III-26 : Caractérisation du régime déclenché de l'oscillateur. De haut en bas : énergie en μJ , durée d'impulsion en ns, et puissance moyenne en W, en fonction de la cadence en kHz. Les points entourés représentent une configuration proche (18 kHz) de la configuration finale utilisée (20 kHz).

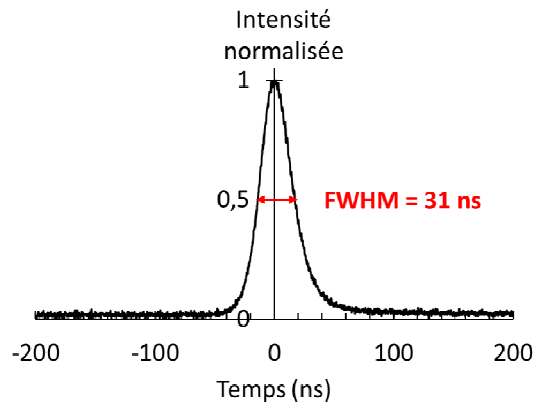


Figure III-27 : Profil temporel d'une impulsion de 31 ns

III.3 Conversion de fréquence vers l'ultraviolet

Une fois l'oscillateur à 946 nm réalisé, il nous faut maintenant convertir le rayonnement vers l'ultraviolet. Comme indiqué précédemment, on mettra en place deux étages de conversion de fréquences extra-cavité, réalisés en simple passage. Pour chaque étage de conversion, on détaillera les différents cristaux non-linéaires disponibles, les paramètres de la conversion de fréquence et enfin les mesures expérimentales réalisées.

III.3.1 Génération de second harmonique vers 473 nm

III.3.1.a Cristaux non-linéaires disponibles

Si l'on se réfère à notre tableau récapitulatif du chapitre 2, il existe de nombreux cristaux non-linéaires commerciaux pouvant effectuer le doublement de fréquence de 946 nm vers 473 nm. Parmi eux, nous avons retenu le triborate de lithium LiB_3O_5 (LBO) et le borate de bismuth BiB_3O_6 (BiBO). Nous avons également eu accès à des cristaux de titanyl phosphate de potassium dopés au Rubidium en quasi-accord de phase (PPRKTP) du *Laser Physics Group* à l'université de Stockholm KTH. Leurs propriétés respectives sont indiquées dans le tableau de la Figure III-28.

Ces 3 cristaux ont chacun des avantages et des inconvénients différents :

- Le **LBO** est un cristal industriel dont la croissance est complètement maîtrisée et très robuste. Son coefficient non-linéaire est faible (0,8 pm/V) mais il dispose d'une acceptation angulaire et spectrale importante. Il est parfait quand on dispose d'un faisceau de forte puissance crête et que l'on souhaite construire un système industriel robuste.
- Le **BiBO** est un cristal que seuls quelques fabricants proposent à la vente (Cstech, FEE). Il a comme avantage un coefficient non-linéaire 4 fois plus élevé que le LBO, mais au prix d'une acceptation angulaire et spectrale plus réduite. Ce cristal est bien adapté lorsque l'on souhaite convertir un faisceau de puissance crête modérée, et que l'on est prêt à rendre notre faisceau fondamental elliptique après la conversion.
- Le **PPRKTP** est un cristal en quasi-accord de phase qui combine un coefficient non-linéaire très important (10 pm/V) et une acceptation angulaire très importante (pas de walk-off). Il souffre

par contre d'effets photochromiques et d'une absorption dans le visible importante, qui tous les deux peuvent poser des problèmes à forte puissance moyenne. Ce type de cristal est donc en général plutôt réservé pour la conversion de lasers à faible puissance crête et puissance moyenne. Nous avons réalisé des expériences avec ce cristal, notamment sur ses performances à haute puissance, expériences qui sont détaillées en Annexe 3.

Nom du cristal	LBO	BiBO	PPRKTP
Type d'accord de phase	Birefringent	Birefringent	QPM
Hygroscopie	Faible	Moyenne	Faible
Effets photoréfractifs ou photochromiques	Non	Non	Oui
Absorption dans le visible	Très faible	Très faible	Forte
Deff (pm/V) ⁶⁶	0,81	3,34	10
Walk-off (mrad)	11,3	40	0
Acceptance angulaire (mrad.cm)	5,21	1,28	$\approx \infty$
Acceptance spectrale (nm.cm)	4,13	0,942	0,27

Figure III-28 : Propriétés principales des cristaux non-linéaires pour la conversion de fréquence vers le bleu

III.3.1.b Choix des paramètres de conversion

Pour rappel, nous disposons d'un laser à 946 nm délivrant des impulsions de 450 μ J à 20 kHz avec des durées d'impulsions de 45 ns, soit une puissance crête de 10 kW. Lorsque l'on travaille avec des lasers d'énergie importante et de puissances crêtes modérées (comme c'est le cas ici), le point limitant l'efficacité de conversion est en général le **seuil de dommage** des traitements antireflets (AR) des cristaux non-linéaires. Connaissant l'énergie de notre laser, on peut tout de suite calculer la taille du faisceau fondamental au waist minimale possible avant d'atteindre le seuil de dommage. Les traitements AR étant dans notre cas spécifiés entre 5 et 10 J/cm², on fixe la limite de fluence à 5 J/cm² : pour une énergie de 450 μ J, on obtient alors un diamètre de faisceau minimal d'environ 125 μ m.

Etant donné la largeur spectrale réduite de notre laser (0,03 nm), nous n'avons pas besoin de nous soucier de **l'acceptance spectrale**.

Dans le cas idéal, il faudrait choisir le couple taille de faisceau/longueur de cristal en fonction de **l'acceptance angulaire** du cristal considéré, comme défini précédemment dans le chapitre 2. Cela nous garantirait de conserver un profil circulaire d'intensité en sortie. Prenons le cas du BiBO par exemple. On peut choisir ce couple taille de faisceau/longueur du cristal en fixant initialement l'un des deux paramètres :

- Si l'on utilise la taille de faisceau de 125 μ m définie par le seuil de dommage, et une valeur de walk-off de 40 mrad, en appliquant l'équation II-10, on obtient une longueur de cristal

⁶⁶ Le coefficient non-linéaire du PPRKTP peut varier légèrement selon la qualité de la périodisation des domaines : il varie selon les échantillons entre 8 et 10 pm/V

maximale de 2,8 mm. Un calcul sur le logiciel SNLO avec ces paramètres conduit à une efficacité de conversion de seulement 14,5 %.

- Si à l'inverse on utilise la longueur maximale des cristaux de BiBO disponibles commercialement, soit 10 mm, on trouve une taille de faisceau minimale de 450 μm , ce qui conduit alors à une efficacité de conversion de 14,7 %.

Si l'on effectue les mêmes calculs pour le LBO, on trouve des efficacités de conversion comparables à quelques pourcents près⁶⁷.

Ces rendements de conversion **ne sont pas satisfaisants** : nous visons en effet des rendements de conversion entre 40 et 50 %. On a donc fait le choix de s'autoriser des faisceaux elliptiques en sortie de cristal doubleur, ce qui nous permet à longueur de cristal égale d'utiliser une taille de faisceau plus petite. De plus, on verra par la suite que le cristal UV (BBO) a une acceptance angulaire très réduite et produira de toute manière un faisceau elliptique en fin de chaîne. Dans les expériences qui suivent, on utilisera donc des tailles de faisceau uniquement limitées par le seuil de dommage des traitements antireflets.

III.3.1.c Expériences de doublement de fréquence vers 473 nm

Le schéma expérimental des expériences de doublement de fréquence vers le bleu est très simple, et est présenté Figure III-29. La sortie de notre oscillateur laser est envoyée dans un variateur de puissance composé d'une lame demi-onde ($\lambda/2$) et d'un cube polariseur (PBS) : le laser étant stabilisé par la lentille thermique, on ne peut en effet pas varier sa puissance de sortie en diminuant la puissance de pompe du laser. Une deuxième lame demi-onde sert à ajuster finement la polarisation incidente sur le cristal non-linéaire. Une lentille de focalisation F de focale $f=125$ mm permet d'obtenir un diamètre de faisceau au waist de 125 μm . Le cristal non-linéaire est placé dans un four réglé en température à $50^\circ \pm 0,1^\circ$, le tout placé sur une monture mécanique ayant trois axes de rotation et trois axes de translation. L'infrarouge et le bleu générés sont séparés à l'aide de deux miroirs dichroïques (DM) ayant une réflectivité à 473 nm supérieure à 90% et une transmission à 946 nm supérieure à 90%.

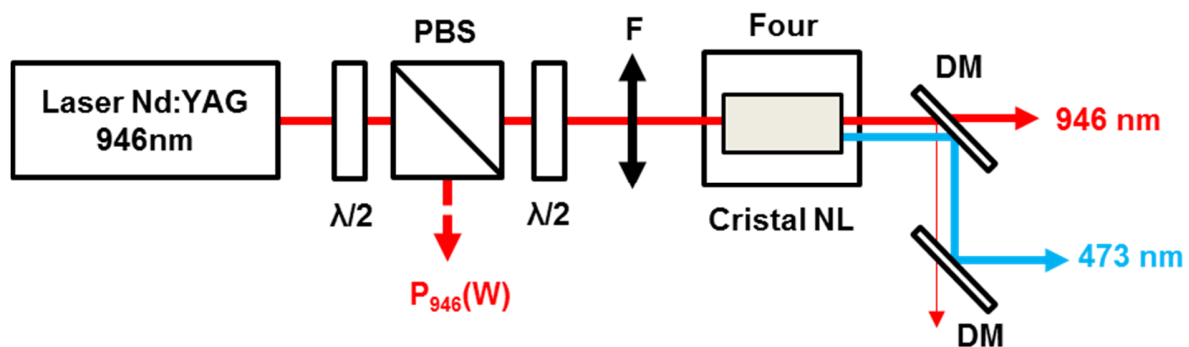


Figure III-29 : Schéma expérimental de la génération de second harmonique vers 473 nm

On a utilisé deux cristaux non-linéaires pour cette expérience dont les spécifications sont résumées dans le tableau de la Figure III-30 :

⁶⁷ La méthode de calcul est la même : dans le premier cas, on utilise un cristal de 10 mm de long avec un faisceau de 125 μm de diamètre (15,5% de conversion) ; dans le deuxième cas, on utilise un cristal de 20 mm de long avec un faisceau de 240 μm de diamètre (16,6% de conversion)

Cristal	LBO	BiBO
Fournisseur	Cristal Laser	Castech
Dimensions en mm ⁶⁸	3x3x20	3x3x10
Coupe du cristal	$\theta=90^\circ$; $\varphi=11,3^\circ$	$\theta=161,6^\circ$; $\varphi=90^\circ$
Type de SHG	Type-I	Type-I

Figure III-30 : Spécifications des deux cristaux non-linéaires utilisés dans la SHG vers 473 nm

Les résultats expérimentaux sont détaillés Figure III-31. On y a indiqué la puissance moyenne (graphique de gauche) et le rendement de conversion (graphique de droite) obtenus à 473 nm pour les deux cristaux non-linéaires en fonction de la puissance moyenne incidente à 946 nm. Avec le cristal de LBO, on obtient une puissance maximale de bleu de 2,4 W, ce qui correspond à une efficacité de conversion de 27 %. Avec le cristal de BiBO, on obtient une puissance maximale de bleu de 3,5 W, ce qui correspond à une efficacité de conversion de 39 %. Ces résultats expérimentaux sont supérieurs à l'état de l'art, et y seront comparé à la fin du chapitre.

On a aussi ajouté les simulations théoriques réalisées sur SNLO, qui sont très proches des résultats

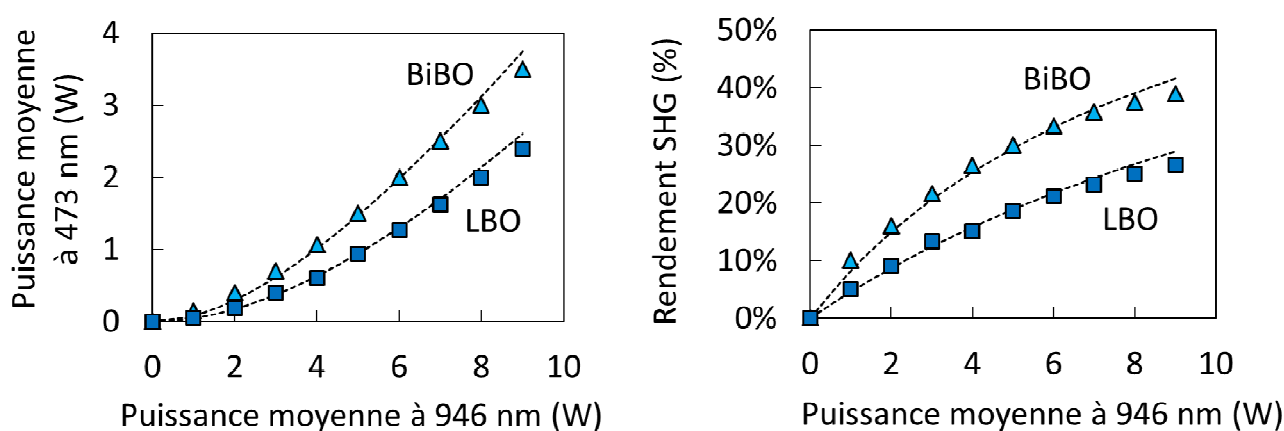


Figure III-31 : Puissances moyennes et rendements de conversion obtenus à 473 nm en fonction de la puissance moyenne incidente à 946 nm pour les cristaux de BiBO et de LBO

expérimentaux. On a utilisé pour ces simulations très peu de paramètres d'ajustement : on s'est seulement autorisé une variation du diamètre de faisceau au waist de 10 à 20 μm (incertitude de la caméra), une variation de la durée d'impulsion de 4 à 5 ns (correspondant aux fluctuations de durées d'impulsion du laser), ainsi qu'une variation de 0,1 à 0,2 W de la puissance incidente, correspondant aux fluctuations d'intensité du laser.

⁶⁸ Les dimensions sont données dans l'ordre : hauteur, largeur, longueur

Etant donné les bien meilleurs résultats obtenus avec le cristal de BiBO, on a choisi ce cristal pour le reste des expériences. D'autres mesures ont été faites pour caractériser plus précisément le laser à 473 nm réalisé. On a d'abord mesuré la qualité de faisceau à 473 nm : les profils de faisceau ainsi que les valeurs de M^2 dans l'infrarouge et le bleu sont reproduits Figure III-30. On retrouve le profil elliptique du faisceau à 473 nm prévu par la faible acceptation angulaire du BiBO. La qualité de faisceau n'est pas dégradée pendant la conversion.

On a également mesuré la stabilité de la puissance moyenne à 473 nm, qui n'a pas montré de signe de dégradation en un peu moins d'une heure de mesure, indiquant qu'il n'y a à priori pas d'effets photoréfractifs ou photochromiques se produisant dans le BiBO pour nos conditions expérimentales.

Enfin, nous avons mesuré la durée d'impulsion à 473 nm : elle est passée de 45 ns dans l'infrarouge à 34 ns dans le bleu, soit un facteur de réduction d'environ 1,3 (la réduction de la durée d'impulsion est illustrée après la conversion UV, Figure III-36). Cette réduction s'explique par le profil gaussien en intensité de l'impulsion fondamentale : le centre de l'impulsion sera converti plus efficacement que les bords. Théoriquement, on obtient une réduction d'un facteur $\sqrt{2}$ (soit environ 1,4) lorsque la conversion n'est pas saturée.

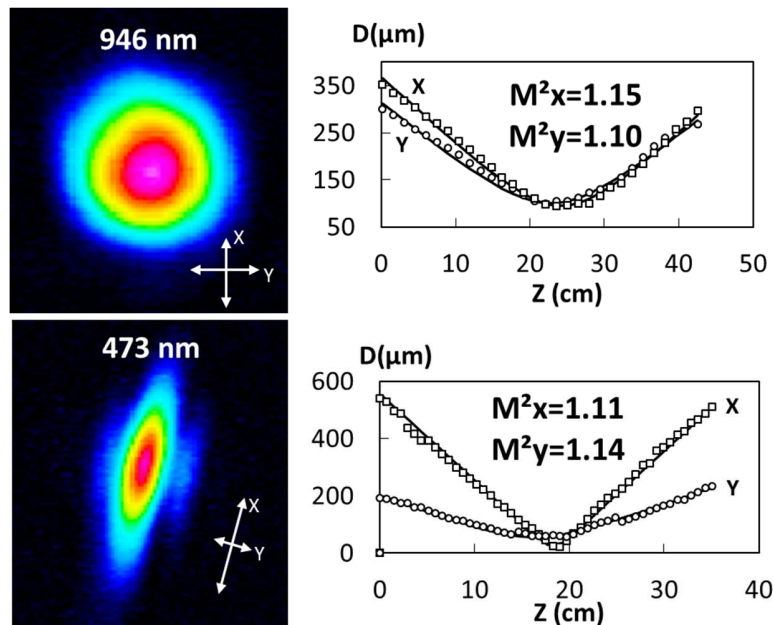


Figure III-32 : Profils de faisceau à 946 nm et 473 nm en champ lointain, ainsi que les qualités de faisceau correspondantes

III.3.2 Génération de quatrième harmonique vers 236,5 nm

III.3.2.a Choix des cristaux

Si l'on souhaite réaliser une génération de quatrième harmonique par doublement de fréquence du rayonnement à 473nm, les choix de cristaux non-linéaires sont très limités. En effet le KDP et le CLBO, qui sont deux cristaux couramment utilisés pour la génération de 4^{ème} harmonique de lasers infrarouges à

1064 nm, ne sont malheureusement pas assez biréfringents⁶⁹ pour obtenir l'accord de phase de la SHG de 473 nm à 236,5 nm. Le KBBF est suffisamment biréfringent mais n'est pas disponible commercialement hors de la Chine. **Seul le beta-borate de barium β -BaB₂O₄ (BBO)** permet de convertir notre rayonnement bleu vers l'ultraviolet

III.3.2.b Choix des paramètres

Nous avons fait le choix dans le premier étage de conversion de privilégier le rendement de conversion au détriment de l'ellipticité du faisceau. De ce fait, nous allons faire de même dans le deuxième étage de conversion. Nous avons choisi d'utiliser un cristal de BBO de 7 mm de long, et d'y focaliser le rayonnement à 473 nm à un diamètre de faisceau au waist de 200 μm x 90 μm , ce qui assure une fluence modérée d'environ 1 J/cm² sur les faces du BBO.

Etant donné le caractère elliptique du faisceau fondamental, la divergence n'est pas la même selon l'axe considéré. Or les acceptances angulaires lors de la SHG en Type-I sont très différentes : on peut en effet considérer que l'acceptance angulaire n'intervient que dans le plan du walk-off, l'autre axe n'étant pas influencé par la divergence du faisceau.

On va donc tâcher de placer l'axe du faisceau elliptique ayant la divergence la plus faible (Y sur la Figure III-30) dans le plan où l'acceptance angulaire du cristal est la plus faible également⁷⁰, principe illustré simplement Figure III-31.

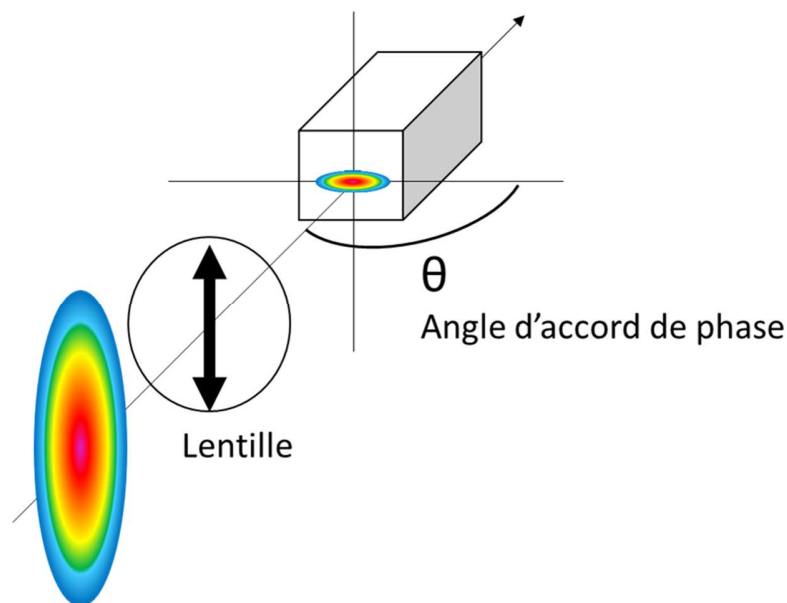


Figure III-33 : Illustration de la focalisation d'un faisceau elliptique dans un cristal non-linéaire ayant une acceptation angulaire faible dans un de ses axes. On place l'axe ayant la divergence la plus faible sur l'axe d'accord de phase, celui-ci ayant une acceptation angulaire faible.

⁶⁹ On peut quand même citer des travaux où un cristal de CLBO refroidi à -15°C a permis d'obtenir cet accord de phase (Gerstenberger et al. 2003). A des températures négatives, la présence de givre rend l'expérience très compliquée : les auteurs soulignent en effet que la durée de vie du cristal ne sera alors plus garantie : le CLBO doit en effet être chauffé à plus de 100°C si on veut éviter sa dégradation rapide.

⁷⁰ Certains travaux ont proposé de faire l'inverse afin de réduire l'interaction entre le faisceau vert et ultraviolet, dans le but de limiter les effets thermiques (Takahashi, Osada, Dergachev, Peter F Moulton, et al. 2010)

III.3.2.c Mesures expérimentales de conversion vers 236,5 nm

Le schéma expérimental de l'expérience incluant l'étage de conversion vers l'UV est dans la Figure III-32.

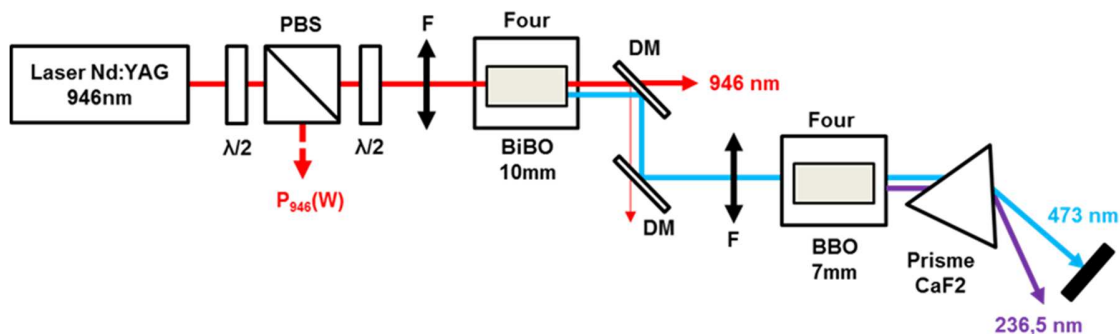


Figure III-34 : Schéma expérimental de la chaîne de conversion vers l'ultraviolet

Le faisceau à 473 nm est focalisé dans le cristal de BBO pour atteindre un diamètre de faisceau au waist de 200 μm par 90 μm . Le cristal de BBO a une longueur de 7 mm et une section de 3x3 mm. Il est placé dans un four régulé en température à 100° \pm 0,1°C. Le faisceau à 473 nm et son second harmonique à 236,5 nm sont séparés à l'aide d'un prisme en CaF₂. Les résultats expérimentaux sont présentés en Figure III-33. Pour une puissance moyenne maximale de 9 W à 946 nm, et de 3,5 W à 473 nm, on a obtenu une puissance moyenne dans l'ultraviolet de 600 mW, soit une efficacité de conversion de 17 % du bleu vers l'UV, et de 6,7 % de l'infrarouge vers l'ultraviolet. Ces performances sont très supérieures à l'état de l'art,

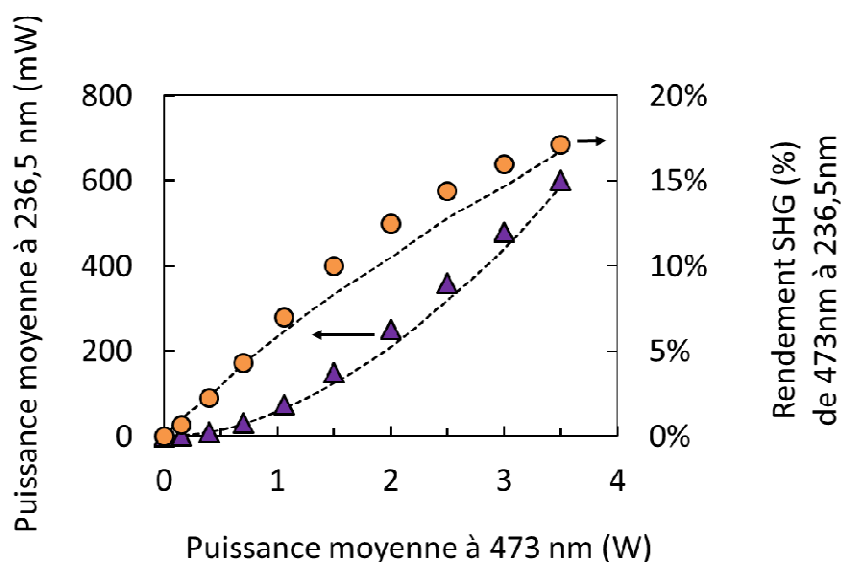


Figure III-35 : Puissance moyenne à 236,5nm (triangles) et rendement de conversion (ronds) du bleu vers l'UV en fonction de la puissance moyenne incidente à 473 nm

et y seront comparées à la fin du chapitre. Nous avons également mesuré la durée des impulsions dans l'UV qui est maintenant de 27 ns. Les 3 impulsions à 946, 473 et 236,5 nm sont illustrées Figure III-36.

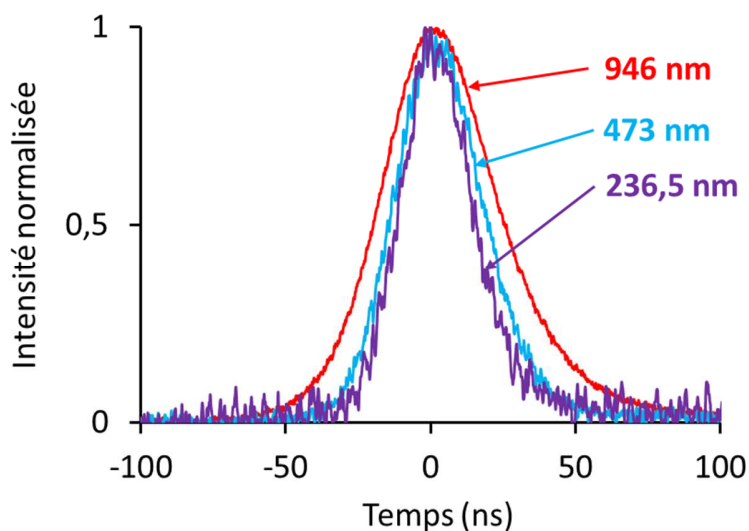


Figure III-36 : Profils temporels des impulsions à 946 nm, 473 nm et 236,5 nm. Les durées d'impulsions correspondantes sont respectivement 45 ns, 34 ns et 27 ns.

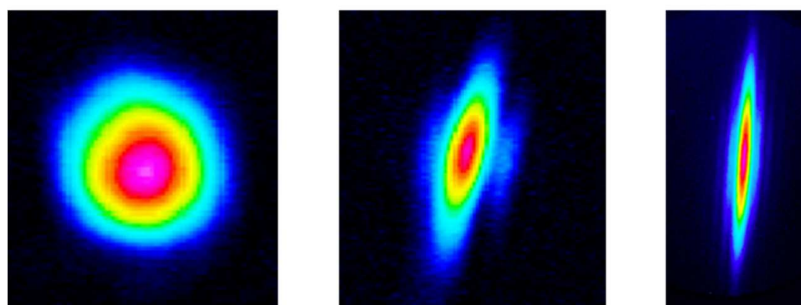


Figure III-37 : Profils de faisceau à 946nm, 473 nm et 236,5nm

Nous avons mesuré le profil du faisceau UV à l'aide d'un convertisseur UV-Visible de la marque Dataray. Le profil mesuré est affiché dans la Figure III-34 en comparaison avec les profils à 946 et 473nm : on peut y voir nettement la dégradation de l'ellipticité du faisceau après les 2 étages de conversion.

Enfin, nous avons mesuré la stabilité de la puissance moyenne dans l'UV pendant 2h ; les résultats sont affichés en Figure III-35. Nous n'avons pas observé de dégradation pendant les 2h de mesures, mais l'apparition d'instabilités dans la dernière demi-heure que nous ne savons pas expliquer pour l'instant. Sur ces 2h, la stabilité de la puissance moyenne RMS est inférieure à 2 %. Pour des durées plus longues, il est nécessaire de concevoir une enceinte de conversion propre où placer le cristal (voir Chapitre 2), ce qui était hors du cadre de cette thèse.

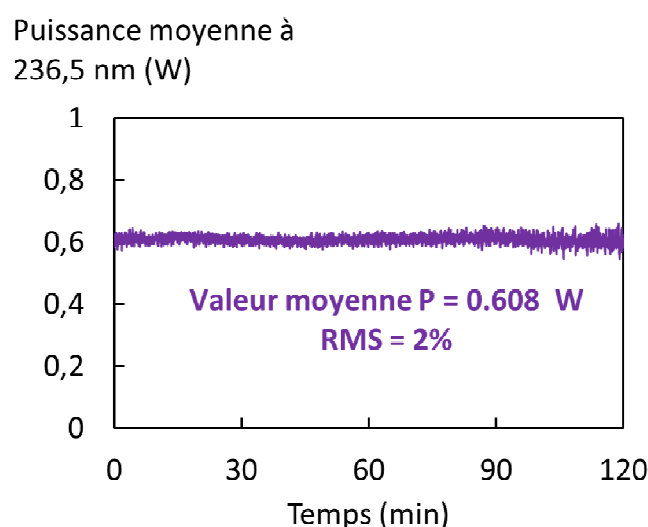


Figure III-38 : Stabilité de la puissance moyenne à 236,5 nm mesurée sur 2h

III.4 Bilan et perspectives

Après ces nombreuses figures et schémas expérimentaux, il est bon de prendre du recul sur le travail que nous avons réalisé.

Nous sommes parti de la constatation que certaines applications, telles que la détection de composés dangereux, nécessitent des lasers ultraviolets à des longueurs d'onde peu courantes. Nous avons donc développé un laser ultraviolet à 236,5 nm, en travaillant à la fois sur l'oscillateur et la conversion de fréquence pour améliorer les performances finales du laser par rapport à l'état de l'art.

Nous avons d'abord développé un oscillateur laser polarisé déclenché activement à 946 nm, utilisant comme milieu amplificateur une fibre cristalline en Nd:YAG. Ce laser, dans sa configuration opérationnelle, émet une puissance moyenne de 9 W à 946 nm, avec un profil de faisceau Gaussien de qualité de faisceau M^2 mesurée à 1,2. Le régime déclenché permet d'obtenir des impulsions de 45 ns à une cadence de 20 kHz, ce qui correspond à une énergie de 450 μ J et à une puissance crête de 10 kW. Nous avons été capable de pousser l'oscillateur jusqu'à une énergie de 1 mJ par impulsion de 27 ns, mais nous avons dans ce cas endommagé les faces antireflets de la fibre cristalline.

Nous avons ensuite mis en place un système de conversion de fréquence composé de 2 étages de génération de second harmonique en simple passage et extra-cavité. Dans le premier étage, nous avons converti notre rayonnement infrarouge de 946 nm à 473 nm dans un cristal de BiBO avec une efficacité de conversion de 39 %. Nous avons donc obtenu 3,5 W de puissance moyenne à 473 nm, avec des impulsions de 34 ns émises à une cadence de 20 kHz, soit une énergie de 175 μ J par impulsion et une puissance crête de 3,9 kW. Dans le deuxième étage de conversion, nous avons effectué la génération de second harmonique de 473 nm vers 236,5 nm dans un cristal de BBO. Nous avons obtenu une puissance moyenne stable dans l'UV de 600 mW, et des impulsions dans l'UV d'une durée de 27 ns émises à une cadence de 20 kHz, ce qui équivaut à une énergie de 30 μ J par impulsion et à une puissance crête de 1,1 kW environ. Le rendement

de conversion équivalent du bleu vers l'UV est de 17 %, tandis que le rendement global de conversion de l'infrarouge vers l'UV est de 6,7 %.

La Figure III-36 place nos résultats obtenus en comparaison avec les précédents travaux rapportés dans la littérature avec une architecture similaire. Nous avons choisi de nous comparer à la littérature selon deux critères : la puissance moyenne et la puissance crête obtenue. Nous avons amélioré l'état de l'art à toutes les longueurs d'onde. Dans l'UV notamment, nos résultats améliorent l'état de l'art d'un facteur 30 en puissance moyenne et d'un facteur 10 en puissance crête. Les performances obtenues ont permis d'obtenir un financement ASTRID appelé « NUTS » : dans ce cadre, nous allons poursuivre les développements sur cette architecture et continuer sa montée en puissance.

Il existe en effet beaucoup de points qui n'ont pas encore été étudiés et qui pourraient augmenter de manière significative les performances finales du laser ultraviolet.

La première voie qui sera étudiée sera de **changer la longueur d'onde de pompe** : en passant de 808 nm à 885 nm, la réduction du défaut quantique devrait permettre de diminuer la lentille thermique et les effets de dépolarisation, et ainsi augmenter l'efficacité globale du système (Lupei et al. 2002; Lü et al. 2010; Yanfei et al. 2010). On pourrait également changer l'architecture laser, en passant à des **cavités comprenant deux modules de fibre cristalline**, ce qui permettrait de mettre en place des méthodes de compensation totale de la dépolarisation (Frede et al. 2004; Kugler et al. 1997; Lu et al. 1996; Scott 1971).

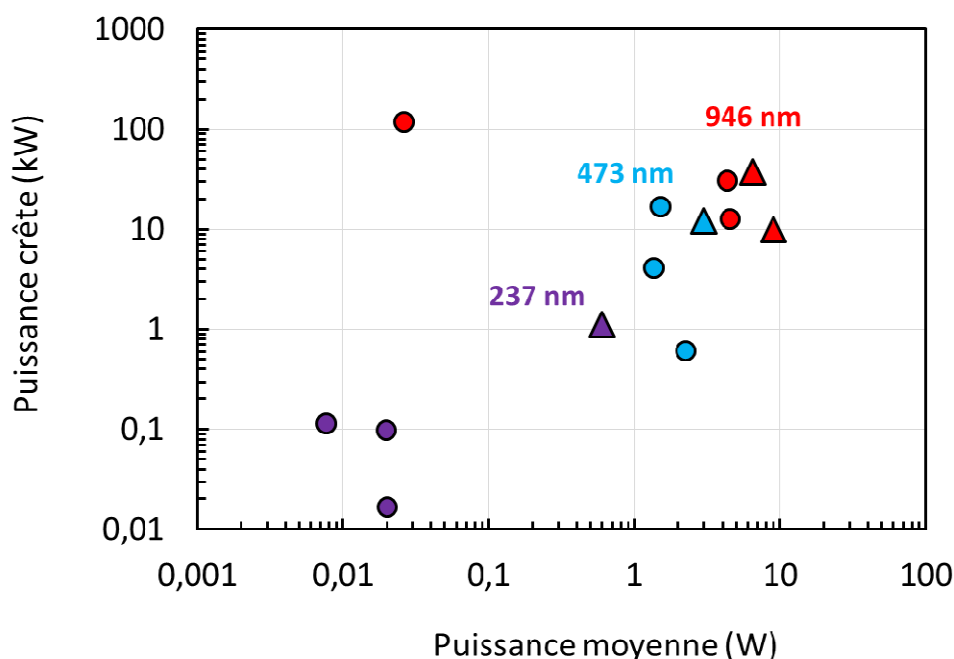


Figure III-39 : Etat de l'art des lasers à 946 m, 473 nm et 237 nm de même architecture. Les triangles indiquent nos travaux, les couleurs représentent les différentes longueurs d'ondes

Des travaux sont également en cours sur **l'amélioration des seuils de dommage des faces traitées AR de la fibre cristalline**, ce qui permettrait à terme d'obtenir plusieurs millijoules en sortie d'oscillateur. Pour atteindre des durées d'impulsion plus courtes (<ns), il serait également intéressant d'étudier la viabilité

d'une **architecture MOPA comprenant un microlaser suivi d'un amplificateur à 946 nm**. Des microlasers à 946 nm ont déjà été démontrés (Hara et al. 2004; Chen et al. 2003; Lv et al. 2001), mais l'amplification à 946 nm semble difficile à cause du faible gain disponible (Walsh et al. 2000) : un amplificateur régénératif à 946 nm pourrait être envisagé par exemple. La **conversion de l'infrarouge vers le bleu** pourrait être améliorée si l'on disposait de plus de puissance crête : on pourrait alors se permettre de travailler dans des configurations où l'ellipticité du faisceau n'est pas dégradée en sortie de cristal non linéaire. Quant à la **conversion vers l'UV**, il existe des architectures de conversion permettant d'augmenter l'efficacité de conversion sans dégrader l'ellipticité du faisceau : il s'agit d'architectures dites de compensation de walk-off, qui consiste à utiliser deux cristaux non linéaires identiques, mais orientés à 180° l'un par rapport à l'autre, ce qui conduit des walk-off spatiaux de directions opposées. (Kiryama et al. 2000; Bhar et al. 1990; Friebe et al. 2008; Hara et al. 2011; Zondy et al. 2003).

A la suite de nos publications, la DGA et certains industriels ont manifesté leur intérêt pour notre laser pour des applications de spectroscopie et de traitement des matériaux : il faudrait cependant réaliser toute la fiabilisation du laser et de la conversion vers l'UV avant d'envisager un système pseudo-industriel.

CHAPITRE IV :

Nouveaux cristaux non-linéaires pour
l'UV

IV. NOUVEAUX CRISTAUX NON-LINEAIRES POUR L'UV

Dans le cadre de ma thèse, j'ai participé à un projet de recherche ANR intitulé « UV-Challenge », visant à développer et caractériser de nouveaux cristaux non-linéaires pour la conversion de fréquence vers l'ultraviolet. Ce projet de recherche réunit des laboratoires et entreprises ayant différents domaines de compétences :

- Le **Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Paris** (LCMCP) est un laboratoire de croissance cristalline spécialisé dans les matériaux pour l'optique
- Le **Laboratoire de Matériaux Optiques, Photoniques et Systèmes** (LMOPS) à Metz, est spécialisé également dans la croissance et la caractérisation de cristaux pour l'optique
- L'entreprise **FEE** en Allemagne commercialise des cristaux lasers et des cristaux non-linéaires
- L'entreprise **Cristal Laser** en France commercialise des cristaux non-linéaires
- Le **Groupe Lasers du Laboratoire Charles Fabry** de Palaiseau apporte son expérience dans le développement de sources lasers converties en fréquence.
- L'entreprise **EOLITE Systems** de Pessac commercialise des lasers de forte puissance dans l'ultraviolet

Les travaux de ce groupe de recherche s'articulent autour de deux axes majeurs : améliorer les cristaux non-linéaires pour l'UV disponibles actuellement, et développer de nouveaux cristaux ayant de meilleures propriétés optiques, mécaniques et non-linéaires. La grande diversité des participants à ce groupe permet d'identifier les besoins réels de l'industrie en termes de cristaux UV ; en fonction de ces besoins, les chimistes créent alors de nouveaux cristaux non-linéaires. Au cours de leur développement, le Groupe Lasers s'occupe de caractériser des échantillons de cristaux suffisamment matures pour être utilisés dans des dispositifs de conversion de fréquence.

Je présenterais donc dans ce chapitre deux expériences de caractérisation de nouveaux cristaux non-linéaires pour la conversion de fréquence vers l'ultraviolet. Dans un premier temps, je présenterais les premières mesures de triplement de fréquence effectuées avec un nouveau cristal non-linéaire, le fluoborate de calcium de formule $\text{Ca}_5(\text{BO}_3)_3\text{F}$ (CBF). Puis, je présenterais la caractérisation de cristaux de beta-borate de barium (BBO) réalisés en croissance Czochralski et leur utilisation pour la génération de 4^{ème} harmonique à forte puissance moyenne d'un laser picoseconde haute cadence.

IV.1 Propriétés du CBF pour la THG à 343nm

IV.1.1 Contexte

Comme on l'a vu dans le chapitre 1, la plupart des lasers UV industriels sont réalisés par génération de troisième harmonique d'un laser infrarouge. Le cristal majoritairement utilisé dans ce type de laser est le borate de lithium LiB_3O_5 communément appelé LBO. Comme on l'a vu dans le Chapitre 2, c'est un cristal ayant de bonnes propriétés non-linéaires et de très bonnes propriétés mécaniques, dont une excellente tenue au flux laser. Malgré cela, c'est un cristal hygroscopique qui souffre de problèmes de dégradation à long terme lorsqu'il est utilisé pour la conversion de fréquence vers l'ultraviolet (Liu et al. 2014; Abromavičius et al. 2011; Hong et al. 2013). Pour cette raison, de nombreux travaux sont encore en cours pour développer des cristaux alternatifs au LBO.

Parmi les différents cristaux développés à cet effet, on peut citer rapidement⁷¹ le CBO (Kitano et al. 2003), le NLBO (La et al. 2012), le LCB (Wang et al. 2012) et le BABF (Zhou et al. 2009). Ces cristaux sont développés quasi-exclusivement par les laboratoires chinois depuis une dizaine d'années, et sont maintenant obtenus avec des qualités optiques suffisantes pour les utiliser efficacement dans des dispositifs de conversion de fréquence.

