

Pompage par LED de matériaux laser émettant dans le visible ou l'infrarouge proche.

Adrien Barbet

▶ **To cite this version:**

Adrien Barbet. Pompage par LED de matériaux laser émettant dans le visible ou l'infrarouge proche.. Optique [physics.optics]. Université Paris Saclay (COmUE), 2016. Français. ⟨NNT : 2016SACLO020⟩. ⟨tel-01493949⟩

HAL Id: tel-01493949

https://pastel.hal.science/tel-01493949v1

Submitted on 22 Mar 2017

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.



HAL Authorization

NTT : 2016SACLO020

THESE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITE PARIS-SACLAY,
PRÉPARÉE À
L'INSTITUT D'OPTIQUE GRADUATE SCHOOL

ÉCOLE DOCTORALE N°572
Ondes et Matière (EDOM)

Spécialité de doctorat : Physique

Par

M. Adrien Barbet

Pompage par LED de matériaux laser émettant dans le visible ou l'infrarouge proche

Thèse présentée et soutenue à Palaiseau, le 19 décembre 2016 :

Composition du Jury :

M.	François	OZANAM	Directeur de recherche – LPMC, École polytechnique	(Président)
M.	Patrice	CAMY	Professeur – CIMAP, Université de Caen	(Rapporteur)
M.	Olivier	MUSSET	Professeur – ICB, Université de Bourgogne	(Rapporteur)
Mme.	Catherine	LEBLANC	Ingénieure de recherche – LULI, École polytechnique	(Examinatrice)
M.	Raphaël	CLERC	Professeur – Université Jean Monnet	(Examinateur)
M.	François	BALEMBOIS	Professeur – LCF, Université Paris Saclay	(Directeur de thèse)
M.	Jean-Philippe	BLANCHOT	Effilux	(Invité)



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

À mes parents.

REMERCIEMENTS

Même si cela demande un grand investissement personnel, cette thèse ne s'est pas faite toute seule, loin de là. Tout au long de ces 3 années, nombreuses ont été les personnes à me conseiller, m'aider, m'épauler ou encore m'accompagner. Cette liste ne sera probablement pas exhaustive et donc si je t'ai oublié, toi qui as ouvert cette thèse uniquement dans le but de lire ces remerciements, je te demanderais de ne pas (trop) m'en tenir rigueur.

Tout d'abord, je remercie l'ensemble des membres du jury pour leurs remarques et discussions, Catherine Leblanc, François Ozanam, Raphaël Clerc et tout particulièrement Olivier Musset et Patrice Camy pour avoir accepté de rapporter mon manuscrit.

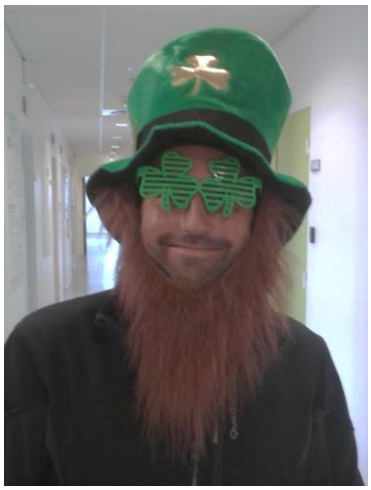
Cette thèse s'est déroulée au sein de l'équipe Lasers du laboratoire Charles Fabry et avant de rentrer davantage dans les détails, je tenais à dire que c'était un immense plaisir de côtoyer chacun des membres de cette équipe, tous (et toutes !) bourrés d'humour. Chaque personnalité qui la compose en fait réellement une petite famille que l'on est ravi de retrouver chaque matin.

L'histoire de cette thèse commence avec un mail du 19 septembre 2012, lorsque François me contacte pour me dire qu'il commence un sujet de recherche tout nouveau : les lasers pompés par LED… En regardant l'évolution des LEDs et après avoir fait un petit calcul dans le coin d'une feuille Excel, il n'en fallait pas plus à François pour décrocher un financement ANR. Convaincu qu'il était possible de faire des lasers avec des LEDs, je me souviens d'un de tes arguments : « c'est un sujet complètement nouveau, donc on ne sait pas trop à quoi s'attendre. Soit ça marche et on aura plein de surprises avec des publis et des brevets à la clé, soit ça ne marche pas et… t'en fait pas, on trouvera bien un plan B ! ». L'Histoire retiendra qu'une fois de plus, tes petits calculs Excel t'ont donné raison. François, tu es quelqu'un de surprenant et de remarquable. Tu es plein d'idées et même empreint d'une part de folie. Tant que tu ne trouves pas de raison scientifique démontrant que ça ne peut pas marcher, tu restes ouvert et es prêt à tester toutes sortes d'idées, même les plus saugrenues ! Si bien que parfois, c'était moi qui en venais à me demander si tu étais sérieux. Peu importe les nouvelles que je venais t'annoncer chaque jour (il n'y en a pas eu que des bonnes !), tu as toujours tout pris avec le sourire, la gentillesse et surtout l'optimisme débordant qui te caractérise. Comme je me plais à le dire, tu voyais toujours le verre à moitié plein même lorsque le mien était complètement vide. Même après un échec, tu avais toujours dans un de tes tiroirs une publi pour tenter de comprendre ce qu'on observait ou un cristal pour rebondir de plus belle. Il y a bien sûr plein d'autres qualités que j'ai appréciées chez toi (je ne peux pas toutes les citer ; néanmoins, je ne peux pas, pour autant, ne pas énoncer ton sens de la ponctualité et du respect du timing, tu dois avoir des origines suisses ou allemandes, renseigne toi !). C'était un véritable plaisir de travailler avec toi et pour toutes ces raisons, je te remercie !

Patrick… je me rappelle parfaitement la première fois où je t'ai vu. C'était pendant la première semaine de rentrée, où parmi une série de conférences, tu as fait un topo sur les lasers aux petits 1A que l'on était. Je crois que je ne te l'ai jamais dit, mais ta présentation a définitivement confirmé en moi l'envie de « jouer » avec les lasers (car à t'écouter, ça semblait super fun !). Ça a commencé avec les lasers du club LaserWave avant de passer à ceux de la thèse. Tu vois Patrick, j'aurais aimé pouvoir dire que tu es le Sage de cette équipe, délivrant que des conseils emplis de sagesse… mais il faut savoir qu'il ne se passe pas une journée où Patrick ne se prend pas au sérieux. Son passe-temps favori : nous faire marcher (surtout nous, les thésards) en nous racontant une grosse connerie, avec l'air le plus sérieux et le plus convainquant qui soit. Autant dire qu'avec la réputation « d'encyclopédie vivante des lasers » (tout à fait justifiée selon moi) qui te précède, il est très difficile, dans les débuts, de dire si c'est du lard ou du cochon ! Plus sérieusement, je dis que tu mérites cette réputation car je pense que tu as (au

moins) deux dons : le premier est de balancer des idées à la volée, qui te passent par la tête, que tu qualifies toi-même parfois de naïves, mais il s'avère qu'elles furent souvent les meilleures idées que l'on ait eu dans cette thèse ! Ensuite, il faut savoir que Patrick est le banquier de l'équipe, toutes nos commandes passent entre ses mains avant d'être validées. Ce moment est souvent l'occasion pour Patrick de nous questionner sur le pourquoi et l'intérêt de tel ou tel composant pour comprendre l'idée sous-jacente. Et c'est là ton second don : alors que l'on pense naïvement avoir pensé à tout, réfléchi au moindre détail, Patrick a le don de poser LES questions (vous savez, celles qui lui passent par la tête, comme ça…) auxquelles nous n'avions pas pensé, remettant parfois en cause tout le raisonnement ! Et même si sur le moment, j'étais frustré de voir une « super idée » devenir une « pauvre idée à retravailler », ces étapes-là ont été plus qu'enrichissantes et nous ont évité à maintes reprises de partir dans la mauvaise direction. Un grand MERCI à toi Patrick pour ta gentillesse, ton humour et ton accueil au sein du groupe !

Frédéric, tu es la pile électrique de cette équipe. Je pense qu'à toi seul, tu as plus d'énergie que l'ensemble du groupe. Ton humour et ton débit de vannes à la minute n'ont pas de limite. Tu es constamment de bonne humeur, on ressort systématiquement avec le sourire de ton bureau. Merci pour toutes ces discussions du matin en arrivant, nous permettant de faire le point aussi bien sur les manips que sur le dernier épisode de Game of Thrones. Je compte revenir t'embêter pour partager avec toi des photos de plongée ou d'astro ! Tu as été aussi d'un grand soutien dans ce projet, que ce soit à travers tes idées ou le temps que tu m'as consacré. Merci à toi ! Plus que des mots, je préfère mettre une image, qui je pense, te résume parfaitement ! Je te laisse apprécier :



Gaëlle, je te prie de pardonner mon référentiel temporel, qui parfois n'était toujours disons… bien calibré. Même si c'était toujours dit de façon innocente, je dois avouer que ta réaction m'amusait beaucoup (ma préférée étant celle avec les années disco où j'ai failli sortir de table complètement trempé…). Sache que je ne suis pas le seul à prononcer ton nom et un événement ~~plutôt ancien~~ plus d'aujourd'hui dans la même phrase : « *non, le Manège enchanté, c'est plus de l'époque de Gaëlle que de la mienne* », Marc Hanna, le 16/06/2016. J'ai également appris à éviter certains sujets de discussion « à risque » si je ne voulais pas que mon espérance de vie ne se réduise prématurément. Bien qu'étant dans le bureau d'à côté pendant ces 3 années, j'ai eu quelques fois le sentiment d'être dans le tien (dans l'hypothèse où les quelques cm² d'espace libre l'auraient permis bien sûr !). En particulier lorsque tu te rendais compte que ton clavier n'était pas waterproof (quelle idée aussi… après tout, c'est évident que le meilleur endroit pour arroser ses plantes, c'est au-dessus de l'ordinateur !) ou que tu perdais ton chargeur pour la 3ème fois. Dans ces cas précis, tu étais capable d'enchainer tellement de noms d'oiseaux que je pense que, j'en ai non seulement appris, mais le couloir aussi ! Plus sérieusement, je pense que tu aimes profondément ce que tu fais et que tu cherches à le faire du mieux possible. Pour cela, tu es rigoureuse et exigeante avec tes élèves et tes thésards, mais tu l'es surtout avec toi-même, comme peu

de personnes le sont. Tu es quelqu'un qui fait preuve de beaucoup d'empathie et même si je n'étais pas ton poulain, tu as toujours été de bon conseil à mon égard, en particulier dans certains moments où le moral n'était pas au beau fixe. Tu es aussi quelqu'un qui a énormément d'humour. Je pense que je me souviendrai longtemps de cette phrase qui résume ta vision de la relation entre un thésard et le café (« *Un thésard qui ne boit pas de café, c'est comme un cycliste qui ne se dope pas, ça n'existe pas !* », Gaëlle Lucas-Leclin, le 30/08/2013). Alors même si aujourd'hui, je ne bois pas de café, j'ai troqué le chocolat chaud pour du thé, est-ce une demi-victoire ? Ce sont autant de qualités qui font que j'ai sincèrement apprécié toutes nos discussions, aussi bien sur des sujets professionnels que personnels. Merci infiniment !

Marc, tu es fidèle à toi-même. Lorsque l'on lit les remerciements te concernant de chacun des thésards sur le départ, on a l'impression que l'on se copie tous les uns les autres. En effet, ça n'a rien de surprenant si, les uns après les autres, on vient tous te poser des questions (parfois très bêtes même) sur la théorie. Tu es de façon certaine, l'une des personnes les plus pédagogues qu'il m'ait été donné de rencontrer. Tu fais preuve d'une patience légendaire, même lorsque quelque chose t'énerve, tu restes calme. J'avoue avoir eu un petit peu de mal à cerner ton humour au début, surtout lorsque j'étais encore étudiant. Mais une fois que l'on a compris que tu adores les potins et que la diversité des sujets sur lesquels tu aimes plaisanter était aussi large que le spectre d'une impulsion femto, c'était plus clair (oh allez, elle était pas si nul…). Merci pour avoir supporté toutes mes questions, mes moments de pause dans ton bureau pour me changer les idées ou encore d'avoir partagé (subit ?) mes discussions astro. Toutes les bonnes choses ont une fin, même l'envoi de la biblio ;).

Sylvie, un grand merci pour ta fraicheur et ta bonne humeur constante. Merci aussi en ce qui concerne ton sens de l'organisation irréprochable de la gestion du matériel commun (tâche loin d'être facilitée par les thésards…). Je te laisse te battre avec Pierre maintenant pour savoir où est cachée la lampe UV !

Ma rencontre avec Xavier s'est faite pendant ma première année autour d'une manip Nd:YVO_4 avec un gain de 30 dB… c'était la première fois que je réglais un laser. Depuis, tu es passé du côté des permanents… Je suis content d'avoir passé le début et la fin de ma thèse avec toi. Merci pour ces moments de franche rigolade, que ce soit en conférence, au boulot ou en soirée !

Durant ces 3 années, j'ai aussi partagé mon bureau avec 4 personnes que je souhaite remercier chaleureusement pour leur sympathie, leur gentillesse, leurs conseils et les nombreux moments de rigolade. Merci à Alain Pellegrina, Nathalie Lebas, Jean-Thomas Gomes et Romain Baudoin.

Merci également aux autres thésards qui m'ont accompagné pendant cette thèse, que ce soit pour votre aide, les moments autour de la table de ping-pong, les afterwork à l'ENSTA ou encore les sorties sur Paris : Aymeric Van de Valle, Fabien Lesparre, Florent Guichard, Guillaume Schimmel, Julien Pouysegur et Paul Dumont (petite cace-dédi à toi, mon binôme de 3A, de TD et aussi de lasers à faibles gains. Nous devons rester solidaires face aux mesquineries et chinoiseries des gens de la communauté des fibres cristallines et autres femtoboys !).

Merci à tous les nouveaux thésards qui sont arrivés par la suite : Gaëtan Jargot (je te tiens au courant dès que j'ai fait quelques time-lapse/photos/vidéos d'astro sympa !), Kevin Génévrier, Loïc Lavenu, Michele Natile, Pierre Pichon et Philipp Albrodt. Pierre, je te souhaite bon courage pour la suite de cette thèse, je te souhaite autant de bonnes expériences que j'en ai eues !

Merci à tous les post-doctorants : Aura-Inez Gonzalez, Fabiola de Almeida Camargo, Iryna Gozhyk, Khmaies Guesmi, et bien entendu, the last but not least Philippe Rigaud (dit Fifi, le seul limougeaud que je n'aurais pas eu dans mon bureau finalement… merci pour ta gentillesse et tes talents de cuisinier mon lapin ;)).

Ma relation avec l'équipe Lasers a commencé bien plus tôt que ma thèse, dès ma 1ère année à l'Institut d'Optique avec un projet d'ouverture (dit *Projet L@b*), pendant lequel j'ai eu l'occasion de poser tout un tas de questions aux différents thésards de l'époque et de voir en quoi consistait le boulot

de doctorant. Ils ont réussi à me convaincre que passer 3 ans de sa vie dans un sombre labo était une aventure passionnante. Probablement que sans eux, je n'aurais pas fait de thèse du tout. Donc un grand merci à Adrien Aubourg, Florence Friebel, Loïc Deyra (un grand merci pour le template d'ailleurs !), Louis Daniault, Sandrine Ricaud et Patricia Ramirez. Un grand merci aussi à Dimitris Papadopoulos, Igor Martial, et Yoann Zaouter pour leur bonne humeur !

Je tiens aussi à remercier les différents stagiaires : Catherine Nguyen, Daniel Blengino et Hugo Grardel pour leur aide dans ce travail et en particulier dans la collecte des mesures.

Je souhaiterais dire un très très grand MERCI au personnel des ateliers d'optique et mécanique : André Guilbaud, Christian Beurthe, Patrick Roth et Sophie Coumar. Je suis venu vous embêter un nombre incalculable de fois, avec mes demandes toujours plus farfelues les unes que les autres et vous m'avez toujours accueilli avec le sourire et la bonne humeur… alors forcément, on revient ! Merci également à André Villing pour le temps passé sur la conception d'une carte électronique pour les LEDs.

Merci aux autres groupes de recherche et notamment à Manolia pour le prêt du Verdi, à Henri Benisty pour l'idée de l'huile et aussi à Mondher Besbes pour m'avoir permis d'utiliser les ordinateurs des salles de calculs, ils m'ont fait gagner un temps précieux !

Je tiens à remercier Marie-Laure Edwards et Fatima Pereira pour les nombreux articles scientifiques ainsi que pour les démarches d'avant soutenance.

Une partie de ma thèse comprenait de l'enseignement. Donc, je souhaiterais remercier les deux directeurs des études que j'ai côtoyés : Denis Boiron et François Goudail. Parmi ces enseignements, une grande partie était dédiée à l'encadrement des TPs laser de 3A. Je tiens donc à remercier Cédric Lejeune, Fabienne Bernard, Lionel Jacubowiez et Thierry Avignon pour leur soutien et leurs aides diverses et variées (qui d'ailleurs, ne se limitaient pas qu'aux TPs !).

Cette thèse, c'est aussi mais surtout un partenariat avec une entreprise, spécialisée dans l'éclairage à LED : Effilux. Du haut de sa quinzaine d'employés, cette entreprise est capable de prouesses impressionnantes. Pendant plus de 3 ans, cette entreprise a fait preuve d'un dynamisme et d'une réactivité déconcertante, permettant d'aller toujours plus loin dans le projet. De plus, dès le début de mon stage ainsi que par la suite, pendant ma thèse, j'ai été accueilli comme partie intégrante de cette équipe. J'avais beau passer la plupart du temps en coup de vent, un accueil chaleureux m'était toujours réservé, et je vous en remercie tous. J'espère retravailler avec vous le plus tôt possible.