Notre objet d'étude, le CBF, est lui plus « récent »⁷², le premier cristal de CBF n'ayant été réalisé qu'en 2006 (Chen et al. 2006). C'est un cristal qui a des propriétés non-linéaires proches du LBO⁷³, et qui a le grand avantage d'être non-hygroscopique. Pour cette raison, le LCMCP a dès 2004 commencé à travailler sur ce cristal avec la thèse de Ke Xu (Xu 2007). Les travaux de Ke Xu ont été poursuivis par Simon Ilas⁷⁴ du LCMCP, avec qui nous avons collaboré pour tester des échantillons de CBF en génération de troisième harmonique pour la première fois.

IV.1.2 Croissance de cristaux de CBF

IV.1.2.a Structure chimique

Le CBF, de formule chimique $\text{Ca}_5(\text{BO}_3)_3\text{F}$, est un cristal biaxial de la famille des borates, qui ont en commun le groupement $(\text{BO}_3)^{3-}$. Plus particulièrement, c'est un cristal de la famille des oxoborates de terre rare et de calcium. Il cristallise dans le groupe d'espace Cm ($Z=2$) (Xu et al. 2008). D'ordinaire, les oxoborates de terre rare et calcium ont une biréfringence modeste et un seuil de coupure assez élevé supérieur à 205 nm, qui les empêche d'avoir des propriétés intéressantes pour la conversion UV. Une solution développée par le LCMCP est de modifier assez profondément la chimie de ces matériaux en substituant les terres rares et l'oxygène par du calcium et du fluor : c'est le cas du CBF. Du fait de l'électronégativité plus grande du fluor par rapport à l'oxygène, on obtient alors une transparence étendue dans l'UV. La spécificité de ce cristal est qu'il est **non-hygroscopique**, c'est-à-dire qu'il ne réagit pas (et ne se dégrade pas) lorsqu'il est mis en contact avec de l'eau.

⁷¹ Un état de l'art très complet sur ces cristaux est disponible dans la thèse de S. Ilas effectuée au LCMCP de Paris (Ilas 2014)

⁷² L'échelle de temps du développement d'un cristal optique est très différente de celle du développement d'un laser par exemple : on considère qu'il faut environ 20 ans pour amener un nouveau cristal à maturité industrielle.

⁷³ Que l'on détaillera dans la suite de ce chapitre

⁷⁴ Doctorant ayant brillamment soutenu sa thèse en 2014 sur le thème « Élaboration et caractérisation de matériaux non linéaires pour la conception de dispositifs laser émettant dans l'ultraviolet » au LCMCP de l'Université Pierre et Marie Curie

IV.1.2.b Méthode de croissance cristalline

On peut classer les techniques de croissance cristalline en deux grandes catégories. La première concerne les matériaux à fusion congruente, c'est-à-dire que le cristal considéré existe sous forme liquide. On peut alors faire fondre des cristaux sous forme de poudre, pour ensuite démarrer directement la cristallisation du bain à l'aide d'un échantillon cristallin (on appelle cette méthode « tirage en solution avec un germe orienté », ou en anglais *Top Seeded Solution Growth*, TSSG). Dans ce cas on utilise le plus souvent la méthode de croissance « Czochralski » (CZ) qui permet d'obtenir des cristaux de taille importante⁷⁵ : grâce à de forts gradients thermiques, on peut obtenir des cristaux en quelques semaines.

Lorsque le matériau ne possède pas de phase congruente, il faut utiliser une croissance dite « par flux » : d'autres éléments chimiques sont ajoutés au bain, et permettent l'existence d'une phase liquide précédant la cristallisation. Cette méthode utilise des gradients thermiques plus faibles qu'en croissance CZ, et conduit à des temps de croissance plus longs. Elle a également l'inconvénient d'entraîner parfois l'inclusion de composés du flux dans la structure finale du cristal⁷⁶. Malgré tout, c'est la seule méthode permettant d'obtenir des cristaux n'ayant pas de phase congruente.

Le CBF ne possède pas de phase congruente, c'est-à-dire qu'il n'existe pas de phase liquide de CBF à partir de laquelle on pourrait faire cristalliser directement un échantillon. Les cristaux que nous avons étudiés ont été réalisés grâce à un flux de LiF. Le CBF en flux cristallise trop vite pour obtenir des échantillons de bonne qualité. Pour remédier à ce problème, le LCMCP utilise une méthode « hybride » de croissance combinant un flux LiF avec un tirage Czochralski (Ilas 2014).

IV.1.2.c Cristaux de CBF réalisés

Les cristaux testés dans cette expérience proviennent d'une boule de CBF réalisée au LCMCP en tirage CZ à partir d'un flux lanthane LiF (20% wt), boule présentée Figure IV-1.

La boule a des dimensions de 17x35 mm² et un poids de 15g, ce qui en fait la plus grosse boule de CBF réalisée à l'heure actuelle. Son temps de croissance est de deux semaines. A l'œil nu les cristaux ne présentent pas d'inclusions et semblent transparents. Cependant, une caractérisation plus poussée de l'ensemble de la boule révèle des inclusions de LiF⁷⁷ dont la concentration augmente fortement au cours du tirage, et qui sont représentées sur la figure IV-1. La nature de ces inclusions a été vérifiée par diffractions de rayons X (Xu 2007). Ce phénomène s'explique par la volatilité du LiF : en effet, le LiF s'évapore au cours du tirage. Lorsque l'évaporation devient significative, le flux est déséquilibré et permet l'inclusion de LiF dans la structure du CBF.

⁷⁵ Plusieurs centimètres pour les cristaux non-linéaires présentés ici, et jusqu'à des dizaines de centimètres pour d'autres cristaux comme le Silicium ou le YAG

⁷⁶ Ce phénomène ne se produit plus lorsque la croissance est parfaitement maîtrisée : à titre d'exemple, le LBO est fabriqué par flux et l'on peut obtenir des échantillons extrêmement purs.

⁷⁷ La nature de ces inclusions a été vérifiée par étude de diffraction des rayons X

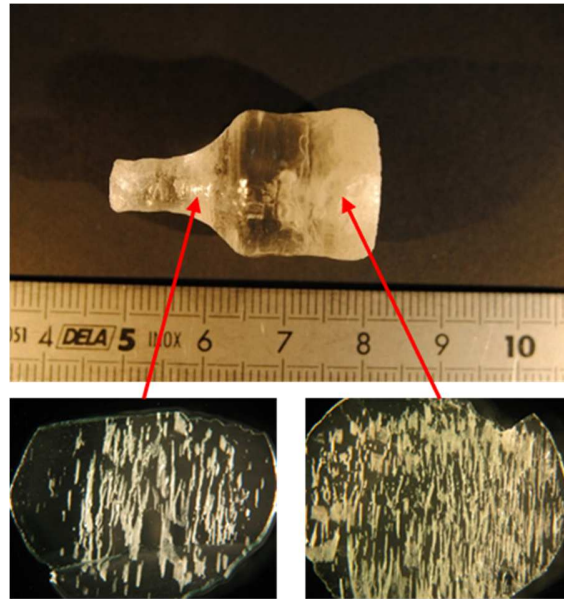


Figure IV-1 : Photo de la boule de CBF, et photos des inclusions de LiF à différents endroits de la boule

Trois cristaux de CBF ont été taillés pour la génération de 3^{ème} harmonique de type-II de 1030 nm vers 343 nm : deux cristaux de dimensions 3x3x3 mm³ coupés dans le plan YZ à $\theta=57,7^\circ$ et $\varphi=90^\circ$, ainsi qu'un cristal de 3x3x5 mm³ coupé dans le plan XY à $\theta=90^\circ$ et $\varphi=72,6^\circ$. La photo des cristaux taillés ainsi qu'un schéma détaillant l'orientation des cristaux sont représentés dans la figure IV-2 (les schémas proviennent de la thèse de S.Ilas).

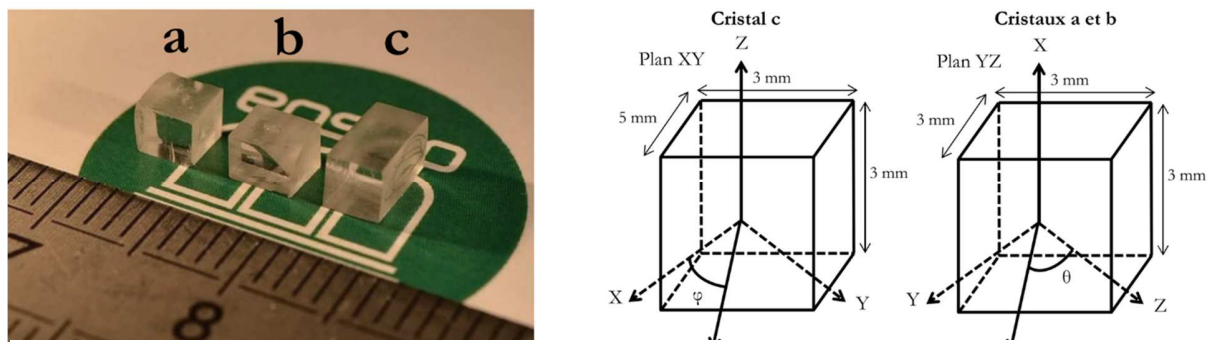


Figure IV-2 : Photos des cristaux de CBF taillés (gauche) ainsi qu'un schéma de leur orientation cristalline (droite)

Des tests de transmission plus poussés ont ensuite été réalisés par S.Ilas du Laboratoire LCMCP. La transmission de ces cristaux a été mesurée à température ambiante de 150 à 800 nm, et les résultats sont affichés Figure IV-3. Les deux cristaux YZ ont la même transmission, on a donc représenté qu'une seule des deux courbes. On observe sur ces courbes les effets des inclusions de LiF : la transmission des échantillons diminue à partir de 400 nm, que l'on explique par la diffusion de la lumière par les particules de LiF. Le seuil de coupure est le même pour les deux cristaux et est situé entre 190 nm et 195 nm, ce qui correspond au seuil de coupure théorique de 195 nm (G. Wang et al. 1995). La différence de transmission entre les 2 plans de coupe est à attribuer à la différence de longueur entre les deux échantillons (YZ 5 mm contre XY 3 mm).

La transmission des échantillons XY et YZ vaut respectivement 85 % et 86 % à 800 nm, et 73 % et 81 % à 343 nm.

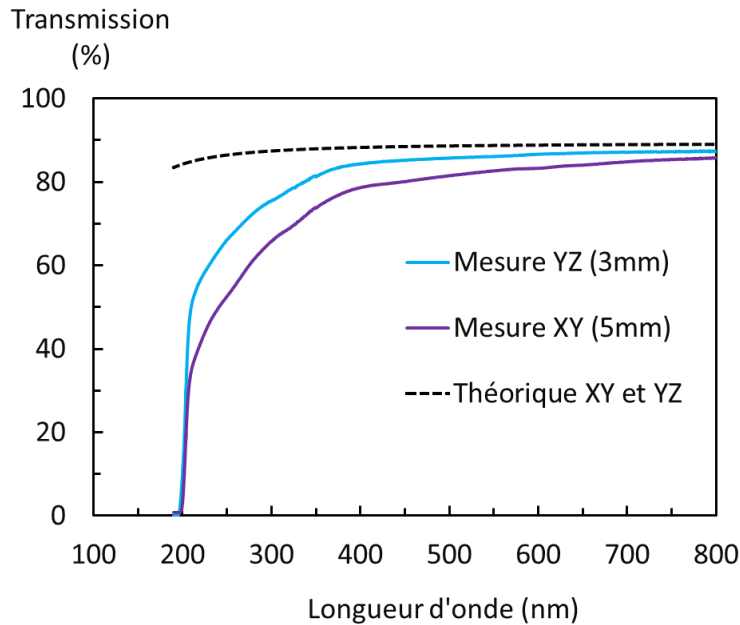


Figure IV-3 : Transmission des échantillons de CBF (courbes pleines), et transmission théorique du CBF en pointillé basé sur la réflexion de Fresnel

IV.1.3 Génération de 3^{ème} harmonique à 343 nm

IV.1.3.a Propriétés non-linéaires

Les propriétés non-linéaires du CBF sont indiquées dans la figure IV-4. On les a comparées aux deux cristaux classiquement utilisés pour la génération de 3^{ème} harmonique à 343 nm, le LBO et le BBO. On y a indiqué uniquement les cristaux en configuration de THG de Type-II, car c'est celle qui est la plus simple à mettre en œuvre expérimentalement. En effet, l'onde à 2ω générée par génération de second harmonique de Type-I est polarisée orthogonalement à l'onde fondamentale : une interaction de somme de fréquences de Type-II permet de produire directement l'onde à 3ω de manière efficace. Plusieurs remarques sont à faire sur ce tableau :

- Le CBF possède deux plans possibles de coupe pour la THG de type-II, XY et YZ.
- Les coefficients non-linéaires d_{eff} du CBF ont été déterminés grâce aux coefficients diélectriques d_{ij} calculés théoriquement dans la littérature (Xia & Li 2013). Avec ces coefficients $d_{31}=0,49$ pm/V et $d_{32}=-0,53$ pm/V, les formules correspondantes sont :

$$d_{\text{eff} II}^{XY} = d_{31} \sin^2 \varphi + d_{32} \cos^2 \varphi \quad \text{Eq. IV-1}$$

$$d_{\text{eff} II}^{YZ} = d_{31} \sin \theta \quad \text{Eq. IV-2}$$

- Les tolérances angulaires et walk-off du CBF sont déduits des mesures des indices de réfraction du CBF (Xu et al. 2008).
- Les tolérances spectrales et thermiques n'ont pas encore été déterminées.
- Les propriétés non-linéaires du CBF sont très similaires à celles du LBO, notamment celles du CBF en coupe YZ.

Dans le cadre de l'ANR UV-Challenges, nous avons testé des échantillons de CBF pour la génération de troisième harmonique, afin de vérifier notamment leur qualité optique ainsi que les efficacités de conversion. Bien que des expériences de génération de second harmonique aient déjà été réalisées avec un cristal de CBF (Xu et al. 2008) jusqu'à présent aucune expérience de génération de troisième harmonique vers l'ultraviolet n'avait été réalisée, et les coefficients non linéaires correspondant n'ont jamais été mesurés.

Cristal	LBO	KDP	BBO	CBF	
Formule Chimique	LiB ₃ O ₅	KH ₂ PO ₄	BaB ₂ O ₄	Ca ₅ (BO ₃) ₃ F	
Type	biaxe négatif	uniaxe négatif	uniaxe négatif	biaxe négatif	
Seuil de transparence (nm)	160	177	189	190	
Hygroscopie	faible	forte	faible	Aucune	
Effets photoréfractifs	non	non	oui	non	
Effets photochromiques	non	non	non	non	
Utilisé en	Type-II	Type-II	Type-II	Type-II XY	Type-II YZ
Angles de coupe	$\theta=50,5^\circ$ $\varphi=90^\circ$	$\theta=48,7^\circ$	$\theta=32,5^\circ$	$\theta=50,5^\circ$ $\varphi=90^\circ$	$\theta=90^\circ$ $\varphi=72,6^\circ$
Coefficient non linéaire deff (pm/V)	0,465	0,358	1,24	0,41	0,45
Acceptance angulaire (mrad.cm)	3,45	1,33	0,39	1,6	3,8
Walk-off (mrad)	9,24	19,77	79	18,4	8,4
Acceptance angulaire spectrale (nm.cm)	10,88	12,63	7,1	?	?
Acceptance angulaire (K.cm)	3,59	6,35	15	?	?

Figure IV-4: Comparaison des propriétés non-linéaires du CBF avec le LBO, le KDP et le BBO en génération de troisième harmonique de 1030 nm vers 343 nm

IV.1.3.b Expériences de génération de 3^{ème} harmonique à 343 nm

Le schéma expérimental de génération de troisième harmonique est présenté Figure IV-5. La source fondamentale est un laser impulsionnel nanoseconde à 1030 nm développé en interne par X.Délen lors de sa thèse (Délen et al. 2013)⁷⁸. Il émet une puissance moyenne de 20 W à 1030 nm, à une cadence de 30 kHz, avec des impulsions de 15 ns de long, une très faible largeur spectrale (40 MHz) et une très bonne qualité de faisceau avec un M^2 inférieur à 1,2 dans les deux directions. La sortie du laser est contrôlée en puissance à l'aide d'un polariseur et d'une lame demi-onde, puis est focalisée dans le premier cristal doubleur. On utilise ici un diamètre de faisceau au waist de 170 μm , le waist étant placé à l'entrée du cristal tripleur. Le cristal doubleur est un LBO de 20 mm de long taillé pour la génération de second harmonique de Type-I. Il est utilisé en accord de phase non-critique à une température de 188 °C. Dans ces conditions, l'efficacité de conversion vers le vert correspondante est de 60 %, soit 12 W de vert en sortie du cristal doubleur. Le CBF est ensuite placé derrière le cristal de LBO afin d'effectuer la somme de fréquences entre 1030 nm et 515 nm. Nous avons testé successivement le cristal de CBF taillé selon le plan XY ainsi que celui taillé selon YZ. Les deux cristaux n'ont pas de traitements antireflets et sont posés sur une monture en cuivre à température ambiante. Après réglage, on mesure dans les deux cas la puissance de sortie maximale dans l'UV que l'on arrive à obtenir. Pour les deux cristaux, il est nécessaire de se déplacer dans le cristal pour trouver des zones avec le moins de diffusion possible. La longueur d'onde UV générée a été contrôlée avec un spectromètre comme étant bien à 343 nm.

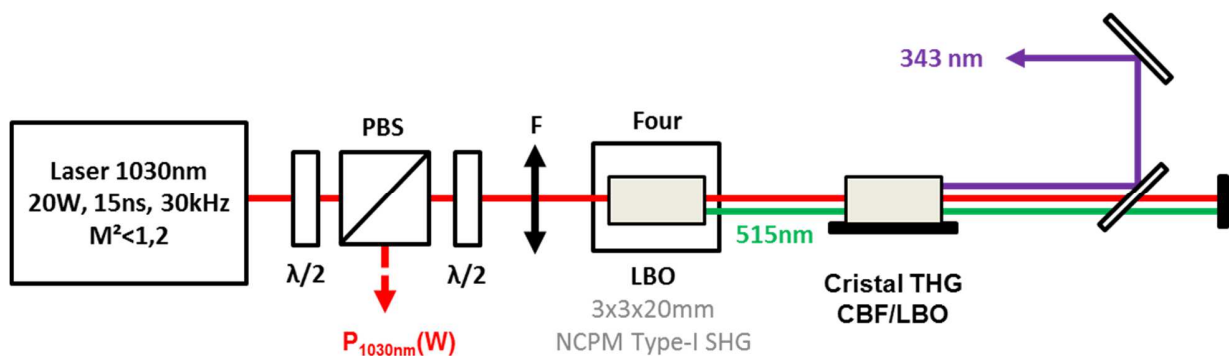


Figure IV-5 : Schéma expérimental du triplement de fréquence vers 343 nm

Les résultats expérimentaux sont présentés en Figure IV-6. Lorsque l'on utilise le cristal YZ de 3 mm de long, on obtient jusqu'à 125 mW de puissance moyenne d'ultraviolet pour une puissance de pompe dans l'infrarouge de 20 W, soit une efficacité de conversion de 0,6 % de l'IR vers l'UV. Le deuxième cristal YZ donne des résultats similaires. Lorsque l'on utilise le cristal XY de 5 mm de long, on obtient une puissance maximale UV de 424 mW pour une puissance de pompe dans l'infrarouge de 20 W, soit une efficacité de conversion de 2 % de l'IR vers l'UV.

⁷⁸ C'est un laser basé sur une structure MOPA, dans laquelle une diode fine spectralement est amplifiée dans 3 étages d'amplificateurs à fibres puis dans un amplificateur en fibre cristalline Yb:YAG.

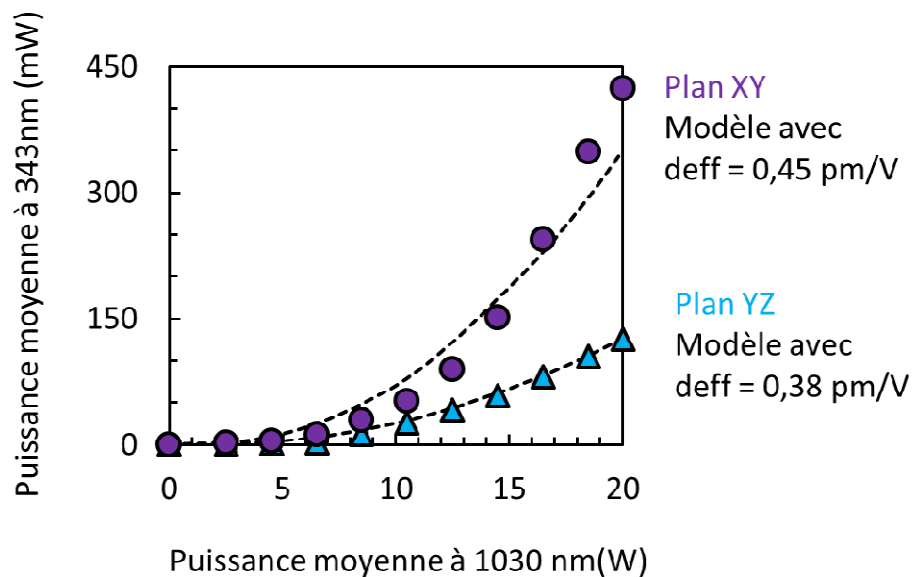


Figure IV-6 : Puissances moyennes UV obtenues avec les deux cristaux de CBF, ainsi que les courbes théoriques modélisées sur SNLO

Afin d'évaluer les valeurs de coefficients non-linéaires d_{eff} des cristaux de CBF dans l'UV, nous avons remplacé le cristal de CBF par un LBO de 15 mm de long taillé pour la génération de troisième harmonique de type-II. Dans les mêmes conditions expérimentales, on a obtenu jusqu'à 5,6 W d'UV, soit une efficacité de conversion de 28 % de l'IR vers l'UV. Nous avons ensuite utilisé le logiciel de simulation SNLO pour modéliser les résultats obtenus avec le LBO type-II, qui servira de référence. Puis, nous avons adapté les paramètres de simulation en y insérant les propriétés du CBF, et ajusté le coefficient non-linéaire d_{eff} pour retrouver nos résultats expérimentaux. Les pertes de Fresnel du CBF ont été prises en compte dans le calcul. Nous en avons déduit des coefficients non-linéaires d_{eff} pour les plans XY et YZ du CBF de respectivement 0,45 pm/V et 0,38 pm/V, indiquant que la génération de troisième harmonique dans le plan XY semble avoir un coefficient non-linéaire plus élevé que dans le plan YZ.

Les valeurs obtenues diffèrent légèrement des valeurs théoriques calculées (0,41 pm/V dans le plan XY et 0,45 pm/V dans le plan YZ, cf équation IV-1 et IV-2), ce qui peut être facilement expliqué par les nombreuses sources d'imprécision de nos différentes mesures⁷⁹ comme la taille et la position du waist, la durée d'impulsion, etc. Une autre source d'erreur potentielle pourrait être la rotation du repère diélectrique avec la longueur d'onde (Segonds et al. 2007) : il a en effet été montré que pour certains cristaux, les valeurs des coefficients diélectriques d_{ij} changent avec la longueur d'onde. Nos calculs se basent sur des coefficients déterminés dans l'infrarouge, ce phénomène pourrait être à l'origine des différences observées.

Il est important de noter que bien que la différence de puissance moyenne UV obtenue entre les cristaux de CBF et de LBO soit très importante, elle n'est en réalité due qu'à la longueur réduite des cristaux de CBF utilisés. Théoriquement, si l'on disposait de cristaux de CBF de 15 mm de long de bonne qualité

⁷⁹ Il est difficile de donner une valeur de l'imprécision sur nos mesures, mais en faisant varier les paramètres mentionnés dans leur gamme expérimentale, on obtient une précision sur les coefficients non-linéaires d'environ $\pm 0,4$ pm/V.

optique, on obtiendrait des résultats tout à fait comparables à ceux obtenus avec un LBO de longueur équivalente.

Enfin, nous avons mesuré le profil de faisceau UV dans le cas de la conversion avec le CBF coupé XY (le plus efficace), représenté Figure IV-7. Nous n'avons pas observé d'effets de lentille thermique à forte puissance, ce qui est relativement normal vu les faibles puissances moyennes en jeu. Nous avons également mesuré la stabilité de la puissance UV pendant une heure, représentée également sur la Figure IV-7. La puissance baisse pendant les 20 premières minutes puis se stabilise : nous attribuons cette décroissance aux impuretés résiduelles dans le cristal et au mauvais contact thermique entre le cristal et sa monture.

IV.1.4 Conclusion et perspectives

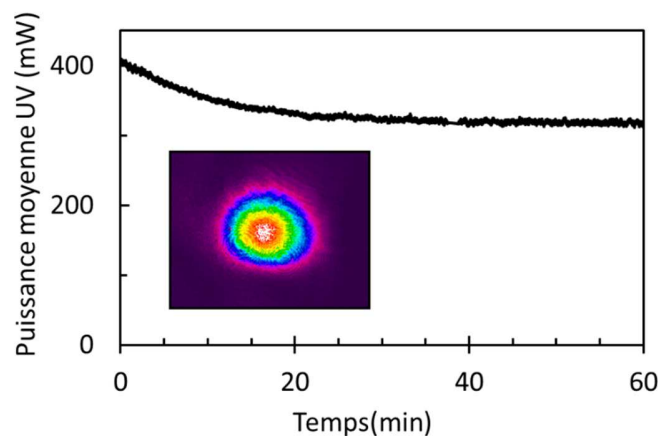


Figure IV-7 : Stabilité de la puissance moyenne UV obtenue avec le CBF XY ; profil de faisceau à 343 nm

Nous avons donc démontré la génération d'UV à 343 nm dans du CBF pour la première fois (Deyra, Ilas, et al. 2013). Les résultats que nous avons obtenus sont encore très préliminaires, et il reste encore beaucoup de travail avant d'obtenir des performances satisfaisantes.

Du côté des chimistes, il reste de nombreuses améliorations à apporter à la croissance cristalline afin de pouvoir obtenir des cristaux longs (>15mm) de très bonne qualité optique. Pour cela, l'équipe de LCMCP travaille sur de nouveaux flux sans LiF (flux en CaF_2) afin d'éviter les inclusions dans le cristal. Une nouvelle thèse sur le sujet a démarré en 2014 dans la continuité du projet UV-Challenge.

Le remplacement du LBO par un cristal non-hygroscopique pour la génération de troisième harmonique est un sujet peu en vogue actuellement, car il existe des moyens industriels pour maîtriser cette hygroscopie (air sec, utilisation de dessicant, ect). Il existe cependant une application du CBF qui pourrait avoir des applications extrêmement intéressantes pour la génération d'UV : le LCMCP travaille actuellement sur une modification de la structure cristalline du CBF (Mg-CBF) qui permettrait de modifier des indices optiques pour permettre la génération direct de 4^{ème} harmonique par doublement de fréquence 532 nm, ce qui est impossible dans l'état actuel. Si ce travail aboutit, le CBF entrera alors dans le cercle très fermé des cristaux non-linéaires pour l'UV lointain ! Mais la croissance du MCBF est extrêmement difficile à réaliser, comme le montre l'état des boules actuelles (Figure IV-8)

Du côté du Groupe Lasers, nous avons encore beaucoup de caractérisations à faire sur le CBF, notamment sur les acceptances angulaires, spectrales et thermiques, qui restent à déterminer.



Figure IV-8 : Photo d'une boule de MCBF, issue de la thèse de Simon Ilas

IV.2 Propriétés du BBO en croissance Czochralski pour la FHG à 257 nm

Nous allons maintenant présenter la deuxième expérience réalisée dans le cadre de l'ANR UV-Challenge, et qui concerne l'amélioration de la qualité cristalline de cristaux de BBO en vue d'améliorer les performances de ce cristal en génération de quatrième harmonique à 257 nm. J'ai choisi de présenter ce travail car il a permis à la quasi-totalité des membres du groupement de recherche ANR de contribuer à ces travaux.

IV.2.1 Contexte

IV.2.1.a Croissance du BBO

Le cristal de borate de barium, plus communément appelé BBO, a été développé en 1985 par le groupe de Chen (Chen et al. 1985). Ce fut à l'époque le cristal le plus transparent dans l'UV qui permettait des accords de phase « lointains » comme la génération de 4^{ème} harmonique (266nm) et 5^{ème} harmonique (213 nm) du Nd:YAG. De nos jours, il est utilisé dans une gamme extrêmement vaste d'applications non-linéaires, et fait partie du trio de cristaux non-linéaires industriellement utilisés pour produire de l'ultraviolet < 300nm.

Le BBO est un cristal qui **peut exister sous 2 phases cristallines** appelées alpha-BBO ou beta-BBO ; ces phases diffèrent par les positions des ions de barium dans la maille cristalline. Le cristal non-linéaire de BBO pour la conversion de fréquence est toujours utilisé dans sa phase beta, car le BBO en phase alpha est centrosymétrique et n'a donc pas de coefficient non-linéaire d'ordre 2⁸⁰. Le BBO a une phase congruente, mais il est **majoritairement fabriqué par flux** : en effet, la température de fusion du BBO est de 1025 °C, mais c'est l'alpha-BBO qui cristallise en premier. Le beta-BBO lui, ne cristallise qu'à 925 °C. Pour inhiber la cristallisation de la phase alpha, on utilise une croissance par flux de type TSSG en ajoutant au bain un flux Na₂O (photo d'une boule de BBO Figure IV-9). Plus précisément, on obtient la cristallisation de la phase beta-BBO pour un flux BaB₂O₄-Na₂O avec 22 % à 31 % de Na₂O et pour des températures comprises entre 925 °C et 755 °C (le diagramme de phase en TSSG est indiqué plus bas Figure IV-10).

Quelques groupes de recherche (dont nos collègues du LMOPS) peuvent fabriquer du BBO par tirage Czochralski (BBO CZ) en utilisant le principe de la surfusion : sous certaines conditions, on peut en effet empêcher la cristallisation de la phase alpha en imposant un fort mouvement de convection dans le bain, ce qui conduit à la cristallisation de la phase beta-BBO autour de 1040 °C (diagramme de phase indiqué également Figure IV-10). Plus de détails sur ces méthodes de croissance sont disponibles dans la thèse de Armel Bahouka réalisée au LMOPS de Metz (Bahouka 2006).



Figure IV-9 : Photo d'une boule de beta-BBO fabriqué par TGSS (source : Cryslaser.inc)

⁸⁰ L'alpha BBO est notamment utilisé pour fabriquer des lames d'ondes transparentes dans l'UV

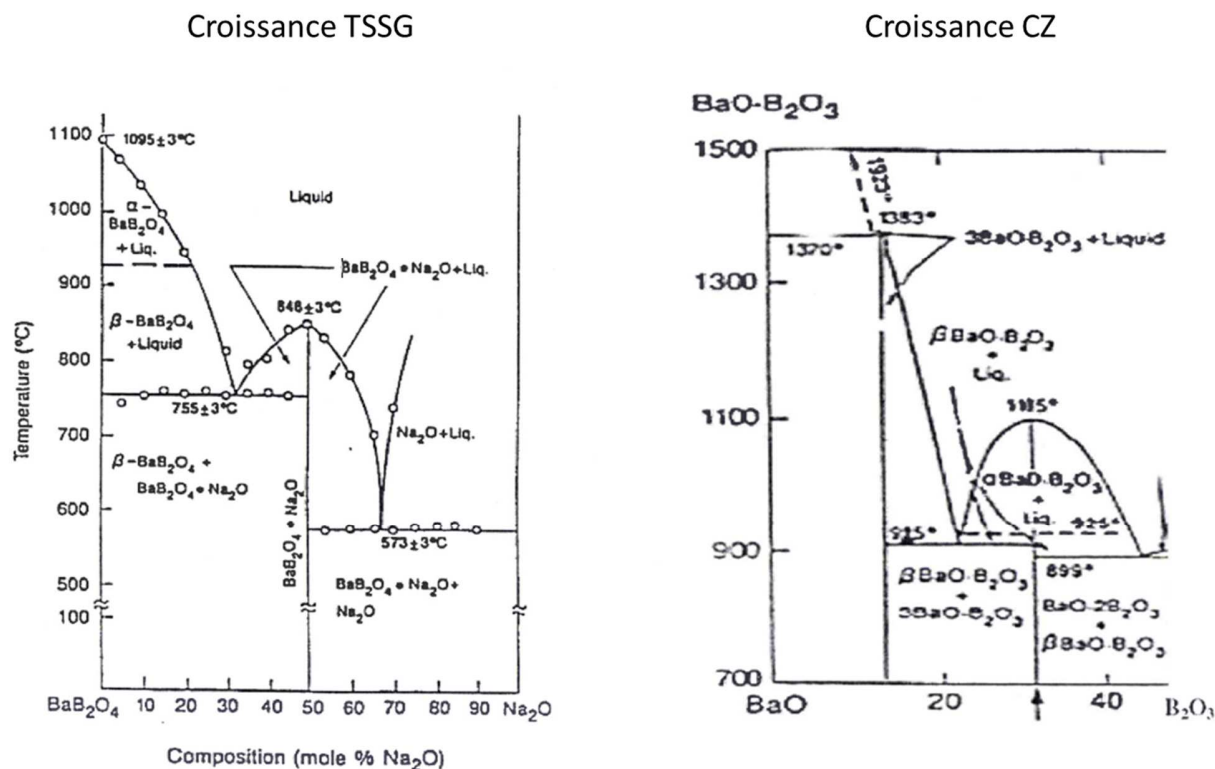


Figure IV-10 : Diagrammes de phase du BBO en croissance TSSG avec flux Na₂O (Huang & Liang 1981) et en croissance CZ (Tsvetkov & Khramenko 2005)

IV.2.1.b Propriétés du BBO CZ pour la conversion de fréquence vers l'UV

Il existe dans la littérature un petit nombre de travaux montrant que le BBO CZ aurait de meilleures propriétés de conversion de fréquence dans l'ultraviolet que son alter-ego réalisé par flux. Plusieurs articles ayant comme point commun la réalisation de lasers ultraviolets autour de 250 nm (par génération de 4^{ème} harmonique, FHG), présentent des performances intéressantes et mentionnent l'utilisation de BBO-Czochralski (Südmeyer et al. 2008; Kondo et al. 1998) mais sans le comparer à un BBO « standard ». En 1998, un bref article du centre de recherche Sony démontre une amélioration de la durée de vie de modules de conversion de fréquence par FHG grâce à un BBO CZ (Umezumi et al. 1998). Tous ces travaux ne contiennent aucune caractérisation optique des cristaux, et il est donc difficile d'estimer l'apport de la croissance CZ.

L'article le plus déroutant sur ce sujet est sans conteste celui publié par Bhandari *et al* en 2012 (Bhandari et al. 2012). Ils y détaillent la conversion de fréquence vers 266 nm d'un micro-laser picoseconde déclenché passivement, et montrent une amélioration de l'efficacité de conversion de 532 nm vers 266 nm de 30 % à 60 % en utilisant un BBO CZ provenant de la société Oxide (la courbe de conversion est reproduite Figure IV-11). Ayant réalisé des expériences très similaires lors du début de ma thèse (travaux présentés en Annexe 4) avec un BBO TSSG, nous étions très intéressés par ce cristal qui semblait d'une qualité infiniment meilleure que les cristaux commerciaux classiques.

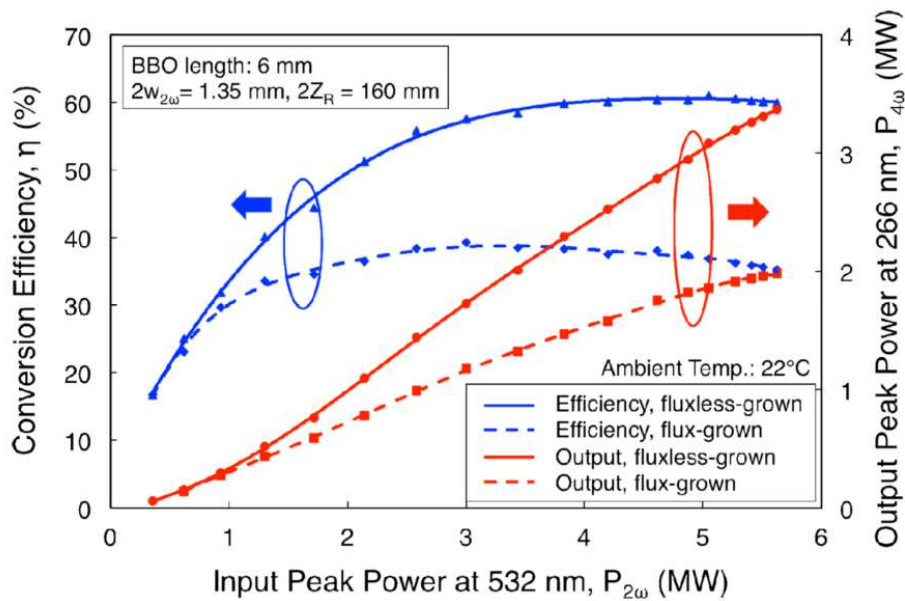


Figure IV-11: Courbes de conversion de fréquence de 532 nm vers 266 nm pour deux cristaux de BBO réalisés par croissance CZ et TSSG, issues de (Bhandari et al. 2012)

Et, pour une fois, l'article présentait une caractérisation optique des cristaux utilisés : les auteurs présentaient en effet des courbes d'absorption dans l'ultraviolet nettement améliorées dans le cas de la croissance CZ. L'absorption à 266 nm était en effet réduite de $0,143 \text{ cm}^{-1}$ à $0,009 \text{ cm}^{-1}$ (voir courbe Figure IV-12).

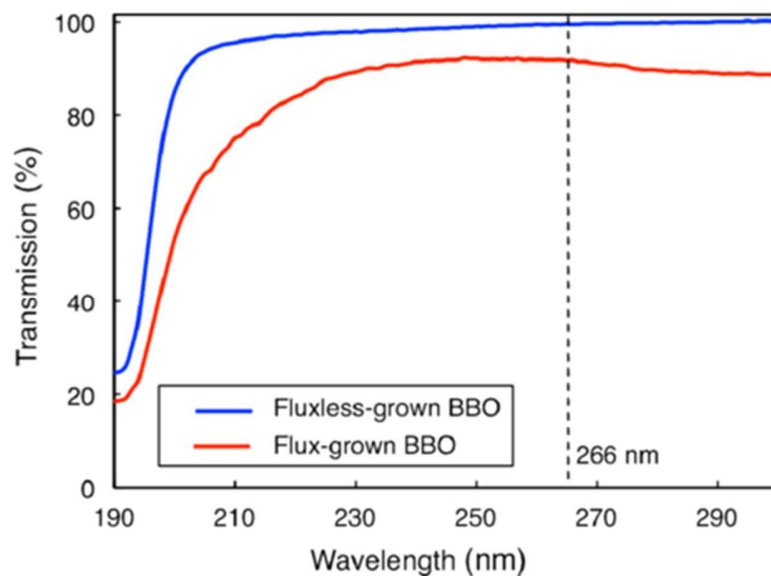


Figure IV-12 : Courbes de transmission des deux échantillons de BBO fabriqués en croissance CZ et TSSG

Cette courbe souleva malgré tous des interrogations de la part de nos collègues chimistes : en effet, la courbe de transmission du BBO CZ (en bleu sur la figure IV-12) ressemblait fort à une courbe théorique. De plus, une différence d'absorption linéaire de $0,14 \text{ cm}^{-1}$ ne suffit pas théoriquement pour expliquer une amélioration de rendement de conversion : pour le cristal de 6 mm de long utilisé dans l'article, une absorption linéaire de $0,14 \text{ cm}^{-1}$ correspond grossièrement à une absorption d'environ 8 % de la puissance générée, et non une amélioration de 30 % de rendement comme dans la publication. Une possible explication de cette amélioration pourrait être la présence d'effets thermiques forts dans le cas du cristal TSSG : cependant, les auteurs mentionnent qu'à 100 Hz les effets thermiques dans le BBO sont insignifiants.

Enfin, la thèse réalisée par Armel Bahouka (Bahouka 2006) au LMOPS sur la croissance de cristaux CZ n'a pas démontré d'amélioration de l'absorption linéaire dans l'infrarouge et le visible grâce à la croissance CZ.

En conclusion, ce fameux cristal de BBO Czochralski réalisé par Oxide/Sony semblait être une solution miracle pour la génération d'UV à 266 nm ; malheureusement, Oxide ne vend pas ce cristal et le réserve exclusivement à ses partenaires.

IV.2.1.c Plan d'expérience

Nous avons donc décidé de réaliser une expérience comparative afin de statuer sur l'intérêt de la croissance CZ sur les performances du BBO en génération de 4^{ème} harmonique. Notre plan d'expérience a fait appel aux compétences des différents membres de l'ANR UV-Challenge, et était organisé comme suit :

- 1- Nous avons étudié des BBO provenant de **trois sources différentes** : un BBO commercial fabriqué par TSSG de l'entreprise Castech en Chine, un BBO TSSG fabriqué par l'entreprise Cristal Laser⁸¹, ainsi qu'un BBO Czochralski fabriqué par le laboratoire LMOPS à Metz⁸².
- 2- Les trois cristaux ont été coupés aux mêmes angles et à **la même longueur** (3,155mm) et envoyé ensemble au laboratoire de Croissance Cristalline de l'Institut de Géologie et Minéralogie de Novosibirsk (Russie) pour subir **le même polissage**⁸³.
- 3- Leur **absorption linéaire** a ensuite été caractérisée au LMOPS.
- 4- Une première expérience de **conversion de fréquence vers 266 nm à basse puissance moyenne** a ensuite été effectuée au LMOPS.
- 5- Enfin, j'ai effectué des expériences de **conversion de fréquence vers 266 nm à forte puissance moyenne** en collaboration avec la société Eolite Systems à Pessac.

⁸¹ Qui n'est pas encore un produit commercial.

⁸² Les paramètres de croissance utilisés par le LMOPS pour le BBO Czochralski sont les suivants : Le cristal a été synthétisé à partir des matériaux de bases BaCO_3 (pureté 99,95 %) et B_2O_3 (99,98 %). Le four de croissance est un four Czochralski classique chauffé par radiofréquence. Le bain a été placé en surfusion autour de 1050 °C. Le gradient de température radial a été mesuré à 28 °C/cm, et le gradient radial a été ajusté à 550 °C/cm à la surface du bain. Le germe a été orienté selon l'axe c et sa surface inférieure a été polie et traitée à l'acide phosphorique à 100 °C pendant 1 min. Un creuset en platine de 50 mm de haut et 50 mm de diamètre a été utilisé. La vitesse de rotation typique est de 4 rpm. Avec une vitesse de tirage de 0,5 mm/h, une boule de 58 g de BBO CZ a été obtenue.

⁸³ A cause de son caractère hygroscopique, le polissage du BBO est en effet très délicat, au point que seuls quelques laboratoires dans le monde sont capables de le faire à haute qualité, dont le laboratoire de Novosibirsk.

IV.2.2 Résultats expérimentaux

IV.2.2.a Caractérisation optique des cristaux

Trois cristaux de β -BBO ont donc été étudiés. Par la suite on les nommera comme suit : les deux cristaux TSSG provenant de Cstech et Cristal Laser seront nommés respectivement CT et CL, tandis que le cristal Czochralski du LMOPS sera nommé CZ. Tous les cristaux ont été taillés avec des dimensions de $3 \times 3 \times 3,155 \text{ mm}^3$ (la dernière dimension étant leur longueur) pour la génération de second harmonique de type-II de 532 nm vers 266 nm, c'est-à-dire coupé à $\theta=47,7^\circ$. Les faces optiques de tous les cristaux ont été polis à Novosibirsk. Leur rugosité a été mesurée par Cristal Laser à l'aide d'un Zygo comme inférieure à 8 \AA , et avec une planéité comprise entre $\lambda/15$ et $\lambda/30$ sur plus de 90% des surfaces, ce qui est excellent et correspond par exemple aux standards industriels de Cristal Laser. Ils n'ont pas de traitements antireflets.

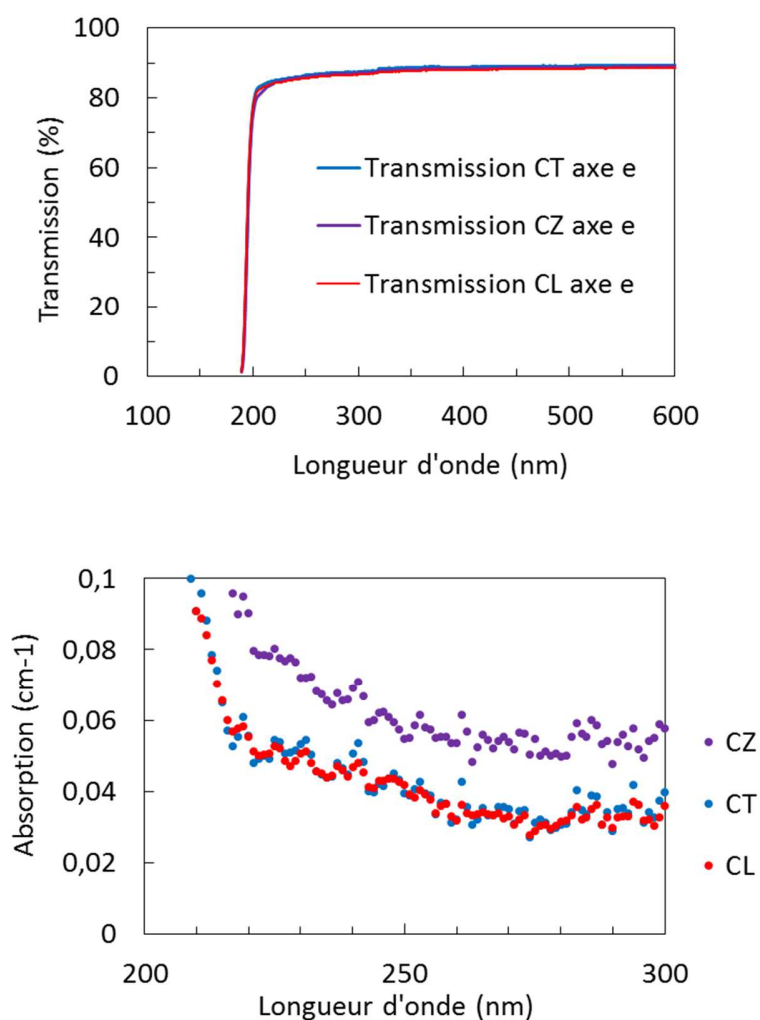


Figure IV-13 : Transmissions des échantillons de BBO CT, CL et CZ (haut) et absorptions linéaires dans l'ultraviolet correspondantes (bas) sur l'axe extraordinaire¹²

La transmission des 3 échantillons entre 190 nm et 700 nm a été mesurée pour les axes ordinaires et extraordinaires⁸⁴ par le LMOPS à l'aide d'un spectromètre Perkin Elmer Lambda 900 (Figure IV-13). Sur les courbes de transmission, on n'observe pas de différences majeures, et les seuils de coupure des trois cristaux sont tous situés autour de 189 nm. On a calculé les coefficients d'absorption correspondants pour les trois cristaux à 532 nm et 266 nm, qui sont résumés dans le tableau de la figure IV-14 :

Coefficients d'absorption		
Cristal	alpha532nm,axe o (cm-1)	alpha266nm,axe e (cm-1)
Castech TSSG (CT)	0,057	0,033
Cristal Laser TSSG (CL)	0,047	0,033
LMOPS CZ (CZ)	0,070	0,054

Figure IV-14 : Coefficients d'absorption des trois BBO à 532 nm et 266 nm

On remarque que les coefficients d'absorption des deux cristaux TSSG (CT et CL) à 266 nm sont comparables, tandis que l'absorption linéaire du cristal CZ est plus élevée. D'après ces mesures, il ne semble donc pas que la croissance CZ améliore fortement l'absorption linéaire dans l'UV, comme cela avait été suggéré dans les précédents articles. Il faut apporter deux précisions à ce constat. Premièrement, le cristal CZ fabriqué par le LMOPS et les cristaux industriels n'ont pas eu les mêmes précurseurs, qui diffèrent par exemple dans leur niveau de pureté. Pour une comparaison plus exacte, il faudrait effectuer deux croissances cristallines à partir des mêmes matériaux précurseurs⁸⁵. Deuxièmement, on constate que le coefficient d'absorption à 266 nm de nos deux cristaux TSSG est presque 5 fois inférieur à celui du cristal TSSG utilisé dans l'article de Bandhari *et al* : soit les méthodes de croissance ont évolué depuis la fabrication du cristal (sachant que la publication date de 2012...), soit l'article contient une erreur de mesure.

IV.2.2.b Génération de quatrième harmonique à basse puissance moyenne

Le LMOPS a ensuite réalisé une expérience de conversion de fréquence de 532 nm vers 266 nm avec les 3 cristaux, dont le schéma expérimental est indiqué Figure IV-15.

La source fondamentale est un laser impulsif nanoseconde d'une puissance moyenne de 300 mW à 532 nm, émettant des impulsions de 60 ns à 1 kHz, soit une énergie par impulsion de 300 μ J. La sortie du laser est focalisée dans le cristal non-linéaire sur un rayon de faisceau au waist de 60 μ m. Les cristaux sont régulés en températures à 20 °C et placés sur des montures ayant les translations et rotations nécessaires à l'obtention de l'accord de phase. Après conversion, les faisceaux de sortie fondamental (532 nm) et doublé (266 nm) sont séparés à l'aide d'un prisme, et un filtre interférentiel à 266 nm est inséré devant le mesureur de puissance.

⁸⁴ En génération de quatrième harmonique de type-I dans le BBO, l'onde à 532 nm est polarisée selon l'axe ordinaire et l'onde à 266 nm sur l'axe extraordinaire.

⁸⁵ La faisabilité d'une telle expérience est actuellement à l'étude.

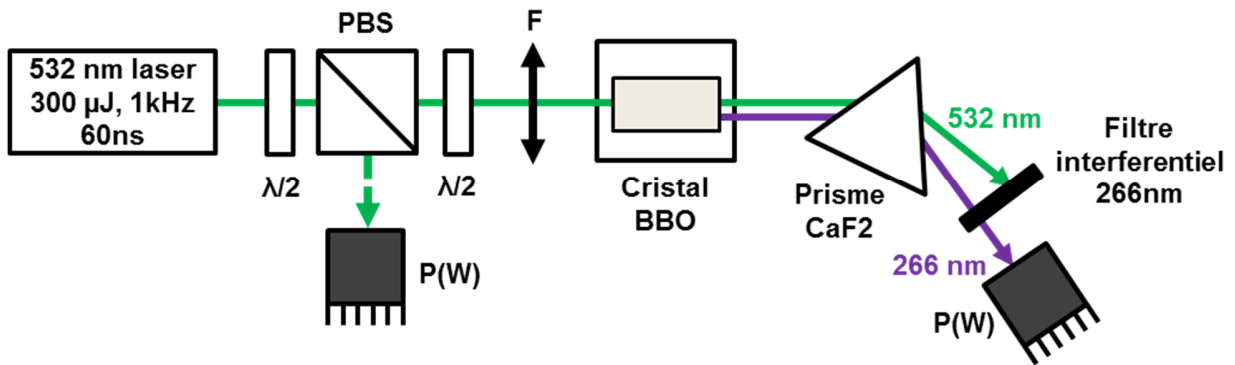


Figure IV-16 : Schéma expérimental de la SHG de 532 nm à 266 nm à basse puissance moyenne

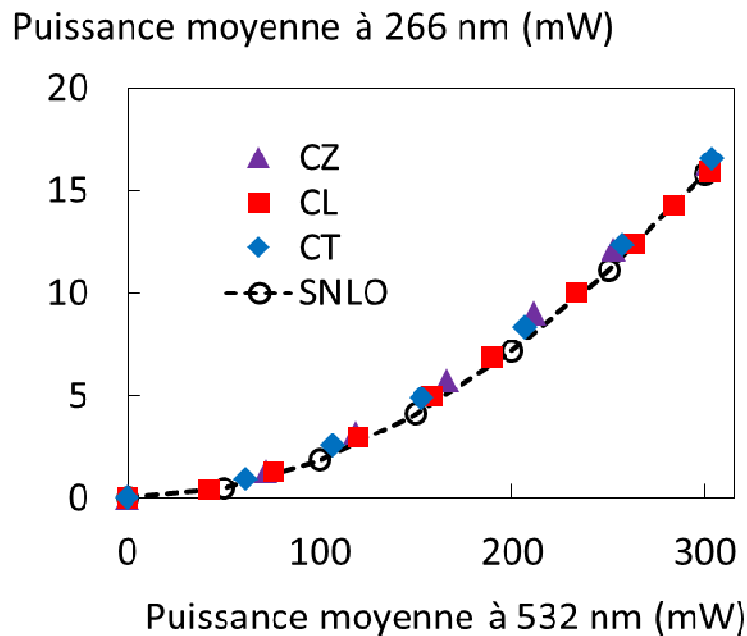


Figure IV-15 : Puissances moyennes à 266 nm obtenues avec les 3 cristaux de BBO en fonction de la puissance moyenne incidente à 532 nm

Les résultats présentés Figure IV-16 représentent les puissances moyennes à l'entrée et à la sortie du cristal non-linéaire, calculées à partir des mesures corrigées par les différentes transmissions des éléments filtrants. On y a également ajouté la simulation SNLO correspondante. Les faibles puissances moyennes en jeu, ainsi que la précision des paramètres d'expérience que nous a fourni le LMOPS permettent d'obtenir un accord parfait entre les théories et l'expérience.

Pour les 3 cristaux non-linéaires, on obtient des puissances moyennes identiques comprises entre 16 et 17 mW, ce qui représente une efficacité de conversion d'environ 5,5% de 532 nm vers 266 nm. De plus, les résultats obtenus sont identiques à ceux obtenus par simulation. Ce résultat était attendu, car à basse puissance moyenne les très légères absorptions des cristaux de BBO n'induisent pas de déphasage

thermique. En conclusion, à basse puissance moyenne, les cristaux de BBO réalisés en croissance Czochralski ne semblent pas avoir d'avantages sur ceux réalisés par TSSG.

Malgré ces résultats plutôt décevants, nous avons voulu effectuer ces mêmes expériences à des puissances moyennes bien plus hautes. Pour cela, nous sommes partis voir nos amis d'Eolite Systems en Aquitaine, le pays du Laser.

IV.2.2.c Génération de 4^{ème} harmonique à forte puissance moyenne

Nous sommes donc parti à Pessac avec les 3 cristaux⁸⁶ de BBO, où nous avons réalisé une expérience similaire à celle détaillée précédemment, à la différence que le laser utilisé est maintenant un laser BOREAS ayant une puissance moyenne de 30 W à 515 nm, avec des impulsions de 8 ns émises à 150 kHz, soit une énergie par impulsion de 200 μ J et une puissance crête de 25 kW. Le laser a un profil de faisceau gaussien ($M^2 < 1,2$) et une largeur spectrale de 0,2 nm. L'acceptance spectrale d'un BBO de 3 mm de long coupé à $\theta = 47.7^\circ$ pour la SHG de Type-I de 515 à 257 nm valant 0,46 nm, nous ne devrions pas observer les effets de l'acceptance spectrale dans ce cas.

Le schéma expérimental étant le même que celui de la Figure IV-15, nous passerons directement aux résultats expérimentaux. Le faisceau vert a été focalisé pour les 3 BBO sur un rayon au waist de 51 μ m : cela correspond à une fluence sur les faces du cristal d'environ 2,5 J/cm², afin de maximiser l'efficacité de conversion tout en étant en dessous du seuil de dommage. Le cristal non-linéaire est placé dans un four et chauffé à 100 \pm 0,1°C. L'angle d'accord de phase a été légèrement ajusté, le cristal étant taillé pour la SHG à 266 nm et non à 257 nm. Les profils de faisceaux vert et UV sont affichés en Figure IV-17.

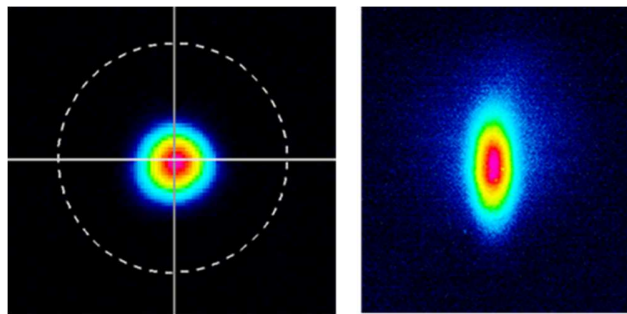


Figure IV-17 : Profil d'intensité des faisceaux vert (gauche) et UV (droite). Le profil UV a été récupéré grâce à un convertisseur UV-visible de la marque Dataray.

Les puissances moyennes dans l'UV obtenues avec les 3 cristaux de BBO sont présentées Figure IV-18. Les deux graphiques y figurant représentent exactement les mêmes données, mises à des échelles différentes. Pour une puissance moyenne à 515 nm incidente de 30 W, on a obtenu des puissances dans l'UV avec les cristaux CT, CL et CZ de respectivement 2,15 W, 2,42 W et 2,65 W, soit des efficacités de conversion de 7,2 %, 8,1 % et 8,8 %. Les mesures ont été répétées plusieurs fois et sont très reproductibles, avec des précisions de $\pm 0,05$ W. On a également indiqué sur la figure la puissance théorique donnée par le logiciel SNLO, et qui est de 6,26 W. Cette grande différence s'explique par le fait que SNLO ne simule pas les effets de déphasage thermique, qui sont extrêmement prépondérants dans notre configuration de forte puissance moyenne. On peut valider cette hypothèse car les résultats théoriques sont très proches des

⁸⁶ Qui auront donc fait le voyage Metz-Nancy-Novosibirsk-Nancy-Metz-Paris-Bordeaux-Paris...

résultats expérimentaux jusqu'à 10 W de puissance moyenne incidente à 515 nm. C'est à partir de cette puissance moyenne de 10 W que les puissances moyennes obtenues avec les 3 cristaux de BBO divergent : les effets thermiques sont donc légèrement différents pour les 3 cristaux de BBO. Les cristaux étaient réalignés pour chaque puissance de pompe à 515 nm.

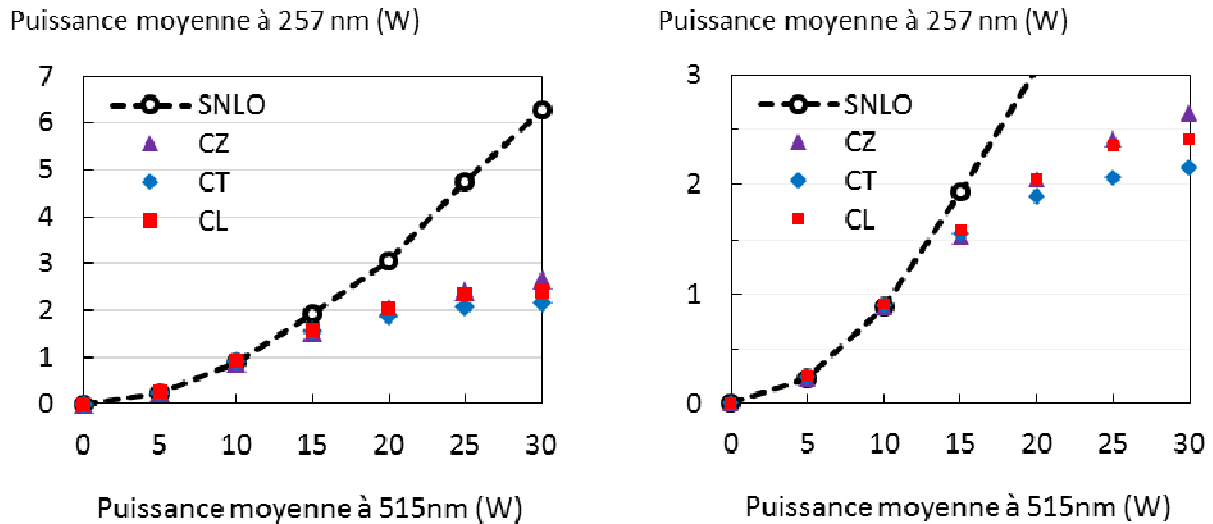


Figure IV-18 : Puissances moyennes UV obtenues avec les 3 cristaux de BBO. La figure droite est la même que celle de gauche, mais l'échelle a été changée pour voir la différence entre les 3 cristaux

Il serait tentant d'attribuer cette différence à l'absorption linéaire, mais étrangement le cristal Czochralski, ayant l'absorption linéaire la plus forte à 266 nm, est aussi celui qui nous a permis d'obtenir la plus grande efficacité de conversion !

Une hypothèse peut être formulée en considérant l'absorption non-linéaire du BBO. En effet, de nombreux articles ont montré que l'absorption à deux-photons dans l'ultraviolet pouvait entraîner une forte chute de la transmission, (Divall et al. 2005; Isaenko et al. 2001; Kouta 1999; Takahashi, Osada, Dergachev, Peter F. Moulton, et al. 2010). Si l'on se base sur les travaux de Takashio *et al* (Takachiho & Yoshimura 2014) qui ont mesuré cette chute de transmission (Figure IV-19), et que l'on utilise une gamme de puissance moyenne entre 3 et 6 W à 266 nm, les tailles de faisceau utilisées conduiraient à une intensité UV comprise entre 40 et 80 MW/cm², la chute de transmission observée expérimentalement serait comprise entre 10 et 25 % ! Cela correspondrait à une très forte absorption qui entraînerait inévitablement un fort gradient thermique.

A cause de la fracture du cristal CL en fin de campagne, et au manque de temps et de matériel disponible sur place, nous n'avons pas pu réaliser de caractérisation comparative poussée d'absorption à deux photons à 257 nm. Nous avons pu cependant effectuer un premier test validant la présence de ce phénomène : il a été montré que l'absorption à deux photons dans le BBO diminuait lorsque la température à l'intérieur du cristal augmentait (Takahashi, Osada, Dergachev, Peter F. Moulton, et al. 2010). Nous avons donc étudié la puissance maximale d'UV pouvant être obtenu avec les deux cristaux restants (CT et CZ) en fonction de la température de régulation du cristal. Les résultats de cette mesure sont présentés Figure IV-20. On y voit que la puissance maximale UV obtenue avec le cristal CT varie de 2 W à 2,3 W pour une variation de température de 30 °C à 200 °C, tandis qu'elle varie de 2,4 W à 3,2 W pour le cristal CZ. A 200

°C, le cristal fabriqué par la méthode Czochralski permet donc d'obtenir 40 % de puissance UV de plus que le cristal réalisé en TSSG !

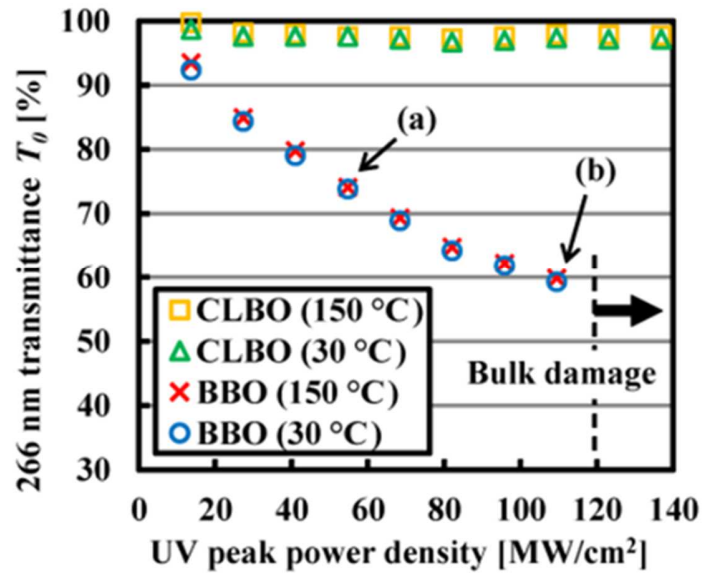


Figure IV-19 : Chute de la transmission de cristaux de BBO et CLBO sous irradiation UV à 266 nm

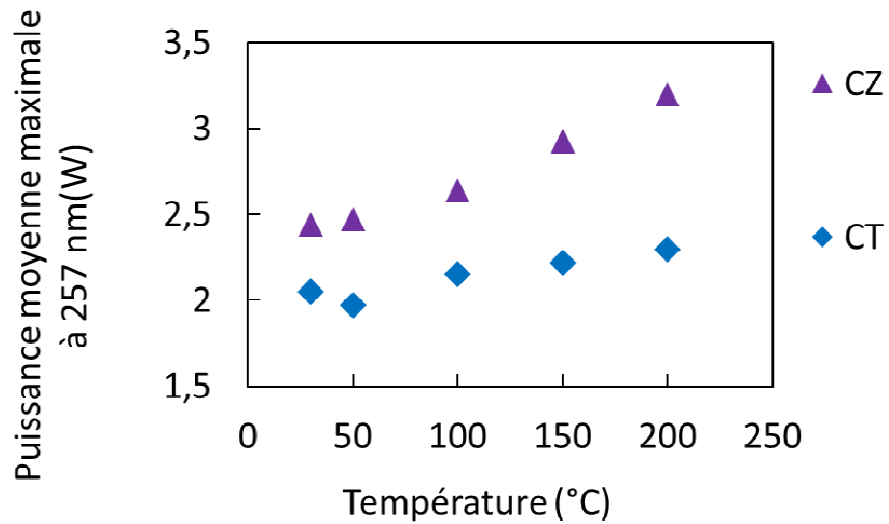


Figure IV-20 : Puissance UV maximale obtenue avec les cristaux CT et CZ en fonction de la température de régulation du cristal

IV.2.3 Conclusion et perspectives

Dans cette partie, nous avons donc présenté des mesures comparatives de conversion de fréquence vers l'ultraviolet entre des cristaux de BBO réalisés par TSSG et un cristal réalisé par la méthode Czochralski. Nous n'avons ni constaté de différences significatives d'absorption linéaire entre les cristaux, ni de différences de performances en régime de faible puissance moyenne.

Le régime de conversion UV à forte puissance moyenne semble indiquer de subtiles différences entre les effets thermiques s'établissant dans les 3 cristaux. En se basant sur nos mesures, il est encore trop tôt pour tirer une conclusion définitive sur l'origine de ces différences.

Pour cela, il faudra réaliser une étude plus poussée sur la caractérisation des cristaux, et notamment sur l'absorption non-linéaire dans l'ultraviolet, par exemple par une mesure de type Z-scan. Il serait par exemple intéressant de voir comment le cristal TSSG produit par Cristal Laser se comporterait, car il semblait avoir des performances intermédiaires entre le cristal Czochralski et le cristal TSSG de Castech.

L'absorption non-linéaire est extrêmement sensible aux impuretés présentes dans les cristaux ; il serait compréhensible que la méthode Czochralski réduise ces impuretés, puisqu'il n'y a pas d'éléments chimiques additionnels ajoutés pendant la croissance, à l'inverse de la méthode de croissance par flux TSSG.

Suite à ces expériences, de nouvelles croissances cristallines vont être lancées : nous pensons avoir trouvé là une piste intéressante pour mieux comprendre et améliorer le comportement du BBO en génération de quatrième harmonique de forte puissance.

CHAPITRE V :

Accord de phase par contrainte
mécanique

V. ACCORD DE PHASE PAR CONTRAINTE MECANIQUE

Nous arrivons maintenant au dernier chapitre de cette thèse, qui comme son nom l'indique, va décrire le concept d'accord de phase mécanique. Il s'agit d'une nouvelle technique concernant la conversion de fréquence dans les cristaux biréfringents, qui consiste à exercer une forte contrainte mécanique, afin de déformer le cristal et ainsi changer ses propriétés d'accord de phase par le biais de l'effet élasto-optique.

Ce travail réalisé lors de ma dernière année de thèse, a germé à la suite d'un constat : lors de nos expériences de génération de 4^{ème} harmonique (comme celles décrites dans les chapitres 3 et 4), nous avons constaté qu'il n'existait qu'un petit nombre de cristaux non-linéaires étant à la fois transparents aux courtes longueurs d'onde, et suffisamment biréfringents pour permettre la génération d'UV lointain par quadruplement de fréquence. Pour illustrer ce propos, on rappelle en Figure V-1 les limites de génération d'harmoniques dans l'UV des différents cristaux industriels, qui ne concernent que la génération d'UV par doublement de fréquence :

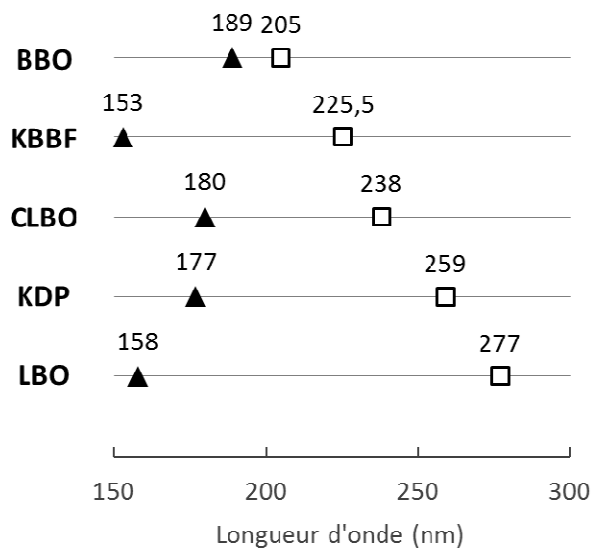


Figure V-1 : Seuil de coupure (triangles pleins) et longueur d'onde minimale pouvant être générée par SHG (carrés vides) des principaux cristaux non-linéaires pour l'UV

Si l'on se rappelle de l'architecture laser développée dans notre chapitre 3⁸⁷, on constate grâce à ce tableau que seul le KBBF et le BBO permettent de générer un rayonnement à 236 nm par doublement de fréquence. De plus, le KBBF n'est disponible commercialement qu'en Chine. Nous n'avons alors que le BBO à notre disposition, qui malgré sa maturité possède des propriétés non-linéaires désavantageuses comme un walk-off important ; nous avons dans un premier temps essayé de l'améliorer en travaillant sur sa méthode de croissance (cf Chapitre 4). Nous avons également participé au développement d'un nouveau

⁸⁷ Soit un laser à 946 nm quadruplé en fréquence vers 236,5 nm.

cristal non-linéaire, mais on a vu lors du Chapitre 4 que cela prenait un temps extrêmement long (plusieurs dizaines d'années)⁸⁸.

Un détail de la Figure V-1 nous a interpellé : quel dommage que le LBO, transparent jusqu'à 158 nm, ne soit pas assez biréfringent pour générer de la quatrième harmonique ! Il possède en effet tout ce que l'on attend d'un bon cristal non-linéaire : des propriétés non-linéaires satisfaisantes, la croissance possible de cristaux d'excellente qualité optique et de grandes dimensions, des seuils de dommages élevés, pas d'effets de dégradation, etc.

Ne pourrait-on donc pas modifier la biréfringence du LBO afin d'abaisser sa limite de génération de 4^{ème} harmonique ? A cette question, nous avons proposé une piste de réponse : pourrait-on modifier les indices de réfraction du cristal par un effet élasto-optique ?⁸⁹ Il n'en fallait pas plus pour nous lancer, avec l'aide de l'entreprise Cristal Laser, dans l'étude de la faisabilité de cette idée, qui étrangement n'avait jamais été abordée dans la littérature...

Ce chapitre 5 présentera donc l'étude et la mise en place du concept d'accord de phase mécanique. Il sera divisé en 2 grandes parties. Dans la première, nous détaillerons les différents calculs théoriques réalisés afin d'identifier les potentielles applications de cette technique, et notamment les cristaux non-linéaires sur lesquels l'appliquer. Dans la seconde partie, on étudiera la réalisation du dispositif de contrainte mécanique, les différents problèmes technologiques rencontrés, ainsi qu'une expérience de modification des accords de phase par contrainte.

V.1 Etude théorique de l'accord de phase mécanique

Avant de commencer à « écraser » des cristaux non-linéaires très onéreux, nous avons dû estimer l'intérêt de notre technique. Pour cela, deux types de calculs sont nécessaires. Dans le premier, on a cherché à calculer la quantité de biréfringence manquante à certains accords de phase particuliers, et cherché les plus intéressants à étudier. Dans le deuxième, on détaillera la théorie de la déformation des matériaux afin de pouvoir calculer les contraintes nécessaires à appliquer.

V.1.1 Etude de la biréfringence de différents accords de phases

V.1.1.a Principe général

Comme on l'a vu dans le chapitre 3, l'accord de phase dans un processus de SHG est réalisé lorsque les indices optiques vus par l'onde fondamentale et l'onde doublée sont égaux. Afin d'obtenir cette condition, on dispose classiquement de deux « leviers » pour ajuster les indices :

- Les angles de coupes θ, ϕ permettent d'ajuster les indices optiques $n(\theta, \phi)$ par projection du champ électrique sur différents plans principaux du cristal.
- La variation des indices optiques en température $n(T)$ peut être également ajustée pour modifier les longueurs d'onde d'accord de phase

Pour une longueur d'onde fixe, il y a donc accord de phase si l'on a :

$$\Delta n_{SHG} = n(2\omega) - n(\omega) = 0 \quad \text{Eq. V-1}$$

On définit ici la **biréfringence d'accord de phase** Δn_{SHG} comme la différence entre les indices optiques vus par les ondes à 2ω et à ω . Pour modifier un accord de phase, il ne faut donc pas modifier un indice de réfraction, mais modifier la **différence** entre les deux indices optiques concernés. Pour cette raison, si l'on

⁸⁸ C'est malgré tout le projet ambitieux de l'ANR UV-Challenge avec les développements du CBF et du YAB (Ilas 2014)

⁸⁹ Exprimée de manière plus simple : « Et qu'est-ce qui se passerait si on appuyait dessus ? »

souhaite modifier Δn_{SHG} par un effet élasto-optique, il faut induire une contrainte non-uniforme sur le cristal. A titre d'exemple, une pression uniforme appliquée par un gaz ne fonctionnerait pas, car tout le cristal serait soumis aux mêmes contraintes, et les variations des deux indices optiques seraient équivalentes. A l'inverse, une contrainte unidirectionnelle comme une compression provoquerait la compression du matériau dans une direction et son élongation dans l'autre : ce type de contrainte paraît donc adapté à notre application.

Le principe général de notre technique est donc illustré Figure V-2. Elle comprend trois « étapes » : une contrainte mécanique est appliquée à un cristal non-linéaire, puis ce cristal se déforme, et enfin cette déformation induit une variation d'indice par effet élasto-optique. Dans ce schéma, on suppose que le cristal possède des indices optiques n_z et n_y selon les axes Z et Y du schéma, et que les ondes à ω et 2ω se propagent selon X et sont polarisées respectivement selon Z et Y. En comprimant le cristal selon un axe, celui-ci va s'étirer selon une direction perpendiculaire à l'axe de compression (effet poisson). Lorsque la matière est comprimée, son indice optique augmente : sur le schéma, on applique une contrainte selon Y. On va donc avoir une augmentation de l'indice optique selon Y, et une diminution selon Z. Au total, on aura une variation de biréfringence ($n_y - n_z$) maximale. Si l'on applique cette fois une contrainte selon Z, l'indice optique n_z diminue tandis que l'indice n_y augmente, et on diminue alors la biréfringence.

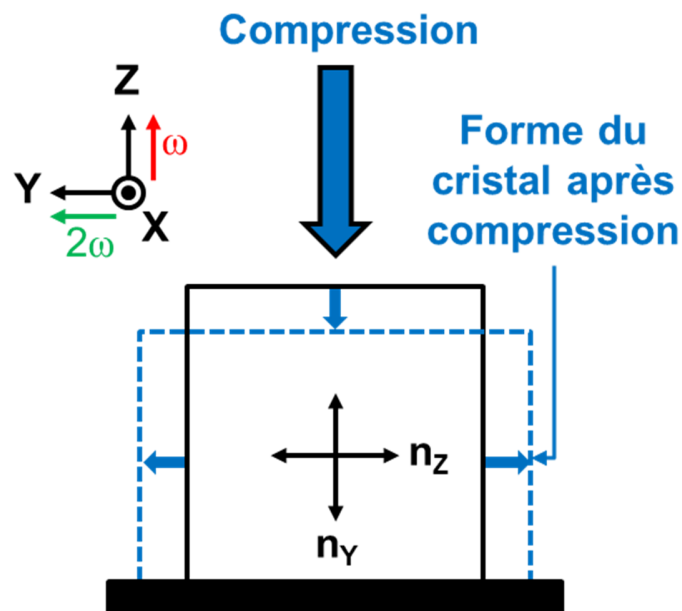


Figure V-2 : Schéma général de la compression d'un cristal non-linéaire

Selon la face d'appui, on peut donc à loisir augmenter ou diminuer la biréfringence d'accord de phase Δn_{SHG} . Dans le reste du manuscrit, on utilisera dans le texte le terme « biréfringence » pour la biréfringence d'accord de phase.

V.1.1.b Calcul des biréfringences correspondantes

Il convient donc maintenant de calculer la biréfringence des accords de phase d'intérêts, et cela pour différents cristaux.

Nous avons fait une hypothèse simplifiant les calculs : nous avons considéré que la contrainte mécanique était appliquée sur l'une des faces d'un cristal non-linéaire **taillé selon ses axes cristallins**. Cette hypothèse a trois avantages :

- Tout d'abord, elle représente la configuration qui « intuitivement »⁹⁰, permet la modification de biréfringence la plus forte. En effet, on supprime alors la projection du champ électrique selon les plans de coupe du matériau.
- De plus, elle simplifie grandement les calculs, car il n'y a alors pas de projection à faire en fonction de la coupe du cristal.
- On remarquera également que dans ce cas, le cristal non-linéaire est dans une configuration **d'accord de phase non-critique pour la génération de second harmonique de type-I**, accord de phase qui en général présente des propriétés non-linéaires supérieures aux accords de phase critiques (voir Chapitre 2).

On a donc effectué un premier calcul, qui consiste à tracer la biréfringence d'un cristal non-linéaire autour de sa longueur d'onde de génération de second harmonique en configuration non-critique. Nous avons effectué ce calcul pour trois cristaux différents :

- Le BBO, qui est le cristal le plus utilisé pour la conversion de fréquence vers l'ultraviolet lointain. Utilisé dans notre laser à 236 nm, on aimerait pouvoir annuler le walk-off pour cette conversion.
- Le KDP, dont la plus basse longueur d'onde pouvant être obtenue par génération de quatrième harmonique est en accord de phase non-critique de 518 nm à 259 nm. Il serait intéressant d'obtenir ce même accord pour la génération de quatrième harmonique en non-critique à 515 nm et 473 nm.
- Le LBO, dont la longueur d'onde la plus basse pouvant être générée par doublement de fréquence est 277 nm pour une coupe $\theta=90^\circ$, $\phi=90^\circ$. On notera qu'à cette longueur d'onde, le coefficient non-linéaire d_{eff} est nul⁹¹. On tracera donc une courbe bien plus intéressante, qui est celle de la génération de second harmonique non critique de type-I à $\theta=90^\circ$, $\phi=0^\circ$ qui possède elle un coefficient non-linéaire de 0,85 pm/V⁹².

Les paramètres de calcul pour les trois courbes sont résumés dans le tableau de la figure V-3 :

Cristal	BBO	KDP	LBO
Type cristal	uniaxe négatif	uniaxe négatif	biaxe négatif
Référence Sellmeier ⁹³	(Bass et al. 2001)	(Bass et al. 2001)	(Bass et al. 2001)
Type SHG	Type-I	Type-I	Type-I
Coupe cristal	$\theta=90^\circ$	$\theta=90^\circ$	$\theta=90^\circ$, $\phi=0^\circ$
Formule	$\Delta n_{\text{SHG}}=n_e(2\omega)-n_o(\omega)$	$\Delta n_{\text{SHG}}=n_e(2\omega)-n_o(\omega)$	$\Delta n_{\text{SHG}}=n_y(2\omega)-n_z(\omega)$

Figure V-3 : Paramètres de calculs de la figure V-4 pour le calcul de la biréfringence d'accord de phase

⁹⁰ On verra dans l'étude théorique de l'effet élasto-optique que ce point est à nuancer selon les coefficients élasto-optiques du matériau.

⁹¹ Ce point est facilement vérifiable grâce au logiciel SNLO

⁹² On parlera un peu plus de ces deux coupes différentes dans la partie conclusions et perspectives

⁹³ Les nombreuses équations présentes dans les sites des vendeurs de cristaux non-linéaires sont fausses ; on a trouvé les plus précises dans le recueil : *Handbook of optics* ; Bass, M ; (2001)

Ces 3 courbes, illustrées Figure V-4, présentent donc la biréfringence de la génération d'harmonique de type-I pour différents cristaux ; ce type de courbe est rarement présenté dans la littérature, il convient d'y apporter quelques précisions. Tout d'abord, on a tracé la ligne correspondant à une biréfringence « nulle » : c'est au croisement de cette ligne avec les courbes de biréfringence qu'il y a accord de phase non-critique en angle. Ensuite, il faut bien avoir en tête que ces courbes ne sont valides que **pour un accord de phase non-critique, une coupe de cristal et une température donnés**. Elles permettent néanmoins d'obtenir une information cruciale sur la biréfringence induite qu'il va falloir créer dans les cristaux selon l'application voulue. On peut par exemple en déduire que :

- Pour modifier l'accord de phase non-critique du BBO de 410 nm à 473 nm, et ainsi supprimer le walk-off lors de la SHG vers 236 nm, il faut créer une biréfringence $\Delta n_{\text{SHG}} = -4 \times 10^{-2}$.
- Pour abaisser l'accord de phase non-critique du KDP de 520 nm à 470 nm, il faut créer une biréfringence $\Delta n_{\text{SHG}} = 8 \times 10^{-3}$.
- Pour abaisser l'accord de phase non-critique du LBO de 1210 nm à 532 nm, il faut créer une biréfringence $\Delta n_{\text{SHG}} = 4 \times 10^{-2}$.

Il existe évidemment beaucoup d'autres décalages d'accord de phase possibles, mais ceux-ci sont directement en lien avec mon projet de thèse.