Jean-Philippe, malgré ton rôle de gérant, tu t'es investi à 300% dès le début du projet et tu as maintenu cet investissement jusqu'à la fin. Tu as toujours libéré du temps pour que l'on puisse faire un point ensemble. Tu as souvent été patient en attendant les résultats et tu as fait preuve de compréhension lorsque ça ne marchait pas. Tu as été un véritable moteur pour ce projet : que ce soit aussi bien en termes de dynamisme comme je le disais, qu'en termes d'idées. Cette thèse est clairement aussi celle d'Effilux. C'était un réel plaisir de travailler avec toi tout au long de ces quasiment 4 années.

Arnaud, j'ai eu beaucoup moins d'interactions avec toi, mais malgré tout, je sais que nombre de choix fait par Jean-Philippe ne l'étaient pas sans ton accord. Donc pour cela, je te remercie également de la confiance que tu as accordée dans cette thèse. Ce projet a été gourmand à la fois en temps et financièrement, donc ton soutien était très important.

Je souhaite également remercier vivement Amandine qui a passé beaucoup, beaucoup, beaucoup… de temps à caractériser et à martyriser un nombre incalculable de LEDs en tout genre, ceci pour me permettre de faire mes manips. Nous avons également ensemble réfléchi à l'évolution des différentes têtes de pompage et donc merci pour ton aide précieuse.

Une grand merci aussi à Alba, qui grâce à son éternelle patience, a soudé un nombre impressionnant de câbles et tu as réparé autant de LEDs.

Je tiens à remercier Luc qui a fait preuve d'ingéniosité pour concevoir et réaliser des mécaniques toujours plus pratiques à utiliser, avec toutes les contraintes que je lui fournissais.

Merci à Pierre pour les différents tests que tu as réalisés et aussi pour avoir monté l'imposante armoire électrique qui a dû te demander pas mal de ton temps.

Enfin, un grand merci aussi à tous les autres membres de cette équipe : Anouk, Guillaume, Julie, Jonas, Nicolas, Pascale, Romain et aux anciens aussi : David et Laure.

Je ne peux pas oublier Jacques Sabater, qui m'a montré les recoins de LightTools, qui nous a aidés à maintes reprises dans les architectures de pompage, les protocoles de mesure, les brevets et bien d'autres choses… un grand merci à toi !

La dernière partie prenante de ce projet nous vient droit du laboratoire de Physique des Lasers, avec comme forces vives : Sébastien Chénais, Sébastien Forget (dits « les Séb ») rejoints par la suite par Thomas Gallinelli. Un grand merci à vous trois pour tous nos échanges, les différentes idées, les simulations (du concentrateur en particulier) et votre bonne humeur ! C'était agréable de travailler avec vous !

Enfin, je terminerais ces remerciements par toutes les personnes qui m'ont apportées leur soutien plus sur un plan personnel que professionnel, à commencer par mes amis. Merci à tous les Despé pour ces bons moments, ces soirées à parler de nos problèmes de manip (ou pas !) Merci aussi à Fabien, aux Anciens et tout particulièrement à Christine, toujours à l'écoute !

Je tiens aussi à remercier toute ma famille, vous avez été nombreux à être curieux, à essayer de comprendre ce à quoi pouvait ressembler les journées d'un thésard qui cherche à fabriquer des lasers pompés par LED, à me poser plein de questions et à me soutenir dans cette voie. Merci tout particulier à mon frère, Florent ainsi qu'à mon parrain, Luc.

Bien entendu, merci infiniment à mes parents. Je ne serais pas là où j'en suis sans vous. Vous m'avez aidé tout au long de mes études et même plus : vous m'avez toujours fait confiance et m'avez soutenu dans la voie que j'ai choisi. Cette thèse vous est tout simplement dédiée. Merci Maman et merci à toi Papa, qui n'a pas pu assister à la fin de cette aventure. Je vous aime.

Un dernier remerciement, mais pas le moindre, pour toi Sophie. Tu es celle qui m'accompagne, me supporte et me soutient au quotidien depuis plus de 4 ans. Je suis ravi d'avoir partagé cette aventure à tes côtés.

TABLE DES MATIÈRES

Remerciements 5
Introduction 14
I. État de l'art du pompage par LED 18
I.1 Résumé de l'histoire 18
I.2 Architectures et systèmes dans les années 1970 22
I.2.1 Quelques exemples d'architectures et de milieux pompés 22
I.2.1.a Lasers cristallins 22
I.2.1.b Lasers fibrés 22
I.2.1.c Cavité avec un réflecteur hémisphérique 23
I.2.2 Bilan des grandeurs caractéristiques de l'époque 24
I.3 Architectures et systèmes laser depuis le début des années 2000 25
I.3.1 Milieux pompés 25
I.3.1.a Polymères 25
I.3.1.b Semi-conducteurs 25
I.3.1.c Fibres 26
I.3.1.d Cristaux 27
I.3.2 Bilan et comparaison des grandeurs caractéristiques avec les anciens systèmes . 29
I.4 Les LEDs 30
I.4.1 Généralités sur les LEDs 30
I.4.1.a Principe des LEDs 30
I.4.1.b Les LEDs d'aujourd'hui 31
I.4.1.c Les technologies des LEDs : du composant au « chip on board » (COB) 36
I.4.1.d Limites et améliorations 40
I.4.2 Performances des LEDs 42
I.4.2.a En régime continu 42
I.4.2.b En régime impulsionnel 43
I.5 Conclusion 46
Bibliographie Chapitre I 47
II. Pompage direct par LED 54
II.1 Étude théorique du pompage direct 54
II.1.1 Calcul théorique du gain laser 54
II.1.2 Étude des différents paramètres clés du gain laser 57
II.1.2.a Le pompage 57
II.1.2.b Spectre d'absorption et dopage des cristaux 62

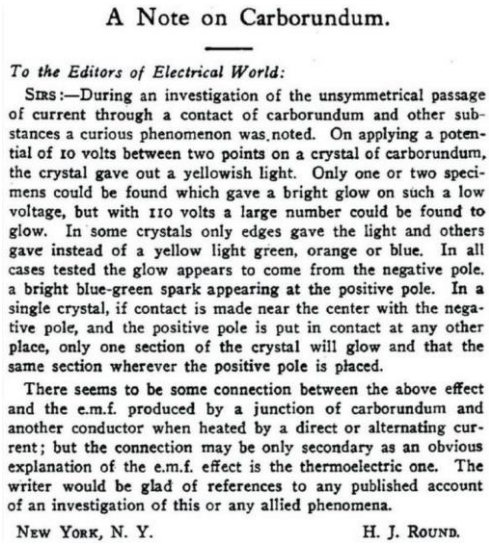
II.1.2.c Produit « Section efficace d'émission × temps de vie » : $\sigma el \times \tau$ 62
II.1.3 Synthèse et représentation graphique du gain 63
II.2 Réalisation expérimentale 67
II.2.1 Dimensionnement du cristal 67
II.2.2 Choix des longueurs d'onde de pompe 67
II.2.3 Cavité laser 68
II.2.4 Présentation de la tête de pompage 69
II.2.4.a Mécanique et électronique 69
II.2.4.b Géométrie des LEDs 71
II.2.5 Performances des panneaux de LEDs 71
II.2.5.a LEDs ambre 72
II.2.5.b LEDs IR 73
II.2.5.c LEDs bleues recouvertes de phosphore : Luxeon Z PC Amber 75
II.2.6 Résultats laser 76
II.2.6.a Performances laser avec un pompage ambre 76
II.2.6.b Performances laser avec un pompage IR 77
II.2.6.c Performances laser avec un pompage bleu avec phosphore 78
II.2.6.d Comparaison des différents types de pompage 79
II.2.6.e Comparaison avec l'état de l'art 80
II.2.7 Validation expérimentale des simulations et analyse théorique 81
II.3 Bilan et perspectives 84
Bibliographie Chapitre II 85
III. Comment augmenter la luminance des LEDs ? 88
III.1 État de l'art des concentrateurs 88
III.1.1 Rôle des concentrateurs de lumière 88
III.1.2 Les différents types de concentrateurs 88
III.1.2.a Concentrateurs imageants 88
III.1.2.b Concentrateurs non imageants 89
III.1.2.c Choix du type de concentrateur 91
III.1.3 Cas des concentrateurs luminescents 91
III.2 Étude théorique du concentrateur luminescent massif pompé par LED 94
III.2.1 Définition des grandeurs 94
III.2.2 La géométrie 95
III.2.3 Le choix des indices 98
III.2.3.a Différence d'indice $\Delta n_{21} = n_2 - n_1$ 98
III.2.3.b Différence d'indice $\Delta n_{32} = n_3 - n_2$ 100
III.2.4 L'effet des pertes 102
III.2.5 Bilan : comment définir un concentrateur ? 103

III.3 Étude expérimentale 105
III.3.1 Choix du concentrateur pour un pompage laser 105
III.3.1.a Accord LED – concentrateur : $\lambda_{émission\ LED} = \lambda_{absorption\ concentrateur}$ 105
III.3.1.b Accord concentrateur – matériau laser : $\lambda_{émission\ concentrateur} = \lambda_{absorption\ laser}$ ... 107
III.3.2 Mesures des pertes et de l'absorption 108
III.3.3 Mesures de C (avec $\eta_{fill} = 1$) 110
III.3.4 Description des concentrateurs pompés par LED 111
III.3.4.a Panneaux matriciels de LEDs 111
III.3.4.b Matrices de LEDs à haut taux de remplissage 111
III.3.5 Mesures de C_{LED} 112
III.4 Bilan 117
Bibliographie Chapitre III 118
IV. Pompage indirect par LED 122
IV.1 Démonstration de principe de la faisabilité d'un pompage indirect 122
IV.1.1 Principe 122
IV.1.2 Réalisation 123
IV.1.3 Résultats laser 126
IV.2 Cristaux envisageables en pompage indirect par Ce:YAG 129
IV.2.1 Nouveaux spectres et éclairements de pompe à considérer dans les simulations 129
IV.2.2 Bilan : peut-on de nouveau considérer ces matériaux laser ? 130
IV.3 Résultats expérimentaux des lasers pompés par concentrateur 132
IV.3.1 Description du dispositif de pompage optimisé 132
IV.3.2 Laser Nd:YVO_4 133
IV.3.2.a Cavité plan-plan 134
IV.3.2.b Cavité plan-concave 135
IV.3.3 Laser Nd:YAG 137
IV.3.4 Preuve de concept sur le Ti:saphir 141
IV.3.4.a Montage expérimental 141
IV.3.4.b Résultats laser 143
IV.4 Conclusion et perspectives 146
Bibliographie Chapitre IV 148
V. Conclusion générale et perspectives 150
V.1 Bilan des travaux 150
V.2 Perspectives 151
Annexe 1 – Analyse de l'indicatrice de sortie d'un concentrateur luminescent massif 155
Annexe 2 – Étude analytique des facteurs de concentration et de la lumière piégée dans un concentrateur 157

Annexe 3 – Influence d'une désexcitation non-radiative sur l'inversion de population dans le $Nd:YVO_4$ 165
Annexe 4 – Liste des publications de l'auteur 168
Annexe 5 – Caractéristiques physiques des principaux cristaux laser 178
Alexandrite ($Cr^{3+}:BeAl_2O_4$) 178
Cr:LiSAF ($Cr^{3+}:LiSrAlF_6$) 179
Nd:YAG ($Nd^{3+}:Y_3Al_5O_{12}$) 180
Nd:YLF ($Nd^{3+}:LiYF_4$) 181
$Nd:YVO_4$ 182
Rubis ($Cr^{3+}:Al_2O_3$) 183
Ti:saphir ($Ti^{3+}:Al_2O_3$) 184
Bibliographie Annexe 5 185
Annexe 6 – Pistes d'amélioration des concentrateurs luminescents 186
Table des figures 188
Table des tableaux 193

INTRODUCTION

Le principe de l'électroluminescence fut découvert en 1907 par Henry Joseph Round qui rapporta l'observation d'une lumière jaunâtre (qu'il qualifia de « phénomène curieux ») après avoir appliqué une tension en deux points d'un cristal de carborundum (carbure de silicium, voir Figure I-1). Ce n'est que 20 ans plus tard que le premier composant exploitant ce principe voit le jour (Losev 1927). Il publiera plusieurs notes sur ce que l'on connait aujourd'hui comme la diode électroluminescente. Cependant, Losev travaillait seul et mourut pendant la seconde guerre mondiale, si bien que sa découverte fut rapidement oubliée. C'est ainsi que l'Histoire décerna l'invention de la LED (ou Light-Emitting Diode[1]) à (Holonyak & Bevacqua 1962).



A Note on Carborundum.

To the Editors of Electrical World:

SIRS:—During an investigation of the unsymmetrical passage of current through a contact of carborundum and other substances a curious phenomenon was noted. On applying a potential of 10 volts between two points on a crystal of carborundum, the crystal gave out a yellowish light. Only one or two specimens could be found which gave a bright glow on such a low voltage, but with 110 volts a large number could be found to glow. In some crystals only edges gave the light and others gave instead of a yellow light green, orange or blue. In all cases tested the glow appears to come from the negative pole, a bright blue-green spark appearing at the positive pole. In a single crystal, if contact is made near the center with the negative pole, and the positive pole is put in contact at any other place, only one section of the crystal will glow and that the same section wherever the positive pole is placed.

There seems to be some connection between the above effect and the e.m.f. produced by a junction of carborundum and another conductor when heated by a direct or alternating current; but the connection may be only secondary as an obvious explanation of the e.m.f. effect is the thermoelectric one. The writer would be glad of references to any published account of an investigation of this or any allied phenomena.

NEW YORK, N. Y. H. J. ROUND.

Figure I-1 : Première observation de l'électroluminescence (Round 1907).

Depuis cette découverte, les performances des LEDs ont beaucoup évolué et ces dernières sont devenues un composant majeur dans de nombreux domaines. L'application qui a fait connaitre les LEDs au grand public est sans doute l'éclairage. En effet, les LEDs blanches sont en train de bouleverser ce marché. Leur croissance a été rendue possible grâce au développement des LEDs bleues. Les auteurs de cette découverte ont d'ailleurs été récompensés par un prix Nobel en 2014. La production à grande échelle de ces composants permet de diminuer drastiquement le coût de fabrication, si bien qu'aujourd'hui, le prix du watt optique revient à moins de 0,5 €. De plus, les LEDs ont l'avantage d'être robustes, compactes et de présenter une longue durée de vie.

Parallèlement, depuis l'invention du laser à la même époque (Maiman 1960), les systèmes laser se sont fortement développés et complexifiés. Pour nombre d'applications (comme la spectroscopie ou la génération d'impulsions ultra-brèves par exemple), il est nécessaire d'utiliser des matériaux laser ayant une large bande d'émission. Bien souvent, la source de pompage utilisée dans ces systèmes laser peut être complexe elle aussi et coûteuse comme par exemple une diode laser de puissance ou un laser solide doublé en fréquence (lui-même pompé par une puissante diode laser). En définitive, il n'est pas rare que la source de pompage représente une grande part du prix total du laser. Enfin, il y a eu un fort développement des diodes laser dans le proche infrarouge, mais leurs puissances restent limitées dans le visible (dans le bleu et le vert notamment).

C'est face à ce constat que l'idée de pomper des lasers par LED est survenue. Les LEDs émettent préférentiellement dans le visible, avec des puissances en continu pouvant atteindre 2 W (pour une puce de 1 mm² alimentée par 1 A). Or, parmi les matériaux émettant une large bande spectrale, nombre

[1] Dans la suite de ce manuscrit, le terme anglo-saxon (*Light-emitting diode*) sera préférentiellement utilisé et abrégé par *LED*.

d'entre eux se pompent dans le visible (c'est le cas du Ti:saphir, de l'alexandrite, du Cr:LiSAF ou de la plupart des colorants par exemple). L'idée consiste donc à remplacer les étages de pompage complexes et coûteux par des LEDs afin de réaliser des systèmes laser bénéficiant de leurs avantages. C'est ainsi qu'est né le projet EDELVEIS (pour *Excitation par Diodes Électroluminescentes de Lasers accordables dans le Visible Et les InfrarougeS*). Ce projet, financé par une ANR, est une collaboration entre deux laboratoires de recherche (le laboratoire Charles Fabry ainsi que le laboratoire de Physique des Lasers) et une PME basée aux Ulis, Effilux. Cette entreprise est spécialisée dans la fabrication d'éclairages à base de LEDs pour la vision industrielle, tandis que les deux laboratoires apportent leur savoir-faire en laser. Le laboratoire Charles Fabry est responsable de l'étude du pompage par LED de cristaux laser et le laboratoire de Physique des Lasers a pour but d'étudier le pompage de laser à base de polymères.

Cette thèse est donc à l'interface entre le domaine des lasers et celui des LEDs et sert de liant afin de marier efficacement les deux. Pour cela, nous avons dû nous intéresser à des problématiques telles que : comment coupler efficacement la lumière émise par une LED compte tenu de sa forte divergence ? Quelle architecture de pompage est la plus appropriée ? Comment augmenter l'éclairement des LEDs pour atteindre les seuils laser les plus élevés ? Quels sont les matériaux envisageables ?

Nous tenterons de répondre à ces questions tout au long de ce manuscrit. Pour cela, nous verrons dans le Chapitre I que le pompage par LED n'est pas un sujet nouveau et qu'il a constitué l'un des tout premiers types de pompage optique aux débuts des années 1960. Nous verrons pourquoi ce type de pompage a été abandonné pour ensuite revenir au goût du jour depuis une dizaine d'années. Dans le Chapitre II, nous établirons le critère pertinent qui nous servi de ligne de conduite pendant toute cette thèse. Nous étudierons ensuite quels sont les cristaux les plus à même d'être pompés par LED avant de réaliser une démonstration de principe. Nous constaterons que les éclairements actuels des LEDs ne permettent pas d'obtenir suffisamment de gain quel que soit le cristal laser considéré. Nous avons trouvé en les concentrateurs luminescents une solution pour y remédier. Le Chapitre III décrit en détail en quoi consiste cette solution et son principe de fonctionnement. Nous verrons également à quel point les concentrateurs nous permettent d'augmenter la luminance des LEDs. Enfin, le Chapitre IV présentera les nouvelles performances laser qu'il est possible d'atteindre en utilisant cette source de pompage, au travers de trois dispositifs laser. Le premier système laser est composé d'un cristal de Nd:YVO_4 et fonctionne en régime relaxé ; le second est un laser Nd:YAG impulsionnel déclenché passivement et enfin, le dernier est une démonstration de principe à partir d'un cristal de saphir dopé au titane[2].