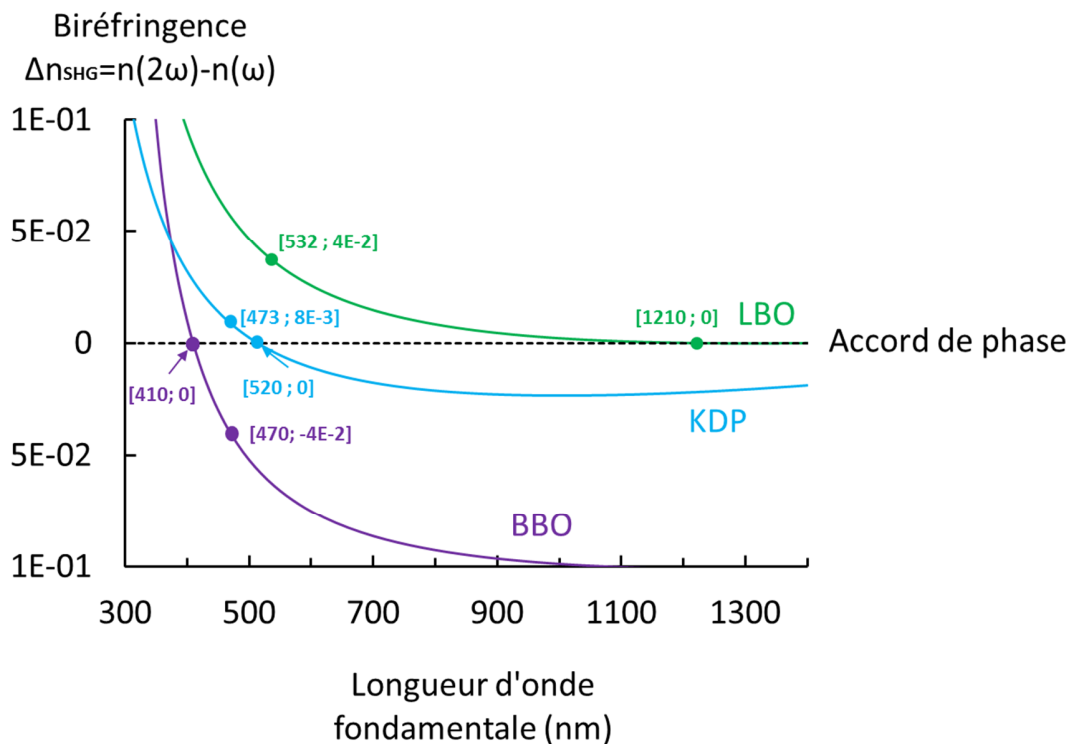


Figure V-4 : Calcul de la biréfringence pour la génération de second harmonique non-critique de type-I dans le BBO, le KDP et le LBO, en fonction de la longueur d'onde fondamentale. La ligne en pointillé indique une biréfringence nulle, soit la présence d'un accord de phase. Les applications identifiées dans le paragraphe précédent sont indiquées par des points avec leurs coordonnées respectives.

V.1.1.c Choix du cristal à contraindre

Parmi les cristaux étudiés, la **modification des accords de phase dans le LBO** semble l'application la plus intéressante et prometteuse, et ceci pour de nombreuses raisons :

- Tout d'abord, la possibilité de réaliser la génération de quatrième harmonique de 532 nm vers 266 nm emballât grandement les responsables de Cristal Laser : en effet, c'est un cristal dont la croissance est extrêmement bien maîtrisée et qui est déjà utilisé dans de très nombreux lasers convertis en fréquence. Cristal Laser était prêt à nous fournir des échantillons de LBO à contraindre gratuitement, contrairement au KDP et au BBO qu'ils ne produisent pas.
- Nous souhaitions pouvoir observer facilement des résultats préliminaires de décalage d'accord de phase : sur la Figure V-4, on observe que la quantité de biréfringence induite nécessaire au décalage de l'accord de phase non-critique du LBO est très basse jusqu'à 1 μm . Nous pourrions donc effectuer une expérience préliminaire consistant à obtenir l'accord de phase non-critique à température ambiante dans le LBO pour la génération de second harmonique de 1064 nm à 532 nm.
- Enfin, dans le cadre du projet de recherche UV-Challenge, nous disposions d'une source laser blanche de 450 nm à 2 μm , ce qui permettait de couvrir toute la bande d'accord de phase du LBO.

Par conséquent, nous avons choisi d'utiliser exclusivement des cristaux de LBO pour la suite de nos expériences.

V.1.2 Notions théoriques

Il manque aux calculs de la partie précédente une composante essentielle, qui est la contrainte nécessaire à appliquer sur les cristaux non-linéaires afin d'obtenir de tels décalages. Dans cette partie, on indiquera donc les notions théoriques nécessaires à la compréhension de l'effet élasto-optique dans les cristaux non-linéaires. Cette thèse n'ayant pas la mécanique comme thème principal, nous nous contenterons de détailler les différents résultats théoriques nécessaires à nos calculs.

Pour cela, un peu de formalisme de mécanique des matériaux est d'abord nécessaire. En particulier, il est important de définir et comprendre la relation contrainte/déformation/biréfringence induite.

V.1.2.a Contrainte mécanique et déformation

Soit un cube dont les arêtes ont une longueur a , soumis à des forces exprimées dans le repère $(\vec{e}_1, \vec{e}_2, \vec{e}_3)$, chaque force comportant trois composantes d'indice i . Sur chaque face j du cube (on utilise les 3 faces principales, noté avec j allant de 1 à 3) s'exerce un vecteur force $\vec{F}_j(F_{1j}, F_{2j}, F_{3j})$: F_{ij} est donc la composante selon \vec{e}_i du vecteur force s'exerçant selon la face j . A chaque force F_{ij} correspond une contrainte définie comme le rapport entre la composante de la force appliquée en Newton et une surface arbitraire d'aire a^2 :

$$\sigma_{ij} = \frac{F_{ij}}{a^2} \quad \text{Eq. V-2}$$

La contrainte σ_{ij} correspond donc à la contrainte selon \vec{e}_i sur la face j .

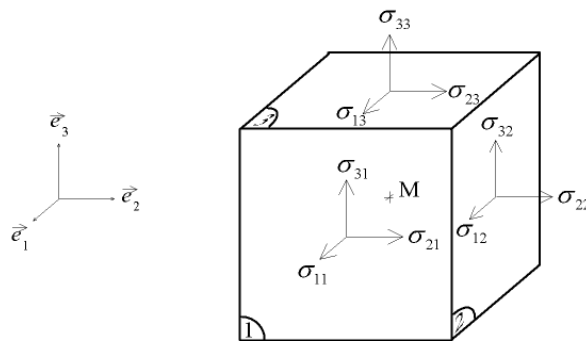


Figure V-5 : Représentation des contraintes subies par un cube dans le repère (e_1, e_2, e_3) . Source : http://fr.wikipedia.org/wiki/Tenseur_des_contraintes

La contrainte peut donc être assimilée à une pression, et s'exprime en Pascals (Pa). On peut représenter l'ensemble des contraintes subies par le cube sous la forme d'un tenseur⁹⁴ d'ordre 2 à 9 composantes.

$$\sigma_{ij} = \begin{pmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{12} & \sigma_{13} \\ \sigma_{12} & \sigma_{22} & \sigma_{23} \\ \sigma_{13} & \sigma_{23} & \sigma_{33} \end{pmatrix} \quad \text{Eq. V-3}$$

On note alors que les trois composantes diagonales σ correspondent aux forces de compression et de traction, tandis que les composantes hors diagonales correspondent aux cisaillements et sont parfois notés τ .

De plus, le tenseur de contraintes en régime statique est toujours symétrique, de telle sorte que l'on peut l'écrire sous une forme simplifiée dans laquelle on a :

$$\sigma_j = \begin{pmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sigma_{11} \\ \sigma_{22} \\ \sigma_{33} \\ \sigma_{12} \\ \sigma_{13} \\ \sigma_{23} \end{pmatrix} \quad \text{Eq. V-4}$$

Avec

$$\sigma_{12} = \sigma_{21}, \sigma_{13} = \sigma_{31}, \sigma_{23} = \sigma_{32}$$

⁹⁴ Il est courant de confondre scalaires, vecteurs et tenseurs. Pour rappel :

- Scalaire : une quantité avec une amplitude uniquement (exemple : température, temps, masse)
- Vecteur : une quantité avec une amplitude et une direction (exemple : force, vitesse, accélération)
- Tenseur : une quantité avec une amplitude et une direction, le tout par rapport à un plan de référence dans lequel la quantité agit (exemple : force, déformation)

Lorsqu'un matériau est soumis à une contrainte locale σ , il va subir une déformation locale ε que l'on définit comme le rapport entre la dimension finale et la dimension initiale de la longueur considérée, illustré Figure V-6 (c'est donc une valeur sans unité).

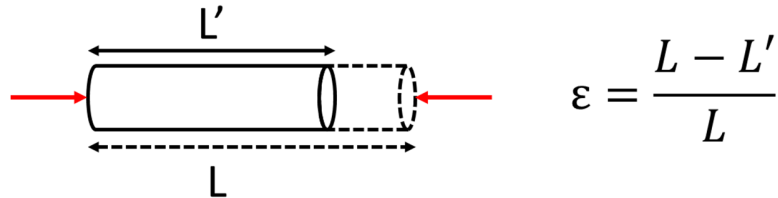


Figure V-6 : Définition de la déformation ε

C'est un tenseur d'ordre 2 de même forme que le tenseur de contrainte, qui peut donc s'écrire :

$$\varepsilon_{ij} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{11} & \varepsilon_{12} & \varepsilon_{13} \\ \varepsilon_{12} & \varepsilon_{22} & \varepsilon_{23} \\ \varepsilon_{13} & \varepsilon_{23} & \varepsilon_{33} \end{pmatrix} \quad \text{Eq. V-5}$$

De la même manière que pour les contraintes σ_{ij} , ε_{ij} est la composante du tenseur de déformations représentant la déformation selon \vec{e}_i sur la face j .

Sa notation simplifiée est similaire à celle du tenseur de contrainte :

$$\varepsilon_j = \begin{pmatrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_2 \\ \varepsilon_3 \\ \varepsilon_4 \\ \varepsilon_5 \\ \varepsilon_6 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{11} \\ \varepsilon_{22} \\ \varepsilon_{33} \\ \varepsilon_{12} \\ \varepsilon_{13} \\ \varepsilon_{23} \end{pmatrix} \quad \text{Eq. V-6}$$

Avec

$$\varepsilon_{12} = \varepsilon_{21}, \varepsilon_{13} = \varepsilon_{31}, \varepsilon_{23} = \varepsilon_{32}$$

La contrainte et la déformation sont liées par la relation de Hooke généralisée⁹⁵ :

$$\begin{aligned} \sigma_{ij} &= C_{ijkl} \varepsilon_{kl} \\ \varepsilon_{ij} &= S_{ijkl} \sigma_{kl} \end{aligned} \quad \text{Eq. V-7}$$

⁹⁵ La loi de Hooke fait référence au Physicien anglais du 17^{ème} siècle Robert Hooke. Fait intéressant, il publia cette loi initialement en 1660 sous la forme d'un anagramme en latin dans l'ordre alphabétique "ceiinossttuv", et ne révéla sa solution qu'en 1678 : « ut tensio, sic vis », ce qui signifie « l'extension est proportionnelle à la force ».

Dans cette relation, on trouve les tenseurs d'élasticité C_{ijkl} (parfois également appelé tenseur de rigidité) et de souplesse S_{ijkl} (parfois appelés tenseur de complaisance)⁹⁶. Ce sont des tenseurs d'ordre 4 ayant $9 \times 9 = 81$ composantes. Cependant, les propriétés de symétrie des tenseurs de contraintes et de déformations permettent de réduire ces tenseurs à $6 \times 6 = 36$ composantes.

On peut donc alors exprimer la relation de Hooke simplifiée :

$$\begin{aligned} \sigma_i &= C_{ij} \varepsilon_j \\ \varepsilon_i &= S_{ij} \sigma_j \end{aligned} \qquad \text{Eq. V-8}$$

Avec i et j variant de 1 à 6.

Le tenseur d'élasticité dépend fortement du type de matériau considéré. Dans les milieux anisotropes en particulier, lorsque le matériau possède des symétries dans sa structure (cas des cristaux par exemple), certains coefficients élastiques prennent la valeur 0 ou sont égaux à d'autres coefficients. Les différents types de matrice élastique en fonction de la classe cristalline sont illustrés en Figure V-7.

Le cas des matériaux isotropes est très simple, car il suffit alors de ne connaître que deux coefficients : C_{11} et C_{12} , qui sont respectivement égaux à $1/E$ et $-\nu/E$, où E est le module d'Young du matériau et ν son coefficient de Poisson.

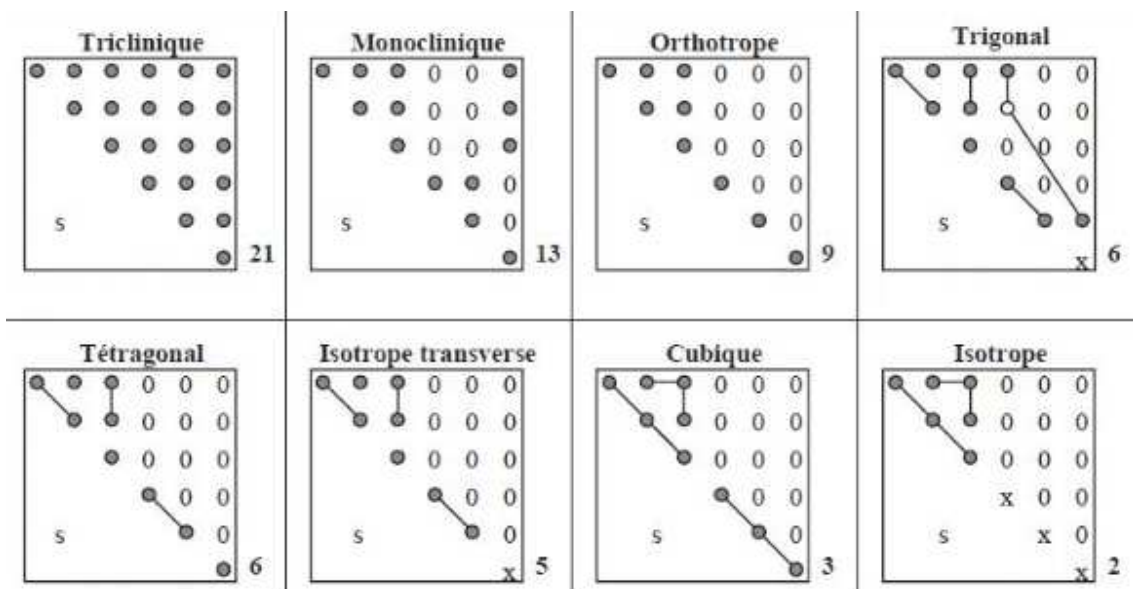


Figure V-7 : tables de symétrie des tenseurs d'élasticité en fonction des classes cristallines. Les ronds noirs indiquent des coefficients égaux, les zéros indiquent des coefficients nuls, et les ronds blancs du cas trigonal indiquent des coefficients opposés les « x » indiquent un coefficient égal à $(C_{11}-C_{12})/2$

Une fois la relation entre la contrainte et la déformation définie, il nous faut définir la relation entre la déformation et la biréfringence induite.

⁹⁶ En anglais, C_{ijkl} est appelé « elasticity tensor » ou « stiffness tensor » et S « compliance tensor »

V.1.2.b Déformation et biréfringence induite

Toute déformation d'un matériau provoque une variation de la densité locale de matière : la constante diélectrique⁹⁷ ϵ_r locale du matériau varie alors, ainsi que l'indice de réfraction selon l'équation :

$$\Delta\left(\frac{1}{\epsilon_{ri}}\right) = \Delta\left(\frac{1}{n_i^2}\right) = \sum_{j=1..6} \rho_{ij} \epsilon_j \tag{Eq. V-9}$$

On introduit ici le tenseur de photoélasticité ρ_{ij} , qui comme les tenseurs d'élasticité et de complaisance possède 36 composantes, dépendantes des symétries du cristal considéré. Les différents types de tenseur photo-élastiques, tirés de l'ouvrage (Royer & Dieulesaint 2000), sont illustrés Figure V-8.

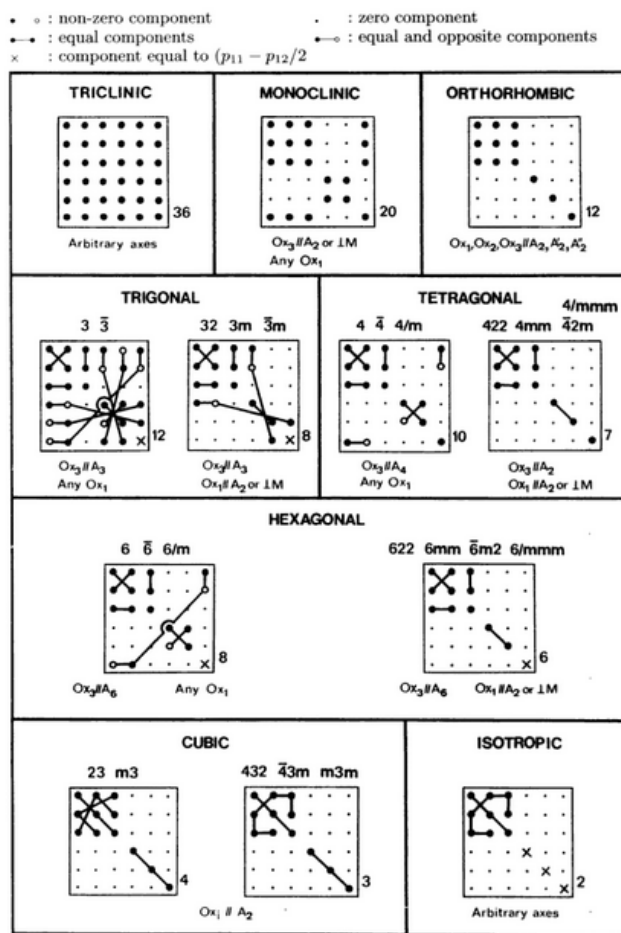


Figure V-8 : Tables des tenseurs photo-élastiques ρ_{ij} en fonction de la classe cristalline considérée

⁹⁷ A ne pas confondre avec la déformation locale, également noté ϵ . On n'utilisera les deux notations que dans l'équation V-7.

En développant l'équation V-8, on obtient la variation locale d'indice de réfraction dans les 3 axes principaux notés 1,2 et 3 (plus souvent notés x,y et z).

En effet, on a :

$$\Delta\left(\frac{1}{n_i^2}\right) = -\frac{2}{n_i^3}\Delta n_i = \sum_{j=1..6} \rho_{ij}\varepsilon_j$$

$$\begin{pmatrix} \Delta n_1 \\ \Delta n_2 \\ \Delta n_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\frac{n_1^3}{2}(\rho_{11}\varepsilon_1 + \rho_{12}\varepsilon_2 + \rho_{13}\varepsilon_3 + \dots + \rho_{16}\varepsilon_6) \\ -\frac{n_2^3}{2}(\rho_{21}\varepsilon_1 + \rho_{22}\varepsilon_2 + \rho_{23}\varepsilon_3 + \dots + \rho_{26}\varepsilon_6) \\ -\frac{n_3^3}{2}(\rho_{31}\varepsilon_1 + \rho_{32}\varepsilon_2 + \rho_{33}\varepsilon_3 + \dots + \rho_{36}\varepsilon_6) \end{pmatrix} \quad \text{Eq. V-10}$$

V.1.2.c Calcul global et simulation par éléments finis

Les formules théoriques ci-dessus seules, ne permettent malheureusement pas d'obtenir une solution analytique globale de la variation d'indice de réfraction dans tout un cristal contraint. En effet, ces formules ne sont définies qu'en un seul point, et il faut ensuite utiliser un calcul par la méthode des éléments finis afin d'obtenir la répartition des contraintes à l'intérieur du cristal, et donc les profils des indices de réfraction.

Nous avons choisi d'étudier la mise en contrainte d'un cristal de LBO «X-cut », c'est-à-dire taillé pour la génération de second harmonique non-critique à $\theta=90^\circ$, $\phi=0^\circ$, que l'on va contraindre théoriquement selon l'axe Y. Dans cette configuration, l'onde fondamentale est polarisée selon l'axe Z et l'onde doublée selon Y.

Nous avons effectué des calculs sous le logiciel COMSOL afin d'estimer la variation d'indice attendue en fonction de la contrainte. Pour effectuer ce calcul, nous avons rassemblé les données suivantes :

- Les équations de Sellmeier permettant d'obtenir les indices de réfraction du LBO aux longueurs d'onde concernées (Kato 1994), calculés avec SNLO
- Les tenseurs d'élasticité et élasto-optiques du LBO (Zubrinov et al. 2004; Guo et al. 1995; Y. Wang et al. 1995), indiqués ci-dessous :

$$C = \begin{pmatrix} 15,4 & 16,1 & 7,1 & 0 & 0 & 0 \\ 16,1 & 28 & 8,1 & 0 & 0 & 0 \\ 7,1 & 8,1 & 7,9 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 11 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 8,7 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1,8 \end{pmatrix} * 10^{10} Pa$$

$$\rho = \begin{pmatrix} 0,2 & 0,08 & 0,7 & 0 & 0 & 0 \\ 0,1 & 0,2 & 0,5 & 0 & 0 & 0 \\ 0,05 & 0,26 & 0,3 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & ? & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & ? & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & ? \end{pmatrix}$$

Nous avons ensuite appliqué une contrainte unidirectionnelle appliquée par un élément métallique indéformable sur un cristal, reposant sur un élément en acier également indéformable. La géométrie utilisée, les paramètres de simulation ainsi que les résultats sont illustrés en Figure V-9. Nous avons effectué la simulation en deux dimensions : nous nous plaçons dans le cas de l'approximation des contraintes planes, qui permet de négliger une dimension d'un problème si sa dimension est très supérieure aux deux autres. Dans notre cas, nos cristaux ont une section de $3 \times 3 \text{ mm}^2$ et une longueur de 10 à 15 mm, on peut donc négliger les déformations selon l'axe X (dans la longueur du cristal).

On obtient une biréfringence induite de $-4,05 \times 10^{-2}$, suffisante pour obtenir un accord de phase non-critique de 532 nm à 266 nm, pour une **pression maximale de 9 GPa**. La répartition de la biréfringence induite semble être relativement homogène au centre du cristal, avec cependant une surintensité aux coins du cristal. On verra dans la suite des expériences que la surintensité de la contrainte aux coins est liée aux conditions limites que nous avons imposées au cristal dans notre simulation.

On a également tracé dans la Figure V-10 la biréfringence induite en fonction de la contrainte appliquée. On obtient une relation linéaire entre les deux paramètres.

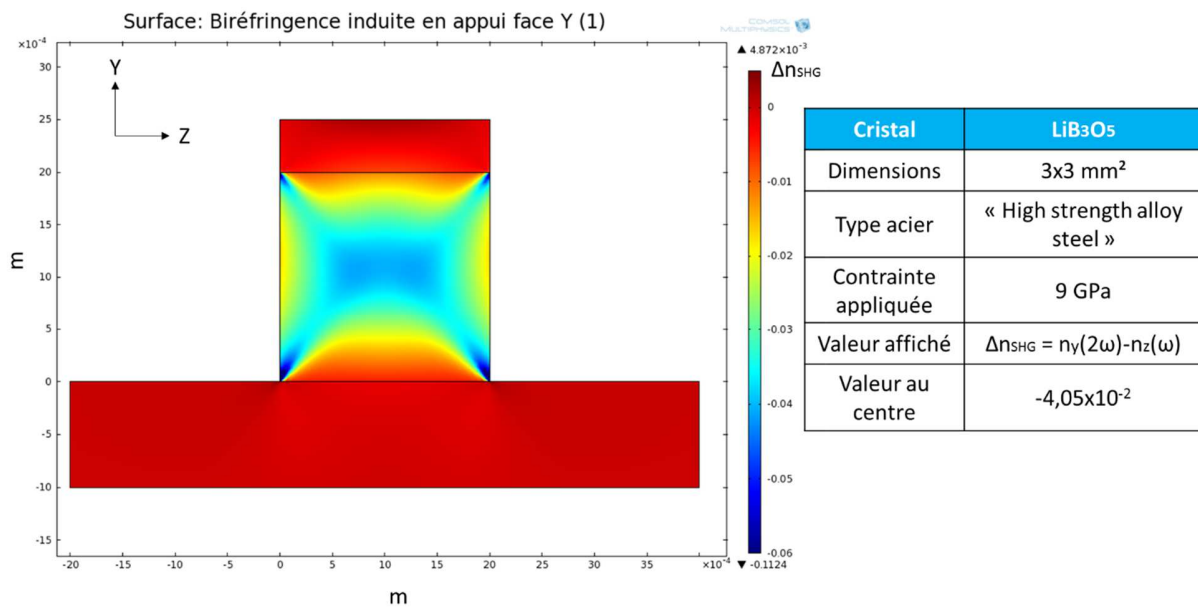


Figure V-9 : Simulation COMSOL de la biréfringence induite dans un cristal de LBO sous une pression unidirectionnelle de 9 GPa

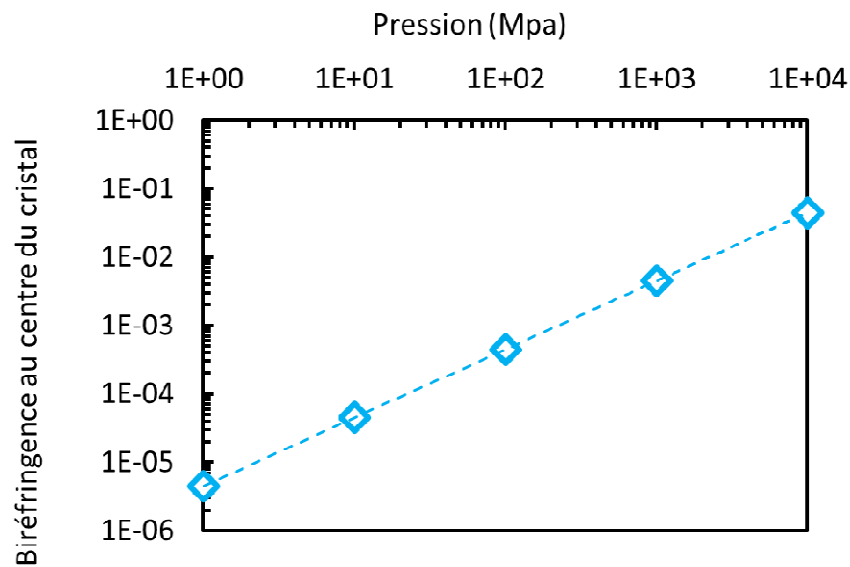


Figure V-10 : Simulation théorique de la biréfringence induite au centre du cristal en fonction de la pression appliquée en MPa

A ce stade, il est important de prendre du recul sur nos simulations théoriques. En effet, une pression d'environ 10 GPa sur la face d'un cristal de $3 \times 3 \times 10 \text{ mm}^3$ correspond à une force appliquée d'environ **30 tonnes !!!** A titre de comparaison, cela correspond au poids d'un gros camion... (Figure V-11)



Figure V-11 : Ce qu'il faudrait poser sur notre petit cristal de LBO

Il est donc évident que l'on ne va pas pouvoir appliquer une telle contrainte sur le cristal. Néanmoins, on a vu que l'on pouvait atteindre des applications intéressantes sur le LBO même à bas niveau de contrainte, comme la SHG non-critique. Il faut donc maintenant se poser plusieurs questions d'ordre pratique :

- Quelle est la contrainte maximale que peut supporter un cristal ?
- Comment appliquer expérimentalement de telles contraintes mécaniques ?

Répondre à ces deux questions est l'objet de la partie suivante

V.2 Mise en contrainte de cristaux non-linéaires

Dans cette partie, nous allons détailler les différents points que nous avons étudiés afin de pouvoir appliquer expérimentalement des contraintes sur un cristal. Nous commencerons par étudier la théorie du seuil de fracture, afin d'obtenir un ordre de grandeur des contraintes maximales applicables sur un cristal. Une fois cet ordre de grandeur obtenu, nous détaillerons la conception de la monture de compression mécanique pour cristal non-linéaire. Puis, nous mettrons en place un banc de photoélasticimétrie afin de caractériser les seuils de dommage et la répartition des contraintes dans le cristal : nous montrerons notamment l'impact d'un matériau d'interface sur la qualité du contact mécanique.

V.2.1 Théorie du seuil de dommage d'un cristal

La détermination du seuil de dommage d'un cristal n'est pas chose facile. En effet, il existe plusieurs définitions du seuil de dommage qui peuvent conduire à des valeurs différentes de plusieurs ordres de grandeur entre elles. Sous sa forme la plus théorique, le seuil de fracture correspond à l'énergie nécessaire pour rompre les liaisons entre les atomes, et correspond environ au module d'Young du matériau divisé par 10 (Kelly 1987; Gilman 1961; Gilvarry 1961). Cependant, de nombreux travaux de recherche ont constaté que le seuil de fracture « réel » avait une valeur 100 à 1000 fois plus basse (Lawn 1993).

Cette différence est comprise depuis les travaux de A.Griffith (Griffith 1921) : celui-ci a constaté que le vrai phénomène provoquant la rupture du matériau était l'agrandissement de micro-craquelures présentes à l'intérieur et à la surface de celui-ci. Il définit alors la résistance à la fracture d'un matériau comme la contrainte σ_c nécessaire pour qu'une fracture de longueur $2a$ se propage au sein du matériau et conduise à la rupture de celui-ci :

$$\sigma_c = K_c(\pi a)^{-1/2} \quad \text{Eq. V-11}$$

Dans cette équation, K_c est la **tenacité** du matériau : c'est un facteur dépendant uniquement de la nature du matériau considéré. Le seuil de dommage dépend donc du matériau considéré, mais donc aussi fortement de la concentration de fractures préexistantes. Ces fractures sont naturellement présentes dans la plupart des cristaux, et sont les résidus des différentes étapes de leur fabrication telles que la croissance, la découpe, le polissage etc (Marion 1987)...

Le cristal de YAG par exemple, a un module d'Young d'environ 300 GPa (Yagi et al. 2007), tandis que la contrainte de fracture constatée pour des échantillons de YAG lasers ne dépasse pas les 300 Mpa, ce qui est bien loin de nos 10 GPa que l'on souhaitait appliquer sur notre LBO. Le LBO ayant un module d'Young d'environ 130 GPa⁹⁸, on s'attend à pouvoir appliquer **des pressions de l'ordre de la centaine de mégapascals sur notre cristal**.

Il nous faut donc réaliser un dispositif de compression pouvant appliquer une pression d'environ 100 MPa sur un cristal aux dimensions réduites.

⁹⁸ Plus précisément, d'environ 120 GPa selon les axes (100) et (001) et d'environ 140 GPa pour l'axe (010) (Shakhverdova et al. 2008)

V.2.2 Design de la monture de compression

V.2.2.a Choix de la technologie

Nous avons donc réfléchi au moyen d'appliquer 100 MPa sur un cristal ayant une section de $3 \times 10 \text{ mm}^2$, ce qui revient à y déposer un poids de 300 kg. Il existe des machines vendues pour réaliser des essais de compressions de différents matériaux (balles de tennis, plastiques, composants électroniques etc), mais elles sont couteuses et très encombrantes (illustration Figure V-12), ce qui rendrait très difficile leur intégration dans une expérience d'optique.



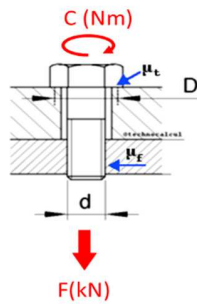
Figure V-12: Exemple de machine d'essai en compression de 200 kg. Source : Instron

Nous avons donc réfléchi à une autre solution technologique, qui permettrait d'obtenir des forces de compression très importantes tout en étant intégrables dans un dispositif de taille réduite. Dans le cadre de nos travaux sur les lasers solides pompés par diode, les cristaux lasers sont souvent intégrés dans des montures mécaniques composées de deux pièces de cuivre serrées par une ou plusieurs vis : la quasi-totalité des doctorants novices casse au moins un cristal dans sa carrière en serrant ces pièces un peu trop fort...

Nous nous sommes donc penché sur la quantité de pression applicable sur un cristal par une vis « standard », telles que les vis M6 utilisés avec la plupart des tables optiques.

V.2.2.b Compression appliquée par vis

Le calcul de la force de compression d'une vis a été démontrée et vérifiée expérimentalement dès 1955 (Kellermann & Klein 1955). On obtient la force exercée par une vis en fonction de sa taille, du matériau qui la compose ainsi que du couple qui lui est appliquée, grâce à l'équation suivante (norme DIN 946) :



$$F = \frac{C}{0,159 P + 0,5 * \mu_t * D + 0,578 * \mu_f * d} \quad \text{Eq. V-12}$$

Dans cette formule, on obtient la force de compression en kN (10 N= 1kg). C'est le couple appliqué à la vis en Nm, P est le pas de la vis en mm, μ_t est le coefficient de frottement au niveau de la tête de vis, D est le diamètre moyen au niveau de la tête de vis mm, μ_f est le coefficient de frottement de frottement au niveau du filetage, et d est le diamètre sur flanc de la vis en mm.

Parmi ces paramètres, certains sont faciles à déterminer : une vis M6 a par exemple un pas de 1 mm, un diamètre sur flanc de 6 mm et un diamètre sur tête de 10 mm. Les coefficients de frottement sont plus durs à connaître avec précision, car ils dépendent des matériaux en contact, ainsi que de la lubrification des deux surfaces en contact. Pour des vis en acier en contact avec une monture en acier (ce qui sera notre cas), ils varient entre 0,07 et 0,2⁹⁹. En prenant arbitrairement des coefficients de frottement de 0,1, on obtient **un couple de 2,5 Nm nécessaire pour appliquer une pression de 3 kN, soit une pression de 100 Mpa appliquée sur une section de 3x10 mm²**. Cette configuration est donc très intéressante, car une vis M6 peut supporter un couple de 3 à 12 Nm selon sa qualité, et il existe des tournevis « dynamométriques » permettant d'appliquer des couples contrôlés à 0,1 Nm près, et ce jusqu'à 10 Nm.

V.2.2.c Design de la monture mécanique

En collaboration avec l'atelier de mécanique de l'Institut d'Optique, nous avons donc conçu une monture mécanique utilisant une vis M6 pour appliquer une force de compression d'environ 3 kN sur une petite surface. En plus de pouvoir appliquer une pression suffisante, la monture devait satisfaire les contraintes suivantes :

- Avoir des dimensions compatibles avec une table optique.
- Être fabriquée dans un matériau indéformable, afin de transférer toute la charge sur l'élément à contraindre.
- Permettre l'application d'une force de compression **pure**, et d'éviter les forces de torsion parasites.

La monture a été réalisée en acier dur de type 35NCD16, et sa photo et ses plans sont illustrés Figure V-13. Le principe est très simple : une vis M6 au sommet de la monture transmet un mouvement de compression et de torsion à un élément métallique bloqué en rotation. Cet élément vient en contact directement avec le cristal non-linéaire (en bleu sur le schéma de principe). Sa surface est polie optiquement et a des dimensions de 4x20 mm².

⁹⁹ Toutes les caractéristiques des vis standards ainsi que les coefficients de frottement peuvent être trouvés à l'adresse suivante : <http://www.technocalcul.com>

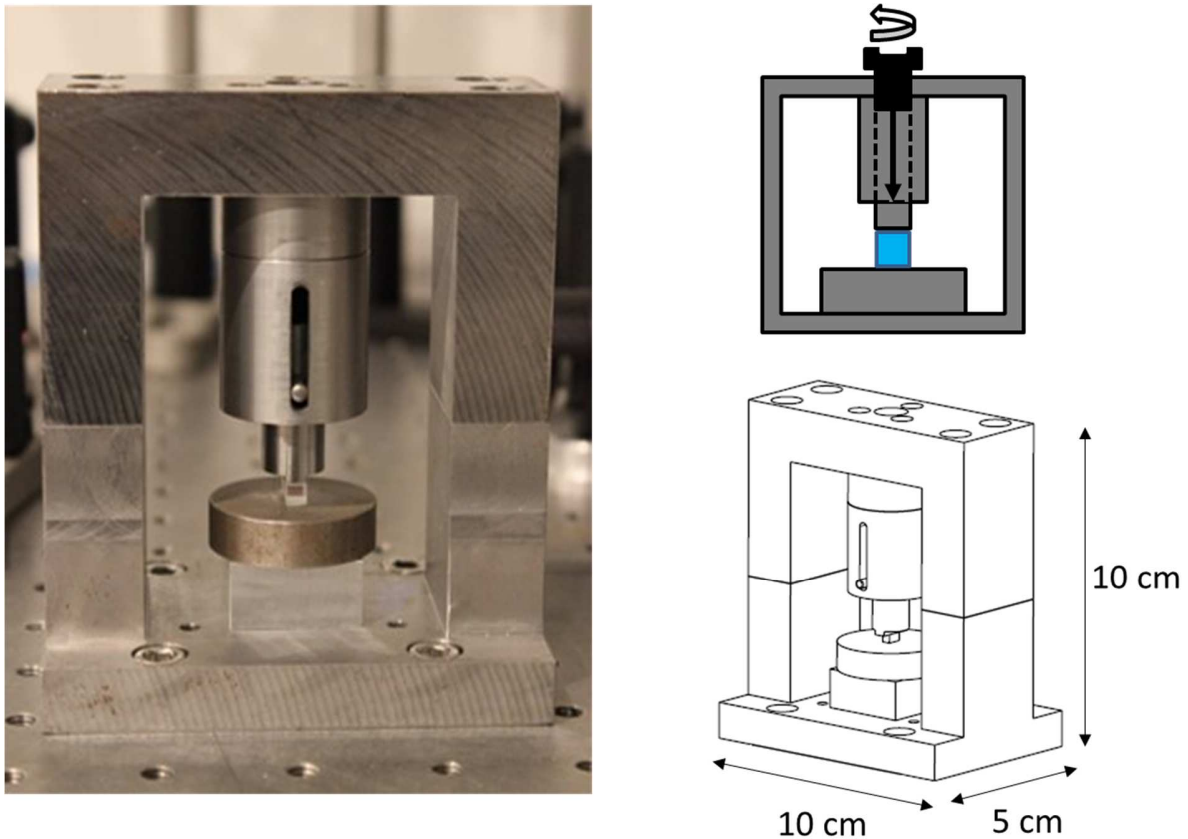


Figure V-13 : Photo de la monture mécanique (gauche), ainsi que les schémas de principe et dessins techniques (droite)

V.2.2.d Etalonnage de la monture

Une fois la monture réalisée, nous avons procédé à son étalonnage afin de vérifier la relation entre le couple appliqué à la vis et la force de compression réellement appliquée sur le cristal. Pour cela, nous avons installé à la place du cristal un capteur de compression Mark10, permettant de mesurer des forces jusqu'à 10 kN (Figure V-14). Un tournevis dynamométrique permet d'appliquer des couples précis à 0,1 Nm.



Figure V-14 : Capteur de compression Mark10 et tournevis dynamométrique FACOM utilisés

Ces instruments nous ont permis d'obtenir la courbe couple / force appliquée de notre monture, illustrée Figure V-15. On y a également tracé la courbe théorique calculée à partir de l'équation V-11 ; pour obtenir des valeurs conformes, on a du ajuster les deux coefficients de frottements à une valeur de 0,075.

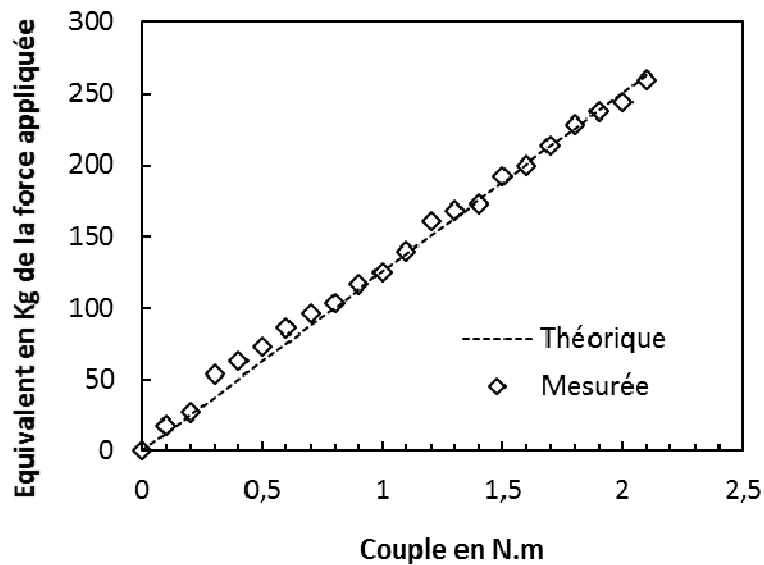


Figure v-15 : Equivaient en kg de la force appliquée en fonction du couple appliqué à la vis en Nm

Une fois la force appliquée par la monture de compression connue, nous souhaitions savoir si celle-ci appliquait bien une pression uniforme sur toute la surface du cristal. En effet, si l'on utilise notre monture en l'état sans caractérisation optique, le seul changement qui va apparaître lors de la contrainte est la fracture du cristal, comme le montre la figure V-16 : on y voit une photo du cristal avant et après fracture.