Références bibliographiques :

Holonyak, N. & Bevacqua, S.F., 1962. Coherent (visible) light emission from Ga(As1-xPx) junctions. *Applied Physics Letters*, 1(4), pp.82–83.

Losev, O.V., 1927. Luminous carborundum [silicon carbide] detector and detection with crystals. *Telegrafiya i Telefoniya bez Provodov*, 44, pp.485–494.

Maiman, T., 1960. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187, p.494.

Round, H.J., 1907. A note on carborundum. *Electrical World*, 49, p.309.

[2] Ce cristal dont la formule chimique exacte est Ti:Al_2O_3 sera par la suite abrégé par Ti:saphir.

CHAPITRE I :

État de l'art du pompage par LED

I. ÉTAT DE L'ART DU POMPAGE PAR LED

Le but de ce chapitre est de poser les bases de ce qu'est le pompage par LED. Il faut savoir que ce type de pompage n'est pas nouveau. Il s'agit d'un type de pompage optique qui existait dès les débuts du laser, avant de disparaître quelques années après. Depuis le début des années 2000, cette thématique est réapparue et de nouveaux systèmes sont aujourd'hui pompés par LED. Nous tenterons d'expliquer cette tendance en exposant l'évolution des LEDs depuis leur création.

I.1 Résumé de l'histoire

Lorsque la première démonstration du laser a été réalisée (Maiman 1960), les sources de pompage optique n'étaient pas très répandues. En effet, les LEDs et les diodes laser n'existaient pas encore. De plus, bien que le tout premier laser à gaz (un He-Ne d'un mètre émettant 15 mW) soit apparu dès décembre 1960 (Javan et al. 1961), ces lasers n'ont pas été utilisés comme source de pompage avant 1968 (Birnbaum 1968), si bien que seul le pompage par lampes flash était d'actualité. En 1962, la première LED infrarouge (IR) apparait (Keyes & Quist 1962). Suit quelques mois plus tard la première LED émettant dans le visible, issue des laboratoires de General Electric (Holonyak & Bevacqua 1962), ainsi que la première diode laser visible. Avec ces composants, tout va très vite : en parallèle, au milieu de l'année 1962, Roger Newman (Newman 1963) annonce qu'il a observé un signal de fluorescence à partir d'un cristal de Nd:$CaWO_4$ suite au pompage par une LED émettant dans le proche IR, expliquant clairement que « this observation can have important consequences in the attainment of a high efficiency laser operation ». Ainsi, à la fin de l'année 1963, Keyes et Quist (les inventeurs de la première LED IR) publient la première démonstration d'un laser U^{3+}:CaF_2 pompé par LED (Keyes & Quist 1964), suivis de très près par (Ochs & Pankove 1964) avec un laser Dy^{2+}:CaF_2. L'historique du développement des lasers retraçant plus en détail le déroulé des découvertes ayant eu lieu à cette période a récemment été réédité dans la revue *Applied Optics* (Hecht 2010).

Suite à ces prémices, les démonstrations de pompage par LED ont commencé à se multiplier. Le graphique ci-dessous illustre l'activité scientifique liée à cette thématique de l'invention du laser à nos jours.

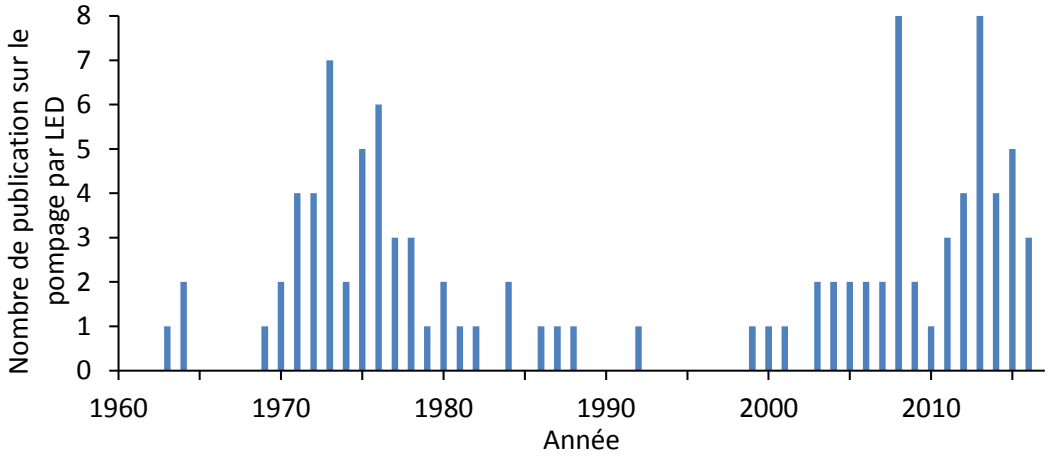


Figure I-1 : Nombre de travaux (publications, livres, brevets…) sur le pompage par LED depuis l'invention du laser.

Ainsi, au début des années 1970, le pompage par LED prend beaucoup d'ampleur, parallèlement aux autres types de pompage (par diode et par flash essentiellement). Plusieurs organismes gouvernementaux s'intéressent au sujet, comme le Centre d'Information des Propriétés

Électroniques de Californie (EPIC) qui a réalisé une étude pour la défense américaine (Winston 1972), IBM qui a transmis un rapport à la NASA sur un programme pour le développement de lasers Nd:YAG pompés par LED (Farmer et al. 1973) ou encore Ian Elder qui remettra un rapport quelques années plus tard sur le Nd:YAG pompé longitudinalement au ministère de la défense du Royaume-Uni (Elder 1992). Beaucoup d'études spectroscopiques sur de nouveaux matériaux (principalement dopés à l'ion néodyme) sont réalisées (Singh et al. 1974; Singh et al. 1975; Weber 1975; Saruwatari et al. 1977; Denker et al. 1980). Très rapidement, dès les premières années, un milieu à gain en particulier se démarque de tous les autres puisque pas moins de 63%, tous documents confondus (publications, rapports, brevets), sont basés uniquement sur le Nd:YAG (ce pourcentage monte à 76% si on considère tous les matériaux dopés néodyme), c'est le cas de (Danielmeyer & Ostermayer 1972; Alferov, Andreev, et al. 1975; Alferov, Bilak, et al. 1975; Koechner 1976; Zakgeim et al. 1978), pour ne citer qu'eux. Différentes architectures de pompage comme les cavités avec des réflecteurs hémisphériques sont testées (Kiang & Farmer 1972; Harris & Allen 1972; Ostermayer 1977; Bilak & Goldobin 1981) ainsi que différentes géométries de matériaux comme les premières fibres cristallines (Burrus & Miller 1971; Burrus et al. 1976; Stone et al. 1976; Stone & Burrus 1979). Nombre de ces démonstrations se font avec un fort refroidissement du système, parfois jusqu'à des températures cryogéniques pour améliorer les performances des LEDs et la spectroscopie des matériaux (Allen & Scalise 1969; Reinberg et al. 1971; Ostermayer 1971; Draegert 1973; Barnes 1973; Farmer & Kiang 1974; Saruwatari et al. 1975; Saruwatari & Kimura 1976; J.-P. Budin et al. 1978), alors que quelques années plus tard, les recherches s'effectuent de plus en plus à température ambiante (Ostermayer et al. 1971; Washio et al. 1976; Iwamoto et al. 1976). Les industriels étant également fortement intéressés par le pompage par LED, plusieurs études sur la miniaturisation des systèmes sont effectuées (Chesler & Draegert 1973; Chesler & Singh 1973; Kubodera & Otsuka 1977; J. P. Budin et al. 1978; J.-P. Budin et al. 1978; Wu et al. 2001). Le potentiel du pompage par LED incite même certains à breveter leurs idées (Ostermayer 1970; Dierschke 1970; Kay 1973; Brenner 1973).

Après quelques années, les chercheurs se rendent vite compte que l'évolution des diodes laser est bien plus rapide que celle des LEDs, délaissant ces dernières pour le pompage par diode, en particulier au début des années 1980. En effet, les diodes laser ont l'avantage d'être bien plus brillantes et de manière générale, plus puissantes. Un très grand investissement économique a été fait de la part du milieu industriel pour développer des diodes lasers dans l'infrarouge (à 808 nm, 940 nm ou encore 975 nm principalement) destinées au pompage de matériaux dopés aux ions néodyme principalement (avec en tête d'affiche le Nd:YAG) et aux premières sources fibrées (dopées aux ions erbium ou ytterbium) qui participeront au boom des télécoms deux décennies plus tard. Ainsi, pendant près de 20 ans, les activités autour du pompage par LED diminuent drastiquement, sans pour autant laisser place à un désintérêt total, puisque des études récapitulatives (ou « reviews ») sur cette thématique seront menées (Fan & Byer 1988). C'est également à cette période que le premier laser pompé par LED impulsionnel déclenché passivement voit le jour (Kuratev 1984; S. A. Belozerov et al. 1984). Toutes ces recherches et ces progrès technologiques menés depuis le début des années 1960 ont fortement aidé l'innovation, si bien qu'à partir de 1980, une série de brevets seront déposés, et ce jusqu'au milieu des années 2000 (Barry & Einhorn 1980; Pressley 1982; Langner 1999; Denbaars et al. 2000; Wu et al. 2001; Duarte 2003; Scheps 2003; Govorkov & Spinelli 2004; Luo et al. 2005; Shur & Gaska 2007).

À partir des années 2000, le marché des LEDs pour l'éclairage décolle. En effet, l'éclairage industriel mais surtout urbain est en pleine transition énergétique et économique, si bien que les éclairages à semi-conducteurs (ou en anglais SSL pour *solid-state lighting*) deviennent les sources lumineuses privilégiées, grâce à leurs rendements électrique-optique élevés (entre 30% et 40%). De plus en plus de dispositifs d'éclairage urbains utilisent des LEDs blanches. Il existe plusieurs moyens de générer de la lumière blanche à partir d'une LED UV-bleue (ce qui explique que ce soit ces LEDs les plus matures technologiquement). Cette application a entraîné un développement accru de ces LEDs ainsi qu'une mise en place de moyens de production conséquents afin de subvenir à la demande. Ceci explique pourquoi les performances des LEDs n'ont cessé de croitre. Parallèlement, leur prix n'a cessé de diminuer, comme le montre le graphique en Figure I-2.

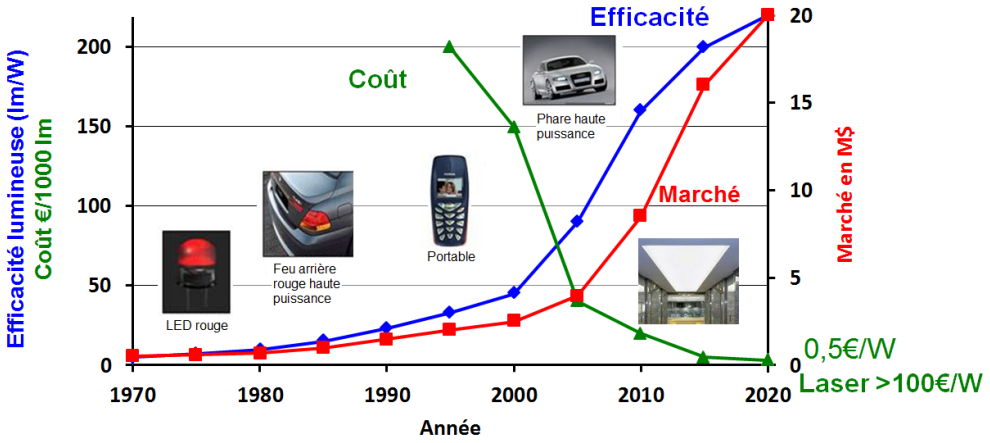


Figure I-2 : Évolution de l'efficacité et du coût des LEDs au fil des années.

Cette nouvelle tendance, plusieurs équipes de recherche l'ont constatée, si bien que depuis le milieu des années 2000, le pompage par LED connait un regain d'intérêt et de nouveaux matériaux sont maintenant pompés par LED.

C'est ainsi que des sud-coréens ont décidé de remplacer le pompage laser d'amplificateurs guides d'onde dopés aux ions erbium (EDWA pour *Erbium doped waveguide amplifier*) par des LEDs émettant à 470 nm (Shin & Park 2004; Lee et al. 2005; Lee et al. 2006).

Depuis une dizaine d'années, une nouvelle catégorie de milieu à gain pompée par LED a suscité beaucoup d'intérêt parmi la communauté laser, il s'agit des lasers à polymère (Wei et al. 2006). Une équipe de l'université de Saint Andrews (au Royaume-Uni) a réalisé plusieurs lasers basés sur des cavités à rétroaction distribuée (DFB pour *Distributed Feedback*) dont les travaux ont été communiqués dans de nombreuses revues (Samuel & Turnbull 2007; Turnbull et al. 2008; Yang et al. 2008; Jason 2008; Lupton 2008; Yang et al. 2009; Turnbull & Samuel 2010). De la même façon que dans les années 1970, la recherche s'oriente vers des systèmes plus compacts : micros, voire des nano-systèmes imprimés (Turnbull et al. 2012; Herrnsdorf et al. 2013; Tsiminis et al. 2013; Wang, Morawska, et al. 2013; Wang, Tsiminis, et al. 2013). Des ouvrages récapitulatifs (thèse, livre ou review) regroupent ces développements (Chénais & Forget 2011; Forget & Chénais 2013; Wang 2014).

Une autre catégorie de milieu à gain concerne les lasers à semi-conducteurs pompés par LED. Dans cette catégorie, la LED et la diode laser appartiennent au même bloc monolithique, de façon à ce que cette dernière soit pompée électriquement, optiquement mais également thermiquement. Les auteurs appellent ce fonctionnement le régime « thermoélectrophotonique » (Deppe et al. 2012; X. Liu et al. 2013; X Liu et al. 2013). Plus de détails seront donnés dans la suite de ce chapitre.

Parmi les matériaux pompés par LED, certaines équipes utilisent également les fibres optiques actives. (Htein et al. 2012; Htein et al. 2013; Htein et al. 2014a; Htein et al. 2014b) ont décidé de pomper longitudinalement des fibres laser dont le cœur était tantôt dopé aux ions thulium, tantôt erbium ou encore néodyme. Ils ont réussi à obtenir des gains laser conséquents détaillés dans la partie I.3.1.c de ce chapitre.

Enfin, la dernière catégorie (et celle qui nous intéresse le plus dans cette thèse) est celle des cristaux massifs. Alors que les autres matériaux pompés par LED sont apparus dès le début des années 2000 (comme les guides d'onde ou les polymères), les cristaux massifs n'ont pas été revisités avant 2011, avec cette étude faite par une équipe sud-coréenne (Lee, Bae, et al. 2011; Lee, Lee, et al. 2011). Cependant, malgré une étude théorique très complète, cette équipe n'est pas parvenue à réaliser une démonstration expérimentale d'un pompage par LED. C'est dans ce contexte que cette thèse a commencé, c'est-à-dire sans aucune démonstration de laser cristallin pompé par LED depuis la fin des années 1970, alors que ce domaine de recherche connaissait une véritable cure de jouvence. Ce constat a également été réalisé par deux autres équipes de recherche qui se sont également concentrées sur les matériaux cristallins, et cette étude bibliographique ne serait pas complète sans les citer. Ainsi,

depuis 2013, nous sommes à ce jour trois laboratoires à travailler sur des matériaux dopés néodyme. Nous avons commencé avec un cristal de Nd:YVO_4 (Barbet et al. 2014; Barbet et al. 2015; Barbet et al. 2016), puis (Hill & Durfee 2015; Villars et al. 2015) ont réussi à extraire 18 mJ d'un cristal de Ce:Nd:YAG. Enfin, très récemment, une équipe taïwanaise a réussi à atteindre 14% d'efficacité à partir d'un laser Nd:YAG (Huang et al. 2015; Huang et al. 2016).

I.2 Architectures et systèmes dans les années 1970

Afin de mieux comprendre les différences entre les systèmes laser d'antan et ceux d'aujourd'hui, nous nous proposons d'étudier un peu plus en détail les caractéristiques de chacun.

I.2.1 Quelques exemples d'architectures et de milieux pompés

I.2.1.a Lasers cristallins

Nous l'avons vu, une grande majorité des milieux à gain considérés à l'époque étaient dopés aux ions néodyme (dans une matrice de YAG essentiellement), mais d'autres matériaux ont également été investigués comme l'Yb:YAG (Reinberg et al. 1971), différents dopants dans une matrice de CaF_2 (Keyes & Quist 1964; Ochs & Pankove 1964) ou encore l'alexandrite, uniquement dans le cadre d'un brevet (Pressley 1982).

Ainsi, pour illustrer les démonstrations de l'époque, nous avons naturellement choisi un système laser basé sur un cristal de Nd:YAG réalisé par (Allen & Scalise 1969). Le barreau utilisé était long de 30 mm, dopé à hauteur de 1,5% et pompé transversalement par 15 LEDs. Tout le système était refroidit à 77 K. À cette température, l'éclairement d'une LED (en GaAsP pour une longueur d'onde centrée à 803 nm) est d'environ 31 mW/cm², soit une puissance de pompe totale de 750 mW.