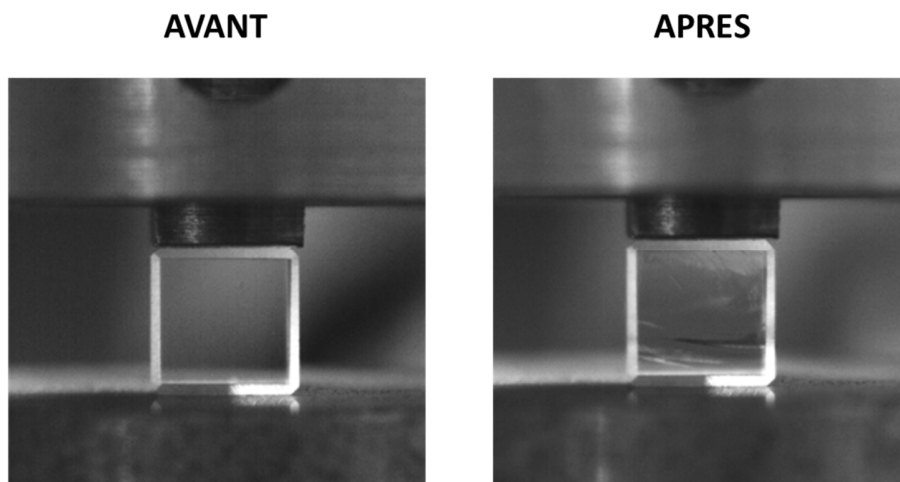


Figure V-16 : Photo d'un cristal avant et après l'application d'une forte contrainte. On note l'apparition de multiples fractures

En disposant de ce type d'image uniquement, il est extrêmement difficile d'obtenir des informations sur la qualité de l'appui mécanique. Nous avons donc voulu mettre en place un outil de caractérisation des contraintes mécaniques à l'intérieur du cristal. Nous souhaitons notamment pouvoir étudier le rôle de l'interface appui/cristal.

V.2.3 Mesures de photo-élasticimétrie

Pour observer la répartition des contraintes à l'intérieur d'un matériau, on peut utiliser le principe de la photoélasticimétrie, c'est-à-dire l'observation des déformations par voie optique.

V.2.3.a Principe général

Le principe général de la photoélasticimétrie est illustré Figure V-17. Une source de lumière cohérente¹⁰⁰ d'amplitude a est polarisée linéairement dans un polariseur P, orienté avec un angle α par rapport aux axes principaux de la biréfringence induite. Lorsque la lumière traverse un matériau biréfringent d'épaisseur e , les deux composantes x et y (correspondants aux axes de biréfringence induits) voient deux indices différents n_1 et n_2 ; ces composantes vont alors être déphasées en sortie du matériau d'un déphase $\varphi = 2\pi \cdot \Delta n \cdot e / \lambda$: la polarisation est alors elliptique. On place ensuite un deuxième polariseur « A », qui va transformer la polarisation elliptique en polarisation linéaire, et provoquer des interférences entre les composantes x et y . On peut alors montrer que l'intensité I du champ lumineux en sortie du montage est proportionnel à la différence d'indice $\Delta n = n_1 - n_2$, selon la formule :

$$I = a^2 \left(1 - \sin^2 2\alpha \sin^2 \frac{\varphi}{2} \right) \quad \text{Eq. V-13}$$

Si l'on considère que l'amplitude du champ P (a) est égale à 1, et que les deux polariseurs P et A sont orientés à 45° des axes de biréfringence principaux, l'intensité lumineuse en sortie du montage se simplifie à :

$$I = 1 - \sin^2 \frac{\varphi}{2} \quad \text{Eq. V-14}$$

$$\text{avec } \varphi = \frac{2\pi \Delta n e}{\lambda}$$

Tout ce raisonnement a été effectué en un point unique du matériau ; si l'on considère maintenant un matériau où il existe un gradient de contrainte, et donc un gradient d'indice, on observera alors une variation de l'intensité lumineuse en fonction de la position dans l'échantillon, cette variation étant directement proportionnelle à la biréfringence induite.

¹⁰⁰ On peut utiliser une source de lumière blanche en combinaison avec un trou de diffraction, ou bien un laser

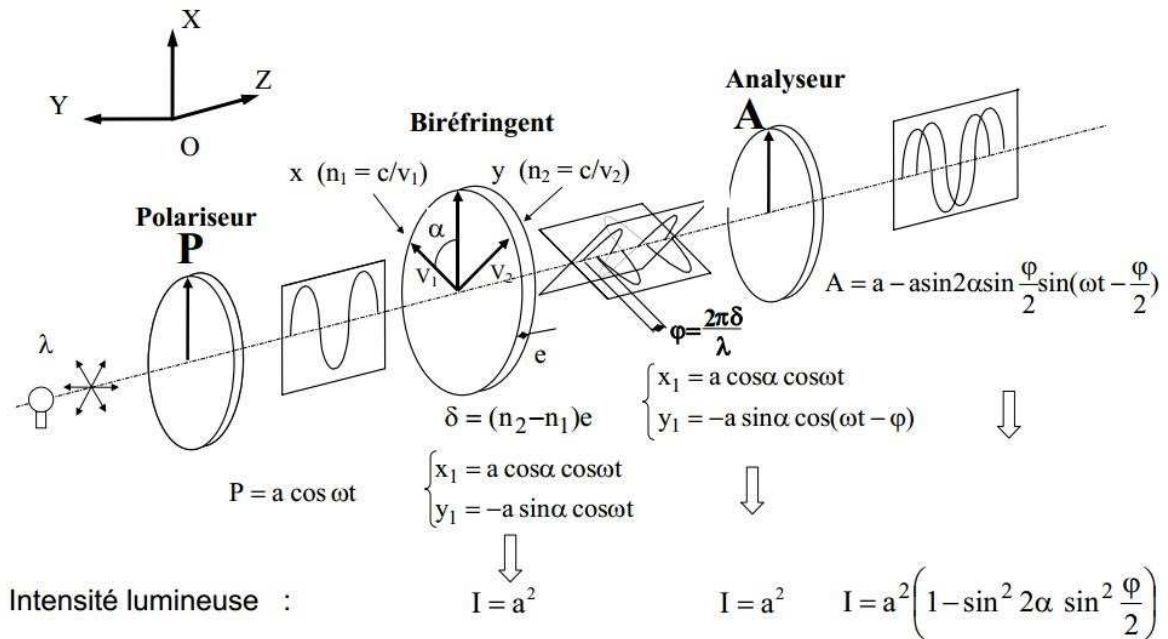


Figure V-17 : Principe d'un banc de photoélasticimétrie
 (source : http://www.emse.fr/atelier_photomecanique/)

V.2.3.b Mise en place du banc de mesure

Le banc de mesure que nous avons mis en place est schématisé en Figure V-18. La source de lumière est un laser He-Ne à 633 nm ; sa sortie est collimatée afin d'obtenir un faisceau d'environ 5 mm de diamètre. Le laser He-Ne est déjà polarisé linéairement, une lame demi-onde est donc utilisée uniquement pour ajuster l'orientation du champ électrique par rapport aux axes du cristal. Le faisceau laser traverse ensuite le cristal placé dans la monture de contrainte mécanique décrite précédemment, puis un analyseur (polariseur en film mince) parallèle au premier polariseur permet de récupérer le signal lumineux portant l'information cherchée. Ce signal est visualisé à l'aide d'une caméra CMOS. Plusieurs densités sont placées devant le laser He-Ne afin d'en atténuer l'intensité.

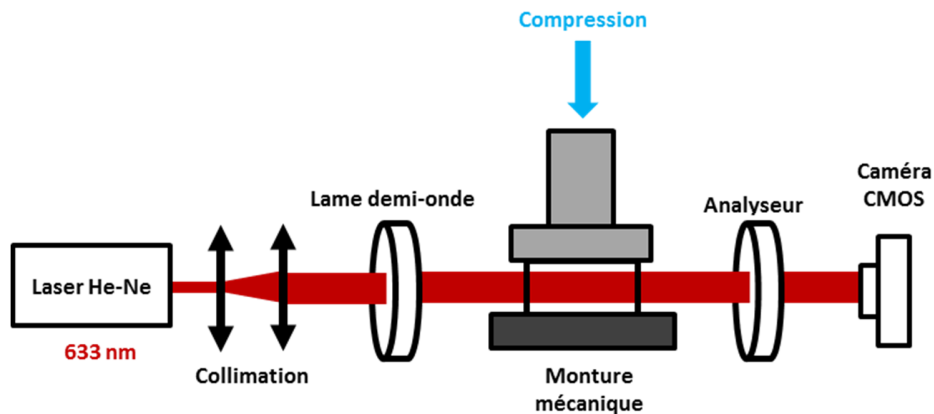


Figure V-18 : Schéma expérimental du banc de photoélasticimétrie

Ce banc de mesure va nous permettre d'étudier l'influence de plusieurs paramètres sur la mise en contrainte mécanique des cristaux : ces mesures sont présentées dans la partie suivante.

V.2.3.c Caractérisation de la mise en contrainte

Les premières expériences que nous avons réalisées ont consisté à mettre en contrainte des cristaux de LBO « standard », c'est-à-dire des cristaux n'ayant pas subi de traitement ou de procédés particuliers pour notre expérience. Ce sont donc des cristaux de LBO ayant deux faces polies optiquement, et dont les 4 autres faces sont doucies, c'est-à-dire polies grossièrement. Les cristaux sont taillés selon l'axe X à $\theta=90^\circ$ et $\phi=0^\circ$, ce qui correspond à une utilisation en doublement de fréquence non-critique à température ambiante.

La face d'appui de la monture est nettoyée à l'alcool ainsi que la face du cristal contrainte. Le cristal est soigneusement aligné au centre de la face d'appui de la monture mécanique. On applique ensuite une contrainte mécanique sur la face Z du cristal¹⁰¹ : on observe alors avec une caméra l'apparition de franges d'interférences dues au gradient d'indice s'établissant dans le cristal, comme illustré Figure V-19. On y montre les différentes figures d'interférences s'établissant dans le cristal lorsque l'on applique des pressions allant jusqu'à 60 Mpa¹⁰², au-delà desquelles on constate l'apparition de fractures. Ce seuil de dommage est une moyenne, constatée lors de la fracture d'une dizaine d'échantillons.

On remarque sur la Figure V-19 qu'on observe bien des franges apparaître, mais que de nombreuses franges parasites (qui ressemblent à des bulles) sont localisées sur les faces du cristal en contact avec la monture mécanique.

¹⁰¹ On avait choisi cette face arbitrairement ; on verra plus loin le cas de l'appui sur l'autre face

¹⁰² Ces images proviennent de vidéos enregistrées à la caméra CMOS. Nous ne pouvons malheureusement pas préciser à quelle valeur exacte de pression correspond chaque image, mais seulement les valeurs minimales et maximales

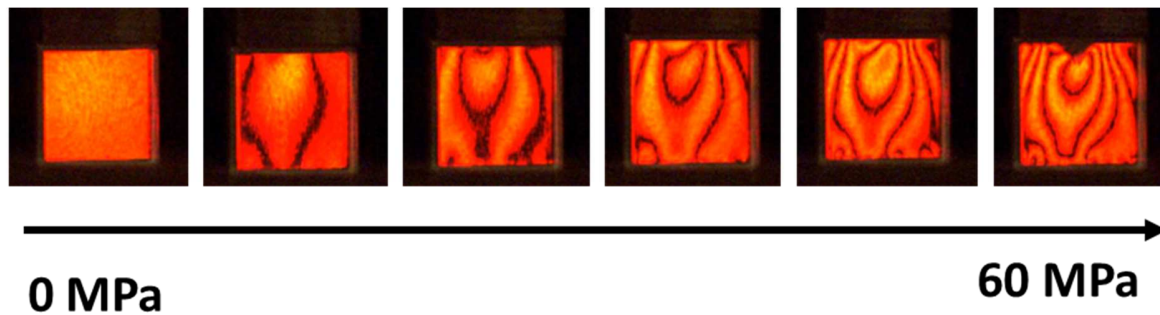


Figure V-19 : Franges d'interférences apparaissant sous une pression de mécanique de 0 à 60 MPa dans un cristal de LBO X-cut contraint selon son axe Z

Une revue de la littérature disponible sur les essais en compression a permis d'identifier le problème. En effet, de nombreux travaux ont été réalisés sur la mise en compression d'éprouvettes de roches cristallines, polycristallines ou amorphes (Bied & Sulem 2003; Pellegrino 1995; Vardoulakis & Labuz 1998). Tous ces travaux mentionnent deux points indispensables lors d'un essai de compression à l'obtention d'une contrainte uniforme :

- **La suppression des frottements** aux interfaces entre l'échantillon et la monture par une lubrification : sans cela, le matériau ne peut s'étendre aux interfaces et on assiste à l'apparition de contraintes locales (exactement comme celles illustrées Figure V-19).
- **L'uniformisation de la contrainte** par l'introduction d'une couche d'interface souple comme du plastique, du latex, du téflon etc. Cette couche permet de limiter des éventuels défauts de parallélisme ou de polissage mal réalisés.

Nous avons donc cherché un matériau d'interface répondant à ces critères. Dans le cadre des expériences de lasers solides, nous utilisons régulièrement l'indium comme matériau de contact thermique. Or, l'indium est non seulement très mou, mais a également la particularité d'adhérer très facilement aux surfaces métalliques : nous estimions donc qu'il pourrait jouer à la fois le rôle de « lubrifiant » s'accrochant aux surfaces métalliques, mais également de matériau d'interface mou.

Nous avons repris la même expérience que celle présentée Figure V-19, mais en changeant cette fois l'interface de deux manières. Nous avons testé l'influence d'une couche d'indium de 200 μm d'épaisseur placée sur la face supérieure du cristal, c'est-à-dire sur celle directement en contact avec l'appui mécanique. Les résultats sont présentés Figure V-20.

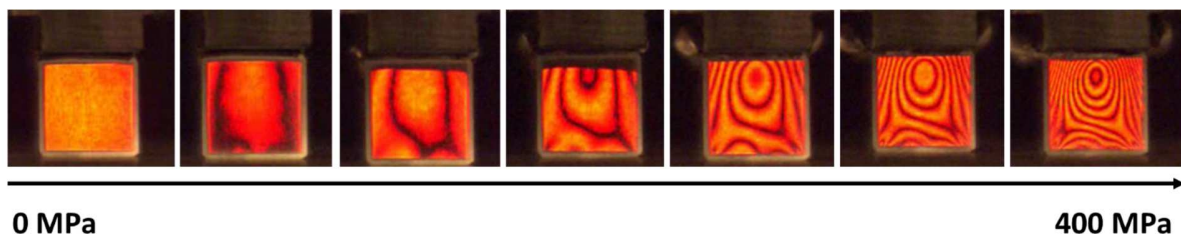


Figure V-20 : Franges d'interférences apparaissant sous une pression de mécanique de 0 à 400 MPa dans un cristal de LBO X-cut contraint selon son axe Z, avec une couche d'interface en indium sur la face supérieure du cristal

On observe toujours des franges d'interférences, mais elles sont bien plus uniformes, leur symétrie n'étant brisée que par des franges parasites provenant de la face inférieure du cristal. Dans ces conditions, on note que le seuil de dommage des échantillons augmente très fortement : on est en effet capable d'appliquer jusqu'à 400 Mpa sur le cristal avant fracture, soit plus de 6 fois la pression sans indium.

Enfin, si l'on insert une feuille d'indium entre les deux interfaces cristal/monture, on observe que les franges d'interférences sont extrêmement régulières, comme illustré en Figure V-20. Dans cette configuration, il semblerait donc que l'on ait supprimé les effets de frottements aux interfaces. Le seuil de dommage semble avoir augmenté, et est supérieur à 400 Mpa : nous avons malheureusement atteint le maximum de pression applicable avec nos tournevis dynamométriques (10 Nm)¹⁰³, et on ne sait donc pas de combien le seuil de dommage a augmenté.

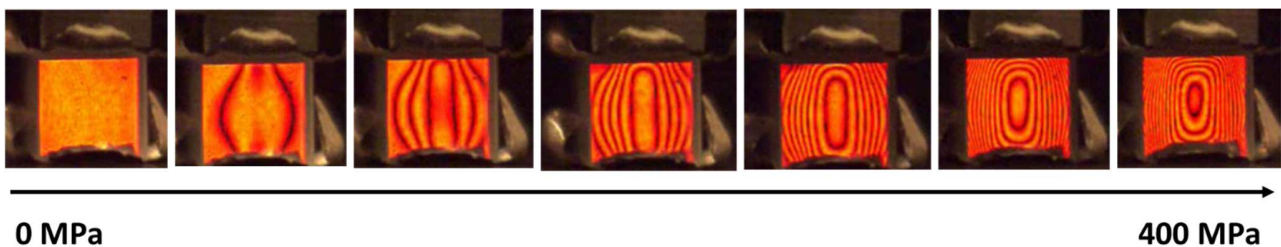


Figure V-21: Franges d'interférences apparaissant sous une pression de mécanique de 400 MPa dans un cristal de LBO X-cut contraint selon son axe Z, avec deux couches d'interfaces en indium sur les faces supérieure et inférieure du cristal

Ces mesures montrent que grâce à l'insertion d'un matériau d'interface, nous sommes capables d'obtenir une contrainte uniforme sur la face du cristal, conduisant à l'augmentation du seuil de fracture. Grâce à deux feuilles d'indium, nous avons repoussé le seuil de dommage d'un LBO contraint selon l'axe Z jusqu'à une valeur maximale de 400 Mpa. Il n'est pas encore établi si l'indium est le meilleur matériau d'interface : cela fera l'objet d'une étude rigoureuse dans le futur.

Nous avons également mesuré les seuils de dommage lors d'un appui selon l'axe Y : dans ce cas, le seuil de dommage a diminué à 100 Mpa environ ; ces résultats sont résumés Figure V-22. Pour expliquer cette différence, on peut émettre l'hypothèse qu'elle est liée au coefficient élastique qui est environ 4 fois plus important dans le cas d'un appui selon Y que selon Z (voir V.I.2.c, $C_{22}=280$ GPa, $C_{33}=78$ GPa). En notant en plus que les coefficients élastiques de cisaillement sont égaux, on peut supposer que pour une même contrainte, le matériau va se déformer 4 fois plus dans le cas d'un appui selon Y, et donc diminuer le seuil de dommage d'autant.

Le banc de mesure de photoélasticimétrie a donc rempli sa première mission : nous permettre d'améliorer la qualité de notre appui mécanique, en permettant l'application de contraintes importantes sans briser le cristal. Nous avons voulu ensuite vérifier si l'on pouvait estimer la biréfringence induite par la contrainte mécanique à partir des franges d'interférences observées, et si ces résultats étaient conformes à la simulation.

¹⁰³ Nous aurions pu en acheter un autre, mais comme on le verra par la suite, le seuil de dommage du LBO dans le cas qui nous intéresse est plus bas que celui présenté ici

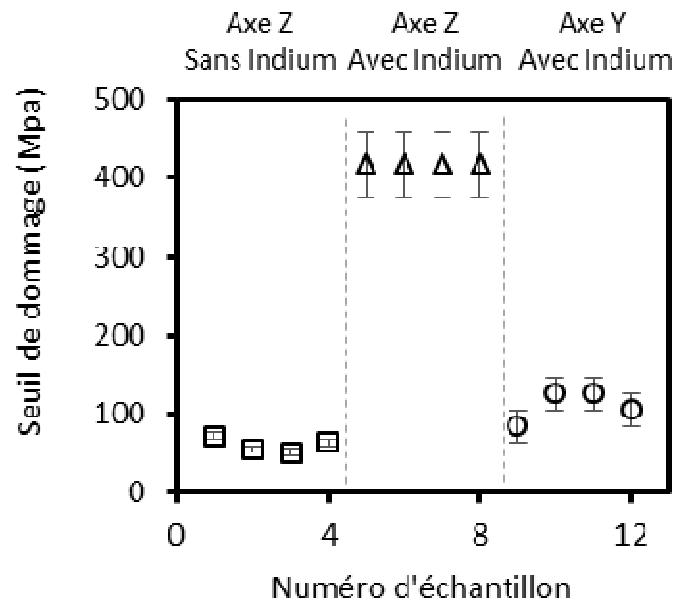


Figure V-22 : Seuil de dommage mesuré pour des cristaux de LBO taillés selon X, en fonction de l'axe contraint et de l'insertion d'indium aux interfaces

V.2.4 Estimation de la biréfringence et accord avec la théorie

Dans cette partie, le terme de « biréfringence » est utilisé pour désigner la différence des indices n_y et n_z à 633 nm, et est donc différent de la biréfringence d'accord de phase Δn_{SHG} . Il ne faudra donc pas comparer les valeurs de biréfringence obtenues par le banc de photoélasticimétrie avec celles déduites des mesures de doublement de fréquence.

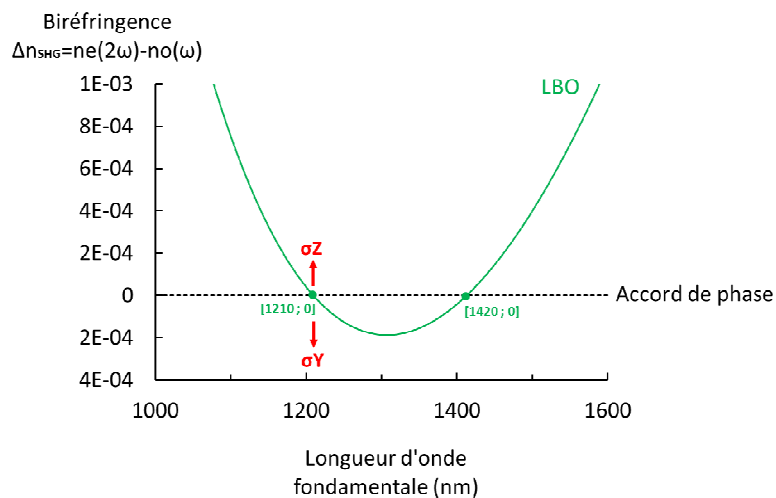


Figure V-23 : Biréfringence d'accord de phase du LBO taillé à $\theta=90^\circ$, $\phi=0^\circ$

Pour cette estimation, on a mis en compression un cristal de LBO de $3 \times 3 \times 10 \text{ mm}^3$ « X-cut » ($\theta=90^\circ$, $\phi=0^\circ$) selon son axe Y, car c'est l'axe de compression qui devrait permettre de diminuer la longueur d'onde de doublement de fréquence non-critique (voir Figure V-23).

On a appliqué une contrainte maximale de 100 Mpa, soit un couple de 2,5 Nm, et relevé la figure d'interférence, illustré Figure V-24.

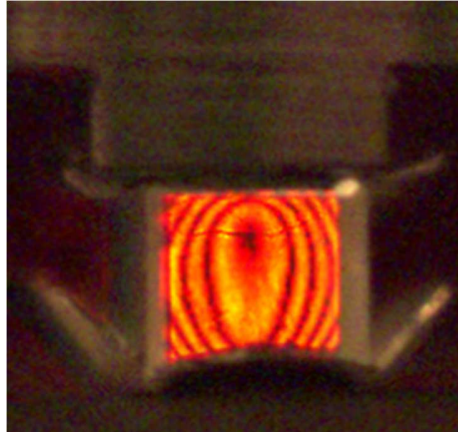


Figure V-24 : Figure d'interférence pour une pression de 100 MPa appliquée sur un cristal de LBO $\theta=90^\circ$, $\phi=0^\circ$ selon l'axe Y

On y relève l'apparition de 5 franges d'interférences. Or d'après la théorie décrite en V.2.3.a, chaque frange d'interférence défile lorsque la phase accumulée $\varphi=2\pi\Delta n e/\lambda$ vaut 2π . Chaque frange correspond donc à une biréfringence $\Delta n=\lambda/e=0,633/(10 \times 10^3)=6,33 \times 10^{-5}$. On a donc approximativement une biréfringence induite $\Delta n_i=3,2 \times 10^{-4}$. Etant donné que l'on relève un nombre entier de franges, on a une précision sur la mesure de $\Delta n=6,33 \times 10^{-5}$, et on parlera donc plus d'estimation de la biréfringence que de réelle mesure absolue.

On peut modéliser cette figure d'interférence en introduisant dans le modèle 2D COMSOL de la partie V.1.2.c la formule de l'équation V-12 ; ainsi que les indices optiques du LBO à la longueur d'onde du laser He-Ne. On retrouve alors les figures d'interférences obtenues dans les mesures précédentes. La simulation est illustrée Figure V-25.

On observe un nombre de franges comparable (5), mais une répartition des franges d'interférence différente de l'expérience. En effet, on observe d'importants effets aux coins du cristal, qui ressemblent aux effets observés dans le cas du cristal ayant uniquement de l'indium en face supérieure (Figure V-20). Nous n'avons en effet pas réussi à modéliser dans COMSOL le fait qu'avec l'indium, les coins sont lubrifiés et donc peuvent bouger. Dans cette simulation, la biréfringence calculée est de $\Delta n=4,5 \times 10^{-4}$, soit une valeur comparable à l'estimation de $\Delta n_i=3,2 \times 10^{-4}$ faite avec le nombre de franges observées.

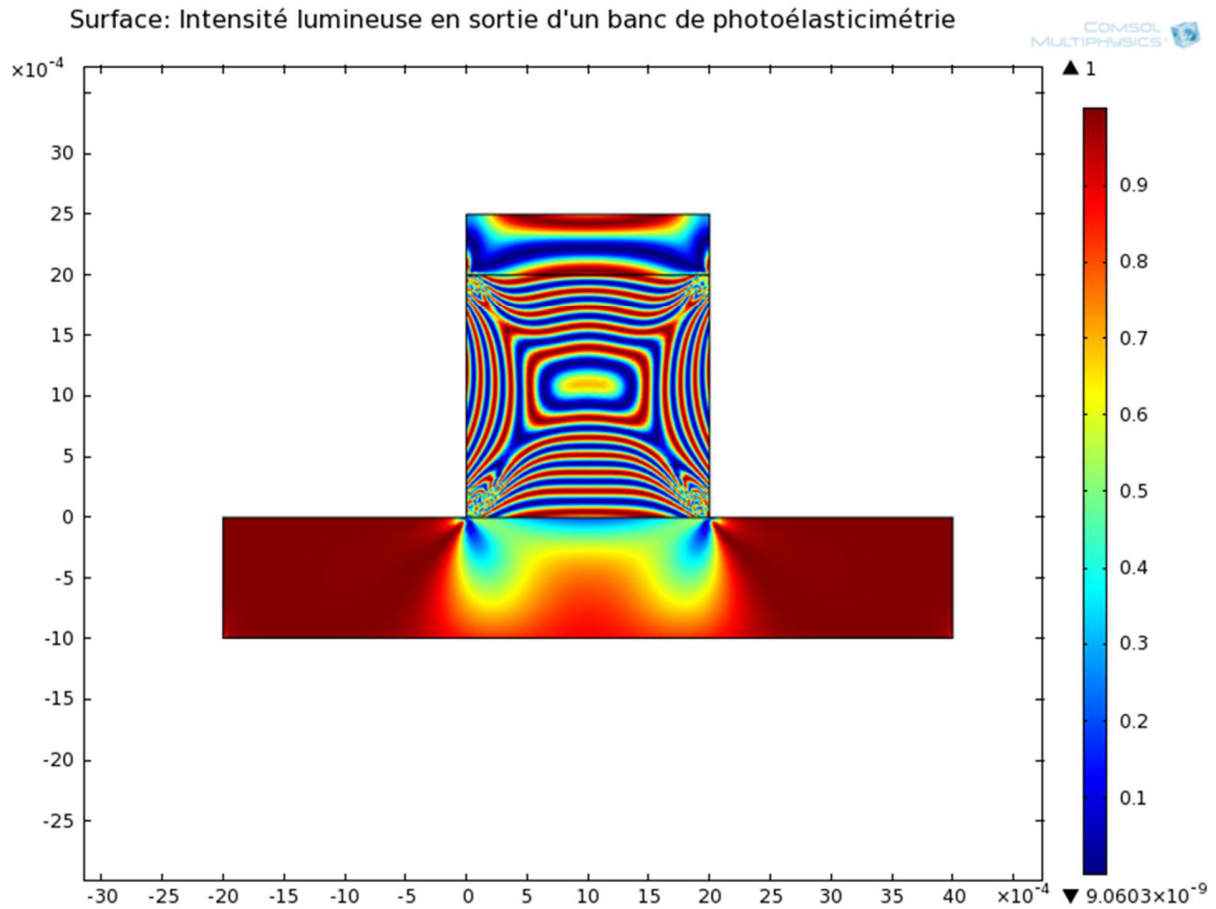


Figure V-25 : Intensité lumineuse en sortie du banc de photoélasticimétrie, calculée avec une simulation COMSOL 2D

Enfin, on peut légitimement se poser la question de savoir si la valeur de « biréfringence » obtenue avec le banc de photoélasticimétrie peut être comparée à la biréfringence d'accord de phase que nous souhaitons modifier. On peut y apporter une réponse en se rappelant de l'équation donnant la biréfringence induite par contrainte :

$$\Delta n_{induit} = \Delta n_{induit/e} - \Delta n_{induit/o} = -\frac{n_o^3(\omega_1)}{2} \left(\sum_{j=1..6} \rho_{ij} \varepsilon_j \right) + \frac{n_e^3(\omega_2)}{2} \left(\sum_{j=1..6} \rho_{ij} \varepsilon_j \right) \quad Eq. V-15$$

Dans cette équation, on suppose que deux ondes ω_1 et ω_2 sont polarisées respectivement sur l'axe o et e du cristal. Les termes de contraintes induites ne sont pas identiques, car ils correspondent à des réponses mécaniques selon deux axes différents (et ne peuvent donc être simplifiés simplement). La différence entre la mesure du banc de photoélasticimétrie et de l'application en SHG est la longueur d'onde des ondes en présences. Dans le cas de la photoélasticimétrie, les ondes ω_1 et ω_2 sont à 633 nm, tandis que pour la SHG, les ondes en présences correspondent à un accord de phase non-critique, et sont par exemple égales à 1210 nm et 605 nm pour un LBO $\theta=90^\circ$, $\phi=0^\circ$ (X-cut). On peut donc vérifier numériquement, en utilisant notre code de calcul numérique, si les biréfringences induites dans les deux cas sont comparables, car les seuls termes qui varient sont les indices optiques. Les résultats de ce calcul sont indiqués ci-dessous

Figure V-26. Les deux courbes correspondent à la biréfringence induite dans un cristal de LBO « X-cut » en fonction de la pression. On obtient des valeurs de biréfringence induites extrêmement similaires pour les deux calculs. En effet, les indices optiques ne varient que de quelques pourcents avec la dispersion. On peut donc supposer que les biréfringences mesurées avec le banc de photoélasticimétrie seront très proches de celles mesurées lors des expériences de SHG.

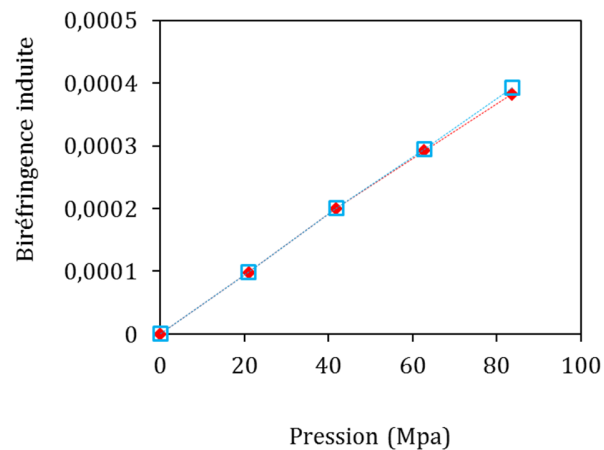


Figure V-26 : Biréfringences induites théoriques en fonction de la pression appliquée obtenues par deux méthodes : (carrés bleus creux) En supposant une interaction SHG de 1210 à 605 nm ; (losanges rouges pleins) En supposant la propagation d'un laser He-Ne à 633 nm

Nous avons donc estimé qu'à ce stade, nous étions prêts à effectuer des expériences de conversion de fréquences. En effet, on a réussi à appliquer une pression uniforme, importante, et à obtenir des résultats comparables avec des simulations en éléments finis. Même si les pressions applicables sont loin d'être suffisantes pour la génération d'ultraviolet, nous souhaitons étudier le cas de la modification de l'accord de phase non-critique du LBO, et voir à quel point on pouvait le modifier.

V.3 Accord de phase mécanique

Nous abordons maintenant la dernière étape de notre expérience, qui consiste à utiliser notre cristal contraint mécaniquement dans une expérience de doublement de fréquence. Rappelons-nous de notre objectif : nous souhaitons diminuer la longueur d'onde d'accord de phase non-critique de doublement de fréquence à température ambiante dans un cristal de LBO. Pour cela, nous devons contraindre un cristal selon son axe Y (Figure V-23 ci-dessus).

V.3.1.a Schéma expérimental

Afin de mesurer des décalages de longueur d'onde, nous avons mis en place une expérience de conversion de fréquence intégrant notre cristal non-linéaire dans sa monture mécanique. Le schéma expérimental est indiqué Figure V-27.

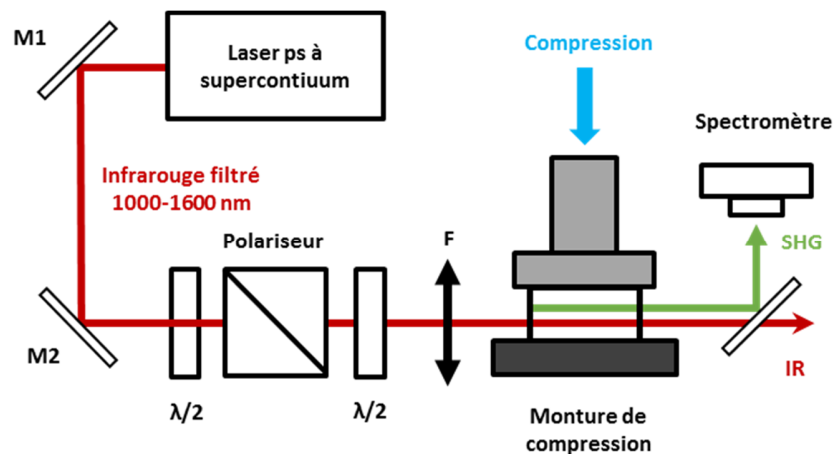


Figure V-27 : Schéma expérimental de l'expérience de doublement de fréquence avec un cristal contraint

Nous avons choisi d'utiliser comme source fondamentale un laser à supercontinuum picoseconde fibré (que l'on appellera plus simplement « laser blanc » par la suite) de la marque LEUKOS : grâce à sa très large bande d'émission (de 400 nm à 2 μm), il nous permet en théorie d'explorer la totalité des accords de phase de notre cristal. Le laser a une puissance moyenne de 4W à une cadence de 40 MHz, avec des impulsions de 5 ps. La sortie du laser est filtrée à l'aide de deux miroirs dichroïques M1 et M2 afin d'éliminer les longueurs d'onde non utilisées. Dans notre cas, les deux miroirs filtrent le visible en dessous de 1000 nm et l'infrarouge lointain au-dessus de 1600 nm. Nous utilisons donc un signal allant de 1000 nm à 1600 nm, qui a été mesuré grâce à un analyseur de spectre et est représenté en Figure V-28. La polarisation du signal infrarouge est ajustée à l'aide d'une lame demi-onde achromatique, puis la totalité du spectre est focalisée à l'intérieur du cristal sur un diamètre d'environ 100 μm . Etant donnée la largeur spectrale du laser incident, il est utile d'introduire un filtrage spectral additionnel afin d'éviter les sommes de fréquences parasites. Pour cela, nous avons tout simplement utilisé les aberrations chromatiques de la lentille de focalisation : les

waists des différentes longueurs d'onde sont décalées spatialement sur l'axe de propagation, et l'on retrouve alors bien le spectre doublé attendu¹⁰⁴.

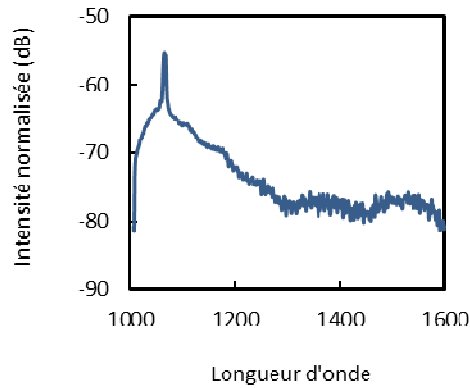


Figure V-28 : Spectre du supercontinuum filtré avant la conversion de fréquence

La puissance crête de notre laser est alors suffisante pour observer le signal doublé en fréquence à l'aide d'un spectromètre visible (190-600 nm) ayant une résolution de ± 0.1 nm. Un inconvénient de cette expérience est qu'étant donné que le cristal ne double qu'une très faible partie du spectre fondamental, on ne peut connaître la puissance incidente sur le cristal non-linéaire, et on ne peut donc pas calculer des rendements de conversion¹⁰⁵.

V.3.1.b Résultats expérimentaux

Le cristal non-linéaire est toujours un LBO taillé à $\theta=90^\circ$, $\phi=0^\circ$. Il est placé dans la monture de compression mécanique avec de l'indium à ses interfaces mécaniques avec la monture, l'axe de compression étant l'axe Y. Lorsque l'on tourne le cristal selon Z, on observe la longueur d'onde du signal doublé qui varie en fonction de l'angle d'incidence, ce qui est un comportement tout à fait attendu. Cependant nous souhaitons étudier notre cristal en configuration non-critique, c'est-à-dire à $\phi=0^\circ$. Heureusement, il est facile d'aligner le cristal à 0° : il suffit de régler le signal doublé en fréquence (visible) réfléchi par la face de sortie du cristal non-linéaire en autocollimation sur l'un des miroirs de transports. Lorsque l'on n'applique aucune compression, on observe au centre du cristal un spectre doublé en fréquence centré à 605 nm, soit une longueur d'onde fondamentale de 1210 nm pour l'accord de phase non-critique de doublement de fréquence à température ambiante, ce qui est conforme à la théorie (Figure V-29). Toutes les rotations et translations de la monture mécanique sont ensuite verrouillées, et on applique une contrainte mécanique sur la face Y de 0 à 100 Mpa. On observe alors le décalage progressif sur spectre doublé vers les basses longueurs d'onde, comme le montre la figure V-30.

¹⁰⁴ Cette astuce a été découverte après avoir tenté d'utiliser une lentille achromatique, avec laquelle on obtenait des spectres doublés en fréquence extrêmement large et donc vide de toute information utile pour notre expérience. Une autre solution aurait été de filtrer très finement la source fondamentale, mais nous ne disposons pas du matériel adéquat.

¹⁰⁵ Il faut également noter que l'on ne sait pas avec précision quelle partie du spectre est utilisée pour le doublement de fréquence, ce qui rend la notion de rendement inutile dans ce cas.

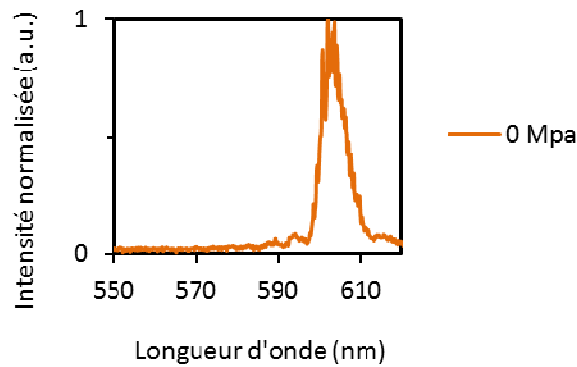


Figure V-29 : Spectre doublé en fréquence sans compression

Le spectre doublé se décale vers les basses longueurs d'onde de 605 nm à 562 nm en appliquant une contrainte de 0 à 100 Mpa. On observe également que la forme du spectre change aux fortes contraintes : on observe notamment l'apparition d'oscillations dans le spectre (voir cadre inséré dans la figure V-28). Nous interprétons ces « vagues » comme l'interaction du faisceau incident avec des zones « moins » contraintes que la majorité du cristal. Ces zones peuvent être le fruit d'un gradient d'indice dans le sens longitudinal¹⁰⁶ : si l'indice de réfraction est moins « modifié » au début et la fin du cristal, ces zones auront une longueur d'onde « moins décalée ».

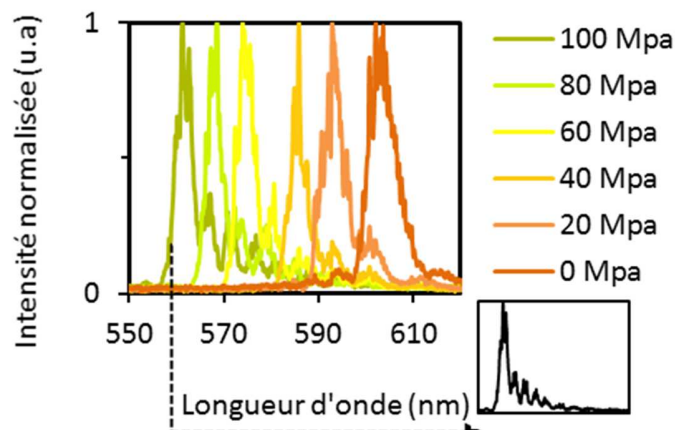


Figure V-30 : Décalage du spectre doublé en fréquence dans un LBO en fonction de la contrainte mécanique appliquée

¹⁰⁶ La présence de gradients dans le sens longitudinal est observable facilement en simulation, que nous n'avons pas ajouté au manuscrit pour ne pas l'alourdir. Ils sont dus au fait que l'appui que l'on suppose parfaitement horizontal possède toujours une légère flèche en son centre.