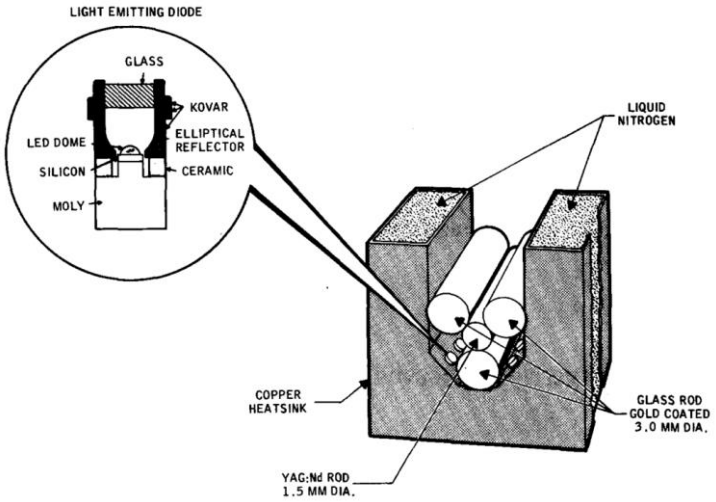


Figure I-3 : Schéma du laser Nd:YAG pompé par LED de (Allen & Scalise 1969).

Le système de pompage utilise des cylindres recouverts d'or pour rediriger les rayons provenant des LEDs partant dans la mauvaise direction vers le cristal de Nd:YAG. Cette géométrie a permis aux auteurs d'obtenir 40 mW de puissance laser (à 1,06 µm) en régime continu. Ce résultat correspond à une efficacité optique-optique de 5,3%. La puissance électrique totale injectée dans les 15 LEDs est de 8 W correspondant ainsi à un rendement laser électrique-optique de 0,5%.

I.2.1.b Lasers fibrés

L'une des premières démonstrations de l'utilisation des fibres cristallines comme milieu à gain laser a été faite par (Stone et al. 1976).

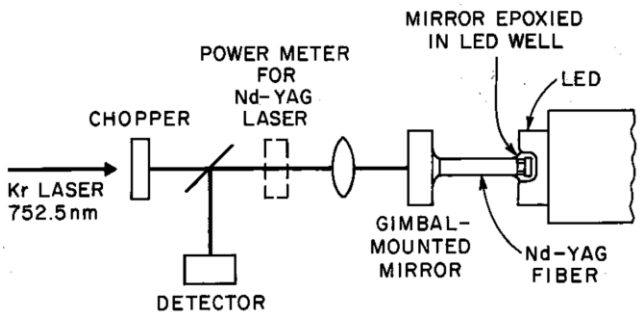


Figure I-4 : Montage expérimental utilisé pour étudier le laser fibré pompé par LED.

Il s'agissait alors d'une fibre Nd:YAG (dopée 1%) pompée longitudinalement par l'une des faces par une unique LED (en AlGaAs), émettant 7 mW à température ambiante. Le cœur de la fibre avait un diamètre de 80 µm pour une longueur de 5 mm. Comme pour l'exemple précédent (et beaucoup d'autres non cités), le Nd:YAG était pompé autour de la bande d'absorption située à 808 nm et émettait à 1064 nm. Les auteurs ont réussi à atteindre le seuil laser, mais malheureusement, la puissance de sortie était trop faible pour faire une quelconque mesure.

I.2.1.c Cavité avec un réflecteur hémisphérique

En 1974, Farmer énonce qu'il est possible d'améliorer l'efficacité de couplage des LEDs dans les barreaux laser jusqu'à 200% en utilisant un demi-cylindre avec un revêtement doré comme réflecteur et une adaptation d'indice entre les différents matériaux (Farmer & Kiang 1974), voir Figure I-5.

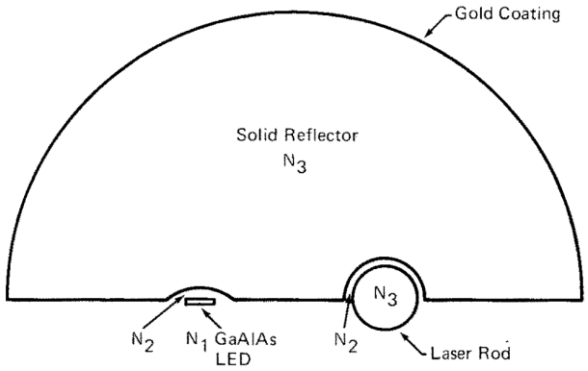


Figure I-5 : Schéma de pompage utilisé par (Farmer & Kiang 1974) utilisant un réflecteur d'indice N_3.

Il faut imaginer la dimension longitudinale (non représentée sur le schéma ci-dessus en 2D) du système, avec une ligne de LEDs qui permet de pomper transversalement le barreau laser. Avec cette architecture de pompage, Farmer a obtenu 27 mW en régime impulsionnel avec un barreau de Nd:YAG long de 56 mm et refroidi à -27°C (les LEDs en GaAlAs étaient refroidies à -14°C).

Trois ans plus tard, (Ostermayer 1977) a adopté une géométrie analogue mais utilisée dans l'air pour pomper longitudinalement un barreau de Nd:YAG avec une seule LED (voir Figure I-6).

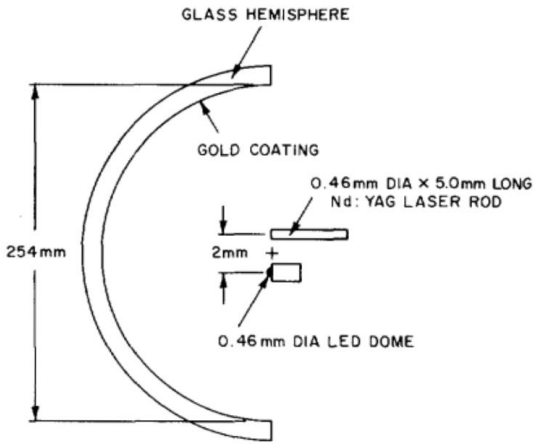


Figure I-6 : Schéma du réflecteur utilisé pour coupler la lumière en sortie de la LED dans un barreau laser.

En sortie de sa cavité, il a réussi à extraire une puissance moyenne de 0,25 mW dans un profil multimode, à température ambiante. Ses mesures lui ont permis de déterminer que les pertes accumulées après un aller et retour dans la cavité n'étaient que de 0,022%, pour une efficacité de couplage estimée entre 54% et 63%.

I.2.2 Bilan des grandeurs caractéristiques de l'époque

Bien évidemment, la bibliographie de l'époque ne se limite pas à ces 4 exemples, mais, ces derniers ont le mérite de donner des ordres de grandeurs de ce qu'il était possible de faire dans les années 1970. Par ailleurs, ces exemples illustrent relativement bien les principales techniques de couplage utilisées pour amener le plus de lumière possible dans le milieu à gain.

Ainsi, si nous résumons les principales grandeurs caractéristiques (températures de fonctionnement, éclairements de pompe, rendements…), nous obtenons le Tableau I-1 ci-dessous :

Grandeurs	Valeurs
Températures	80 K, 300 K
Éclairements de pompe (W/cm²)	0,1 à 10
Milieux pompés	**Nd:YAG**, Yb:YAG, CaF_2
Longueurs d'onde de pompe (nm)	800 à 950
Efficacité optique	0,1 à 5%

Tableau I-1 : Récapitulatif des ordres de grandeur des systèmes laser dans les années 70.

Même si de nombreux travaux ont été réalisés à des températures cryogéniques, il faut reconnaitre que d'importants efforts ont été réalisés pour travailler à température ambiante, aussi bien en régime impulsionnel qu'en continu. Les longueurs d'onde d'émission étaient plutôt centrées vers le proche infrarouge de par les matériaux utilisés pour développer les premières LEDs. Les éclairements de pompe sont relativement faibles (comparés à ceux d'aujourd'hui), autour du W/cm². Enfin, les différentes architectures de pompage (pompage transverse, longitudinal ou bien par le biais d'un réflecteur hémisphérique) ont permis d'obtenir des efficacités de quelques pourcents.

I.3 Architectures et systèmes laser depuis le début des années 2000

Les progrès technologiques réalisés grâce au marché de l'éclairage ont déclenché un regain d'intérêt pour le pompage laser par LED, si bien que plusieurs équipes de recherche dans le monde se sont mises à étudier de nouveaux systèmes laser.

I.3.1 Milieux pompés

I.3.1.a Polymères

Graham Turnbull et Ifor Samuel, de l'université de Saint Andrews, ont fait des lasers à polymère leur sujet principal de recherche. Dans leur publication de 2008 (Yang et al. 2008), ils expliquent que le milieu à gain est un polymère (ADS233YE) piégé entre une couche d'un second polymère (CYTOP) et une couche de silice. L'ADS ayant un indice optique plus élevé que celui des deux enveloppes, cet ensemble forme donc un guide optique. La lumière émise par la LED est recyclée par un miroir dichroïque (*Pump filter* sur la Figure I-7) situé sous la couche de silice qui a une réflectivité de 98% pour la pompe et une transmission supérieure à 90% pour le signal laser (ici autour de 570 nm). Enfin, l'oscillation laser se fait horizontalement dans la couche ADS pour sortir verticalement par le dichroïque. Leur LED émet un éclairement de 28 W/cm² en continu (à 1,5 A) et jusqu'à 255 W/cm² en régime impulsionnel (en injectant 160 A dans des impulsions de 47 ns) ! C'est uniquement lorsque la pompe fonctionne de façon impulsionnelle qu'ils parviennent à obtenir un effet laser. Ils concluent leur article en précisant que comparées à d'autres sources laser de pompage, les LEDs InGaN sont électroniquement et physiquement plus robustes et bien moins chères.

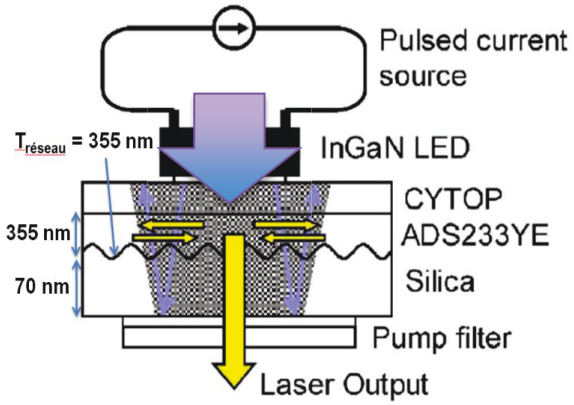


Figure I-7 : Schéma d'un laser à polymère pompé par LED (Yang et al. 2008).

I.3.1.b Semi-conducteurs

Très récemment, nous avons pu voir l'apparition de nouveaux milieux pompés par LED tels que les lasers à semi-conducteur (X. Liu et al. 2013). Dans cette publication, Liu nous parle d'un régime de fonctionnement de la LED un peu particulier, il s'agit du régime thermoélectrophotonique (régime TEP). Dans cette configuration, la LED et le laser à semi-conducteur sont un seul et même bloc, monolithique (voir Figure I-8).

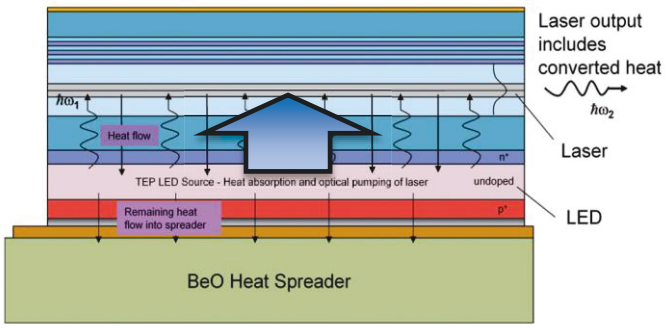


Figure I-8 : Illustration schématique de la LED (GaAs) intégrée au semi-conducteur laser (X. Liu et al. 2013).

Ainsi, dans ce régime de fonctionnement, le semi-conducteur laser peut absorber la chaleur émise par la LED. Il s'agit donc d'un régime dans lequel la LED peut pomper le semi-conducteur aussi bien optiquement que thermiquement. C'est dans cette configuration qu'il est possible d'obtenir une efficacité totale supérieure à 100%. En effet, ce type d'intégration de la LED avec le semi-conducteur laser élimine tout problème d'extraction de la lumière comme c'est le cas pour les LEDs composées d'un dôme en plastique. Étant donné la très faible différence d'indice entre la LED et le semi-conducteur laser, le coefficient de réflexion de Fresnel est faible, ce qui implique que la quasi-totalité du flux émis par la LED est couplée dans la partie laser du semi-conducteur. De plus, les auteurs ont montré dans leurs simulations que dans le cas où le seuil laser et les pertes par propagation (de la LED aux puits quantiques) étaient suffisamment bas, alors il serait possible que la LED (ré)absorbe la chaleur et entre dans un régime d'auto-refroidissement, entrainant ainsi une efficacité supérieure à 100%. Pour le moment, un tel régime de fonctionnement n'a pas encore été observé expérimentalement.

I.3.1.c Fibres

La troisième catégorie concerne les fibres pompées par LED (Htein et al. 2012). L'équipe coréenne a utilisé une fibre dopée erbium (EDF) d'un mètre de longueur avec une ouverture numérique de 0,15 pour des diamètres de cœur et de gaine de 32 µm et 640 µm respectivement. Ils ont décidé d'exploiter toutes les raies d'absorption de l'erbium dans le visible en pompant par une seule LED blanche, placée à l'une des extrémités de la fibre (voir Figure I-9).

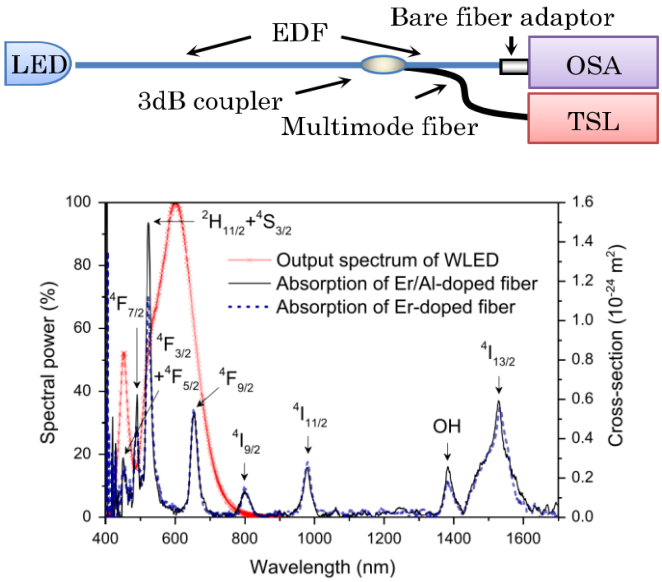


Figure I-9 : (en haut) Montage utilisé pour les mesures de gain (TSL = tunable semiconductor laser, OSA = optical spectrum analyzer, EDF = erbium doped fiber) ; (en bas) spectres d'émission d'une LED blanche et d'absorption d'une fibre dopée erbium et erbium/aluminium (Htein et al. 2012; Htein et al. 2014a).

L'équipe a par ailleurs mis en évidence la difficulté de couplage de la lumière issue de la LED dans la fibre. En effet, l'éclairement de la LED en continu est de 2,1 W/cm², ils estiment avoir couplé à peine 0,01% du flux de la LED dans le cœur de la fibre (d'un diamètre de 32 µm), soit environ 0,02 mW. Ce faible couplage résulte de la géométrie de la LED (la section d'émission fait 3 mm de côté) et de l'émission lambertienne de la LED. En effet, la fibre ayant une ouverture numérique de 0,15 seulement, elle ne peut collecter toute la lumière émise dans un angle solide de 2π sr. De plus, le cœur de la fibre est bien plus petit que la surface émettrice de la LED. Malgré cette faible proportion de pompe guidée dans le cœur, ceci leur a tout de même permis d'obtenir une amplification de 12,3 dB pour une puissance de faisceau signal initialement injecté de 0,68 nW, en fonctionnement continu. Ce résultat est illustré par la Figure I-10 ci-dessous.

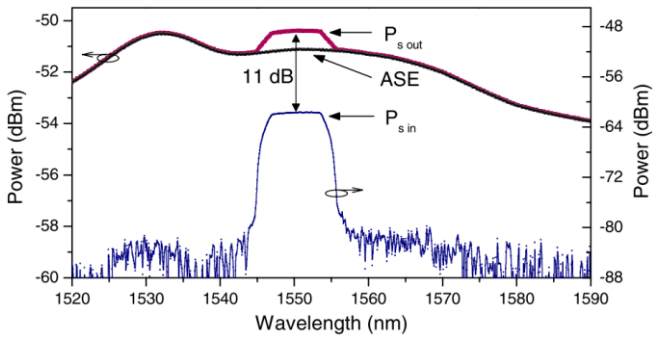


Figure I-10 : Puissances spectrales avant et après amplification dans la fibre (Htein et al. 2012).

I.3.1.d Cristaux

Enfin, la dernière catégorie qui nous intéresse est celle des cristaux laser. En 2011, (Lee, Bae, et al. 2011) publient la synthèse d'une étude théorique approfondie sur le pompage par LED de 5 milieux lasers (le Nd:YAG, un colorant, le Nd:glass, le Ti:saphir et le Nd/Cr:YAG) par des LEDs bleues (avec un éclairement de 1,9 W/cm²) et blanches (avec un éclairement de 1,3 W/cm²). Les auteurs ont procédé à une série de simulations avec un système de pompage comprenant 40 LEDs disposées autour d'un barreau de 100 mm de long pour un diamètre de 4 mm (même barreau pour tous les milieux à gain, voir Figure I-11 pour la disposition du montage). Ils ont simulé, un pompage en régime impulsionnel

avec des durées d'impulsion de 200 µs pour en déduire des efficacités d'absorption selon la couleur des LEDs utilisées. Enfin, ils ont réalisé expérimentalement le pompage d'un barreau de Nd:YAG, sans obtenir d'effet laser.

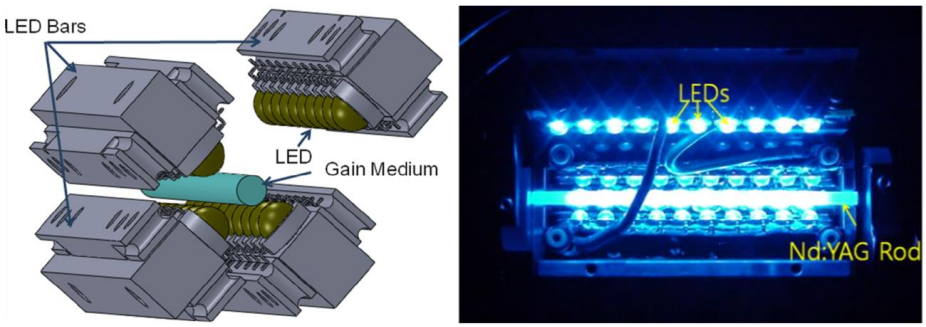


Figure I-11 : à gauche : description de l'architecture de pompage, à droite : photo de la tête de pompage optique réalisée pour un barreau de Nd:YAG (Lee, Bae, et al. 2011).

Cette thèse a donc commencé en 2013, dans un contexte où le pompage par LED revenait progressivement au goût du jour avec la revisite de plusieurs matériaux, toutefois sans démonstration expérimentale probante sur des cristaux laser depuis les années 1980.
Depuis trois ans, à notre connaissance, les seules études sur le pompage par LED de matériaux massifs portent uniquement sur les cristaux dopés néodyme. Ainsi, mis à part les résultats de cette thèse (expliqués plus en détail dans les prochains chapitres), deux autres équipes de recherche ont publié les résultats de leurs travaux. Dans un premier temps, en 2015, une équipe du Colorado a réussi à obtenir jusqu'à 18 mJ d'énergie laser avec un profil multimode en pompant directement un cristal de Ce:Nd:YAG avec des LEDs bleues pendant 900 µs. En recyclant la pompe non-absorbée à l'aide d'une chambre réflective, les auteurs ont réussi à obtenir une efficacité optique de 6,2% et une caractéristique avec une efficacité (ou *slope efficiency*) de 12,8%. Voir Figure I-12 (Villars et al. 2015).

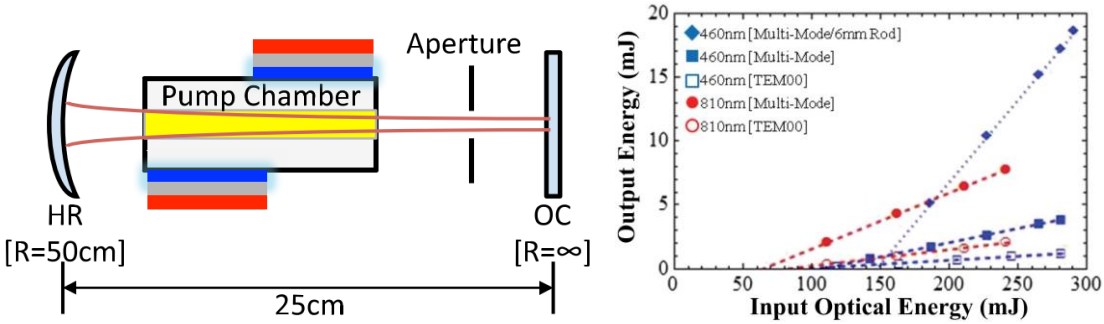


Figure I-12 : Schéma du système laser et résultats (Villars et al. 2015).

Plus récemment, en mai 2016, un système efficace de laser Nd:YAG pompé par LED a été démontré (Huang et al. 2016). En réalisant une cavité laser en Z (voir Figure I-13), les auteurs ont obtenu une caractéristique ayant une efficacité (*slope efficiency*) de 14%, pour une énergie de sortie de 350 µJ en pompant 1 ms avec des LEDs centrées autour de 750 nm.

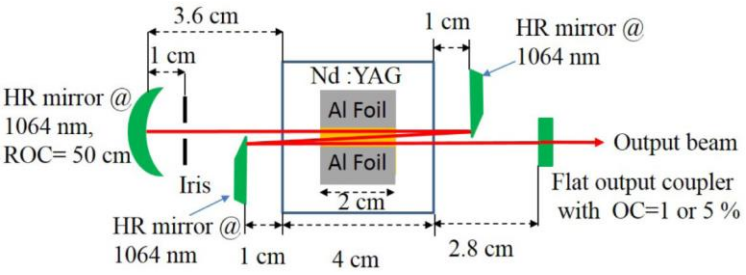


Figure I-13 : Schéma de la cavité en Z réalisée par (Huang et al. 2016).

I.3.2 Bilan et comparaison des grandeurs caractéristiques avec les anciens systèmes

Reprenons maintenant le Tableau I-1 que nous avions laissé dans la première partie de ce chapitre afin de comparer les performances et différences des systèmes laser pompés par LED d'antan et d'aujourd'hui.

Grandeurs	Années 1970	Années 2000
Températures	80 K, 300 K	300 K
Éclairements de pompe (W/cm²)	0,1 à 10	1 à 100 (cw), 1 000 (impulsionnel)
Milieux pompés	**Nd:YAG**, Yb:YAG, CaF_2	Polymères, SC, milieux dopés Er, Nd
Longueurs d'onde de pompe (nm)	800 à 950	UV, bleu, blanc, IR
Efficacité optique	0,1 à 5%	Jusqu'à 14%

Tableau I-2 : Comparatif des grandeurs caractéristiques des systèmes laser des années 1970 et d'aujourd'hui. SC = semi-conducteur, cw = régime continu.

Depuis le début des années 2000, tous les systèmes laser pompés par LED se font à température ambiante. Un fonctionnement à des températures cryogéniques améliorerait incontestablement les performances, mais serait bien trop contraignant, surtout au regard des systèmes laser commercialisés aujourd'hui. Une nette amélioration des performances des LEDs permet de diversifier les matériaux pompés. En effet, dans les années 1970, la quasi-totalité des milieux à gain étaient cristallins, alors qu'aujourd'hui, nous pouvons observer des lasers à polymère ou encore des fibres optiques actives. Historiquement, les premières LEDs créées émettaient un spectre dans le rouge et le proche IR. Depuis les avancées technologiques, les LEDs bleues et UV se sont fortement développées, conduisant naturellement à des LEDs blanches aussi efficaces. Ceci nous permet maintenant d'envisager des pompages dans le visible et plus uniquement dans le proche IR. Enfin, des efficacités laser supérieures à 10% ont pu être obtenues en concevant des architectures de pompage ingénieuses.

I.4 Les LEDs

Tentons maintenant d'expliquer ce qui a pu, dans la technologie des LEDs, permettre ces avancées. Pour cela, nous allons aborder quelques notions sur la technologie des semi-conducteurs, son évolution et ses conséquences sur le pompage laser.

I.4.1 Généralités sur les LEDs

Cela fera bientôt 110 ans que la première observation de l'électroluminescence a été rapportée, à partir d'un cristal de carbure de silicium (Round 1907). Cependant, il aura fallu attendre 1962 pour que la première LED expérimentale voit le jour (Holonyak & Bevacqua 1962).

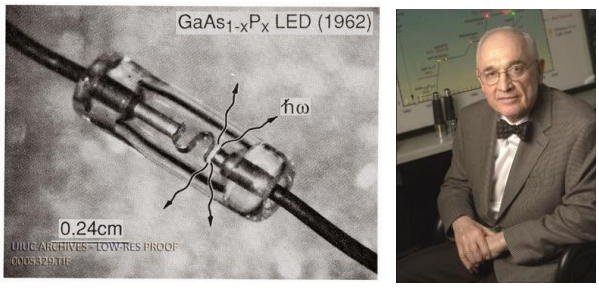


Figure I-14 : Première LED réalisée (Holonyak & Bevacqua 1962)[3] et photographie de Nick Holonyak Jr.

Depuis cette découverte, de nombreux progrès ont été accomplis. Dans ce paragraphe, nous allons très brièvement revenir sur les principes des LEDs avant d'aborder leur évolution. Nous allons tenter, dans un second temps, de donner quelques pistes pouvant expliquer le regain d'intérêt récent pour ces composants.

I.4.1.a Principe des LEDs

Une diode électroluminescente est avant tout un semi-conducteur et plus précisément une jonction p-n. Lorsque la diode est polarisée (c'est-à-dire lorsqu'une tension électrique est appliquée à ses bornes), la différence de potentiel entre la zone de type p et la zone de type n se réduit et les porteurs de charge (les électrons et les trous) peuvent ainsi circuler d'une zone à l'autre. Un photon est émis à chaque recombinaison de ces porteurs. Si cette recombinaison se produit entre un électron situé au minimum de la bande de conduction et un trou au maximum de la bande de valence, alors le photon émis aura une longueur d'onde égale à :

$$\lambda_g(\mu m) = \frac{hc}{E_g} = \frac{1{,}24}{E_g\ (eV)} \qquad \textit{Eq. I-1}$$

où h est la constante de Planck, c la vitesse de la lumière dans le vide et E_g correspond à l'énergie de gap entre la bande de conduction et la bande de valence du semi-conducteur : $E_g = E_C - E_V$. Dans la pratique, l'énergie de gap ne correspond pas nécessairement au pic d'émission car la longueur d'onde centrale dépend de la température (Mottier 2008) :

$$\nu_{max} = \frac{c}{\lambda_{max}} = \frac{E_g}{h} + \frac{k_B T}{2h} \qquad \textit{Eq. I-2}$$

[3] Image empruntée aux archives de l'Université de l'Illinois : http://distributedmuseum.blogspot.fr/2014/10/light-emitting-diode.html

Avec k_B la constante de Boltzmann et T la température. De plus, l'émission d'une LED n'est pas purement monochromatique, sa largeur dépend de l'énergie de gap ainsi que de la température et est définie comme (Degiorgio & Cristiani 2014) :

$$\Delta\lambda = \frac{2k_B T {\lambda_g}^2}{hc} \qquad \textit{Eq. I-3}$$

Ainsi, à température ambiante, la largeur spectrale d'une LED varie typiquement d'une quinzaine de nm (LED ultra-violet) à une quarantaine de nm (LED infrarouge).

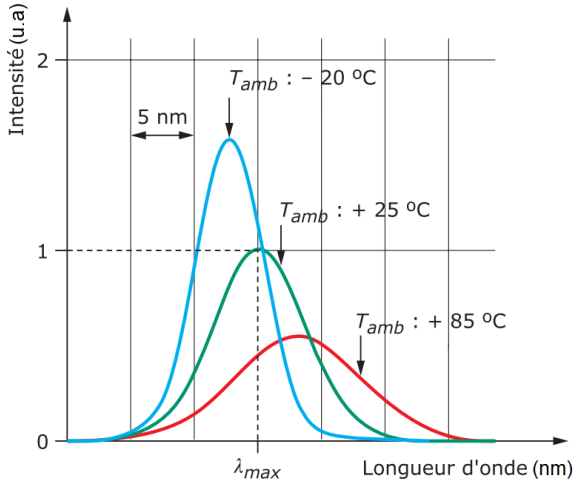


Figure I-15 : Évolution du spectre d'émission d'une LED avec la température (Zissis & Logivière 2011).

Nous pouvons le voir avec les Eq. I-2 et Eq. I-3, et la Figure I-15 l'illustre particulièrement bien : le spectre d'émission d'une LED se décale vers les hautes longueurs d'onde et s'élargit avec la température ; d'où l'importance de réguler ce paramètre.

I.4.1.b Les LEDs d'aujourd'hui

Comme énoncé précédemment avec les Figure I-1 et Figure I-2, les LEDs connaissent une forte croissance depuis le début des années 2000 environ. Comme nous pouvons le voir sur la Figure I-16, cette croissance est principalement soutenue par le marché de l'éclairage (on voit que les autres parts de marché sont plutôt constantes, voire diminuent pour les écrans). Aujourd'hui, le nombre de lampes dédiées à l'éclairage dans le monde est estimé à 30 milliards. Ainsi, ce n'est pas moins de 19% de la consommation électrique mondiale qui est destinée uniquement à l'éclairage (urbain et domestique pour la majeure partie).

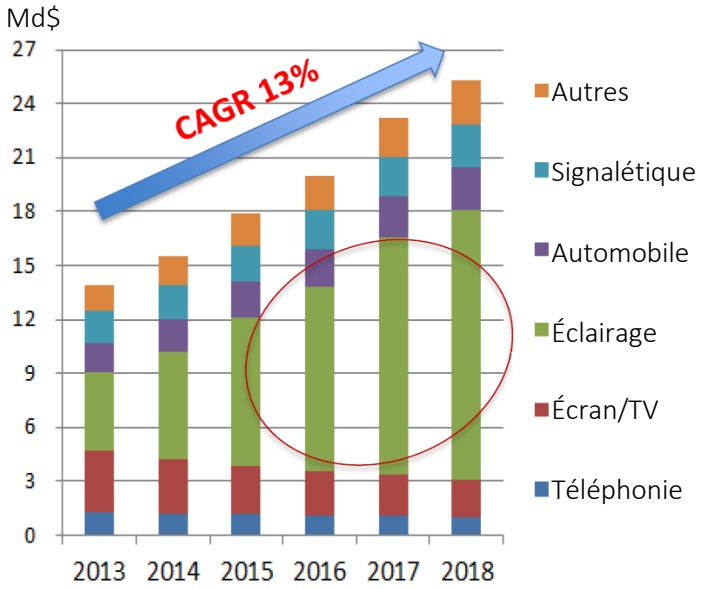


Figure I-16 : Évolution du marché des LEDs au fil des années (CAGR = Compound annual growth rate ou taux de croissance annuel moyen).

Alors que l'efficacité des autres sources lumineuses stagne (voir Figure I-17 ci-dessous) autour de 150 lm/W pour la meilleure d'entre elles (les lampes à Sodium), celle des LEDs, à l'opposé, connait une progression fulgurante. Pourtant, les LEDs ont commencé très bas avec des efficacités comparables aux premières lampes à incandescence. À titre d'exemple, les premières LEDs commercialisées en 1968 par Monsanto avaient une efficacité de 0,1 lm/W. Ces LEDs, alimentées avec une puissance électrique typique de 0,1 W produisaient une puissance de 0,01 lm (Craford 2004). Cependant, depuis l'apparition des LEDs blanches, ces dernières ont rattrapé leur retard sur les autres sources concurrentes en une dizaine d'années, dépassant il y a 5 ans les 200 lm/W (Hummel 2011) et les 300 lm/W il y a deux ans[4].

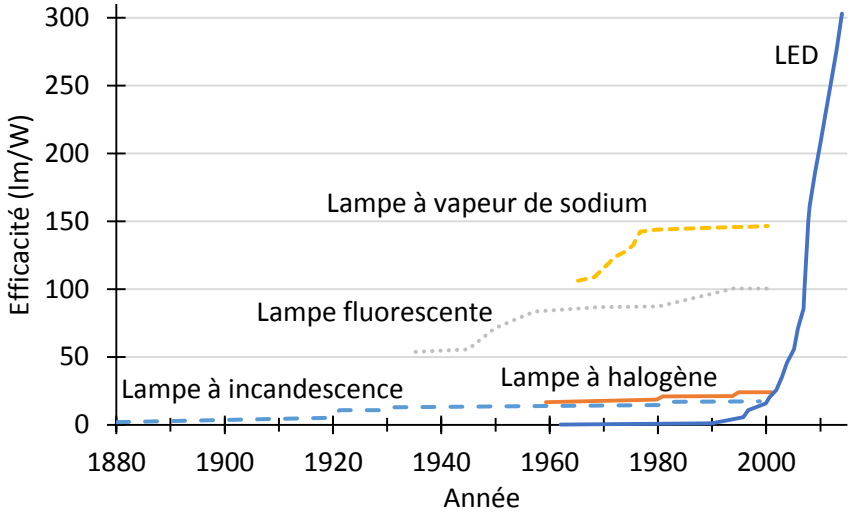


Figure I-17 : Évolution de l'efficacité des principales sources d'éclairage au fil des années.

Comment une telle prouesse technologique est-elle possible ? Comment expliquer ce succès ? Les LEDs les plus efficaces sont les LEDs blanches dites à très hautes puissances (supérieures à 250 lm).

[4] Cree est parvenu le 26 mars 2014 à atteindre 303 lm/W en laboratoire : http://www.cree.com/News-and-Events/Cree-News/Press-Releases/2014/March/300LPW-LED-barrier

La majorité d'entre elles sont constituées d'une LED bleue recouverte d'une couche de phosphore. Le phosphore le plus utilisé est le Ce:YAG car ce matériau possède une bande d'absorption centrée à 450 nm et émet une lumière jaune-vert (de 530 nm à 700 nm environ). Ainsi, le mélange du résidu de lumière bleue non absorbée avec la lumière émise par le Ce:YAG permet d'obtenir une couleur blanche. Ce large spectre d'émission possède un recouvrement important avec la courbe de sensibilité de l'œil humain, ce qui explique les efficacités élevées des LEDs blanches (en lm/W). Nous comprenons donc que tout ceci ne serait possible sans l'avènement des LEDs bleues.

Au milieu des années 1980, alors que la plupart des laboratoires de recherche de l'époque cherchent à exploiter le ZnSe pour tenter de réaliser des diodes laser bleues, un certain Shuji Nakamura travaillant pour la société japonaise Nichia Chemical (aujourd'hui n°1 des fabricants de LED devant Cree, Osram ou encore Epistar) décide lui, de concentrer ses recherches sur le GaN. C'est alors qu'il va s'intéresser à la croissance MOVPE[5] pour ensuite concevoir ses propres réacteurs de croissance. À compter de cette période, Nakamura deviendra le leader dans son domaine et cumulera les découvertes, comme la première LED bleue de forte brillance (Nakamura et al. 1994), le premier laser GaN impulsionnel (Nakamura et al. 1996) ou encore les premières LEDs blanches de forte efficacité (Nakamura 1998).