Nous avons également tenté de mesurer la répartition de la variation d'indice au sein du cristal à un niveau de contrainte d'environ 30 MPa à différents endroits dans le cristal. On a séparé le cristal en 25 zones de 600 μm de côté, et mesuré la longueur d'onde centrale du spectre doublé (Figure V-31 à $\pm 0,5$ nm près). Les accords de phase sont effectivement plus impactés au centre du cristal que sur les côtés. Cependant cette mesure ne rend pas compte des éventuels gradients dans le sens de propagation

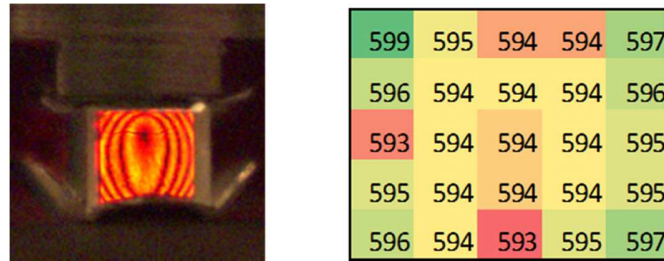


Figure V-31 : Variation de la longueur d'onde centrale du spectre doublé à différentes positions dans le cristal, et comparaison avec les figures d'interférences

Nous avons enfin souhaité savoir si les décalages de longueur d'onde obtenus étaient conformes à ceux prédits par la théorie. Pour cela, nous avons relevé la longueur d'onde centrale du spectre doublé en fréquence en fonction de la contrainte, et nous en avons déduit la biréfringence d'accord de phase Δn_{SHG} grâce aux calculs de la partie V.1.1.b (Figure V-4). Nous avons comparé cette variation de biréfringence à celle calculée par simulation en éléments finis, en utilisant notre code COMSOL 2D. Les indices optiques ont été ajustés pour correspondre à la configuration de doublement de fréquence. On obtient les résultats présentés Figure V-32. On obtient un bon accord entre les points expérimentaux (en noir) et les points théoriques (en bleu) : les deux calculs conduisent à une biréfringence induite d'environ $3,5 \times 10^{-4}$. On notera notamment que cette valeur est également proche de celle déduite des franges d'interférences observées en photoélasticimétrie, bien qu'on ne mesure pas la même « biréfringence ».

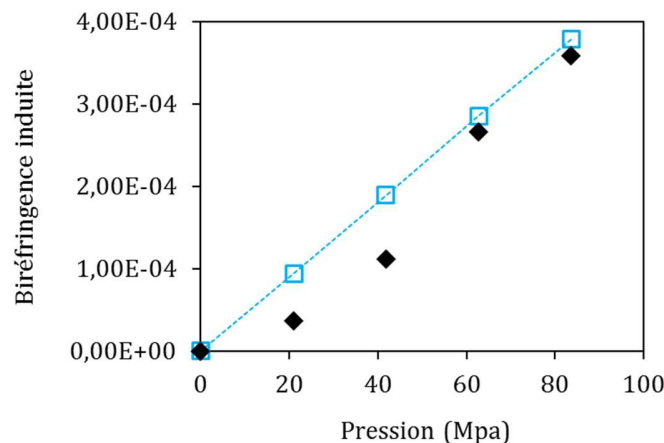


Figure V-32 : Biréfringence induite en fonction de la pression appliquée. (Diamants noirs) Mesures expérimentales, calculées à partir du décalage en longueur d'onde ; (Carrés bleus) Valeurs théoriques calculées avec le logiciel COMSOL

V.3.1.c Conclusion sur les mesures

On a donc fait varier la longueur d'onde d'accord de phase non-critique de doublement de fréquence à température ambiante de 605 nm à 562 nm, soit un décalage pour le fondamental d'environ 90 nm (de 1210 nm à 1124 nm). Nous avons également montré que cette variation était conforme à celle prédite par la théorie, et qu'il n'était pas possible d'appliquer plus de contrainte dans l'état actuel sans endommager le cristal. On est encore bien loin de notre objectif initial d'obtenir de l'ultraviolet en génération de quatrième harmonique avec du LBO : il faudrait en effet 100 fois plus de biréfringence induite, comme le montre la figure V-33.

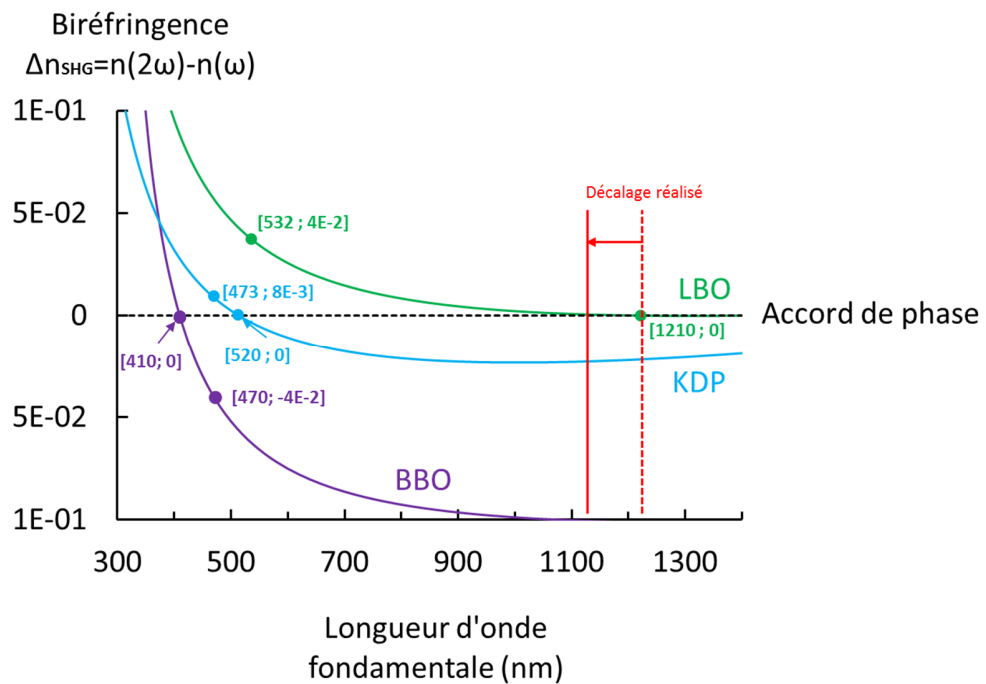


Figure V-33 : Décalage en longueur d'onde réalisé

Pour l'instant, le décalage en longueur d'onde réalisé est comparable à ce que l'on peut faire en changeant la température du cristal : en effet, le décalage que nous avons obtenu peut être obtenu en chauffant le cristal de 60 °C. Mais il faut noter que certains cristaux comme le KTP ou le YCOB sont quasiment insensibles en température...

V.4 Perspectives et conclusion

Dans ce chapitre, nous avons démontré la faisabilité du concept d'accord de phase mécanique. Nous avons d'abord étudié le concept théoriquement, en modélisant la compression d'un cristal non-linéaire. Puis, nous avons caractérisé expérimentalement la biréfringence induite dans le cristal à l'aide d'un banc de photoélasticimétrie. Enfin, nous avons réalisé une expérience de génération de second harmonique utilisant un cristal contraint : l'application d'une contrainte de plus de 100 Mpa a permis de décaler la longueur d'onde d'accord de phase non-critique en doublement de fréquence de 1210 nm à 1124 nm. Ces travaux ont fait l'objet d'une publication dans *Optics Express* (Deyra et al. 2014). De plus, nous avons déposé un brevet protégeant le concept d'accord de phase mécanique.

Nous sommes donc encore loin de l'application initiale visée, qui était la génération de 4^{ème} harmonique à 266 nm avec du LBO. Mais nous ne sommes par exemple pas très loin de pouvoir utiliser le LBO à température ambiante en SHG non-critique ! Pour cela nous avons d'abord beaucoup de travail de simulation à effectuer, afin de modéliser plus finement les comportements mécaniques des cristaux, et notamment aux interfaces. Nous devons également modéliser complètement des cristaux en 3 dimensions. Ensuite, nous devons trouver des moyens d'améliorer le seuil de dommage des cristaux, et fort heureusement il existe de nombreux travaux sur ce sujet ! Il a par exemple été montré que le polissage optique et chimique des surfaces soumises aux contraintes pouvait augmenter les seuils de dommage d'un facteur 10 ! (Feldman et al. 2008; Feldman et al. 2011). On pourrait par exemple imaginer un cristal ayant toutes ses faces polies optiquement et chimiquement, et déjà gagner un ordre de grandeur sur la biréfringence induite ! On pourrait également envisager d'autres types d'appui mécaniques, comme des membranes sous pression, qui pourraient permettre d'appliquer des contraintes plus uniformes. De plus, il reste encore beaucoup d'ingénierie à réaliser afin d'obtenir un module de compression compact, efficace et automatisé : on pourrait par exemple utiliser un petit moteur pour appliquer automatiquement la contrainte. Enfin, nous pourrions effectuer de réelles mesures d'efficacité de conversion avec un laser monofréquence, afin d'évaluer l'uniformité des contraintes (la SHG non-critique de 1064 nm à 532 nm à température ambiante par exemple ?).

L'accord de phase mécanique est un concept extrêmement intéressant car il peut potentiellement s'appliquer à tout processus physique utilisant des cristaux biréfringents. Il y a donc de nombreuses autres expériences potentielles à réaliser. Par exemple, on pourrait utiliser les gradients de contrainte pour augmenter l'acceptance spectrale de certains accords de phase, de manière similaires à d'autres travaux réalisés avec des fours à gradients (Regelskis et al. 2012). On pourrait également modifier les accords de phase dans l'infrarouge, où les biréfringences en jeu sont beaucoup plus faibles que dans l'ultraviolet. De plus, c'est une technique qui possède des particularités comparées aux moyens classiques d'ajustement de biréfringence : contrairement à l'accord de phase angulaire, elle permet de garder un walk-off nul pour toutes les fréquences ; contrairement à l'accord de phase par température, c'est une technique passive, qui ne nécessite pas d'énergie pour maintenir le système dans son état contraint. Enfin, cette technique permet d'appliquer des biréfringences positives ou négatives très simplement !

Enfin, ces travaux ont été l'occasion d'apprendre énormément sur la mécanique des matériaux, qui peut avoir de nombreuses applications pour l'ensemble des travaux du Groupe. A titre d'exemple, nous avons déjà identifié deux nouvelles expériences connexes à nos travaux : l'étude de la déformation de miroirs de faibles rayons de courbure, ainsi que l'étude de la biréfringence induite dans le CaF_2 .

CONCLUSION GENERALE

Au cours de cette thèse, nous avons travaillé sur différents aspects des lasers impulsionnels convertis en fréquence vers l'ultraviolet. Nous avons notamment développé des sources laser converties en fréquence vers l'UV, étudié de nouveaux cristaux non-linéaires pour l'UV, et démontré de nouveaux concepts pour la conversion de fréquence.

Dans les chapitres 1 et 2, nous avons étudié les différents lasers industriels UV présents sur le marché, et fait un bilan de la théorie de la conversion de fréquence par génération de second harmonique, et des propriétés des cristaux non-linéaires.

Dans le chapitre 3, nous avons réalisé une source laser impulsionnelle à 236,5 nm basée sur la conversion de fréquence d'un oscillateur à 946 nm impulsionnel, en fibre cristalline. Pour cela, nous avons d'abord choisi une architecture laser permettant d'obtenir des performances compatibles avec des applications de détection des explosifs intéressant la DGA. Puis, nous avons développé un oscillateur déclenché et polarisé à 946 nm, en utilisant la technologie de la fibre cristalline de Nd:YAG. Les points les plus problématiques dans le développement furent la gestion de la forte lentille thermique, les pertes par dépolarisation dans le Nd:YAG, et la gestion de l'énergie intracavité par rapport aux seuils de dommage. Nous avons ensuite converti le rayonnement infrarouge vers l'ultraviolet à l'aide de deux étages de doublement de fréquence extra-cavité réalisés respectivement dans des cristaux de BiBO et de BBO. Nous avons obtenu à 236,5 nm une puissance moyenne de 600 mW à 20 kHz, soit 30 μ J, avec une durée d'impulsion de 27 ns, ce qui représente les meilleures performances démontrées pour ce type d'oscillateur. Les travaux sur cet oscillateur vont se poursuivre dans le cadre du projet ANR « NUTS », avec notamment l'implémentation du pompage à 885 nm : la réduction du défaut quantique associé à cette nouvelle longueur d'onde de pompage devrait permettre d'augmenter de manière significative les performances finales. De plus, des architectures de cristaux à compensation de walk-off sont actuellement en étude chez Cristal Laser : ces structures permettraient d'augmenter sensiblement la conversion de fréquence du bleu vers l'UV.

Dans le chapitre 4, nous avons étudié deux nouveaux cristaux non-linéaires pour la conversion de fréquence vers l'UV, dans le cadre du projet « UV-Challenges ». Nous avons d'abord effectué une expérience de génération de troisième harmonique à 343 nm avec le fluoborate de calcium (CBF), un nouveau cristal développé par le laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Paris. Ce cristal a la particularité d'être complètement non-hygroscopique, ce qui présente des avantages pour sa fabrication ainsi que pour la durée de vie à long-terme. A l'aide de cristaux de 3 et 5 mm de long, nous avons pu obtenir jusqu'à 300 mW de puissance moyenne dans l'UV à l'aide d'un laser infrarouge impulsionnel de 20 W à 1030 nm. Nous avons pu vérifier les coefficients non-linéaires du CBF selon les plans XY et YZ. Cette expérience est la première démonstration de génération d'UV dans un cristal de CBF. Bien que l'efficacité de conversion soit encore faible (quelques pourcents), le développement de cristaux plus longs permettra d'améliorer les rendements. De plus, de nouvelles méthodes de croissance du CBF sont actuellement à l'étude afin d'en améliorer sa qualité cristalline et de diminuer sa longueur d'onde minimale de génération de second harmonique.

Dans un deuxième temps, nous avons étudié des cristaux de borate de barium (BBO) fabriqués selon la méthode de croissance sans flux, ou Czochralski (CZ). Nous souhaitons déterminer si cette nouvelle méthode de croissance permettait d'obtenir des cristaux de meilleure qualité, afin de limiter les effets parasites lors de la génération de quatrième harmonique vers l'UV à forte puissance moyenne. Pour cela, nous avons comparé des échantillons de BBO réalisés en flux avec un cristal réalisé en croissance CZ, en

collaborant avec les différents industriels et laboratoire du consortium. Nous avons montré que l'absorption linéaire dans l'UV de l'échantillon CZ était proche de celle des échantillons fabriqués par flux. Nous avons confirmé cette mesure en effectuant une expérience de génération de 4^{ème} harmonique vers 266 nm à basse puissance moyenne (centaine de milliwatts à 532 nm), et montré que tous les cristaux donnaient des efficacités de conversion similaires. Nous avons ensuite effectué de nouvelles expériences à des puissances moyennes plus importantes (20W à 515 nm), et montré que le BBO-CZ permettait d'obtenir une efficacité de conversion jusqu'à 40 % supérieure à celle des cristaux en croissance par flux. Nous n'avons pas encore déterminé la raison exacte de cette amélioration, mais des expériences préliminaires nous laissent à penser qu'elle est due à une diminution du coefficient d'absorption à deux-photons. Suite à ces expériences, il a été décidé de fabriquer de nouveaux échantillons de BBO-CZ et d'effectuer une campagne de caractérisation très précise de leurs propriétés linéaires et non-linéaires, ce qui devrait permettre d'identifier de nombreuses sources d'améliorations pour la croissance du BBO.

Enfin, le chapitre 5 a été consacré à la démonstration du concept d'accord de phase mécanique. Nous avons montré qu'en exerçant une forte contrainte mécanique sur un cristal non-linéaire, on pouvait modifier ses accords de phase de manière significative. Pour cela, nous avons commencé par étudier les différentes applications potentielles de ce concept : nous avons choisi de nous concentrer sur la modification de la longueur d'onde de génération non-critique de second harmonique du LBO. Une fois ce choix réalisé, nous avons étudié théoriquement l'influence d'une contrainte externe sur les indices de réfraction du cristal. Puis, nous avons conçu et caractérisé une monture de compression mécanique permettant d'appliquer une pression uniforme et importante sur toute la surface du cristal. La qualité de cette monture a été étudiée à l'aide d'un banc de visualisations des contraintes réalisé à l'aide du principe de la photoélasticimétrie. Pour finir, nous avons réalisé une expérience de génération de second harmonique avec un LBO contraint mécaniquement, et montré que l'on pouvait décaler la longueur d'onde de génération de second harmonique non-critique de 1210 nm à 1124 nm en appliquant une pression de 100 MPa sur une face du cristal. Le concept d'accord de phase mécanique a ensuite été breveté, et a permis d'obtenir un projet ANR « NUTS », visant à étudier plus en détail ces différents aspects. Dans les prochaines années, de nombreux travaux seront réalisés pour améliorer la compréhension théorique et expérimentale du phénomène, et pour identifier et réaliser de nouvelles applications de l'accord de phase mécanique.

Cette thèse fut donc l'occasion de travailler sur des domaines très différents, gravitant tous autour des sources lasers converties en fréquence. Elle fut l'occasion de combiner la physique des lasers, la cristallographie, l'optique non-linéaire et la science des matériaux, afin de réaliser de nombreuses expériences très prometteuses. La plupart de ces travaux seront continués par la suite dans le cadre de différents projets de recherche, et conduiront je l'espère à de nombreuses nouvelles démonstrations et avancées scientifiques.

ANNEXES

ANNEXE 1 - LASERS ULTRAVIOLETS INDUSTRIELS

Constructeur	Modèle	Technologie	Longueur d'onde (nm)	Durée impulsion (ps)	Cadence (kHz)	Energie (μ J)	Pmoyenne (W)	Pcrête (W)
Amplitude Systems	Tangerine THG	MOPA rod	343	0,35	200	30	6	8,3E+08
Amplitude Systems	Tangerine + FHG	MOPA rod	257	0,35	200	10	2	3,3E+08
Amplitude Systems	Tangor THG	MOPA bulk	355	0,4	100	100	10	1,7E+08
Amplitude Systems	Tangor + FHG	MOPA bulk	266	0,4	100	30	3	8,6E+07
Coherent	Paladin	MOPA solide/fibre	355	10	80000	0,3	24	2,9E+07
Coherent	Talisker	MOPA	355	15	1000	10	10	2,5E+08
Coherent	Daytona	Fibre	355	2000	325	70	23	7,5E+07
Coherent	Avia	DPSS	266	20000	30	100	3	3,0E+04
Coherent	Avia	DPSS	355	40000	110	255	28	5,0E+06
Crylas	FOSS 213	DPSS	213	1300	0,06	50	0,003	6,7E+05
Crylas	FOSS266	?	266	1500	0,02	200	0,004	8,9E+04
Crylas	FTSS355	?	355	1700	0,02	300	0,006	2,0E+05
EKSPLA	NL303	Nd:YAG	355	4000	0,02	210000	4,2	7,1E+04
EKSPLA	NL303	Nd:YAG	266	4000	0,02	60000	1,2	3,4E+04
EKSPLA	NL303	Nd:YAG	213	4000	0,02	10000	0,2	5,0E+03
EOLITE	Sirocco	Rod-type fiber	343	15	15000	1	20	4,0E+04
EOLITE	Hegoa	Rod-type fiber	343	50	1500	10	15	1,3E+05
EOLITE	Boreas	Rod-type fiber	343	10000	250	150	37,5	1,8E+05
Light conversion	PHAROS	MOPA	343	0,3	20	250	5	3,6E+04
Light conversion	PHAROS	MOPA	257	0,3	20	100	2	5,3E+07
Light conversion	PHAROS	MOPA	206	0,3	20	50	1	1,5E+07
Powerlase	Rigel80	Qswitched Nd:YAG	355	8000	10	8000	80	2,5E+06
Powerlase	Rigel 180	Qswitched Nd:YAG	355	65000	10	18000	180	2,1E+03
Spectra Physics	Quasar	MOPA Fibre/diode	355	10000	300	300	60	1,0E+06
Spectra Physics	Hippo Prime	DPSS	266	12000	33	60	2	3,3E+03
Spectra Physics	Talon	DPSS	355	30000	50	300	15	1,5E+04
Spectra Physics	QuantaRay Pro	DPSS	355	30000	0,01	850000	8,5	3,0E+04
Spectra Physics	QuantaRay Pro	DPSS	266	30000	0,01	250000	2,5	5,0E+03
Teem photonics	PNV	Microchip passively Qswitched	355	350	1	25	0,025	5,0E+03
Teem photonics	PNV	Microchip	266	350	1	12	0,012	1,0E+04
Teem photonics	XNV	Microchip amplifié	355	1000	130	5	0,65	2,8E+07
Trumpf	TruMicro5000	Laser à disque	355	10	200	50	10	8,3E+06
Xiton	Impress 213	Qswitched DPSS	213	7000	30	15	0,15	6,4E+03
Xiton	Impress 224	?	224	9000	30	30	0,3	2,8E+05

ANNEXE 2 – LONGUEURS D'ONDE ACCESSIBLES PAR CONVERSION DE FREQUENCE

Dans cette annexe, on se propose de détailler toutes les longueurs d'onde accessibles par conversion de fréquence des raies laser des cristaux dopés Néodyme. On n'utilisera que des matrices lasers commerciales : YAG, YVO₄, YLF et KGW.

Le tableau est organisé comme suit :

- On se fixe un maximum de 4 étages non-linéaires
- Parmi ces 4 étages non-linéaires, on s'impose de n'utiliser qu'une seule somme de fréquences
- En ligne et en colonnes sont placées les raies laser principales, ainsi que leur second et quatrième harmonique
- La combinaison ligne/colonne est une somme de fréquences
- Le résultat de la somme de fréquences est doublé dans une grille située en dessous du tableau
- Un code couleur indique le nombre d'étages non-linéaires
- Les chiffres en italiques indiquent les longueurs d'onde atteignables avec une seule raie laser, et sont donc simples à mettre en oeuvre

On essaiera ensuite de trouver des combinaisons de fréquences permettant d'atteindre les longueurs d'onde excimer les plus utilisées : 351 nm, 308 nm, 248 nm, et 193 nm. La majeure partie des cristaux non-linéaires n'étant pas transparents en dessous de 180 nm, on n'étudiera pas les longueurs d'onde en dessous de cette valeur. Ces valeurs sont indiquées en violet dans les cases encadrées. Grâce à ce tableau, on a pu identifier des combinaisons de fréquences menant à chaque raie excimer :

- XeF* 351 nm : La génération de 3^{ème} harmonique (THG) du Nd:YLF à 1053 nm donne 351 nm
- ArCl* 308 nm : Nd:YVO₄ à 914 nm doublé en fréquence (457nm), suivi d'une somme de fréquences avec Nd:YAG (946 nm) qui donne 308 nm
- KrF* 248 nm : Somme de fréquences entre Nd:YAG (946 nm) et Nd:YLF (1047 nm) qui donne 497 nm, suivi d'un doublement de fréquence vers 248 nm
- ArF* 193 nm : Quadruplement de fréquence du Nd:YAG (946 nm) vers 237 nm, suivi d'une somme de fréquences avec Nd:YAG (1064 nm) vers 193 nm

ANNEXE 3 – SHG A HAUTE PUISSANCE DANS DU PPRKTP

Dans le cadre de la réalisation d'un laser à 236 nm, nous avons étudié les différents cristaux non-linéaires pour la génération de second harmonique de 946 nm vers 473 nm. Nous nous sommes alors demandé s'il était possible d'utiliser un cristal en quasi-accord de phase pour réaliser cette expérience : en effet, notre puissance crête était légèrement insuffisante pour réaliser un doublement de fréquence efficace. A l'inverse, les cristaux en quasi-accord de phase nous permettaient théoriquement d'obtenir des rendements de conversion très importants, mais il est connu que ceux-ci souffrent de problèmes à haute puissance.

Afin de répondre à ce questionnement, nous sommes entrés en contact avec le laboratoire de Physique des Lasers à KTH, Stockholm, par le biais de Mr Fredrik Laurell. En effet, ils sont spécialisés dans la fabrication de cristaux de PPKTP dopés au Rubidium (PPRKTP), censés être bien plus résistants à forte puissance. Ils nous ont prêté des échantillons, et nous avons pu tester ces cristaux en SHG de forte puissance moyenne de 946 nm et 473 nm en régime continu et en régime pulsé.

On a reproduit ci-dessous l'article correspond qui devrait être soumis prochainement. Nous avons étudié la génération de second harmonique de 946 nm vers 473 nm à haute puissance moyenne dans deux configurations : en régime continu et en régime impulsionnel. Nous avons constaté que la conversion était limitée par les effets thermiques dans les deux cas, et que des phénomènes de dégradation à long terme apparaissaient dans le cas du régime continu.

Limitations of high power blue laser obtained by second harmonic generation with Rubidium-doped PPKTP

L.Deyra¹, C.Liljestrand², P.Zeil², C.Canalias², F.Laurell², F.Balembois¹, P.Georges¹

1. Laboratoire Charles Fabry, Institut d'Optique, CNRS, Univ Paris-Sud, 91127 Palaiseau, France

2. Royal Institute of Technology, Roslagstullsbacken 21 10691 Stockholm, Sweden

**Corresponding author: loic.deyra@institutoptique.fr*

Abstract: We study the potential of Rubidium-doped PPKTP for high power second harmonic generation in the visible range. We demonstrate up to 800mW of average power at 473nm in continuous wave, and up to 2W of average blue power in pulsed regime, both in single-pass, extracavity frequency doubling. We show a striking dynamic difference in the blue laser stability, where the CW blue laser suffers from time-induced absorption, whereas the pulsed operation is stable. Finally, the thermal issue caused by visible absorption is shown to be the limiting factor.

©2013 Optical Society of America

OCIS codes: (190.0190) Nonlinear Optics; (190.4400) Nonlinear materials.

References and links

1. S. C. Kumar and G. K. Samanta, "Second harmonic generation of ytterbium fiber laser in PPKTP and MgO:sPPLT," *Opt. Express* 17, 1561–1563 (2009).
2. S. Popov, S. Chernikov, and J. Taylor, "6-W Average power green light generation using seeded high power ytterbium fibre amplifier and periodically poled KTP," *Opt. Commun.* 231–234 (2000).
3. F. Torabi-Goudarzi and E. Riis, "Efficient cw high-power frequency doubling in periodically poled KTP," *Opt. Commun.* 227, 389–403 (2003).
4. R. Le Targat, J.-J. Zondy, and P. Lemonde, "75%-Efficiency blue generation from an intracavity PPKTP frequency doubler," *Opt. Commun.* 247, 471–481 (2005).
5. S. V. Tovstonog, S. Kurimura, I. Suzuki, K. Takeno, S. Moriwaki, N. Ohmae, N. Mio, and T. Katagai, "Thermal effects in high-power CW second harmonic generation in Mg-doped stoichiometric lithium tantalate," *Opt. Express* 16, 11294–9 (2008).
6. S. Wang, V. Pasiskevicius, and F. Laurell, "Dynamics of green light-induced infrared absorption in KTiOPO₄ and periodically poled KTiOPO₄," *J. Appl. Phys.* 96, 2023 (2004).
7. J. Villarroel, J. Carnicero, F. Luedtke, M. Carrascosa, A. García-Cabañes, J. M. Cabrera, A. Alcazar, and B. Ramiro, "Analysis of photorefractive optical damage in lithium niobate: application to planar waveguides," *Opt. Express* 18, 20852–61 (2010).
8. Q. Zhang, G. Feng, J. Han, B. Li, Q. Zhu, and X. Xie, "High repetition rate laser pulse induced damage in KTP crystal: Gray-tracking and catastrophic damage," *Opt. - Int. J. Light Electron Opt.* 122, 1313–1318 (2011).
9. S. Spiekermann, H. Karlsson, and F. Laurell, "Efficient Frequency Conversion of a Passively Q-Switched Nd:YAG Laser at 946 nm in Periodically Poled KTiOPO₄," *Appl. Opt.* 40, 1979–82 (2001).
10. P. M. Petersen, "Threshold for strong thermal dephasing in periodically poled KTP in external cavity frequency doubling," *Appl. Phys. B* 96, 827–831 (2009).
11. M. Pierrou, F. Laurell, H. Karlsson, T. Kellner, C. Czeranowsky, and G. Huber, "Generation of 740 mW of blue light by intracavity frequency doubling with a first-order quasi-phase-matched KTiOPO₄ crystal," *Opt. Lett.* 24, 205–7 (1999).
12. S. Johansson, S. Bjurshagen, C. Canalias, V. Pasiskevicius, F. Laurell, and R. Koch, "An all solid-state UV source based on a frequency quadrupled, passively Q-switched 946 nm laser," *Opt. Express* 15, 449–58 (2007).
13. L. Deyra, I. Martial, J. Didierjean, F. Balembois, and P. Georges, "3W, 300μJ, 25ns pulsed 473nm blue laser based on actively Q-switched Nd:YAG single-crystal fiber oscillator at 946 nm," *Opt. Lett.* 38, 3013–3016 (2013).
14. A. Zukauskas, V. Pasiskevicius, and C. Canalias, "Second-harmonic generation in periodically poled bulk Rb-doped KTiOPO₄ below 400 nm at high peak-intensities," *Opt. Express* 21, 1395–403 (2013).
15. G. Hansson, H. Karlsson, S. Wang, and F. Laurell, "Transmission Measurements in KTP and Isomorphous Compounds," *Appl. Opt.* 39, 5058–69 (2000).
16. G. D. Boyd, "Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams," *J. Appl. Phys.* 39, 3597 (1968).
17. Z. M. Liao, S. a. Payne, J. Dawson, A. Drobshoff, C. Ebberts, D. Pennington, and L. Taylor, "Thermally induced dephasing in periodically poled KTP frequency-doubling crystals," *J. Opt. Soc. Am. B* 21, 2191 (2004).
18. M. Laroche, B. Cadier, H. Gilles, S. Girard, L. Lablonde, and T. Robin, "20 W continuous-wave cladding-pumped Nd-doped fiber laser at 910 nm," *Opt. Lett.* 38, 3065 (2013).
19. J. Bouillet, R. Dubrasquet, C. Médina, R. Bello-Doua, N. Traynor, and E. Cormier, "Millijoule-class Yb-doped pulsed fiber laser operating at 977 nm," *Opt. Lett.* 35, 1650–2 (2010).
20. V. Pasiskevicius, K. Ekvall, R. Clemens, and F. Laurell, "Ultrafast induced absorption dynamics in flux-grown KTiOPO₄," in *CLEO* (2001), pp. 4–5.

1. Introduction

Frequency doubling in periodically poled materials has been a widely investigated research field in the past years. Among all the available materials, periodically-poled potassium titanium phosphate (KTP) and its derivatives have shown great resistance to photorefractive damage while keeping a high nonlinear coefficient d_{eff} . Many results of high-efficiency second harmonic generation (SHG) to the green spectrum have been demonstrated, whether it is in pulsed operation or in continuous wave regime (CW) (Samanta et al. 2008; Popov et al. 2000). The limitation of high power SHG in those materials has been identified as a consequence of either photorefractive damage, or thermal issues linked to the material absorption. (Tovstonog et al. 2008; Wang et al. 2004; Villarroel et al. 2010; Zhang et al. 2011)

The majority of those experiments have been performed in the green spectral range; only few results have been published on high power SHG in the blue spectrum with periodically poled materials, mostly due to the low fundamental powers available for lasers source around 900 nm. In CW, up to 76 mW of average power in the blue spectrum were demonstrated in extracavity SHG (Spiekermann et al. 2001) and up to 700 mW in intracavity SHG (Petersen 2009). In pulsed operation, up to 400 mW were demonstrated at 473 nm with a conversion efficiency of 41% (Johansson et al. 2007).

Blue lasers have numerous applications in spectroscopy, underwater communication and material processing. With the constant increase of available laser power, it is necessary to explore the limitations of high power SHG in new periodically poled materials. The recent laser performances at 946 nm we demonstrated using single-crystal fiber technology (Deyra, Martial, et al. 2013) will allow us to perform experiments at a power regime never investigated before. We will study a newly developed nonlinear material, Rubidium-doped KTP, which has proved to be more resistant to grey tracking than standard KTP [11].

In this article, we use a state of the art laser source at 946 nm based on Nd:YAG single-crystal fiber to observe the behavior of Rubidium-doped PPKTP during high power second harmonic generation, and point out the major differences between continuous wave and pulsed operation. In continuous wave, we will study the material in single-pass extracavity SHG, as the available lasers finally allow to obtain non-negligible conversion efficiencies. This configuration is more stable and easier to interpret than intracavity SHG, although less efficient. In pulsed operation, the peak powers are high enough to work also in extracavity SHG: this configuration can theoretically result in very high conversion efficiencies, but will be limited by absorption in the visible range. We will show that while high power SHG in the blue region and with a CW laser is difficult because of time-induced absorption, pulsed SHG at high power can be realized with the appropriate thermal management.

2. Experimental set-up

The crystal used for the experiment is a periodically-poled, Rubidium-doped potassium titanium phosphate Rb:KTiOPO_4 (PPRKTP). Doping KTP with Rubidium has proved to reduce the material ionic conductivity and improve its homogeneity, thus simplifying the poling process. Moreover, RKTP has shown higher grey-tracking resistance compared to conventional KTP (Zukauskas et al. 2013). The RKTP crystals are grown from a flux melt containing 1.4 mol% Rb. The resulting Rb concentration in the crystals is less than 1%, suggesting that the linear and nonlinear optical properties of this material are very similar to those of undoped flux-grown KTP.

Two samples of PPRKTP with dimensions of $10 \times 5 \times 1$ mm (L, l, h respectively) were realized with a poling period of $\Lambda = 6.3 \mu\text{m}$ (Figure 1).

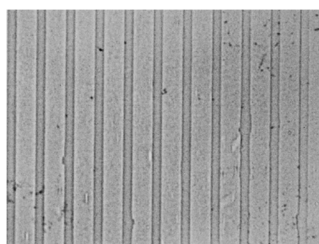


Figure 109: Ferroelectric domain structure after chemical etching on the faces of the PPRKTP crystal

They were placed in an oven with their temperature being controlled with a precision of $\pm 0.01^\circ\text{C}$. The crystals had no anti-reflective treatment. The linear absorption in the visible range was measured in CW to be 8.2%/cm at 473 nm for both samples. This absorption value is slightly higher than the usual RKTP absorption (which lies around 4.5%/cm). The nonlinear coefficient d_{eff} was measured to be $d_{\text{eff}} = 9.5 \text{ pm/V}$.

The laser used for the frequency conversion process is an internally developed Nd:YAG single-crystal fiber Q-switched oscillator at 946 nm, that can be operated either in CW or Q-switched mode [10]. In CW, it delivers up to 11.5 W of laser output with a near-Gaussian intensity profile

($M^2 < 1.3$) and a spectral width $< 0.04\text{nm}$. In Q-switched mode, it delivers 10 W at 20 kHz with pulse widths of 45 ns and a beam profile similar to the CW operation.

The conversion set-up is very straightforward, and described in Figure 2. Since the laser is stabilized by thermal lens, a polarizing beam-splitter (PBS) is used in combination with a half-waveplate to control the input laser power. The 946 nm laser output is then focused inside the PPRKTP crystal, its polarization adjusted with a second half-waveplate. The converted second harmonic at 473 nm is separated from the residual fundamental power with a dichroic mirror.

3. Continuous wave frequency doubling in PPRKTP

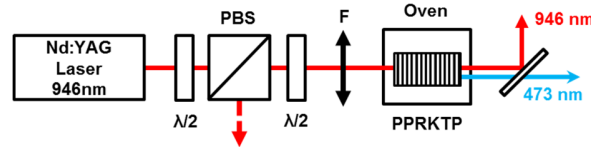


Figure 110: Experimental set-up

The second harmonic generation in continuous-wave was realized by focusing the fundamental light to form a beam waist of $w_0 = 25\ \mu\text{m}$ inside the nonlinear crystal, which is very close to the theoretical optimum SHG focusing spot size defined by Boyd-Kleinman (Boyd & Kleinman 1968) of $w_0 = 26\ \mu\text{m}$ in our case. The results are displayed in Figure 3.

For a phase matching temperature for the PPRKTP of $85.2\ ^\circ\text{C}$, the output power reached 800 mW for a 946 nm input power of 11.5 W. The corresponding SHG conversion efficiency was 6%. At this fundamental intensity of $585\ \text{kW}/\text{cm}^2$, no grey tracking or damage was observed inside the crystal. The output power was not stable as it decreased over a short period of a time. The stability was measured over 35 min, the first curve in Figure 4 (blue line) with a maximum output power of 800mW being measured with the focusing conditions detailed above. The output power in this case remained above 750mW for no more than a few minutes. When the crystal was translated to another point, the blue power raised back to its previous maximum value of 800 mW. When the beam diameter inside the PPRKTP was increased to $70\ \mu\text{m}$, the output power was reduced to 400 mW and decayed slowly.

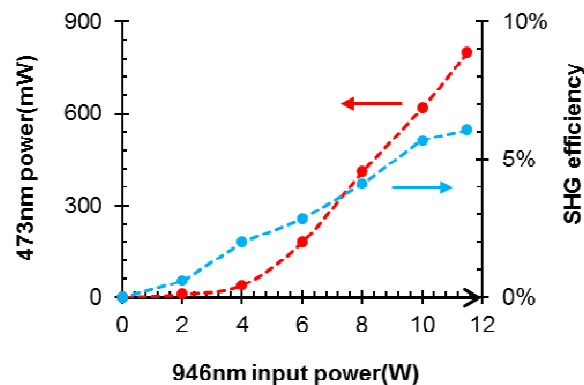


Figure 111: SHG output power and efficiency in CW

This phenomenon has been observed before in several experiments (Petersen 2009) (Kumar & Samanta 2009). In CW SHG in KTP, the absorption coefficient increases during the SHG process. This can be explained by the fact that second harmonic generation inside such a crystal creates color centers that increase the linear absorption to a very high saturated value (Liao et al. 2004) (up to 10 times the linear absorption value).

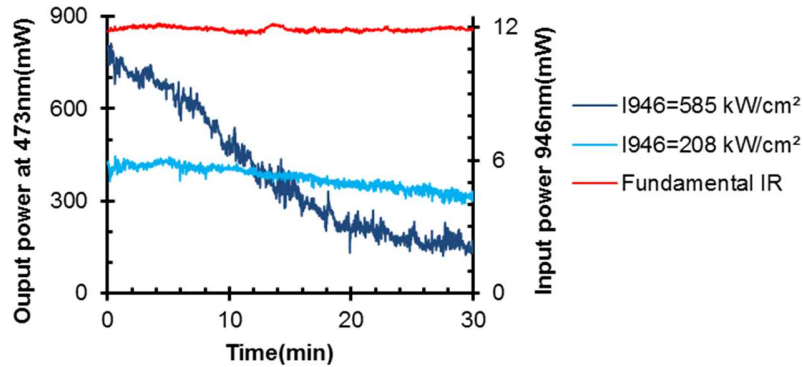


Figure 112: Stability of CW infrared and blue average power

This defect creation process is directly dependent to the IR intensity inside the PPRKTP crystal, and can be reduced by increasing the fundamental beam size. Once the absorption has reached its saturation value, the temperature can be corrected to include the added temperature gradient inside the crystal. For example, after operating the crystal for 30 min with an initial blue power of 800mW (corresponding to $I_{946}=585$ kW/cm²), the average power can be stabilized at 250 mW of blue average power.

Therefore, in CW frequency doubling in PPRKTP, the slow absorption increase must be taken into account when trying to stabilize the laser. The phase matching curves of the PPRKTP sample was measured in low and high powers and is shown below in Figure 5, but was voluntarily not displayed at the beginning: indeed, the high power curve shows an extremely asymmetric profile, partially due to the thermal issues related to absorption, but also from the fact that the absorption is changing over the course of the measurement, a typical phase matching curve measurement taking more than 30 min.

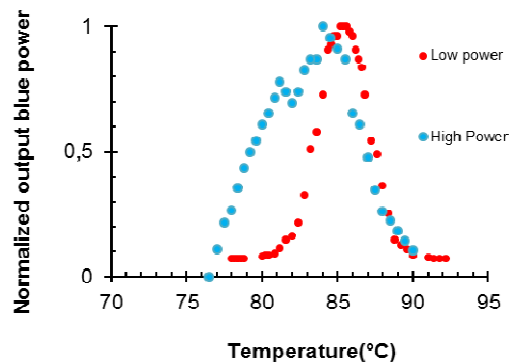


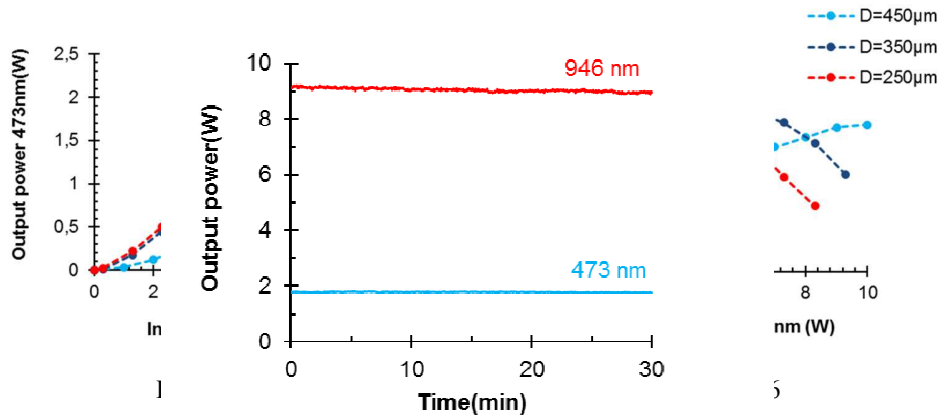
Figure 113: Phase matching curve in CW for low power (red, 4W) and high power (blue, 11.5W)

4. Pulsed frequency doubling in PPRKTP

The experimental set-up for the pulsed experiment is exactly the same, expect that the laser is now operated in Q-switched mode. The output at 946 nm is 10 W at 18 kHz, with a pulse width of 45 ns and a beam quality <1.3 . The PPRKTP crystal is a new sample with equivalent properties compared to the first one used in CW. Since the generated second harmonic will be much higher than in the CW regime, a much broader focusing must be used in order to limit the detrimental thermal effects. The results of generated second harmonic, presented in Figure 6, are measured using fundamental beam diameters of $D = 450 \mu\text{m}$, $350 \mu\text{m}$ and $250 \mu\text{m}$. For every beam diameter, the incoming fundamental power is increased gradually watt by watt. For each point, the PPRKTP oven temperature is tuned to obtain a maximum conversion efficiency. The best results are obtained using a beam diameter of $450 \mu\text{m}$: 2 W of blue light at 473 nm are generated using 10 W of fundamental power,

which represents a conversion efficiency of 20%. For smaller beam sizes, The SHG power quickly saturates then drops when the fundamental average power is increased.