Nous sommes en droit de nous demander ce qui, dans les LEDs de Nakamura, a permis d'aboutir aux LEDs blanches de fortes brillances et efficacités que l'on connait aujourd'hui ? La réponse est double : lorsque Nakamura publie ses résultats sur les premières LEDs bleues (en 1994), puis blanches (en 1998), il combine deux astuces ingénieuses : l'utilisation de LEDs à double hétéro-structure avec des puits quantiques dans la zone active.

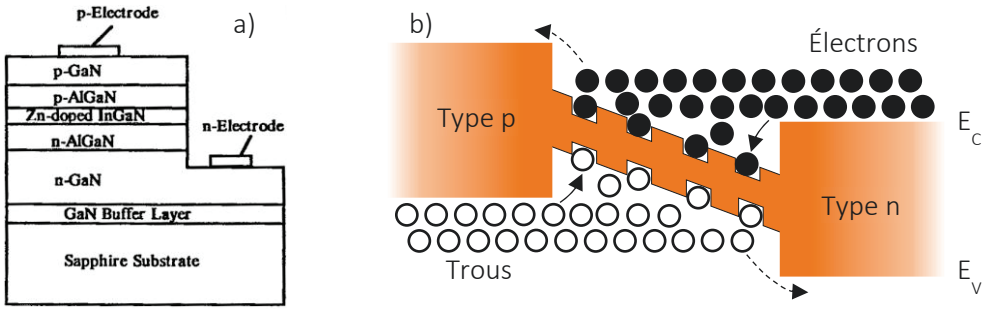


Figure I-18 : (a) LED bleue fabriquée par Nakamura (Nakamura et al. 1994), (b) schéma d'une jonction à double hétéro-structure avec puits quantiques.

Les avantages d'une double hétéro-structure sont multiples. L'utilisation de matériaux différents en dehors et dans la zone active permet de créer des barrières de potentiel augmentant de façon importante la concentration des porteurs de charge dans la zone active (contrairement au cas d'une homo-jonction où les porteurs sont répartis sur toute la longueur de diffusion). Il est ainsi possible de doper fortement les couches de confinement (zones dopées n et p), ce qui augmente le nombre de porteurs de charge et donc le nombre de recombinaisons. Enfin, le matériau de la zone active est choisi de façon à ce que son indice optique soit plus élevé que ceux des zones n et p afin de confiner les photons émis par guidage optique.

Cependant, lorsqu'un champ électrique est appliqué sur la double hétéro-jonction, cela a tendance à séparer partiellement les électrons des trous, réduisant l'efficacité de recombinaison et décalant le spectre d'émission vers les hautes longueurs d'onde (voir schéma en Figure I-19). Ainsi, pour pallier ce phénomène, il faut que la zone de confinement des porteurs reste fine, d'où l'utilisation de puits quantiques dans la zone active.

[5] MOVPE = Metalorganic vapour phase epitaxy (ou épitaxie en phase vapeur aux organométalliques).

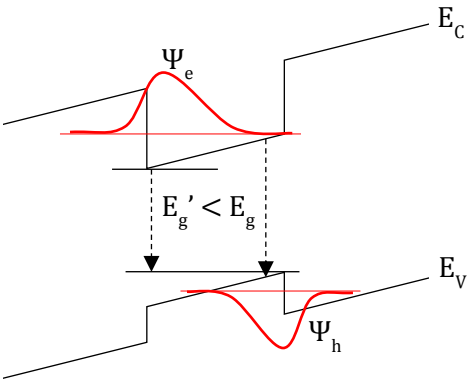


Figure I-19 : Éloignement des fonctions d'onde des électrons Ψ_e et des trous Ψ_h sous l'application d'un champ électrique, induisant une diminution de l'énergie de recombinaison E_g.

Ainsi, les puits quantiques permettent de maintenir ce confinement et augmentent la densité d'états au voisinage des extrema des bandes d'énergie malgré l'application d'un potentiel électrique. Les niveaux d'énergie dans un puits de potentiel étant discrets, il n'en existe qu'un nombre fini pour une dimension de puit donnée. Ainsi, pour de forts courants d'injection, la totalité des niveaux d'énergie des puits quantiques va être peuplée par les porteurs de charge, saturant la puissance maximale d'émission. Or, il n'est pas possible d'augmenter la largeur de ces puits sous peine de réduire le confinement. C'est pourquoi, les structures à puits quantiques multiples ont été créées (MQW pour *Multiple Quantum Well*).

Outre l'amélioration de la puissance d'émission (et donc de la brillance), cette technologie a eu deux autres conséquences sur les LEDs : une amélioration très nette de la durée de vie du composant par rapport aux autres sources lumineuse et une diminution drastique des prix rendue possible grâce à une production de masse.

Concernant la durée de vie d'une LED, il n'existe pas, pour le moment, de norme encadrant précisément cette définition. Ainsi, lorsque l'on entend parler de durées allant parfois jusqu'à 100 000h, rien n'indique s'il s'agit de la durée de vie moyenne, médiane, du composant, de la LED conditionnée ou encore des conditions dans lesquelles cette durée a été mesurée. Selon Georges Zissis, la définition généralement utilisée pour définir la durée de vie d'une LED est « le temps au bout duquel B% des LEDs émettent un flux lumineux inférieur à L% du flux inital » (Mottier 2008; Zissis & Logivière 2011). Par exemple, B50 L70 signifie que 50% des LEDs de l'échantillon testé n'émettent plus que 70% du flux initial après une durée d'utilisation donnée par le fournisseur, comme sur la Figure I-20. Ainsi, la durée de vie d'une LED dépend principalement de la température qui règne à sa jonction, paramètre lui-même dépendant du courant que l'on injecte dans le semi-conducteur. Une conclusion directe de ce constat est que si l'on veut injecter de forts courants, il est nécessaire d'utiliser la LED dans un régime impulsionnel afin de limiter l'échauffement de cette dernière. Nous constatons également que dans des conditions normales d'utilisation (température n'excédant pas les 150°C et un courant inférieur à 1 A pour une surface émettrice d'1 mm²), la durée de vie correspondant à cette définition atteint plusieurs dizaines de milliers d'heures de fonctionnement, ce qui reste de loin supérieur aux autres sources lumineuses (ne dépassant pas les 5 à 10 000 heures).

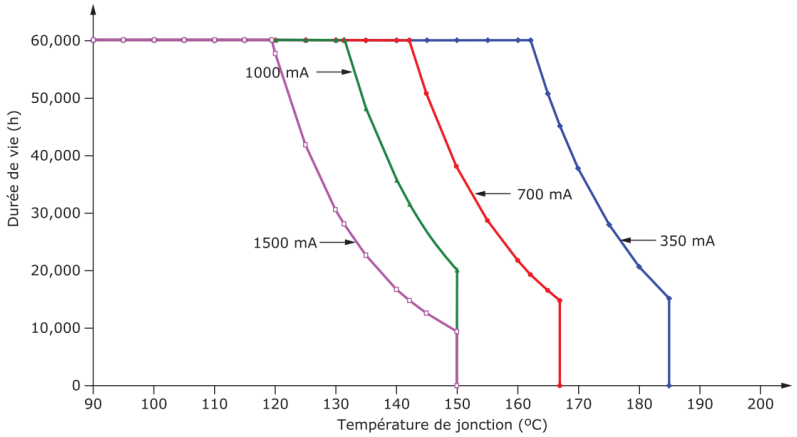


Figure I-20 : Durée de vie d'une LED K2 Luxeon (B50 L70) en fonction du courant et de la température de jonction (Zissis & Logivière 2011), issue de la documentation Luxeon.

La seconde conséquence est la diminution des prix. Un peu à l'instar de la loi de Moore pour le développement de la puissance des processeurs en informatique, il existe pour les LEDs une loi de Haitz décrivant l'évolution de la puissance de sortie et des prix des LEDs en fonction des années. Cette loi stipule qu'en 10 ans, la puissance des LEDs est multipliée par 20 et leur prix divisé par 10, voir la Figure I-21. Rien que depuis le début de cette thèse, la puissance des principales LEDs que nous utilisons a été multipliée par 2 et leur prix divisé par 4.

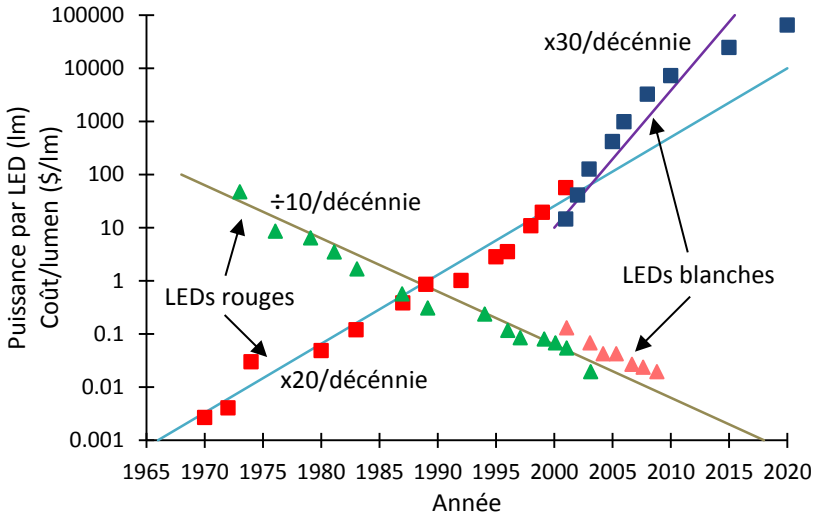


Figure I-21 : Loi de Haitz : en 10 ans, la puissance émise par une LED augmente d'un facteur 20 et son prix est divisé par 10 (Liu et al. 2009).

Avec le développement de nouveaux procédés de fabrication et de nouveaux réacteurs de croissance, il est maintenant possible d'utiliser des substrats faisant jusqu'à 15 cm de diamètre (6″) pouvant contenir plusieurs milliers de LEDs à la fois (voir Figure I-22). Cette production de masse contribue à la diminution du coût de fabrication des LEDs.

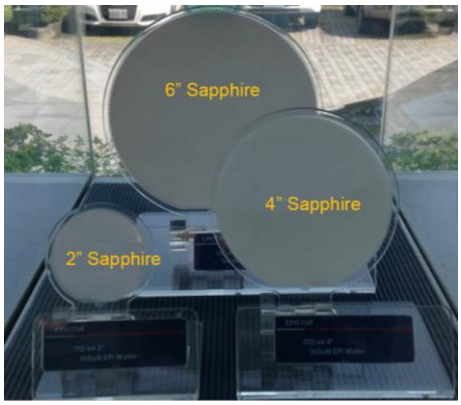


Figure I-22 : Substrats de saphir servant de base pour l'épitaxie (présentation Épistar).

Nous comprenons donc mieux pourquoi la « révolution » des LEDs s'est produite au début des années 2000. De plus, face à l'impact que cette découverte a eu sur le monde de l'éclairage et sur la société de manière générale, nous comprenons également pourquoi les auteurs de cette rupture technologique ont été récompensés par un prix Nobel de physique en 2014.

I.4.1.c Les technologies des LEDs : du composant au « chip on board » (COB)

Aujourd'hui, pour couvrir l'ensemble du spectre visible par les LEDs, deux moyens se démarquent. Il est possible d'utiliser une LED bleue avec un ou plusieurs phosphore(s) pour créer une LED blanche émettant un très large spectre (supérieur à 100 nm) ou bien plusieurs LEDs émettant chacune une bande spectrale bien plus faible (d'environ 20 nm comme nous l'avons vu précédemment). L'énergie de gap (et donc la longueur d'onde d'émission) étant déterminée par le matériau, il est donc nécessaire pour le dernier cas d'utiliser des matériaux différents si l'on souhaite couvrir tout le spectre visible. Pour cela, deux familles de matériaux semi-conducteurs se distinguent, les matériaux à base de nitrure (Ga, Al, In)N, à grand gap ayant une émission vers les basses longueurs d'onde, typiquement utilisés pour les LEDs bleues ; et les matériaux à base de phosphure (Al, Ga, In)P, qui auront tendance à émettre plutôt dans le rouge-orangé (au-delà de 600 nm) comme le montre la Figure I-23.

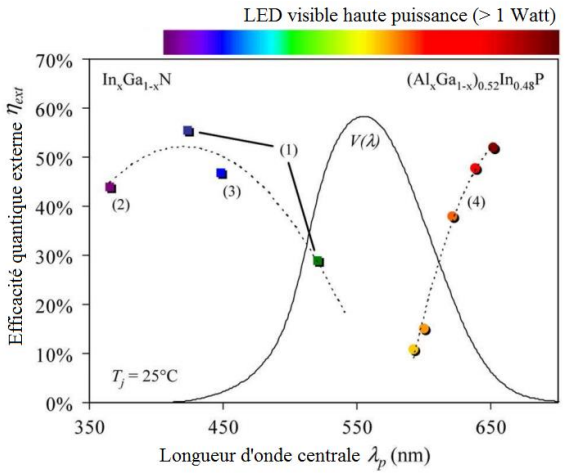


Figure I-23 : État de l'art des rendements quantiques externes de LEDs visibles hautes puissances, à 25°C. (1) LEDs TFFC[6] en InGaN, 350 mA ; (2) LED VTF en InGaN, 1000 mA ; (3) LEDs CC en InGaN avec des substrats structurés ; (4) Performances de LEDs de production en AlGaInP à 350 mA de chez Philips Lumileds Lighting Co.; V(λ) est la

[6] Les termes TFFC, VTF et CC sont expliqués dans le paragraphe juste après, avec la Figure I-24.

courbe de sensibilité de l'œil en vision photopique selon la CIE. Les pointillés servent à guider les yeux (Krames et al. 2007).

Dans la suite de ce paragraphe, nous ne nous intéresserons qu'aux LEDs à base de nitrure car elles nous permettront de comprendre pourquoi les LEDs percent le marché de l'éclairage depuis une quinzaine d'années. De plus, si nous utilisons ces LEDs, c'est également pour ne pas rentrer en concurrence avec les diodes laser qui sont très développées dans le rouge et le proche infrarouge. Pour plus de renseignements sur les LEDs à base de phosphure, (Krames et al. 2007) ont fait une description très complète en 2007.

Le substrat le plus utilisé pour les LEDs en nitrure est le saphir. Le matériau étant isolant électriquement, différentes configurations de LEDs sont apparues au cours du temps dans le but d'injecter le courant au plus proche de la jonction et améliorer l'extraction lumineuse. On distingue aujourd'hui quatre configurations principales (Krames et al. 2007; Mottier 2008) : la Conventionnal Chip (CC), la Flip Chip (FC), la Vertical Thin Film (VTF) et la Thin Film Flip Chip (TFFC), voir la Figure I-24.

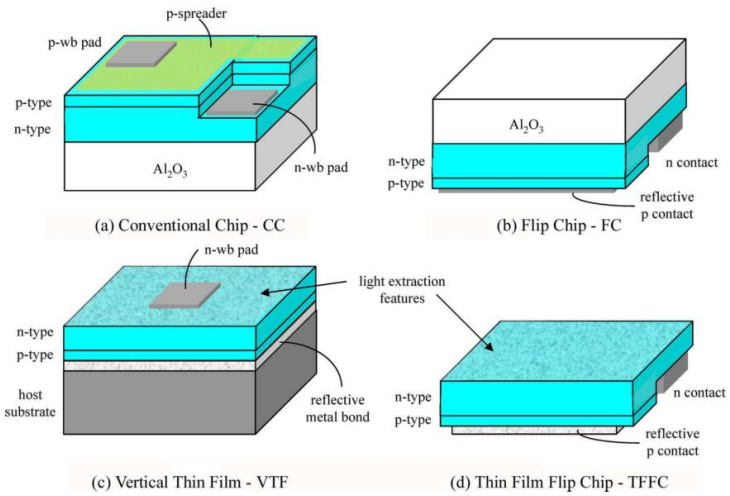


Figure I-24 : Configurations typiques de LEDs en InGaN-GaN. (a) Conventional chip (CC) avec un contact p semi-transparent, (b) Flip-chip (FC) avec un contact p réfléchissant, (c) Vertical-injection thin film (VTF) adhéré à un réflecteur en métal, (d) Thin-film flip-chip (TFFC). Les deux configurations « thin-film » permettent d'avoir accès à la surface en GaN et d'améliorer l'extraction de la lumière (en structurant la surface ou à l'aide de micro-optiques), (Krames et al. 2007).

- Conventionnal chip (CC)
  Dans cette configuration, il est nécessaire de graver la couche p pour avoir accès à la couche n et être en mesure de déposer le contact ohmique constituant la cathode. De plus, le GaN:Mg de type p étant un faible conducteur électrique, il est nécessaire de déposer un contact métallique semi-transparent à la surface de la LED pour uniformiser l'injection du courant. Malgré ces efforts technologiques, cette configuration possède de nombreux défauts : tout d'abord, une efficacité d'extraction réduite (due aux contacts électriques à sa surface), mais aussi une injection du courant et une dissipation thermique de l'ensemble plutôt mauvaises.

- Flip chip (FC)
  Un problème intrinsèque à la configuration CC est le compromis entre l'injection du courant et l'efficacité d'extraction de la lumière. En effet, pour limiter l'échauffement du contact électrique semi-transparent, il est nécessaire d'augmenter son épaisseur dès que l'on souhaite injecter de forts courants dans le semi-conducteur, diminuant l'efficacité d'extraction. Retourner la puce permet d'augmenter la dissipation thermique. Effectivement, dans cette configuration, le contact thermique est assuré par des matériaux

comme la céramique ou le silicium (qui possèdent une conductivité thermique plus élevée que le saphir). L'efficacité d'extraction est également améliorée puisque l'émission s'effectue au travers du substrat (avec peu d'absorption dans le cas du saphir) et qu'il est possible de déposer un réflecteur métallique renvoyant la lumière partant vers le bas. Enfin, cette configuration offre l'avantage de supprimer les fils d'or servant à l'injection du courant repoussant ainsi le seuil de cassure à celui du composant (les fils étant souvent l'élément qui casse en premier).

- Vertical thin film (VTF)
  Contrairement au système précédent, après le dépôt des couches n et p sur le substrat de saphir, la LED n'est pas retournée immédiatement. Le contact ohmique p est déposé sur toute la surface de la couche p avant d'être recouverte à son tour par un réflecteur métallique. La différence principale de cette configuration avec la précédente est la suppression du substrat en saphir. Pour cela, il faut en amont faire adhérer l'ensemble sur un substrat hôte (les couches n et p étant trop fines pour être rigides, elles doivent toujours reposer sur un substrat pour être manipulées). C'est seulement à cette étape que la LED est retournée. Enfin, le substrat en saphir peut être éliminé à l'aide d'un procédé appelé *Laser Lift-Off*, et le contact n déposé au centre de la couche n (qui possède une conductivité électrique suffisante pour ne pas nécessiter l'utilisation d'un contact électrique semi-transparent).
  Cette configuration offre la possibilité de structurer la couche n (puisqu'il n'y a plus le substrat dessus) afin d'améliorer le coefficient d'extraction de la lumière, mais nécessite d'amener le courant avec des fils.

- Thin film flip chip (TFFC)
  Enfin, cette dernière solution combine les avantages des configurations VTF (structuration de la couche n pour une bonne efficacité d'extraction et dissipation thermique améliorées) et FC (robustesse avec une injection du courant sans fil). Le processus de fabrication est identique à celui de la configuration FC. Ensuite, les LEDs sont découpées et connectées sur une embase (typiquement en céramique). Enfin, le substrat en saphir est retiré par *Laser Lift-Off*.

Du fait de l'absence de fils sur les configurations FC et TFFC, il est aisé de déposer une couche de phosphore sur la puce pour aboutir à une LED blanche. C'est ainsi que les LEDs blanches ont pu bénéficier de tous les développements menés sur les LEDs bleues, permettant d'atteindre les efficacités et les puissances qu'on leur connait aujourd'hui et de se faire une place dans le marché de l'éclairage.

Évidemment, les puces en semi-conducteur ne sont pas utilisables en l'état. Il faut les poser sur une embase, les connecter à un circuit imprimé (soit directement par les contacts comme dans les cas FC et TFFC, soit par des fils d'or), déposer du phosphore dans le cas d'une LED blanche, mettre un encapsulant (souvent en résine) qui servira à protéger la puce des agressions environnementales (humidité, poussières...) et enfin, mettre un dôme (dans le cas des LEDs lentillées). Ces différentes étapes intermédiaires entre la fabrication du composant électronique et son utilisation se résument par le mot anglais *packaging* (que nous pourrions traduire en français un peu maladroitement par « mise en boitier »).

Ainsi, au fil des années, les boitiers des LEDs ont beaucoup évolués, partant de la toute première LED (Holonyak & Bevacqua 1962), en passant par la LED à broche (probablement la forme la plus popularisée de la LED) dans les années 1970, à un boitier quasiment inexistant qui se résume au composant lui-même à partir des années 2000, voir la Figure I-25 ci-dessous (Mottier 2008).

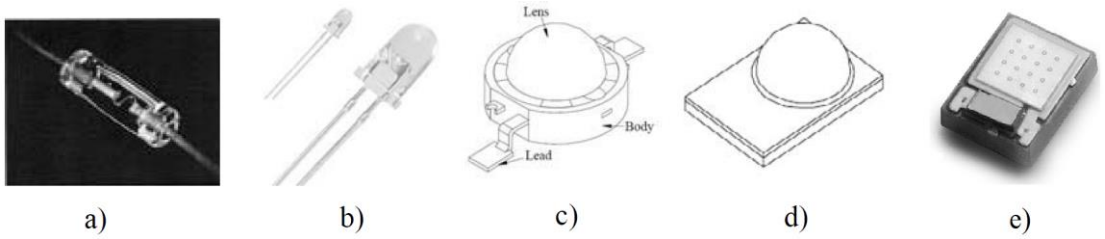


Figure I-25 : Évolution des boitiers des LEDs : a) 1ère LED (Holonyak & Bevacqua 1962), b) LED à broches, c) LED CMS « Leadform », d) LED CMS « Leadless », e) LED CSP

- Les LEDs à broches

  Dans une LED à broches, la puce est collée ou brasée dans une coupelle métallique servant de réflecteur et connectée électriquement et thermiquement à l'une des broches. Un fil d'or lie l'autre broche à la face avant de la puce. Le tout est encapsulé dans une résine de protection transparente ou colorée (en fonction des applications visées) qui joue également le rôle de lentille. Ce type de LED a été (et continue d'être) très utilisé dans toutes les applications de signalisation (feux routiers, témoin de mise sous tension d'un appareil électronique, lampe de poche…).

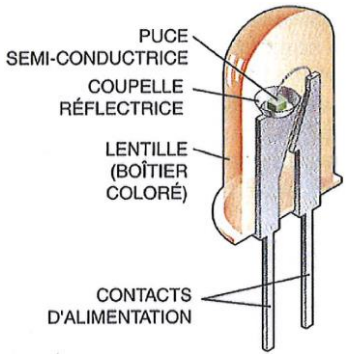


Figure I-26 : Schéma d'une LED à broches (Craford et al. 2001).

- Les LEDs CMS « Leadform »

  Les LEDs ayant suivi l'évolution des composants électroniques, la nécessité d'avoir des composants montés en surface (CMS) soudables s'est fait ressentir. Ces derniers sont dits *Leadform* car ils possèdent des pattes d'interconnexion métalliques extérieures. Bien que les fournisseurs conçoivent différents types de LEDs *Leadform*, elles peuvent toutes être regroupées autour de 6 caractéristiques typiques : 1) la puce, 2) un support mécanique permettant l'interconnexion électrique et la dissipation thermique, 3) un luminophore dans le cas des LEDs blanches, 4) un encapsulant pour protéger la puce, 5) une optique rapprochée de type lentille et enfin 6) des pattes d'interconnexion extérieures pour l'assemblage sur une carte mère par exemple.

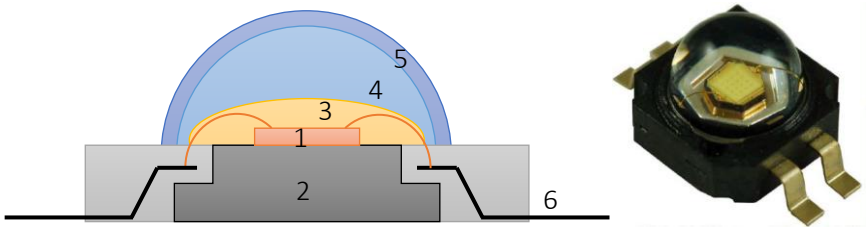


Figure I-27 : (à gauche) Schéma d'une LED « Leadform » avec une puce (1), un support d'interconnexion et de dissipation thermique (2), un luminophore (3), un encapsulant (4), une lentille (5) et des pattes d'interconnexion externes (6) ; (à droite) illustration d'une LED « Leadform », source : Lumileds.

- Les LEDs CMS « Leadless »
  Par la suite, afin de gagner en compacité, les pattes d'interconnexion externes ont été remplacées par des contacts traversants (vias), amenant le courant du circuit imprimé à la puce. Le support, généralement en céramique (à base d'alumine ou de nitrure d'aluminium pour leurs conductivités thermiques élevées), sert d'isolant électrique et dissipateur thermique.

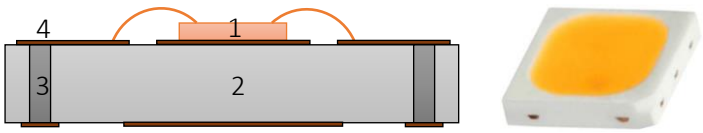


Figure I-28 : (à gauche) Schéma d'une LED « Leadless » avec une puce (1), une embase en céramique (2), des vias traversants (3) et des interconnexions de surface (4) ; (à droite) illustration d'une LED « Leadless », source : Épistar.

- Du CSP au COB
  Aujourd'hui, le boitier le plus abouti est le CSP pour *Chip Scale Package*. Le but est de réduire littéralement le boitier à la taille de la puce, permettant la réalisation de sources ultra-compactes. Dans cette configuration, la puce est directement déposée sur le circuit imprimé. Cette technique est appelée le *Chip on Board* (ou COB). Il est ainsi possible de déposer les puces selon n'importe quel schéma (une matrice, un disque ou tout autre tracé demandé par un client). Enfin, cette technologie augmente la conductivité thermique du système en réduisant le nombre d'interfaces thermiquement résistantes.

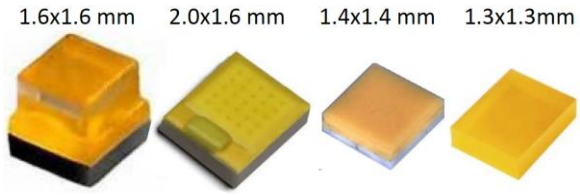


Figure I-29 : LEDs CSP type Luxeon de Lumileds.

I.4.1.d Limites et améliorations

L'efficacité électrique-optique globale des LEDs cache de nombreuses autres efficacités dépendant de différents paramètres tels que le rendement quantique interne, l'extraction lumineuse, la conversion du phosphore (pour les LEDs blanches), les pertes par propagation, etc. Chaque année, le département de l'énergie des États-Unis publie des rapports faisant l'état de l'art des technologies liées à l'énergie et propose des objectifs à atteindre pour les 5 à 10 ans à venir. L'un de ces rapports appelé *Multi-Year Program Plan* (MYPP) porte sur l'éclairage à LED et sert de ligne de route pour les fabricants de LEDs. Le rapport de 2013[7] dresse ainsi une liste des différentes efficacités actuelles et futures (voir Figure I-30), qui sont les axes de recherche privilégiés des grandes entreprises de LED comme Nichia, Cree, Osram ou Épistar.

[7] http://apps1.eere.energy.gov/buildings/publications/pdfs/ssl/ssl_mypp2013_web.pdf

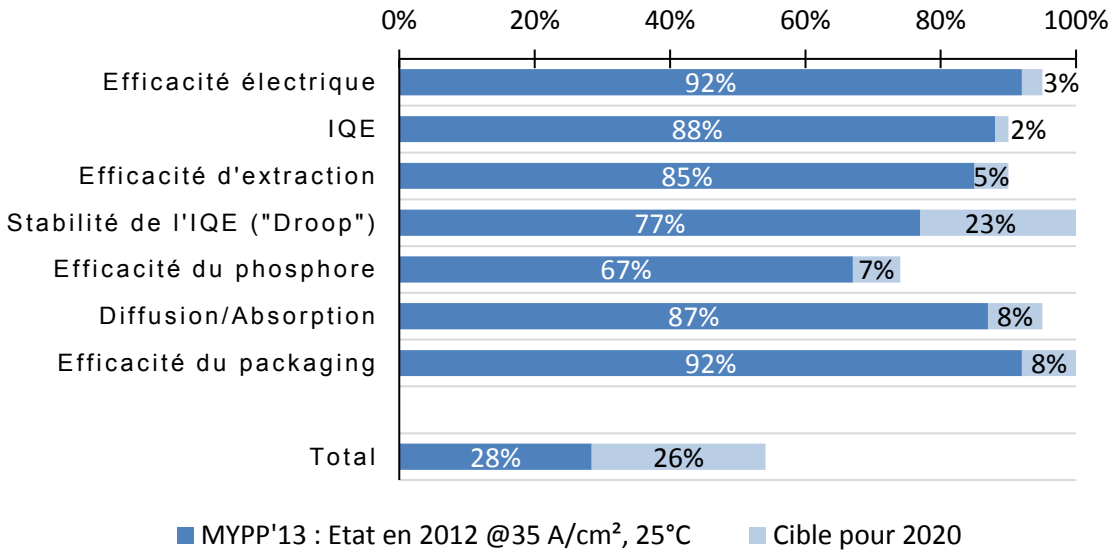


Figure I-30 : Les différentes efficacités d'une LED, MYPP = Muli-Year Program Plan, IQE = Internal Quantum Efficiency, EQE = External Quantum Efficiency, stabilité de l'EQE : EQE à 100 A/cm² relative à 35 A/cm².

L'efficacité d'extraction des LEDs est un paramètre dans lequel les industriels concentrent beaucoup d'efforts. À cause des indices élevés des matériaux semi-conducteurs, la réflexion totale interne sur les faces de la puce piège une grande quantité de lumière générée. Par exemple, pour une LED en GaN (dont l'indice optique est de 2,5), l'angle du cône d'échappement n'est que de 23°, réduisant la lumière extraite à seulement 4%[8] ! Ainsi, outre les différentes configurations développées dans ce but (Figure I-24), les solutions principales se résument à disposer une couche métallique réfléchissante dans la direction opposée à l'émission afin de recycler les rayons partant dans la mauvaise direction et à structurer l'interface de sortie (côté n). Actuellement, cette structuration (ou texturation) se fait de deux manières. La première consiste à inscrire un motif aléatoire à la surface afin de la rendre diffusante. De cette façon, la probabilité qu'un rayon incident à la surface soit inclus dans le cône d'échappement augmente statistiquement. C'est ainsi que (Krames et al. 2007) ont mesuré une efficacité d'extraction de 80% ! La seconde manière, complètement à l'opposé du caractère aléatoire, consiste à inscrire un motif périodique afin de créer un cristal photonique qui va coupler la lumière dans les modes rayonnés (Rattier et al. 2002). Dans la pratique, malgré son efficacité, cette solution reste pour le moment technologiquement incompatible avec une production à grande échelle à cause de la taille des motifs (de l'ordre de la centaine de nanomètres) en jeu.

Parmi les autres défis que les fabricants de LEDs devront relever, il y a l'amélioration de l'efficacité quantique interne pour des densités de courant injecté élevées (ce phénomène est appelé *efficiency droop,* « chute de l'efficacité » littéralement, qui se produit à partir de plusieurs dizaines à quelques centaines d'A/cm²). L'origine de cette baisse d'efficacité était attribuée à l'élévation de la température de la jonction, mais il a été démontré récemment (Iveland et al. 2013) que cette diminution provient de la recombinaison d'électrons par effet Auger, phénomène non-radiatif. Il est également probable que ce soit ce phénomène qui soit à l'origine des faibles efficacités des LEDs vertes, expliquant pourquoi il est difficile d'obtenir de fortes puissances dans cette gamme de longueur d'onde. Cependant, peu de temps après la découverte de l'origine de cette baisse, une équipe de l'U.S. Naval Research Laboratory a annoncé avoir trouvé une solution en changeant le profil du puit de potentiel de la bande de valence (Roman Vaxenburg et al. 2013; R. Vaxenburg et al. 2013).

[8] En négligeant les réflexions sur les autres faces du composant issues des rayons lumineux partis dans la mauvaise direction. Ce calcul présuppose également une émission isotrope de la lumière depuis les puits quantiques, ce qui est proche de la réalité.

Un effort est également à faire dans l'identification des mécanismes de génération de la lumière afin de comprendre les problèmes liés aux défauts de dopage de type p et à l'incorporation de fortes concentrations d'indium dans les diodes vertes en InGaN.

Le paramètre le plus faible parmi les efficacités présentées en Figure I-30 est la conversion lumineuse du phosphore. En effet, étant données les faibles épaisseurs de phosphore en jeu, ce dernier n'absorbe que faiblement la lumière émise par la LED. Ainsi, des progrès sont attendus à la fois dans l'absorption de ces matériaux autour de la bande 370 – 450 nm, mais également dans leur capacité à réémettre efficacement cette lumière, en améliorant leur rendement quantique.

Enfin, une grande marge de progression est également possible au niveau de l'efficacité quantique interne, surtout pour des densités de courant élevées, comme le montre la Figure I-31.

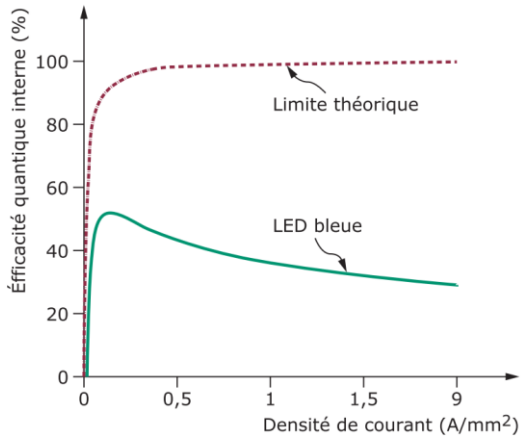


Figure I-31 : Efficacités quantiques internes théorique et expérimentale d'une LED (Zissis & Logivière 2011).

Les LEDs dans le futur seront donc encore meilleures, ce qui constitue une raison supplémentaire pour étudier le pompage par LED.

I.4.2 Performances des LEDs

I.4.2.a En régime continu

Les LEDs de fortes puissances couvrent par bandes tout le spectre visible et le début de l'infrarouge proche. On en trouve à partir de 365 nm jusqu'à 950 nm[9]. Les puissances varient beaucoup selon les couleurs. En effet, la longueur d'onde d'émission est déterminée par le matériau du semi-conducteur dont dépend la technologie de fabrication associée. Ceci est résumé dans le Tableau I-3 suivant et illustré sur la Figure I-32 ci-dessous.

[9] Nous pouvons également trouver des LEDs à 320 nm et 1050 nm mais avec des puissances et des efficacités bien plus faibles.