This laser output stability has been measured for 30 min and is found to be stable (see Figure 7). This behavior is surprising compared to the CW regime, where the power was not stable for more than a few minutes, at 473nm average powers and intensities than in this configuration.



function of 946 nm average power for different beam sizes
Figure 115: Fundamental and second harmonic power stability

The phase-matching curves at low and high power (realized for input powers of 0.5W and 10W, Figure 8) show a much different behavior than in CW regime. The phase matching curve at high power is still very asymmetric, showing that strong thermal effects occur in the material.

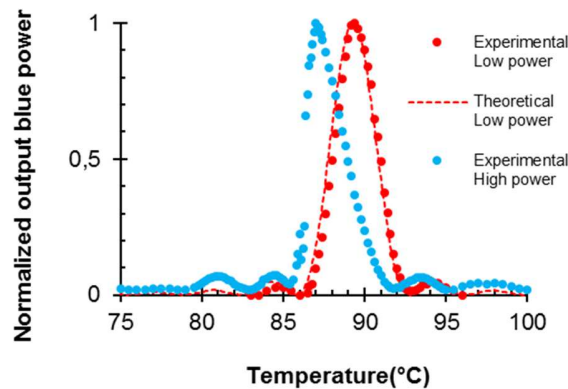


Figure 116: Phase matching curve in Q-switched mode for low and high power. Theoretical fit is a classical sinc²

In order to evaluate the influence of thermal effects on the conversion efficiency, we measured during the experiment the “temperature correction ΔT ”, which is the difference between the optimum phase-matching temperature measured at low power and the actual optimum temperature in high power operation. We plotted ΔT in Figure 9 in function of the SHG conversion efficiency for the different fundamental beam sizes. The interesting feature of this curve is that with every fundamental intensity used, the efficiency drops around the same value of thermal correction namely between 2 and 3 °C. This temperature value actually corresponds to the thermal acceptance measured for the PPRKTP sample. This behavior can be explained as follow: the high absorption in the visible range of PPRKTP will cause a thermal gradient inside the nonlinear crystal. As long as the gradient amplitude is below the crystal’s thermal acceptance, it can be corrected by adjusting the oven temperature. But when the thermal gradient amplitude becomes higher than the thermal acceptance, the whole crystal length cannot be phase matched anymore: the “effective” crystal length will thus be reduced, and the efficiency will slowly starts to drop as the input power increases.

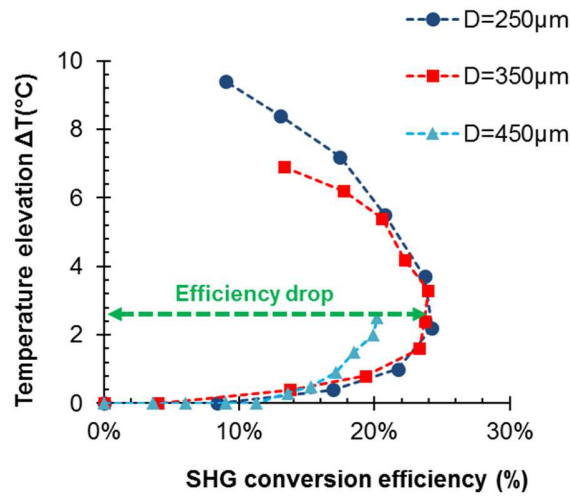


Figure 117: Temperature correction ΔT (°C) versus the SHG conversion efficiency for different fundamental beam sizes. Dark blue: $D=250\mu\text{m}$; Red: $D=350\mu\text{m}$; Light blue: $D=450\mu\text{m}$

This effect is of course not only the only parasitic effect: a strong thermal change inside the crystal will also cause a significant thermal lensing inside the crystal, modifying the intensity distribution inside it. Figure 9 presents the 473nm beam profile at low and high average power, measured at the same location and in the same conditions. We can see that at high input powers, the beam profile is degraded and the beam size increased. We can also see on the right picture that the beam starts to diffract on the crystal edges, sign that the beam diameter cannot be increased anymore.

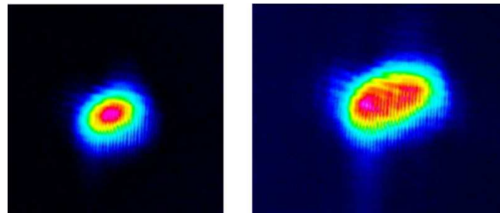


Figure 118: 473nm beam profile at low power (left) and high power (right)

5. Conclusion

In this article, we studied the potential and limitations of periodically poled Rubidium-doped PPKTP for high power blue generation by second harmonic generation. We demonstrated up to 800 mW of 473nm average power in CW operation and up to 2 W in pulsed operation. These two results are to the best of our knowledge the highest average power ever obtained in the blue region with a PPKTP. We showed that the dynamic of induced absorption is very different between the CW and the pulsed regime. In CW, one can observe a so-called time-induced absorption which will cause a drop of the average power over tens of minutes. In pulsed operation however, the output power can be maintained stable even if strong thermal gradients are present inside the crystal. The absorption band in the visible is at the origin of those problems : many efforts are being made to improve the crystal quality of KTP and KTP-derivatives, by testing crystals from different suppliers for example (Hansson et al. 2000). With the progress made in laser development such as high power quasi-three levels fiber lasers (Laroche et al. 2013; Bouillet et al. 2010), or new crystal architectures such as single-crystal fibers, the new challenge is now to make quasi-phase matched crystals a viable alternative to birefringent phase matching.

Aknowledgments

Loïc Deyra thanks the DGA for the funding of his PhD.

ANNEXE 4 – CONVERSIONS DE FREQUENCE VERS L’ULTRAVIOLET

Au cours de cette thèse, nous avons réalisé plusieurs expériences de conversion de fréquence vers l’ultraviolet. Deux d’entre elles en particulier, nous ont permis d’appréhender les concepts de base de la génération de quatrième harmonique vers l’ultraviolet. De plus, elles ont permis de tester des échantillons de BBO fabriqués par Cristal Laser¹⁰⁷. Bien que n’ayant pas eu comme sujet des concepts originaux, elles ont néanmoins conduit à des résultats tout à fait comparables à l’état de l’art. Ces deux expériences sont :

- La génération de quatrième harmonique vers 266 nm d’un laser sub-nanoseconde à 1064 nm basé sur un microlaser déclenché passivement et amplifié dans une fibre cristalline Nd:YAG. La conversion de fréquence a été effectuée dans un LBO pour la SHG et dans un BBO pour la FHG.
- La génération de quatrième harmonique vers 257 nm d’un laser MOPA à 1030 nm basé sur l’amplification d’une diode à spectre fin amplifiée dans une série d’amplificateurs à fibre dopée ytterbium puis dans une fibre cristalline Yb:YAG. La conversion de fréquence a également été effectuée dans un LBO pour la SHG et dans un BBO pour la FHG.

Ces deux travaux ont conduit à des publications dans *Optics Express* et dans *Applied Physics B*, qui sont reproduites ci-dessous :

- Délen, X., Deyra, L., Benoit, A., Hanna, M., Balembois, F., Cocquelin, B., Georges, P. (2013). Hybrid master oscillator power amplifier nanosecond laser source at 257 nm. *Optics Letters*, 38(6), 995–997.
- Deyra, L., Martial, I., Balembois, F., Diderjean, J., & Georges, P. (2013). Megawatt peak power, 1 kHz, 266 nm sub nanosecond laser source based on single-crystal fiber amplifier. *Applied Physics B*, 7–10.

¹⁰⁷ Cristal Laser ne propose pas le BBO à son catalogue, mais fabrique parfois des échantillons sur mesure

Megawatt peak power, 1 kHz, 266 nm subnanosecond laser source based on single-crystal fiber amplifier

Loïc Deyra^{1*}, Igor Martial², François Balembois¹, Julien Diderjean², Patrick Georges¹

1. Laboratoire Charles Fabry, Institut d’Optique, CNRS, Univ Paris-Sud, 91127 Palaiseau, France

2. Fibercryst SAS, La DouaBâtiment l’Atrium, Boulevard Latarjet, F 69616 Villeurbanne Cedex, France

*Corresponding author: loic.deyra@institutoptique.fr mailto:author_nine@uni-jena.de

Abstract

We report the realization of a UV source based on the fourth harmonic generation with LBO/BBO of a Nd:YAG passively Q-switched oscillator amplified in a single-crystal fiber. With careful optimization of the nonlinear components and parameters, we obtain 530 mW average power at 266 nm with pulses of 540 ps at the repetition rate of 1 kHz, which represents a 22.7% total conversion efficiency from IR to UV and nearly 1 MW peak power. The beam quality M^2 is measured to be below 2.

Introduction

The development of solid state UV lasers has been a major industrial challenge for various applications, among them spectroscopy, lithography, material processing, or ophthalmology.

Among those applications, some require very high peak powers up to the megawatt level. In these regards, microchip lasers have set records for UV peak power generation (Bhandari et al. 2012), but the average power and beam quality were limited. To increase the available average power of those laser systems, a master oscillator power amplifier (MOPA) can be used to increase the fundamental beam energy [2-3]

In the past few years, single-crystal fiber (SCF) technology has proved to be an interesting solution to boost the performance of passively Q-switched microchip lasers [4]: it provides unique combination of high gain, high peak power and significant average power, with the most simple amplification scheme possible (one or two passes).

In this paper, we present a 266 nm UV source based on the fourth harmonic generation of a Nd:YAG single-crystal fiber Master Oscillator Power Amplifier (MOPA) previously developed [4].

Experiment set-up and results

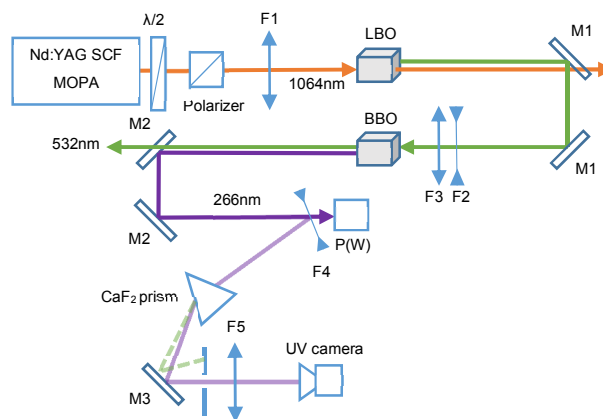


Figure 1: Experimental setup (SCF: single crystal fiber)

The 1064 nm amplified laser system is described in detail in [4]. It is composed by a microchip laser amplified with a Nd:YAG single-crystal fiber in double pass configuration. It delivers a maximum of 2.3 W at 1 kHz with pulses of 550 ps and an excellent beam quality ($M^2_x=1.06$, $M^2_y=1.06$), reaching a peak power of more than 4 MW.

The frequency conversion scheme is presented in Fig.1. A combination of a half waveplate and a polarizer is used to control the incident IR power. The second harmonic generation to 532 nm is realized in a 3x3x15 mm LiB_3O_5 (LBO) cut at $\theta=90^\circ$, $\phi=11.3^\circ$ for type I critically phase matched SHG. We chose a LBO crystal because of its excellent crystal quality even in long crystals, large angular acceptance and good effective non linearity d_{eff} .

Two dichroic mirrors M1 coated for HR at 532 nm and HT at 1064 nm are used to filter the residual 1064 nm beam. High power coatings need to be used due to the very high intensities impacting the mirrors ($>2\text{J}/\text{cm}^2$).

The optimization method is similar to the one used in [5]. Different lenses (F1) are used to optimize the IR beam size inside the LBO in order to maximize the conversion efficiency. Three lenses of focal 400 mm, 300 mm and 250-mm were tested, corresponding respectively to waist diameters of 1250 μm , 850 μm and 500 μm . The LBO is then placed at the laser waist. In all of those cases the Rayleigh range largely exceeds the crystal length.

Figure 2 shows the conversion efficiency in the green versus the fundamental power. Saturation effect is clearly visible for a diameter of 500 μm .

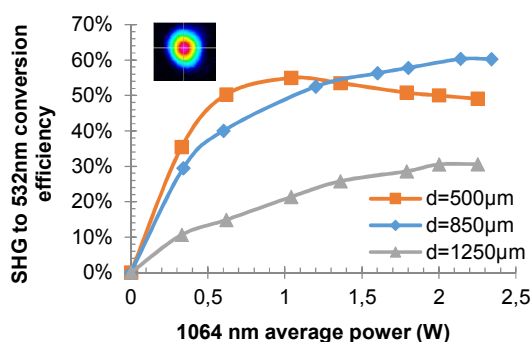


Figure 119 : SHG from 1064 to 532 nm conversion efficiency for different focal lengths and spatial profile of the green

An intermediate beam diameter of 850 μm leads to the maximum conversion efficiency of 61%, with 1.41 W of 532 nm obtained at 2.3 W of 1064 nm input power. The green beam operates in TEM_{00} with a measured M^2 of $M^2_x=1.02$ and $M^2_y=1.05$, with pulse duration of 640 ps (see Fig.6). The slight broadening of the pulse duration is directly linked to slight saturation of the SHG process that occurs at high conversion efficiencies. To confirm this we plotted in Figure 7 the measured 532nm pulse width versus the input 1064nm power in a setup where the initial pulse width was 450ps. We observed that from 1MW of 1064nm peak power, the pulse width started to broaden. The output power is stable for hours without any temperature control thanks to the low absorption of the LBO crystal.

The setup is then completed with a second conversion stage from 532 nm to 266 nm. At this wavelength, only two crystals have shown record efficiencies, $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ (BBO) and $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ (CLBO) [1,6]. Although CLBO has very interesting optical properties (large angular acceptance, low absorption in UV), it is very hygroscopic, making its utilization very difficult in our lab conditions. Therefore, the chosen UV crystal is a $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ crystal cut for type I SHG at 266nm and with $4\times 9.5\text{mm}$ section and a length of 9.5 mm. The crystal is not AR coated. It is mounted on a copper mount cooled at 10°C firstly to improve the thermal contact, but also to increase the UV output stability by reducing the UV absorption coefficient (Merriam & Jacob 2007). An afocal imaging system composed of a divergent lens F2 and a convergent lens F3 is used to adjust the green beam in the BBO at the appropriate diameter. Different focal lengths are used to create beam diameters of 1 mm, 1.3 mm and 2 mm inside the UV crystal.

Two dichroic mirrors M2, coated for HR at 266 nm and HT at 532 nm both at a 45° incidence angle, are used to isolate the generated 266 nm harmonic.

Reflection on a wedged window M3 is used to image the UV beam on a windowless Spiricon CCD camera. This camera is sensitive down to 180 nm but with a much lower sensitivity than at 532 nm. For this reason, a CaF_2 prism in combination with a diaphragm is used to eliminate the residual green photons that interfere with the UV measurement. The imaging system provides beam profiling, M^2 measurement (13.5% max energy method) when a UV fused silica lens F5=80 mm is added, and also is extremely helpful in the phase matching of the BBO crystal. Indeed, the absorption of the BBO in the UV spectrum brings a temperature elevation during the phase matching tuning that, combined with low thermal acceptance of BBO, renders the optimization difficult. Optimizing the UV output power by monitoring the UV beam profile allows a much faster response in comparison with a thermal powermeter.

The maximum power in the UV was obtained for a beam diameter of 1.3 mm in the BBO: we observe that larger beams limit conversion efficiency, and that smaller beams saturate the efficiency at low powers. Figure 3 shows the output 266 nm average power and the corresponding IR to UV conversion efficiency. A stable output of 530 mW at 266 nm is obtained for 2.3 W of

1064 nm input power, which represents a total conversion efficiency from IR to UV of 22.7%. The conversion efficiency from green to UV can be here calculated at 38%. It could be improved with appropriate AR coatings on the BBO.

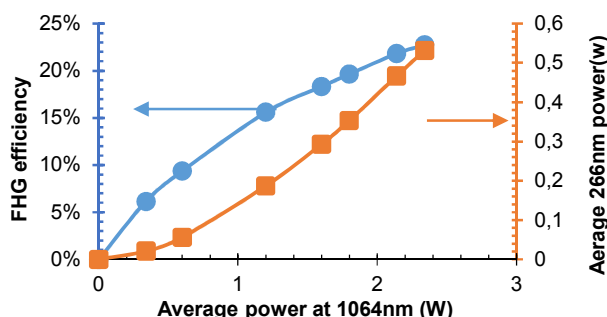


Figure 120: Average power at 266 nm obtained (right axis) and IR to UV conversion efficiency (left)

Absorption losses have been measured by placing an identical BBO crystal at normal incidence before the power meter, leading to an UV drop of the measured 266 nm power by 23%. By deducing the Fresnel losses at the BBO interfaces, its absorption coefficient at 266 nm can then be deduced as $\alpha=0.127 \text{ cm}^{-1}$. Although quite high, this value is in the order of typical flux-grown BBO (Bhandari et al. 2012). This absorption value, added with the fact that we are able to saturate the conversion efficiency at low input power, indicates that we could use smaller crystal of a few millimeters that will reduce the total absorption while maintaining the same conversion efficiency.

From the absorption value, we can estimate the maximum temperature elevation in the BBO due to the UV absorption and compare it with the thermal acceptance of BBO cut for type I SHG at 266nm (6 K.cm, value given by the non linear simulation software SNLO. This represents an elevation of 6K for a 1cm long crystal). By assuming the heat flow in the BBO as radial, we can use the equations defined in [8]. The maximum axial temperature elevation in the center of the crystal between its entrance and its end can be expressed as follow[9] :

$$\Delta T = -\frac{\alpha P_{UV}}{4\pi K_c} \left(\ln \left(\frac{r_0^2}{w_0^2} \right) + 1 \right) \quad (1)$$

With α being the absorption coefficient of BBO at 266 nm, K_c the thermal conductivity of BBO (1.4 W/m/K), r_0 the crystal radius, w_0 the UV laser radius and P_{UV} the 266 nm average power at the crystal output. If we assume a crystal diameter of 7 mm (average of the transverse dimension of our BBO), a laser diameter of 1.3 mm, and a UV power of 530 mW, we estimate a maximum temperature gradient of 2 K in the crystal. Since this value is in the order of the thermal acceptance, axial phase mismatch should have an effect on the conversion process as mentioned in several works [10-12]. We think that the secondary intensity peak of the UV beam profile (Fig.4) is related to this effect: axial phase mismatching reveals the side bands of the sinc^2 SHG efficiency curve. Further experiments will be performed to confirm this hypothesis.

Despite this secondary intensity peak, the measured M^2 remains good with values of $M^2_x=1.2$ and $M^2_y=1.4$ (Fig.5). It is important to note that the very sensible tuning of the BBO crystal and the low sensitivity of the CCD camera at 266 nm leads to a high incertitude on the M^2 measurement. Therefore, we estimated the UV M^2 to be between 1.2 and 1.9.

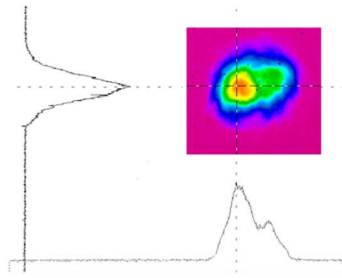


Figure 4: Beam profile and xy-axis intensity distribution of the 266nm beam (x vertical axis, y horizontal)

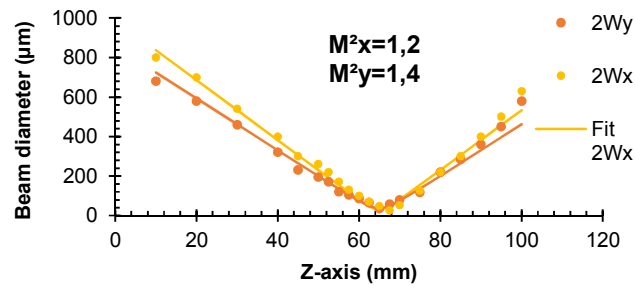


Figure 5: M^2 measurement of the 266 nm beam

The temporal profiles of the IR, green and UV pulses are displayed in Fig 6. Measurements are independent and pulse positions don't reflect the reality. The measured pulse duration of the UV beam is 540 ps.

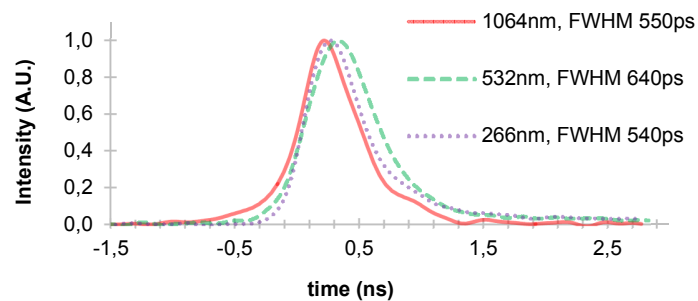
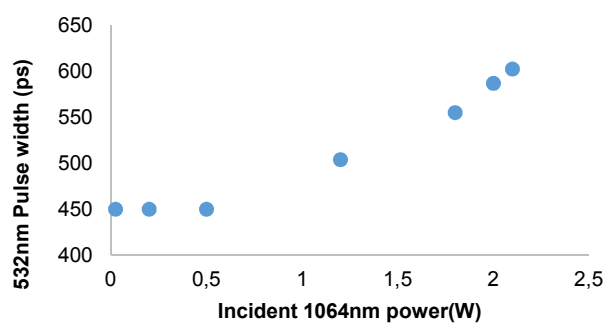


Figure 6: Pulse widths of IR, green and UV beams



Conclusion

In conclusion, we demonstrate here a 266 nm laser source based on the fourth harmonic generation of a single-crystal fiber MOPA with LBO/BBO crystals. We reach 22.7% of total conversion efficiency from infrared to UV. We obtain a 266 nm output of 530 mW, at 1 kHz with pulse duration of 540 ps. By dividing the energy with the FWHM pulse width, this represents a peak power of 980 kW. We measure the UV beam profile and determine its M^2 to be <2 . To the best of our knowledge, this is the first realization of a 266 nm sub nanosecond source based on passively Q-switched oscillator with MW peak power combined with half-watt average power. This work demonstrates the potential of single-crystal fiber amplifiers for high performance UV MOPA systems.

Loïc Deyra acknowledges the DGA for the funding of his PhD. We thank Alain Maillard (LMOPS Laboratory of University de Lorraine and Supelec, France) and Philippe Villeval (Cristal Laser, France) for the elaboration, orientation, cutting and polishing of the BBO crystals.

References

- R. Bhandari, T. Taira, A. Miyamoto, Y. Furukawa, and T. Tago, *Optical Materials express*, vol. 2, no. 7, pp. 907–913 (2012)
- Y. Zaouter, M. Hanna, F. Morin, M. Tonin, R. Maleck, C. Hoenninger, E. Mottay, and P. Georges, *Lasers, Sources, and Related Photonic Devices*, OSA Technical Digest (CD) (Optical Society of America, 2012), paper FTh5A.2.
- S. Pierrot, F. Liegeois, J. Saby, B. Cocquelin, Y. Hernandez, F. Salin, and D. Giannone, *Fiber Laser Applications*, OSA Technical Digest (CD) (Optical Society of America, 2011), paper JWA5.
- I. Martial, F. Balembois, J. Didierjean, and P. Georges, *Optic Express*, vol. 19, no. 12, pp. 11667–79 (2011)
- Rakesh Bhandari and Takunori Taira, *Opt. Express* **19**, 19135-19141 (2011)
- Wang, G., Geng, A., Bo, Y., Li, H., Sun, Z., Bi, Y., Cui, D., et al. (2006). *Optics Communications*, 259(2), 820–822
- A. J. Merriam, J. J. Jacob, D. S. Bethune, and J. A. Hoffnagle, OSA Technical Digest Series (CD) (Optical Society of America, 2007), paper MB11.
- S. Chénais, F. Druon, and S. Forget, *Progress in Quantum Electronics, Volume 30, Issue 4*, p. 89-153 (2006)
- J. Didierjean, E. Herault, F. Balembois, and P. Georges, *Optics express*, vol. 16, no. 12, pp. 8995–9010 (2008)
- M. Takahashi, A. Osada, A. Dergachev, P. F. Moulton, M. Cadatal-Raduban, T. Shimizu, and N. Sarukura, *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 49, no. 8, p. 080211, Aug. (2010)
- Z. M. Liao, S. A. Payne, J. W. Dawson, A. D. Drobshoff, C. A. Ebberts, D. M. Pennington, I. Jovanovic, and L. R. Taylor, *Nonlinear Optics: Materials, Fundamentals and Applications*, Technical Digest (CD) (Optical Society of America, 2004), paper WD17.
- M. Takahashi, A. Osada, A. Dergachev, P. F. Moulton, M. Cadatal-raduban, T. Shimizu, and N. Sarukura, *Journal of Crystal Growth*, vol. 318, pp. 606–609 (2011)

Hybrid MOPA high-power narrow-linewidth nanosecond laser source at 257 nm

Xavier Délen,^{1,*} Loïc Deyra,¹ Aurélien Benoit,^{2,3} Marc Hanna,¹ François Balembois,¹ Benjamin Cocquelin,² Damien Sangla,² François Salin,² Julien Didierjean,⁴ and Patrick Georges¹

¹Laboratoire Charles Fabry, Institut d’Optique, CNRS, Univ Paris Sud,
2 avenue Augustin Fresnel, 91127 Palaiseau, France

²Eolite systems, 11 avenue Canteranne, 33600 Pessac, France

³Institut de recherche XLIM, UMR CNRS/Université de Limoges 7252, 123 avenue Albert Thomas, 87060 Limoges, France

⁴FiberCryst, La Doua, Batiment L’atrium, Boulevard Latarjet, 69616 Villeurbanne, France

*Corresponding author: xavier.delen@institutoptique.fr

Received Month X, XXXX; revised Month X, XXXX; accepted Month X, XXXX; posted Month X, XXXX (Doc. ID XXXXX); published Month X, XXXX

We report on a high-power narrow-linewidth pulsed laser source emitting at a wavelength of 257 nm. The system is based on a MOPA architecture, with Yb-doped fiber preamplifiers, a Yb:YAG single crystal fiber power amplifier used to overcome the Brillouin limitation in glass fiber and nonlinear frequency conversion stages. This particularly versatile architecture allows the generation of Fourier transform-limited 15 ns pulses at 1030 nm with 22 W of average power and a diffraction limited beam ($M^2 < 1.1$). At a repetition rate of 30 kHz, 106 μ J UV pulses are generated corresponding to an average power of 3.2 W.

© 2013 Optical Society of America

OCIS Codes: 140.3610, 060.3510, 190.0190.

There is an increasing need for narrow linewidth, high average power ultraviolet (UV) laser sources for high resolution spectroscopy, remote environmental sensing, laser-induced fluorescence, semiconductor inspection, and LIDAR applications [1,2]. A standard way of designing efficient sources in the UV is to frequency convert near infrared (IR) diode-pumped solid-state lasers [3,4]. In this case, obtaining high nonlinear conversion efficiency requires a large peak power in the fundamental wave. At a fixed repetition rate and average power, this results in a tradeoff between attainable linewidth, related to the pulse duration, and the final nonlinearly converted average power.

Ytterbium-doped fiber amplifiers are particularly attractive to design high power sources at 1030 nm, providing compactness, efficiency, and high beam quality. In narrow linewidth regime (< 100 MHz), the physical effect that limits the achievable power is stimulated Brillouin scattering (SBS). The use of large mode area (LMA) fibers and various SBS mitigating techniques has allowed scaling up of the peak power to around 1 kW in a 10 MHz bandwidth [5]. However, this peak power level is still too low for efficient frequency quadrupling to reach the wavelength of 257 nm. In this case, resonant cavities might be used to generate UV light efficiently [6], at the price of an increased complexity.

Recently, single-crystal fiber (SCF) amplifiers have demonstrated a great potential to scale fiber systems beyond their limits fixed by nonlinear effects, while retaining the possibility to generate high average powers [7]. This power scaling has been recently reported in a chirped-pulse femtosecond amplifier [8], allowing the generation of 1 mJ 380 fs pulses with a moderate stretching ratio impossible to attain with glass fibers due to self phase modulation.

In this Letter, we demonstrate that Yb:YAG SCF amplifiers can be used to scale the power of SBS-limited 15

- 150 ns pulse ytterbium-doped fiber sources. Subsequent single-pass nonlinear conversion in bulk crystals permits the generation of Fourier transform-limited 15 ns pulses with 3.2 W of average power, or 150 ns pulses with 430 mW of average power at a repetition rate of 30 kHz at 257 nm.

The source is built following a master oscillator power amplifier (MOPA) architecture similar to [9], with an experimental setup depicted in Fig. 1. It starts with a CW single-frequency distributed-feedback (DFB) laser diode emitting 5 mW at 1030 nm with spectral linewidth below 1 MHz. First, this signal is amplified to 50 mW in a single mode fiber preamplifier with 6 μ m core diameter. A fiber-pigtailed acousto-optic modulator (AOM) is then used to carve nanosecond pulses with a variable duration of 15 – 150 ns at a high repetition rate of 330 kHz in order to limit the amplified spontaneous emission (ASE). This signal is amplified in 2 stages of single mode 6 μ m and 15 μ m core diameter Yb-doped fiber amplifiers to an average power of 400 mW. A second AOM further decreases the repetition rate to a few tens of kHz before coupling to the final LMA fiber amplifier. This amplifier is made of a 2 m-long polarizing double-clad 40/200 μ m Yb-doped photonic crystal fiber pumped by a 25 W fiber-coupled laser diode system at 976 nm. The beam is then further amplified in an Yb:YAG SCF amplifier and converted into UV through a fourth harmonic generation stage.

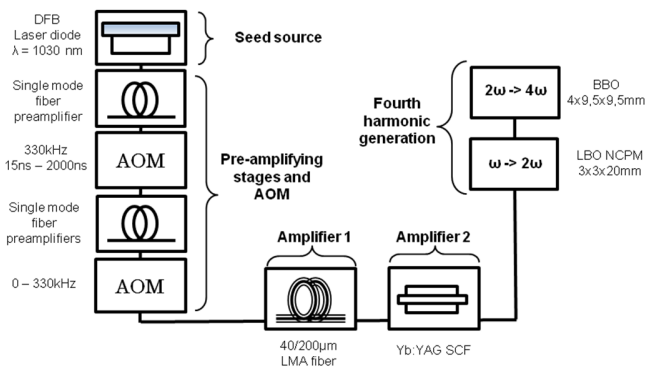


Fig. 1. (Color online) Experimental setup.

To study the SBS threshold in the last fiber amplification stage and characterize the amplified signal, we measure the output spectral linewidth. Part of the CW signal from the DFB diode is sent into a 2 km long optical fiber and used to establish a beating signal with the amplified output after the LMA fiber or the SCF amplification stage. It allows for heterodyne measurement of the narrow linewidth spectrum after different amplification stages [10]. The initial optical frequency is shifted twice by the AOMs through the amplification process. The beating frequency is observed at 90 MHz corresponding to the difference between the two shifts of 110 MHz and 200 MHz of the AOMs. For example, figure 2 shows the beating signal and its Fourier transform for 150 ns pulses after the LMA fiber. In this case the linewidth at FWHM is 7 MHz which is close to the Fourier transform limit.

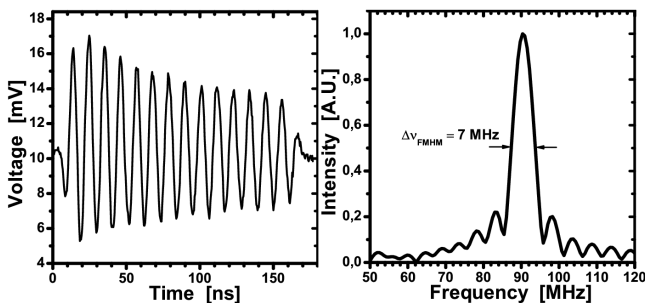


Fig. 2. (Color online) Left: Beating signal obtained after the LMA fiber amplifier for a 150 ns pulse. Right: Fourier transform of the beating signal.

The final repetition rate is first set to 10 kHz to study the SBS threshold as a function of linewidth at the output of the LMA fiber amplifier. The SBS threshold is detected by looking at the temporal profile of the output pulses, which is distorted when significant SBS occurs. Since the output pulse energy level is over 100 μJ , significant saturation is observed in the fiber amplifier, leading to possible modifications of the temporal profile both in intensity and phase in the time domain as shown on figure 3 (right). The heterodyne measurement is therefore used to measure accurately the optical linewidth for each selected pulse duration. Figure 3 (left) shows that the large core diameter and short length of the fiber power amplifier allow to reach peak powers of 7 kW for 15 ns pulses (35

MHz linewidth at FWHM), with an SBS threshold decreasing to about 3 kW for pulse durations above 75 ns corresponding to linewidth below 13 MHz. Although at the state of the art for narrow linewidth fiber amplifier, the peak powers obtained are not sufficient for efficient frequency-quadrupling.

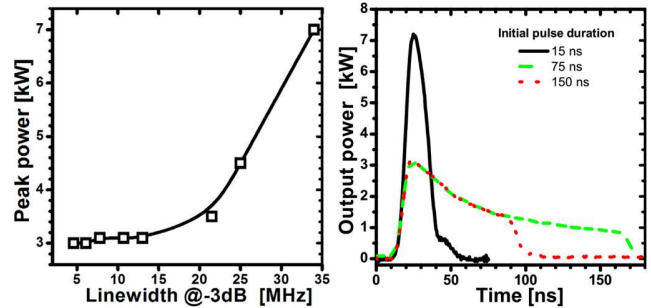


Fig. 3. (Color online) Left: SBS threshold peak power at 10 kHz as a function of the output linewidth in the LMA fiber amplifier. Right: Pulse shapes after the LMA fiber amplifier for different initial durations.

To further scale the power, an Yb:YAG SCF double pass amplifier is added at the output of the LMA fiber amplifier. The crystal has an Yb doping concentration of 1 at. %, a diameter of 1 mm and a length of 4 cm. It is set in a water cooled mount at 16 °C and pumped in single pass by a 75 W high brightness laser diode system at 940 nm coupled to a 105 μm fiber with numerical aperture 0.15. The free-propagating signal waist diameter inside the SCF is 400 μm , and the highly multimode pump beam is focused on the same diameter inside the crystal rod. In the SCF, the pulse energy is not limited by SBS but by damage threshold on the AR coated facets, occurring at 5 to 7 J/cm^2 for 500 ps pulses. The repetition rate was therefore adjusted to 30 kHz to remain well below this limit for reliable operation of the system. Figure 4 (left) shows the output power as a function of pump power, for input pulse duration of 15 ns and input average powers ranging from 100 mW to 2.5 W. Between 95% and 97% of the pump power is absorbed by the SCF depending on the seed power. A maximum average power of 22.5 W is reached, corresponding to an optical-to-optical efficiency of 27 %, and pulse energy of 750 μJ . It corresponds to a peak power higher than 50 kW which is 7 times higher than the peak power at SBS threshold in glass fiber for this pulse duration.

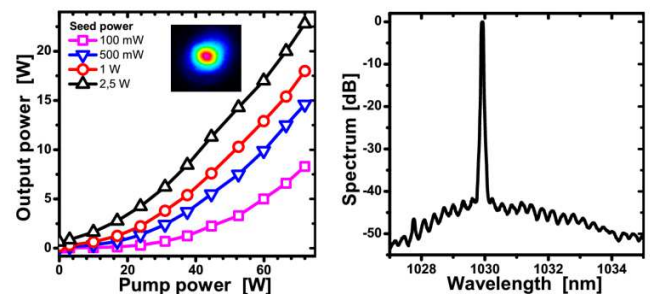


Fig. 4. (Color online) Left: output power as a function of pump power for the SCF amplifier (Inset: beam profile at full pump power for a seed power of 2.5 W). Right: Optical spectrum at maximum power and pulsewidth of 150 ns

For 22 W average power, the optical spectrum obtained using an optical spectrum analyzer is displayed on Fig. 4 (right). The spectrum is essentially free of ASE with over 97% of the power in the main peak. Heterodyne linewidth measurements for pulses amplified in the SCF confirm that they remain Fourier-transform limited, resulting in linewidths of 5 to 35 MHz at 1030 nm depending on the pulse duration. As shown in figure 4 (inset), the beam quality at the output of the SCF is diffraction-limited with $M^2 < 1.1$ in both transverse directions.

Frequency conversion to 257 nm is performed using two successive second-harmonic generation (SHG) stages. The first stage uses a $3 \times 3 \times 20$ mm LBO crystal cut for non-critically phase matched type I SHG at 1030 nm. It is AR coated at 1030 nm and 515 nm, and mounted in an oven at 187.8°C. The amplified beam is focused on a diameter of 120 μm inside the crystal. The power obtained at 515 nm and conversion efficiency are plotted as a function of fundamental power in Fig. 5 (left) for a pulse duration of 15 ns. The efficiency reaches 58% for a maximum power of 12.4 W at 515 nm, showing that the peak power is sufficient for efficient frequency conversion. The green beam quality remains excellent, with M^2 values lower than 1.1 in both directions.

The second SHG stage is based on an uncoated $4 \times 9.5 \times 9.5$ mm BBO crystal cut for critically phase-matched type I SHG at 515 nm. No temperature regulation of the crystal was implemented. To maximize the conversion efficiency, we used elliptical focusing down to $40 \times 150 \mu\text{m}$ waists to remain within the angular acceptance of the crystal. The power obtained at 257 nm and conversion efficiency of the second SHG stage are displayed in Fig. 5 (right). A maximum power of 3.2 W is obtained, an unprecedented value to our knowledge for a single frequency laser at 257 nm without using nonlinear conversion in resonant cavities. Although the UV average power is stable for hours below 2 W, above this level, power instabilities related to absorption and thermal effects in the crystal start to appear. An optimized thermal management of the BBO crystal should allow increasing this 2 W threshold for appearance of thermal instabilities.

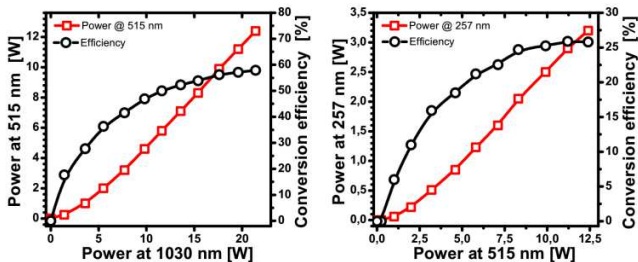


Fig. 5. (Color online) Left: Power at 515 nm and conversion efficiency as a function of input power at 1030 nm. Right: Power at 257 nm and conversion efficiency as a function of input power at 515 nm. The fundamental pulse duration is 15 ns.

To highlight the tradeoff between linewidth and available average power, Table 1 summarizes the results obtained for pulse durations ranging from 15 ns to 150 ns at

1030 nm after amplification. The generated UV power remains above 400 mW in all cases, making this source a versatile tool for LIDAR and remote sensing applications.

Δt (ns)	15	50	100	150
$\Delta \nu$ (MHz)	40	21	11	6.2
Power at 515 nm (W)	12.4	10.4	7.8	6.3
UV power at 257 nm (W)	3.2	1.8	0.85	0.43

Table 1. Summary of the hybrid source performances for various initial pulsewidths at a repetition rate of 30 kHz.

In conclusion, we demonstrate the use of a Yb:YAG SCF amplifier to scale the peak power of SBS-limited Yb-doped single-frequency fiber-based MOPA sources. Furthermore, we show subsequent efficient nonlinear conversion to the fourth harmonic at 257 nm. The performance of the presented hybrid source is currently essentially limited by the available pump power and damage thresholds of coatings of the SCF and the LBO crystal. Higher pump power should also allow power scaling to the 50 W level at 1030 nm without any further modification of the system architecture. Frequency conversion efficiencies could also potentially be improved with higher damage thresholds of the coatings. We believe that this type of architecture could be the basis for next generation LIDAR systems in the UV spectral range.

The authors acknowledge the DGA for the funding of this project.

References

- [1] A. T. Case, D. Tan, R. E. Stickel, J. Mastromarino, *App. Opt.* 45, 2306-2309 (2006).
- [2] M. Ostermeyer, P. Kappe, R. Menzel, V. Wulfmeyer, *Appl. Opt.* 44 582-590 (2005).
- [3] M. Laurila, J. Saby, T. T. Alkeskjold, L. Scolari, B. Cocquelin, F. Salin, J. Broeng, and J. Lægsgaard, *Opt. Express* 19, 10824-10833 (2011).
- [4] A. Diening, S. McLean, A. Starodoumov, *Fibers Lasers VI: technology, systems and applications*, Proceedings of SPIE, vol. 7195, article 71950H (2009).
- [5] Y. Jeong, J. Nilsson, J. K. Sahu, D. N. Payne, R. Horley, L. M. B. Hickey, P. W. Turner, *IEEE J. Select. Top. Quant. Elec.* 13, 546-551 (2007).
- [6] T. Sudmeyer, Y. Imai, H. Masuda, N. Eguchi, M. Saito, and S. Kubota, *Opt. Express* 16, 1546-1551 (2008).
- [7] Y. Zaouter, I. Martial, N. Aubry, J. Didierjean, C. Hönninger, E. Mottay, F. Druon, P. Georges, and F. Balembois, *Opt. Lett.* 36, 748-750 (2011).
- [8] X. Délen, Y. Zaouter, I. Martial, N. Aubry, J. Didierjean, C. Hönninger, E. Mottay, F. Balembois, P. Georges, *Opt. Lett.* 38, 109-111 (2013).
- [9] R. Zhu, J. Wang, J. Zhou, J. Liu, and W. Chen, *Appl. Opt.* 51, 3826-3831 (2012).
- [10] T. Okoshi, K. Kikuchi, A. Nakayama, *Electron. Lett.* 16 630-631 (1980).

References (full citations)

- [1] A. T. Case, D. Tan, R. E. Stickel, J. Mastromarino, “Narrow-linewidth, tunable ultraviolet, Ti:sapphire laser for environmental sensing,” *App. Opt.* 45 2306-2309 (2006).
- [2] M. Ostermeyer, P. Kappe, R. Menzel, V. Wulfmeyer, “Diode-pumped Nd:YAG master oscillator power amplifier with high pulse energy, excellent beam quality, and frequency-stabilized master oscillator as a basis for a next-generation lidar system,” *Appl. Opt.* 44 582-590 (2005).
- [3] M. Laurila, J. Saby, T. T. Alkeskjold, L. Scolari, B. Cocquelin, F. Salin, J. Broeng, and J. Lægsgaard, “Q-switching and efficient harmonic generation from a single-mode LMA photonic bandgap rod fiber laser,” *Opt. Express* 19, 10824-10833 (2011).
- [4] A. Dening, S. McLean, A. Starodoumov, “High average power 258 nm generation in a nanosecond fiber MOPA system,” *Fibers Lasers VI: technology, systems and applications*, Proceedings of SPIE, vol. 7195, article 71950H (2009).
- [5] Y. Jeong, J. Nilsson, J. K. Sahu, D. N. Payne, R. Horley, L. M. B. Hickey, P. W. Turner, “Power scaling of single-frequency ytterbium-doped fiber master-oscillator power-amplifier sources up to 500 W,” *IEEE J. Select. Top. Quant. Elec.* 13, 546-551 (2007).
- [6] T. Sudmeyer, Y. Imai, H. Masuda, N. Eguchi, M. Saito, and S. Kubota, “Efficient 2nd and 4th harmonic generation of a single-frequency, continuous-wave fiber amplifier,” *Opt. Express* 16, 1546-1551 (2008).
- [7] Y. Zaouter, I. Martial, N. Aubry, J. Didierjean, C. Hönninger, E. Mottay, F. Druon, P. Georges, and F. Balembois, “Direct amplification of ultrashort pulses in μ -pulling-down Yb:YAG single crystal fibers,” *Opt. Lett.* 36, 748-750 (2011).
- [8] X. Délen, Y. Zaouter, I. Martial, N. Aubry, J. Didierjean, C. Hönninger, E. Mottay, F. Balembois, P. Georges, “Yb:YAG single crystal fibre power amplifier for femtosecond sources,” *Opt. Lett.* 38, 109-111 (2013).
- [9] Ren Zhu, Juntao Wang, Jun Zhou, Jiqiao Liu, and Weibiao Chen, “Single-frequency pulsed laser source with hybrid MOPA configuration,” *Appl. Opt.* 51, 3826-3831 (2012).
- [10] T. Okoshi, K. Kikuchi, A. Nakayama, “Novel method for high resolution measurement of laser output spectrum,” *Electron. Lett.* 16 630-631 (1980).

LISTE DES PUBLICATIONS ET CONFÉRENCES DE L'AUTEUR

Articles dans des revues internationales avec comité de lecture

Deyra, L., Martial, I., Balembois, F., Diderjean, J., & Georges, P. (2013). Megawatt peak power, 1 kHz, 266 nm sub nanosecond laser source based on single-crystal fiber amplifier. *Applied Physics B*, 7–10.

Deyra, L., Martial, I., Didierjean, J., Balembois, F., & Georges, P. (2013). 3W , 300μJ , 25ns pulsed 473nm blue laser based on actively Q-switched Nd : YAG single-crystal fiber oscillator at 946 nm. *Optics Letters*, 38(16), 3013–3016.

Délen, X., **Deyra, L.**, Benoit, A., Hanna, M., Balembois, F., Cocquelin, B., Sangla, D., Salin, F., Didierjean, J., Georges, P. (2013). Hybrid master oscillator power amplifier nanosecond laser source at 257 nm. *Optics Letters*, 38(6), 995–997.

Deyra, L., Ilas, S., Délen, X., Loiseau, P., Balembois, F., Aka, G., Salin, F., Georges, P. (2013). Third harmonic generation at 343nm in nonlinear Ca₅(BO₃)₃F (CBF) crystals. *Optical Materials Express*, 3(11), 1798–1802.

Deyra, L., Martial, I., Didierjean, J., Balembois, F., Georges, P. (2014). Deep-UV 236.5 nm laser by fourth harmonic generation of a single-crystal fiber Nd:YAG oscillator. *Optics Letters*, 39(8), 2236–2239.

Deyra, L., Balembois, F., Guilbaud, A., Villeval, P., & Georges, P. (2014). Mechanical phase matching of birefringent non-linear crystals. *Optics Express*, To be published

Brevet

« Mechanical phase-matching », *dépôt en cours*

Congrès internationaux présentés par l'auteur

Deyra, L., Balembois, F., Délen, X., Martial, I., Aubry, N., Georges, P. “1mJ, 15kHz Q-switched laser at 946nm in Nd:YAG single-crystal fiber”, *Europhoton 2012* (Stockholm), paper IW5D.3, **Oral**

Deyra, L., Liljestrand, C., Didierjean, J., Canalias, C., Laurell, F., Balembois, F., Georges, P. “High power single-crystal fiber CW 946 nm laser and blue generation based on Rubidium-doped PPKTP”, *CLEO 2013* (Munich), paper CA-2.2, **Oral**

Deyra, L., Martial, I., Balembois, F., Diderjean, J., & Georges, P. (2013). Megawatt peak power, 1 kHz, 266 nm sub nanosecond laser source based on single-crystal fiber amplifier. *CLEO 2013* (Munich), paper CA-1.5, **Oral**

Deyra, L., Ilas, S., Délen, X., Loiseau, P., Balembois, F., Aka, G., Salin, F., Georges, F., Third harmonic generation at 343 nm in nonlinear Ca₅(BO₃)₃F (CBF), *Nonlinear Optics 2013* (Hawaïi), paper NTu3B.4, **Oral**

Deyra, L., Délen, X., Mennerat, G., Villeval, P., Balembois, Georges, F., Potential of RbTiOPO₄ for second harmonic generation of Yb-doped lasers, *Nonlinear Optics 2013* (Hawaïi), paper NW4A.26, **Poster**

Deyra, L., Ilas, S., Délen, X., Loiseau, P., Balembois, F., Aka, G., Salin, F., Georges, P. Nonlinear properties of non-hygroscopic Ca₅(BO₃)₃F crystal at 343 nm, *ASSL 2013* (Paris), paper AM3A.3, **Oral**

Deyra, L., Délen, X., Mennerat, G., Villeval, P., Balembois, Georges, F., Second harmonic generation at 515 nm in RTP with temperature insensitive and non-critical phase-matching, *ASSL 2013* (Paris), paper AM4A.39, **Poster, Best Poster Award in Material's session**

Deyra, L., Martial, I., Didierjean, J., Balembois, F., & Georges, P., Q-switched quasi-three level Nd:YAG laser at 946 nm based on single crystal fiber and second harmonic generation, *ASSL 2013* (Paris), paper ATu3A.31, **Poster**

Deyra, L., Martial, I., Didierjean, J., Balembois, F., & Georges, P., Development of a compact, high energy laser source at 236.5nm, *Optro 2014* (Paris), paper 2970408, **Oral**

Autres Congrès

Tsaknakis, G., Evangelatos, C., Bakopoulos, P., Papadopoulos, D., Avdikos, G., **Deyra, L.**, Tzeremes, G. (2013). Preliminary experimental and simulation results of the ESA QOMA project: a new DPSS laser source suitable for space applications. *Proceedings of SPIE* (p. 87800R).

Délen, X., **Deyra, L.**, Benoit, A., Hanna, M., Balembois, F., Cocquelin, B., Sangla, D., Salin, F., Didierjean, J., Georges, P., Narrow-linewidth UV laser source at 257 nm, *CLEO 2013* (Munich), paper CA-1.3, **Oral**

BIBLIOGRAPHIE

- Abromavičius, G. et al., 2011. Optical resistance and spectral properties of anti-reflective coatings deposited on LBO crystals by ion beam sputtering. *Lithuanian Journal of Physics*, 51(4), pp.303–308.
- Aka, G. et al., 1997. Linear-and nonlinear-optical properties of a new gadolinium calcium oxoborate crystal, $\text{Ca}_4\text{GdO}(\text{BO}_3)_3$. *JOSA B*, 14(9), pp.2238–2247.
- Anon, 2009. Beyond the diffraction limit. *Nature Photonics*, 3(7), pp.361–361.
- Armstrong, J. et al., 1962. Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric. *Physical Review*, 127(6).
- Ashfold, M.N.R. et al., 2004. Pulsed laser ablation and deposition of thin films. *Chemical Society reviews*, 33(1), pp.23–31.
- Ashkin, A., Boyd, G.D. & Dziedzic, J.M., 1963. Observation of continual optical harmonic generation with gas lasers. *Physical Review*, 11(1), pp.14–17.
- Ault, E.R., Bradford, R.S. & Bhaumik, M.L., 1975. High-power xenon fluoride laser. *Applied Physics Letters*, 27(7), p.413.
- Bahouka, A., 2006. *Comparaison des propriétés optiques de beta-BBO obtenu par croissance TSSG et tirage Czochralskien vue d'optimiser la génération de rayonnements UV*. Thèse réalisée au LMOPS de Metz.
- Balembois, F. et al., 2011. Low-wavelength emission of Nd-doped lasers. *Laser & Photonics Reviews*, 18.
- Basov, N. et al., 1970. Laser operating in the vacuum region of the spectrum by excitation of liquid xenon with an electron beam. *JETP lett*, 12, pp.1–2.
- Bass, M. et al., 2001. *Handbook of optics*, Optical Society of America.
- Basting, D., Pippert, K. & Stamm, U., 2002. History and future prospects of excimer laser technology. *Riken Review*, 43(43), pp.14–22.
- Bhandari, R. et al., 2012. 3 MW peak power at 266 nm using Nd : YAG / Cr 4 + : YAG microchip laser and fluxless-BBO. *Optical Materials express*, 2(7), pp.907–913.
- Bhandari, R. & Taira, T., 2011. > 6 MW peak power at 532 nm from passively Q-switched Nd:YAG/Cr4+:YAG microchip laser. *Optics express*, 19(20), pp.19135–41.
- Bhar, G.C., Chatterjee, U. & Datta, P., 1990. Enhancement of Second Harmonic Generation by Double-Pass Configuration in Barium Borate. *Applied Physics B*, 319, pp.317–319.
- Bied, A. El & Sulem, J., 2003. Adaptation du mode opératoire pour la réalisation d'essais en compression vraie sur les roches. *Revue française de géotechnique*.

- Bityurin, N. et al., 2003. Models for laser ablation of polymers. *Chemical reviews*, 103(2), pp.519–552.
- Bosenberg, W.R., Cheng, L.K. & Bierlein, J.D., 1994. Optical parametric frequency conversion properties of KTiOAsO_4 . *Applied Physics Letters*, 65(22), p.2765.
- Boulanger, B. & Fejer, M., 1994. Study of KTiOPO_4 gray-tracking at 1064, 532, and 355 nm. *Applied Physics Letters*, 65, pp.2401–2403.
- Boullet, J. et al., 2010. Millijoule-class Yb-doped pulsed fiber laser operating at 977 nm. *Optics letters*, 35(10), pp.1650–2.
- Boyd, G.D. & Kleinman, D.A., 1968. Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams. *Journal of Applied Physics*, 39(8), p.3597.
- Brau, C.A. & Ewing, J.J., 1975. 354-nm laser action on XeF. *Applied Physics Letters*, 27(8), p.435.
- Chen, C.T. et al., 1985. A new ultraviolet SHG crystal beta-BaB₂O₄. *Sci. Sin*, 3(18), pp.235–243.
- Chen, F. et al., 2010. High-repetition-rate, high-peak-power, linear-polarized 473 nm Nd : YAG / BiBO blue laser by extracavity frequency doubling. *Optics Letters*, 35(16), pp.2714–2716.
- Chen, G., Wu, Y. & Fu, P., 2006. Growth and characterization of a new nonlinear optical crystal $\text{Ca}_5(\text{BO}_3)_3\text{F}$. *Journal of Crystal Growth*, 292(2), pp.449–453.
- Chen, X.B. et al., 2003. Study of 946 nm microchip self-Q-switched monofrequency laser. *Optics Communications*, 224(4-6), pp.275–280.
- Chénaïs, S., Druon, F. & Forget, S., 2006. On thermal effects in solid-state lasers: The case of ytterbium-doped materials. *Progress in quantum ...*
- Cheng, L., Cheng, L. & Galperin, J., 1994. Crystal growth and characterization of KTiOPO_4 isomorphs from the self-fluxes. *Journal of Crystal Growth*, 137, pp.107–115.
- Christensen, C.P., 1987. *CW excimer laser*, PN.
- Clarkson, W. a, Felgate, N.S. & Hanna, D.C., 1999. Simple method for reducing the depolarization loss resulting from thermally induced birefringence in solid-state lasers. *Optics letters*, 24(12), pp.820–822.
- Damien, S., 2009. *Nouveaux concepts pour des lasers de puissance : fibres cristallines dopées Ytterbium et pompage direct de cristaux dopés Néodyme*. Thèse effectuée à l'Université Paris-Sud (Paris XI).
- Dekker, P. & Dawes, J., 2004. Characterisation of nonlinear conversion and crystal quality in Nd- and Yb-doped YAB. *Optics express*, 12(24), pp.5922–5930.
- Délen, X. et al., 2011. 34 W continuous wave Nd:YAG single crystal fiber laser emitting at 946 nm. *Applied Physics B*, 104(1), pp.1–4.

- Délen, X. et al., 2013. Hybrid master oscillator power amplifier nanosecond laser source at 257 nm. *Optics Letters*, 38(6), pp.995–997.
- Deyra, L., Martial, I., et al., 2013. 3W , 300μJ , 25ns pulsed 473nm blue laser based on actively Q-switched Nd : YAG single-crystal fiber oscillator at 946 nm. *Optics Letters*, 38(16), pp.3013–3016.
- Deyra, L. et al., 2014. Mechanical phase matching of birefringent non-linear crystals. *Optics Express*, To be publ.
- Deyra, L., Ilas, S., et al., 2013. Third harmonic generation at 343nm in nonlinear Ca₅(BO₃)₃F (CBF) crystals. *Optical Materials Express*, 3(11), pp.1798–1802.
- Didierjean, J., 2007. *Etude thermique des cristaux lasers, Réalisation de lasers à fibres monocristallines*. Thèse effectuée à l'Université Paris-Sud (Paris XI).
- Didierjean, J. et al., 2008. Thermal conductivity measurements of laser crystals by infrared thermography. Application to Nd:doped crystals. *Optics express*, 16(12), pp.8995–9010.
- Divall, M. et al., 2005. Two-photon-absorption of frequency converter crystals at 248 nm. *Applied Physics B*, 81(8), pp.1123–1126.
- Ewing, J.J. & Brau, C.A., 1975. Laser action on the $2\Sigma+1/2 \rightarrow 2\Sigma+1/2$ bands of KrF and XeCl. *Applied Physics Letters*, 27(6), p.350.
- Fang, S. et al., 2013. Growth and optical properties of nonlinear LuAl₃(BO₃)₄ crystals. *Optics Express*, 21(14), pp.16415–16423.
- Feldman, R. et al., 2008. Effect of hot acid etching on the mechanical strength of ground YAG laser elements. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 69(4), pp.839–846.
- Feldman, R. et al., 2011. Strengthening of poly-crystalline (ceramic) Nd:YAG elements for high-power laser applications. *Optical Materials*, 33(5), pp.695–701.
- Franken, P. & Hill, A., 1961. Generation of optical harmonics. *Physical Review ...*, 7(1), pp.118–120.
- Frede, M. et al., 2004. High power fundamental mode Nd:YAG laser with efficient birefringence compensation. *Optics Express*, 12(15), p.3581.
- Friebe, J. et al., 2008. β-BaB₂O₄ deep UV monolithic walk-off compensating tandem. *Optics Communications*, 261(2), pp.300–309.
- Gale, G.M. et al., 1995. Sub-20-fs tunable pulses in the visible from an 82-MHz optical parametric oscillator. *Optics Letters*, 20(14), p.1562.
- Gallais, L. & Commandré, M., 2014. Laser-induced damage thresholds of bulk and coating optical materials at 1030 nm , 500 fs. *Applied Optics*, 53(4), pp.A189–A196.

- Gerstenberger, D.C., Trautmann, T.M. & Bowers, M.S., 2003. Noncritically phase-matched second-harmonic generation in cesium lithium borate. *Optics letters*, 28(14), pp.1242–1244.
- Gilman, J., 1961. Ultrahigh strength materials of the future. *Mech. Eng.*
- Gilvarry, J., 1961. Fracture of brittle solids. I. Distribution function for fragment size in single fracture (theoretical). *Journal of Applied Physics*, 32, p.400.
- Griffith, A., 1921. The phenomena of rupture and flow in solids. *Philosophical transactions of the royal society of London*, 221, pp.163–198.
- Guo, R. et al., 1995. Pyroelectric, dielectric, and piezoelectric properties of LiB3O5. *Journal of Applied Physics*, 78(12), p.7234.
- Hansson, G. et al., 2000. Transmission Measurements in KTP and Isomorphic Compounds. *Applied optics*, 39(27), pp.5058–69.
- Hara, H., Walsh, B.M. & Barnes, N.P., 2004. Tunability of a 946-nm Nd:YAG Microchip Laser by Use of a Double-Cavity Configuration. *Applied Optics*, 43(15), p.3171.
- Hara, K. et al., 2011. Fabrication of a new walk-off compensating BBO periodic structure by use of the room-temperature-bonding technique. In *NLO,OSA*. pp. 1–3.
- Herault, E., Balembois, F. & Georges, P., 2005. 491 nm Generation By Sum-Frequency Mixing of Diode Pumped Neodymium Lasers. *Optics express*, 13(15), pp.5653–5661.
- Hildenbrand, A. et al., 2009. Nanosecond laser induced damage in RbTiOPO₄: The missing influence of crystal quality. *Optics Express*, 17(20), pp.18263–18270.
- Hong, H. et al., 2013. Improvement and formation of UV-induced damage on LBO crystal surface during long-term high-power third-harmonic generation. *Optics Express*, 21(6), pp.7285–7293.
- Huang, Q. & Liang, J., 1981. The crystal growth of barium borate low temperature phase and the study of phase diagrams of related systems. *Acta Physica Sinica*.
- Ilas, S., 2014. *Élaboration et caractérisation de matériaux non linéaires pour la conception de dispositifs laser émettant dans l'ultraviolet*. Thèse effectuée à l'Université-Pierre-et-Marie-Curie.
- Isaenko, L.I. et al., 2001. Anisotropy of two-photon absorption in BBO at 264 nm. *Optics Communications*, 198, pp.4–9.
- Johansson, S. et al., 2007. An all solid-state UV source based on a frequency quadrupled, passively Q-switched 946 nm laser. *Optics express*, 15(2), pp.449–58.
- Kandasamay, R. et al., 2000. Analysis of Birefringence Compensation using a quarter wave plate in Solid-State Lasers. *Optical Review*, 7(2), pp.149–151.

- Kato, K., 1994. Temperature-tuned 90° phase-matching properties of LiB3O5. *IEEE journal of quantum electronics*, 30(12), pp.2950–2952.
- Kavita, K. & Das, P., 2001. Dissociation dynamics of fluorinated alkyl iodides at 222 and 236 nm. *Chemical physics letters*, 338, pp.118–122.
- Kawamura, T. et al., 2009. Effect of water impurity in CsLiB6O10 crystals on bulk laser-induced damage threshold and transmittance in the ultraviolet region. *Applied optics*, 48(9), pp.1658–1662.
- Kellermann, R. & Klein, H., 1955. Untersuchungen über den Einfluß der Reibung auf Vorspannung und Anzugsmoment von Schraubenverbindungen. *Konstruktion*.
- Kelly, A., 1987. *Strong Solids*, Oxford University Press; 3 edition.
- Kiriyama, H., Matsuoka, S. & Maruyama, Y., 2000. High-efficiency second harmonic generation in four-pass quadrature frequency conversion scheme. *Proceedings of SPIE*, pp.499–502.
- Kitamura, R., Pilon, L. & Jonasz, M., 2007. Optical constants of silica glass from extreme ultraviolet to far infrared at near room temperature. *Applied Optics*, 46(33), p.8118.
- Kitano, H. et al., 2003. Efficient 355-nm generation in CsB3O5 crystal. *Optics letters*, 28(4), pp.263–265.
- Kleinman, D.A., Ashkin, A. & Boyd, G.D., 1966. Second-Harmonic Generation of Light by Focused Laser Beams. *Physical Review*, 144(1), pp.338–379.
- Kokh, a. et al., 2010. Growth of high quality large size LBO crystals for high energy second harmonic generation. *Journal of Crystal Growth*, 312(10), pp.1774–1778.
- Kondo, K. et al., 1998. Demonstration of long-term reliability of a frequency-quadrupled solid-state laser using BBO. *Optics letters*, 23(3), pp.195–197.
- Kouta, H., 1999. Wavelength Dependence of Repetitive-Pulse Laser-Induced Damage Threshold in β -BaB₂O₄. *Applied Optics*, 38(3), p.545.
- Kugler, N. et al., 1997. Investigation of the misalignment sensitivity of a birefringence-compensated two-rod Nd:YAG laser system. *Applied Optics*, 36(36), p.9359.
- Kumar, S.C. & Samanta, G.K., 2009. Second harmonic generation of ytterbium fiber laser in PPKTP and MgO:sPPLT. *Optics express*, 17(16), pp.1561–1563.
- Kurimura, S. et al., 2011. Quartz revisits nonlinear optics: twinned crystal for quasi-phase matching. *Optical Materials Express*, 1(7), pp.1367–1375.
- La, N. et al., 2012. 355nm laser generation based on NLBO crystal. *Optics Express*, 20(15), pp.16490–16493.

- Laroche, M. et al., 2013. 20 W continuous-wave cladding-pumped Nd-doped fiber laser at 910 nm. *Optics Letters*, 38(16), p.3065.
- Lawn, B.R., 1993. *Fracture of Brittle Solids*, Cambridge University Press.
- Liao, Z.M. et al., 2004. Thermally induced dephasing in periodically poled KTP frequency-doubling crystals. *Journal of the Optical Society of America B*, 21(12), p.2191.
- Liu, H. et al., 2011. Growth and optical properties of UV transparent YAB crystals. *Materials Research Innovations*, 15(2), pp.140–144.
- Liu, Q. et al., 2014. Investigation of UV laser-induced damage by precursors at the surface of LBO crystal. *JOSA B*, 31(2), pp.189–194.
- Lu, Q. et al., 1996. A novel approach for compensation of birefringence in cylindrical Nd: YAG rods. *Optical and Quantum Electronics*, 28(1), pp.57–69.
- Lü, Y.. et al., 2010. Efficient continuous-wave intracavity frequency-doubled Nd:YAG-LBO blue laser at 473 nm under diode pumping directly into the emitting level.pdf. *Laser Physics Letters*, 7(1), pp.25–28.
- Lupei, V., Aka, G. & Vivien, D., 2002. Quasi-three-level 946 nm CW laser emission of Nd : YAG under direct pumping at 885 nm into the emitting level. *Optics Communications*, 204, pp.399–405.
- Lv, L. et al., 2001. Diode-pumped self-Q-switched single-frequency 946-nm Nd³⁺, Cr⁴⁺:YAG microchip laser. *Optics Letters*, 26(2), p.72.
- Mangano, J.A. & Jacob, J.H., 1975. Electron-beam-controlled discharge pumping of the KrF laser. *Applied Physics Letters*, 27(9), p.495.
- Marion, J.E., 1987. Appropriate use of the strength parameter in solid-state slab laser design. *Journal of Applied Physics*, 62(5), p.1595.
- Martial, I. et al., 2011. Nd:YAG single-crystal fiber as high peak power amplifier of pulses below one nanosecond. *Optic Express*, 19(12), pp.11667–79.
- Martial, I., 2011. *Systèmes laser pompés par diode à fibres cristallines : oscillateurs Er : YAG , amplificateurs Nd : YAG*. Thèse effectuée à l'Université Paris-Sud (Paris XI).
- Merriam, A. & Jacob, J., 2007. Efficient nonlinear frequency conversion to 193-nm using cooled BBO. *Advanced solid-state ...*, 1, pp.10–12.
- Midwinter, J.E. & Warner, J., 1965. The effects of phase matching method and of uniaxial crystal symmetry on the polar distribution of second-order non-linear optical polarization. *Brit.J.Appl.Phys.*, 16, pp.1135–1142.
- Möller, S. et al., 2007. Insight to UV-induced formation of laser damage on LiB(3)O(5) optical surfaces during long-term sum-frequency generation. *Optics express*, 15(12), pp.7351–7356.

- Morimoto, Y., Miyazawa, S. & Kagebayashi, Y., 2001. Water-associated surface degradation of CLBO crystal during fourth harmonic generation. *J. Mater. Res*, 16(7), pp.21–29.
- Negres, R. a. et al., 2014. Growth model for laser-induced damage on the exit surface of fused silica under UV, ns laser irradiation. *Optics Express*, 22(4), pp.3824–3844.
- Neuenschwander, B., Weber, R. & Weber, H.P., 1995. Determination of the thermal lens in solid-state lasers with stable cavities. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 31(6), pp.1082–1087.
- Okada, M., Takizawa, K. & Ieiri, S., 1976. Second harmonic generation by periodic laminar structure of nonlinear optical crystal. *Optics Communications*, 18(3), pp.331–334.
- Okamoto, A., Kuniyasu, H. & Hattori, T., 2006. Detection of 30–40-nm Particles on Bulk-Silicon and SOI Wafers Using Deep UV Laser Scattering. *IEEE Transactions on Semiconductor Manufacturing*, 19(4), pp.372–380.
- Pallikaris, I.G. & Siganos, D.S., 1994. Excimer laser in situ keratomileusis and photorefractive keratectomy for correction of high myopia. *Journal of refractive and corneal surgery*, 10(5), pp.498–510.
- Pan, F. et al., 2002. Cracking mechanism in CLBO crystals at room temperature. *Journal of Crystal Growth*, 241, pp.129–134.
- Pellegrino, A., 1995. *Comportement fragile des roches: dégradation des propriétés élastiques et anisotropie induite par les contraintes*. Thèse effectuée à l'École Nationale des Ponts et Chaussées.
- Petersen, P.M., 2009. Threshold for strong thermal dephasing in periodically poled KTP in external cavity frequency doubling. *Applied Physics B*, 96, pp.827–831.
- Pimpec, F. Le et al., 2013. Quantum efficiency of technical metal photocathodes under laser irradiation of various wavelengths. *Applied Physics A*, 112(3), pp.647–661.
- Popov, S., Chernikov, S. & Taylor, J., 2000. 6-W Average power green light generation using seeded high power ytterbium fibre amplifier and periodically poled KTP. *Optics communications*, (January), pp.231–234.
- Puncken, O. et al., 2010. Intrinsic reduction of the depolarization in Nd:YAG crystals. *Optics express*, 18(19), pp.20461–20474.
- Regelskis, K. et al., 2012. Efficient second-harmonic generation of a broadband radiation by control of the temperature distribution along a nonlinear crystal. *Optics express*, 20(27), pp.28544–28556.
- Rothschild, M. & Bloomstein, T., 2003. Recent trends in optical lithography. *Lincoln Laboratory ...*, 14(2), pp.221–236.
- Royer, D. & Dieulesaint, E., 2000. *Elastic Waves in Solids II: Generation, Acousto-optic Interaction, Applications*, Springer.

- Samanta, G.K. et al., 2008. High-power, continuous-wave, second harmonic generation at 532 nm in periodically poled KTiOPO₄. *Optics Letters*, 33(24), pp.2955–2957.
- Scott, W.C., 1971. Birefringence compensation and TEM₀₀ mode enhancement in a Nd:YAG Laser. *Applied Physics Letters*, 18(1), p.3.
- Segonds, P. et al., 2007. Optical characterizations of YCa₄O(BO₃)₃ and Nd:YCa₄O(BO₃)₃ crystals. *Optical Materials*, 29(8), pp.975–982.
- Shakhverdova, I.P. et al., 2008. Mechanical properties of single crystalline and glassy lithium triborate. *Crystal Research and Technology*, 43(4), pp.339–349.
- Smith, A. V, Armstrong, D.J. & Alford, W.J., 1998. Increased acceptance bandwidths in optical frequency conversion by use of multiple walk-off-compensating nonlinear crystals. *JOSA B*, 15(1), pp.122–141.
- Smith, A.V., 1997. Computer code SNLO(available from the authors at no charge).
- Spiekermann, S., Karlsson, H. & Laurell, F., 2001. Efficient Frequency Conversion of a Passively Q-Switched Nd:YAG Laser at 946 nm in Periodically Poled KTiOPO₄. *Applied optics*, 40(12), pp.1979–82.
- Stolz, C.J., 2007. The National Ignition Facility: The world's largest optical system Y. Wang et al., eds. *Proceedings of SPIE*, 6834(683402), pp.1–9.
- Südmeyer, T. et al., 2008. Efficient 2nd and 4th harmonic generation of a amplifier. *Optics Express*, 16(3), pp.1546–1551.
- Takachiho, K. et al., 2013. Al Doping of CsLiB₆O₁₀ for High Resistance to Ultraviolet-Induced Degradation. *Applied Physics Express*, 6(2), p.022701.
- Takachiho, K. & Yoshimura, M., 2014. Ultraviolet laser-induced degradation of CsLiB₆O₁₀ and β -BaB₂O₄. *Optical Materials Express*, 4(3), pp.545–547.
- Takahashi, M., Osada, A., Dergachev, A., Moulton, P.F., et al., 2010. Effects of Pulse Rate and Temperature on Nonlinear Absorption of Pulsed 262-nm Laser Light in β -BaB₂O₄. *Japanese Journal of Applied Physics*, 49(8).
- Takahashi, M., Osada, A., Dergachev, A., Moulton, P.F., et al., 2010. Reduction of Thermal Dephasing by Tight Elliptical Focusing Perpendicular to Walk-off Plane Leading to Improved Fourth Harmonic Generation in β -BaB₂O₄. In *OSA*. pp. 2–3.
- Takamoto SASAKI, 1990. Growth of large KDP crystals for laser Fusion Experiments. *Journal of Crystal Growth*, 99, pp.820–826.
- Tovstonog, S. V et al., 2008. Thermal effects in high-power CW second harmonic generation in Mg-doped stoichiometric lithium tantalate. *Optics express*, 16(15), pp.11294–9.

- Tsvetkov, E.G. & Khramenko, G.G., 2005. Natural differentiation of borate melt components and its influence on nucleation and growth of barium metaborate (BBO) crystals. *Journal of Crystal Growth*, 275(1-2), pp.675–680.
- Tuschel, D.D. et al., 2010. Deep ultraviolet resonance Raman excitation enables explosives detection. *Applied spectroscopy*, 64(4), pp.425–432.
- Ukachi, T. et al., 1990. Measurements of non-critically phase-matched second-harmonic generation in a LBO crystal. *Applied Physics Letters*, 57(10), pp.980–982.
- Umemura, N. et al., 2006. Temperature phase-matching properties for harmonic generation in GdCa₄O(BO₃)₃ and Gd_xY_{1-x}Ca₄O(BO₃)₃. *Applied Optics*, 45(16), pp.3859–3863.
- Umezu, N. et al., 1998. Reliability of Czochralski-grown beta-BBO devices.pdf. *Proceedings of SPIESPIE*, 3244(0277).
- Vardoulakis, I. & Labuz, J., 1998. Continuum fracture mechanics of uniaxial compression on brittle materials. *International Journal of Solids and Structures*, 35(31-32), pp.4313–4335.
- Villaruel, J. et al., 2010. Analysis of photorefractive optical damage in lithium niobate: application to planar waveguides. *Optics express*, 18(20), pp.20852–20861.
- Wagner, F.R. et al., 2010. Multiple pulse nanosecond laser induced damage study in LiB₃O₅ crystals. *Optics express*, 18(26), pp.26791–26798.
- Wagner, F.R. et al., 2011. Nanosecond-laser-induced damage in potassium titanyl phosphate: pure 532 nm pumping and frequency conversion situations. *Applied optics*, 50(22), pp.4509–4515.
- Walsh, B.M. et al., 2000. Performance characteristics of a flashlamp-pumped 946-nm Nd:YAG laser system: Oscillator-amplifier system and frequency conversion. In *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2000). Technical Digest. Postconference Edition. TOPS Vol.39 (IEEE Cat. No.00CH37088)*. Opt. Soc. America, pp. 457–458.
- Wang, G. et al., 1995. Crystal growth and optical characterisation of Cr³⁺-doped YAl₃(BO₃)₄. *Journal of Crystal Growth*, 153(3-4), pp.169–174.
- Wang, L.R. et al., 2012. 31.6-W, 355-nm generation with La₂CaB₁₀O₁₉ crystals. *Applied Physics B*, 108(2), pp.307–311.
- Wang, S., Pasiskevicius, V. & Laurell, F., 2004. Dynamics of green light-induced infrared absorption in KTiOPO₄ and periodically poled KTiOPO₄. *Journal of Applied Physics*, 96(4), p.2023.
- Wang, Y. et al., 1995. The elastic and piezoelectric properties of a lithium triborate single crystal. *Applied Physics Letters*, 67(17), p.2462.
- Wynn, C.M. et al., 2008. Detection of condensed-phase explosives via and resonant excitation. *Applied Optics*, 47(31).

- Wynn, C.M. et al., 2010. Noncontact detection of homemade explosive constituents via photodissociation followed by laser-induced fluorescence. *Optics express*, 18(6), pp.5399–5406.
- Xia, M.J. & Li, R.K., 2013. Structure and optical properties of a noncentrosymmetric borate $\text{RbSr}_4(\text{BO}_3)_3$. *Journal of Solid State Chemistry*, 197, pp.366–369.
- Xu, K. et al., 2008. Nonlinear optical properties of $\text{Ca}_5(\text{BO}_3)_3\text{F}$ crystal. *Optics Express*, 16(22), pp.17735–17744.
- Xu, K., 2007. *Nouveaux matériaux non linéaires pour la conception de dispositifs laser solides émettant dans l'ultraviolet et le vert*. Thèse réalisée à l'Université Pierre et Marie Curie (Paris VI).
- Yagi, H. et al., 2007. The physical properties of transparent $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ Elastic modulus at high temperature and thermal conductivity at low temperature. *Ceramics international*, 33(5), pp.711–714.
- Yamada, M. et al., 1993. First-order quasi-phase matched LiNbO_3 waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second-harmonic generation. *Applied Physics Letters*, 62(5), p.435.
- Yan, R. et al., 2012. High-peak-power, short-pulse-width, LD end-pumped, passively Q-switched Nd:YAG 946nm laser. *Optics Communications*, 285(21-22), pp.4462–4465.
- Yanfei, L., Bao, L. & Zhang, A., 2010. Highly efficient Nd : YAG / LBO laser at 473 nm under direct 885-nm diode laser pumping. *Chinese Optics Letters*, 8(2), pp.808–810.
- Yiou, S. et al., 2001. High-Power Continuous-Wave Diode-Pumped Nd: YALO 3 Laser that Emits on Low-Gain 1378-and 1385-nm Transitions. *Applied Optics*, 40(18), pp.3019–3022.
- Yu, J. et al., 2011. Crystal growth and optical properties of $\text{YAl}_3(\text{BO}_3)_4$ for UV applications. *Journal of Crystal Growth*, 3, pp.1–5.
- Yu, X. et al., 2010. $\text{YAl}_3(\text{BO}_3)_4$: Crystal growth and characterization. *Journal of Crystal Growth*, 312(20), pp.3029–3033.
- Zaouter, Y., Hanna, M. & Morin, F., 2012. Frequency conversion from IR to UV of high peak power ultrafast fiber amplifier. *Fiber Lasers and ...*, pp.18–19.
- Zhang, P. & Yin, Z., 1998. Photorefractive effect in periodically poled lithium niobate and lithium tantalate and in MgO-doped lithium niobate. *Journal of the Korean Physical Society*, 32, pp.450–453.
- Zhang, Q. et al., 2011. High repetition rate laser pulse induced damage in KTP crystal: Gray-tracking and catastrophic damage. *Optik - International Journal for Light and Electron Optics*, 122(15), pp.1313–1318.
- Zhou, Y. et al., 2009. High-efficiency 355 nm generation in barium aluminum borate difluoride ($\text{BaAlBO}_3\text{F}_2$). *Optics letters*, 34(6), pp.746–748.

- Zondy, J. et al., 2003. Second-harmonic generation with monolithic walk-off-compensating periodic structures. II. Experiments. *America*, 20(8), pp.1695–1707.
- Zubrinov, I.I. et al., 2004. Elastic and elasto-optic properties of LiB₃O₅. *Ceramics international*, 30, pp.1675–1677.
- Zukauskas, A., Pasiskevicius, V. & Canalias, C., 2013. Second-harmonic generation in periodically poled bulk Rb-doped KTiOPO₄ below 400 nm at high peak-intensities. *Optics express*, 21(2), pp.1395–403.

DEVELOPPEMENTS ET NOUVEAUX CONCEPTS POUR LES LASERS SOLIDES ULTRAVIOLETS

Résumé

Au cours de cette thèse, nous étudions de nouveaux concepts et architectures lasers pour la réalisation de lasers solides pompés par diode de forte puissance convertis dans l'ultraviolet (UV). Ce type de laser est de plus en plus utilisé pour de nombreuses applications d'usinage et de spectroscopie. Nous démontrons d'abord une architecture laser originale à 236,5 nm basée sur la conversion de fréquence d'un oscillateur laser impulsif nanoseconde utilisant une fibre cristalline de Nd:YAG émettant à 946 nm. En étudiant les diverses limitations de ce type de laser et en optimisant les deux étages de conversion de fréquence, nous sommes parvenus à démontrer des performances record dans l'ultraviolet, bien au-dessus de l'état de l'art. Puis, dans le cadre du consortium ANR « UV-Challenge », nous avons étudié deux nouveaux cristaux non-linéaires pour la conversion de fréquence vers l'UV : le $\text{Ca}_5(\text{BO}_3)_3\text{F}$ (CBF), un nouveau cristal non-linéaire non-hygroscopique pour la génération de troisième harmonique à 343 nm, ainsi qu'un cristal bien connu, le BaB_2O_4 (BBO), mais réalisé avec une méthode de croissance non-standard, la méthode Czochralski. Nous avons démontré les premiers résultats de génération d'ultraviolet à 343 nm avec le CBF, et montré que la méthode de croissance Czochralski permettait d'obtenir des cristaux de BBO plus efficaces pour la génération de quatrième harmonique à 257 nm à forte puissance moyenne. Enfin, nous avons proposé et démontré un nouveau concept pour la conversion de fréquence, l'accord de phase mécanique. En exerçant de fortes pressions mécaniques sur un cristal non-linéaire, nous sommes parvenus à modifier de façon significative ses propriétés d'accord de phase.

Mots clés : Lasers solides, ultraviolet, conversion de fréquence, cristaux non-linéaires, accord de phase mécanique

Abstract

In this thesis, we study new concepts and laser architecture for the development of high power, diode-pumped solid-state lasers frequency converted in the ultraviolet range (UV). Ultraviolet lasers are increasingly used in many manufacturing process and spectroscopic applications. We first demonstrate a novel laser architecture emitting at 236,5 nm using a frequency converted, pulsed nanosecond laser oscillator emitting at 946 nm based on a Nd:YAG single-crystal fiber. We demonstrate state-of-the-art performances by studying the main laser limitations and by optimizing the two frequency conversion stages. Then, we study two new non-linear crystals for frequency conversion in the UV : $\text{Ca}_5(\text{BO}_3)_3\text{F}$ (CBF), a new non-hygroscopic crystal for third harmonic generation to 343 nm, and a well-known crystal BaB_2O_4 (BBO) grown by an unusual growth method, the Czochralski (CZ) growth. We demonstrate the first UV generation experiment with CBF, and show that BBO crystals grown by the CZ method yield better conversion efficiencies in high average power, fourth harmonic generation to 257 nm experiments. Finally, we propose and demonstrate a new concept for frequency conversion called mechanical phase-matching. We managed to change a non-linear crystal's properties significantly by applying a strong mechanical compression force on its facets

Key words: solid-state lasers, ultraviolet, frequency conversion, nonlinear crystals, mechanical phase-matching,