Longueur d'onde (nm)		Puissance optique* (mW)	Éclairement (W/cm²)	Fabricant
UV	365 400 – 415	600 1 000 à 2 000	60 100 à 200	LED Engin
Bleu	430 – 470	800 à 1 500	80 à 150	LED Engin/Seoul semiconductor
Vert	505 – 530	430	43	Seoul semiconductor
Ambre	590 – 620	300	30	OSRAM Opto
Rouge	630 – 660 740	650 370	65 37	LED Engin/Seoul semiconductor LED Engin
IR	850 940	900 500	90 50	OSRAM Opto
Blanc	5 000 K (froid) 3 000 K (chaud)	850 900	85 90	LED Engin LED Engin

*Tableau I-3 : Récapitulatif des longueurs d'onde existantes avec les puissances associées. *Puissances obtenues pour une puce de 1x1 mm² alimentée en continu par un courant de 1 A.*

Nous pouvons remarquer que les éclairements en continu inscrits dans le Tableau I-3 vont jusqu'à 200 W/cm² soit au moins trois ordres de grandeur supérieurs aux éclairements des LEDs utilisées dans les années 1970.

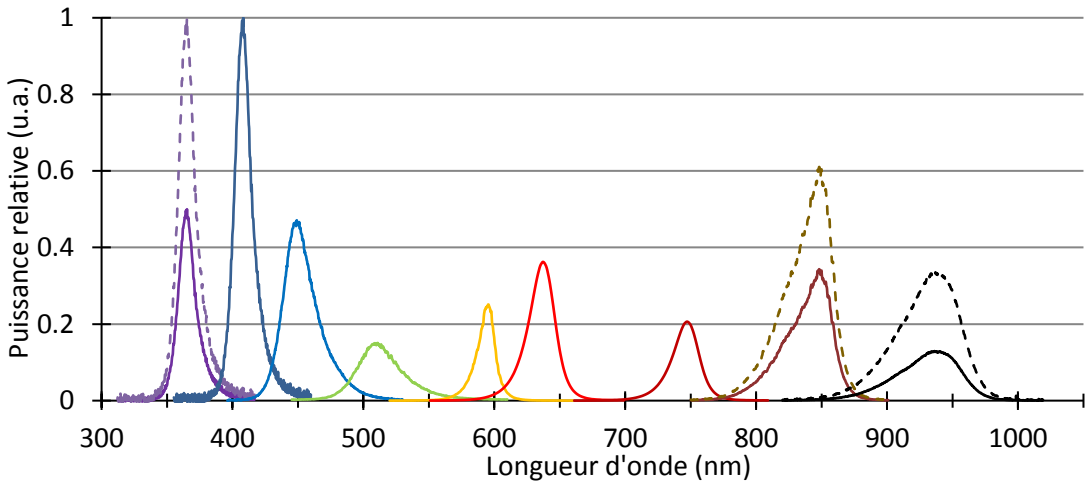


Figure I-32 : Puissances spectrales relatives des LEDs (normalisées par rapport à la LED UV, la plus puissante). En continu, l'état des puissances en 2013 et en pointillés, l'amélioration en 3 ans.

Nous pouvons très nettement voir la différence de largeur spectrale entre les LEDs bleues/UV et les LEDs IR et l'impact que cela a sur l'intensité spectrale crête. En effet, bien que la LED IR à 850 nm soit 50% plus puissante que la LED UV à 365 nm (900 mW contre 600 mW), cette dernière a tout de même son maximum spectral plus élevé que celui de la LED IR, dû à sa faible largeur spectrale. Enfin, en trois ans, certaines LEDs ont vu leurs puissances multipliées par deux (voir courbes en pointillés sur la Figure I-32).

I.4.2.b En régime impulsionnel

Nous l'avons vu précédemment dans la bibliographie, il est souvent nécessaire de faire fonctionner les LEDs en régime impulsionnel pour générer un effet laser. En effet, un semi-conducteur est limité par la thermique qui apparait lorsqu'un fort courant est imposé à ses bornes. Ainsi, un fonctionnement des LEDs en régime impulsionnel permet d'atteindre ce même niveau de thermique critique avec des courants plus forts, mais pendant un temps plus court. Voici quelques détails sur les ordres de grandeur quant au gain que l'on peut obtenir.

Nous définissons ici un gain entre le régime continu et le régime impulsionnel par le rapport entre la puissance de la LED à son courant crête maximal (c'est-à-dire avant claquage) en régime impulsionnel par la puissance de cette même LED alimentée à 1 A en continu. Littéralement :

$$G_{impulsionnel} = \frac{P_{LED(courant\ de\ claquage)}}{P_{LED(1\ A\ continu)}} \qquad Eq.\ I\text{-}4$$

Bien entendu, ce gain varie énormément en fonction de la longueur d'onde et de la durée d'impulsion. La Figure I-33 représente les résultats de ces mesures que j'ai réalisées pendant mon stage chez Effilux. Il sera plus important pour les LEDs bleues car ce sont celles qui sont capables de supporter les plus grands courants. Par comparaison, une LED ambre émet environ 0,27 W à 1 A et seulement 0,64 W à 3 A (un gain équivalent à 2,4). Les LEDs ambre sont probablement les plus mauvaises LEDs que l'on puisse trouver sur le marché en matière de puissances émises, de tenues au courant, de tenues du flux à hautes températures et de durée de vie. Ceci est lié à la nature du matériau et au fait qu'il n'y a pas d'application de grande ampleur qui exploiterait cette longueur d'onde. On remarque d'ailleurs que le gain $G_{impulsionnel}$ de la LED ambre est le gain le plus faible que l'on a obtenu parmi tous nos tests en régime impulsionnel (voir Figure I-33). On obtient avec les LEDs bleues des gains avoisinant 5 à 6, un gain de 8 pour les LEDs rouges et à peine 4 pour des LEDs vertes.

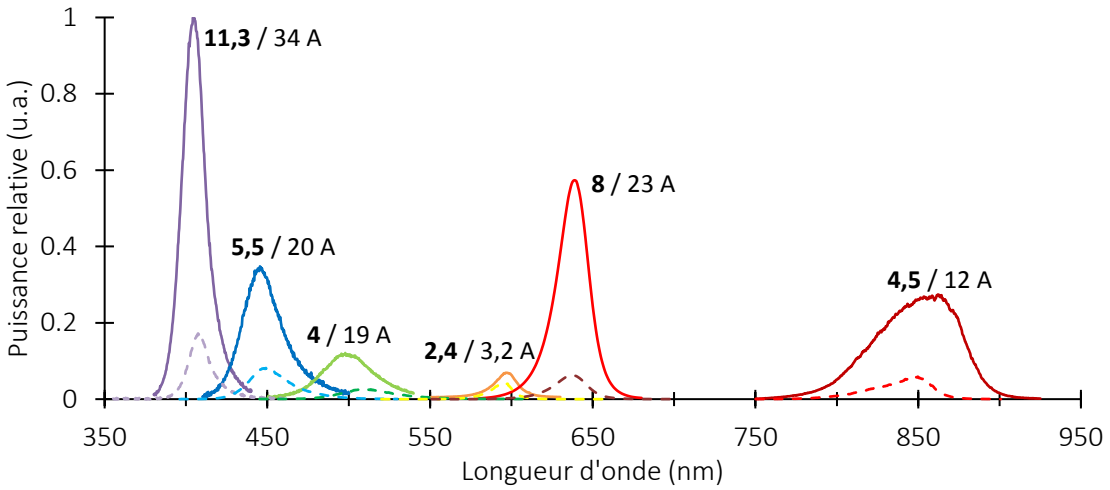


Figure I-33 : Puissances spectrales relatives des LEDs en régime impulsionnel (en trait plein) et en continu pour comparaison (en pointillés). Pour chaque courbe sont précisés le gain $G_{impulsionnel}$ et le courant de claquage. La durée d'impulsion est fixée à 4 µs pour toutes les mesures.

Les mesures ont été effectuées avec une durée d'impulsion de 4 µs pour deux raisons. Dans un premier temps, nous voulions réaliser ces tests avec une durée la plus courte possible pour limiter l'échauffement des LEDs et ainsi avoir un majorant de ce qu'il est possible d'obtenir en régime impulsionnel. La seconde raison est liée au temps de montée et de descente des fronts de l'impulsion, limité par notre montage électrique.

Une conséquence du régime impulsionnel est le décalage spectral. Nous l'avons vu en début de chapitre, la longueur d'onde d'émission des semi-conducteurs (que ce soient des lasers ou des LEDs) change avec le courant d'injection et la température. Alors que la longueur d'onde des LEDs UV ou ambre ne va se décaler que de 2 nm, celle des LEDs bleues peut se décaler de 10 nm pour de forts ampérages. La largeur spectrale peut même s'agrandir pour certaines longueurs d'onde (c'est le cas par exemple de la LED IR sur la Figure I-34). Pour aider à la compréhension de ce graphique, pour une LED donnée, sa puissance en continu et en impulsionnel a été adaptée afin de mettre en exergue les décalages spectraux. Ces décalages ne sont pas très contraignants car la largeur spectrale d'une LED est

de plusieurs dizaines de nm. Cependant, il est important de connaître ce phénomène pour pouvoir l'anticiper dans les simulations par exemple.

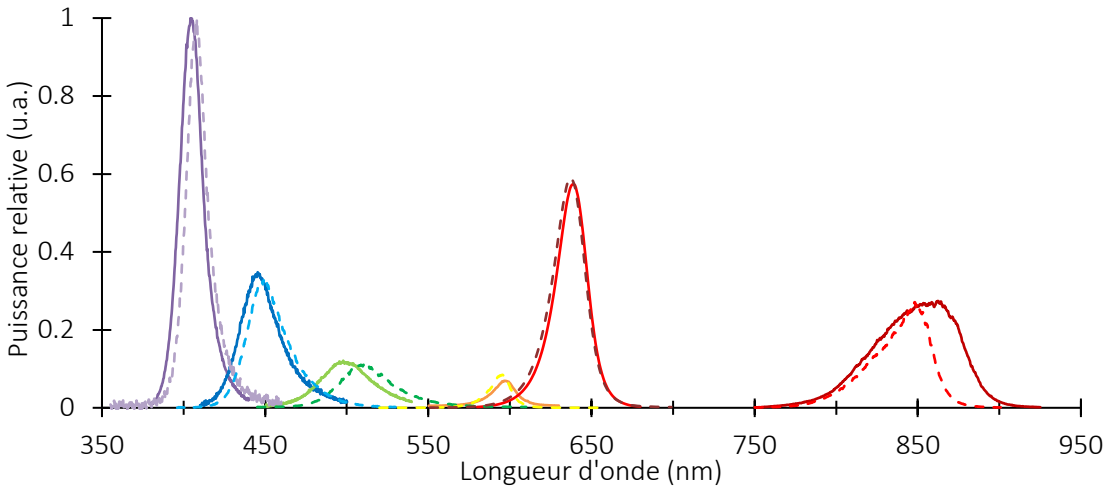


Figure I-34 : Illustration du décalage spectral entre des LEDs en régime impulsionnel (trait plein) et continu (trait pointillé).

En conclusion, le régime impulsionnel nous permet d'accroître pendant un temps très court la puissance émise d'une LED tout en limitant l'échauffement. Ces avantages sont contrebalancés par un décalage en longueur d'onde qui peut s'avérer plus ou moins gênant selon la largeur de la bande d'absorption du matériau laser considéré.

I.5 Conclusion

Pour conclure sur l'état de l'art du pompage par LED, on peut faire plusieurs remarques. Tout d'abord, pour chaque axe de recherche, il y a relativement peu de références. En effet, encore peu de laboratoires se sont attaqués au pompage par LED. Ensuite, la géométrie de pompage préférentielle dans le cas des cristaux est quasiment toujours le pompage transverse du fait des propriétés d'émission des LEDs (lambertienne). Enfin, on remarque qu'en l'espace de 40 ans, l'éclairement en régime continu des LEDs a augmenté de 2 à 3 ordres de grandeur (nous sommes passés de 0,1 W/cm² à plusieurs dizaines de W/cm² en continu, voire le kW/cm² en régime impulsionnel). Cependant, ceci reste encore faible par rapport aux éclairements des diodes lasers (de l'ordre de la dizaine de kW/cm²).

BIBLIOGRAPHIE CHAPITRE I

Alferov, Z.I., Bilak, V.I., et al., 1975. Possibility of increasing the pulse power of a YAG:Nd3+ laser with semiconductor pump. *Sov. Tech. Phys. Lett.*, 1, p.338.

Alferov, Z.I., Andreev, V.M., et al., 1975. YAG:Nd pumping by a planar AlAs-GaAs heterojunction light-emitting diode. *Sov. Phys. Tech. Phys.*, 20, p.231.

Allen, R.B. & Scalise, S.J., 1969. Continuous operation of a YAlG: Nd laser by injection luminescent pumping. *Applied Physics Letters*, 14(6), p.188.

Barbet, A. et al., 2015. LED side-pumped Nd3+: YVO4 laser at room temperature. In *SPIE LASE*. p. 934210.

Barbet, A. et al., 2016. Light-emitting diode pumped luminescent concentrators: a new opportunity for low-cost solid-state lasers. *Optica*, 3(5), p.465.

Barbet, A. et al., 2014. Revisiting of LED pumped bulk laser: first demonstration of Nd:YVO4 LED pumped laser. *Optics Letters*, 39(23), p.6731.

Barnes, N.P., 1973. Diode-pumped solid-state lasers. *Journal of Applied Physics*, 44(1), p.230.

Barry, J.D. & Einhorn, A.J., 1980. Laser Pumping System.

Bilak, V. & Goldobin, I., 1981. Neodymium YAG lasers pumped by light-emitting diodes. *Soviet Journal of Quantum Electronics*, 11(11), pp.1471–1476.

Birnbaum, M., 1968. The Ruby Laser: Pumped By a Pulsed Argon Ion Laser. *Applied Physics Letters*, 12(7), p.225.

Brenner, C.H., 1973. Integral Reflecting Cavity Semiconductor Pumped Laser.

Budin, J.P., Neubauer, M. & Rondot, M., 1978. On the Design of Neodymium Miniature Lasers. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 14(11), pp.831–839.

Budin, J.-P., Neubauer, M. & Rondot, M., 1978. Miniature Nd-pentaphosphate laser with bonded mirrors side pumped with low-current-density LED's. *Applied Physics Letters*, 33(4), p.309.

Burrus, C.A. & Miller, B.I., 1971. Small-area, double-heterostructure aluminium-gallium arsenide electroluminescent diode sources for optical-fiber transmission lines. *Optics Communications*, 4(4), pp.307–309.

Burrus, C.A., Stone, J. & Dentai, a. G., 1976. Room-temperature 1.3 μm c.w. operation of a glass-clad Nd:Y.A.G. single-crystal fibre laser end pumped with a single L.E.D. *Electronics Letters*, 12(22), p.600.

Chénais, S. & Forget, S., 2011. Recent advances in solid-state organic lasers. *Society of Chemical Industry*, 61(3), pp.390–406.

Chesler, R.B. & Draegert, D.A., 1973. Miniature diode-pumped Nd : YAlG lasers. *Applied Physics Letters*, 23(5), p.235.

Chesler, R.B. & Singh, S., 1973. Performance model for end-pumped miniature Nd:YAlG lasers. *Journal of Applied Physics*, 44(12), p.5441.

Craford, G., 2004. LEDs a Challenge for Lighting. In *Proceedings of the 10th International Symposium on the Science and Technology of Light Sources*. p. 3.

Craford, G., Holonyak, N. & Kish, F., 2001. Les diodes éclairent le futur Georges. *Pour la Science*, 283, p.78.

Danielmeyer, H.G. & Ostermayer, F.W., 1972. Diode-pump-modulated Nd:YAG laser. *Journal of Applied Physics*, 43(6), pp.2911–2913.

Degiorgio, V. & Cristiani, I., 2014. *Photonics* Springer. Springer, ed.,

Denbaars, S.P. et al., 2000. Multi color solid state led/laser.

Denker, B.I. et al., 1980. Lasing in phosphate glasses with high neodymium ion concentrations under pumping with light-emitting diodes. *Soviet Journal of Quantum Electronics*, 10(9), p.1167.

Deppe, D.G. et al., 2012. Semiconductor Laser Integrated with a Thermoelectrophotonic Light Emitting Diode Heat Pump. In *IEEE*. pp. 852–853.

Dierschke, E.G., 1970. Diode array assembly for diode pumped lasers.

Draegert, D.A., 1973. Single-Diode End-Pumped Nd:YAG Laser. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 9(12), p.1146.

Duarte, F.J., 2003. Light-emitting diode pumped laser and method of excitation.

Elder, I.F., 1992. *Laser diode end-pumped Nd:YAG laser*,

Fan, T. & Byer, R., 1988. Diode Laser-Pumped Solid-State Lasers. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 24(6), p.895.

Farmer, G.I. & Kiang, Y.C., 1974. Low-current-density LED-pumped Nd: YAG laser using a solid cylindrical reflector. *Journal of Applied Physics*, 45(3), p.1356.

Farmer, G.I., Kiang, Y.C. & Lynch, R.J., 1973. *LED pumped Nd:YAG laser development program*,

Forget, S. & Chénais, S., 2013. *Organic Solid-State Lasers* Springer S. Springer, ed., Springer.

Govorkov, S. V. & Spinelli, L.A., 2004. InGaN LED pumped II-VI semiconductor laser.

Harris, R.L. & Allen, R.B., 1972. A TEM_{00} MODE DIODE-PUMPED Nd:YAG LASER. In *Electron Devices Meeting*. p. 166.

Hecht, J., 2010. A short history of laser development. *Applied optics*, 49(25), pp.F99–F122.

Herrnsdorf, J. et al., 2013. Micro-LED pumped polymer laser: A discussion of future pump sources for organic lasers. *Laser & Photonics Reviews*, 7(6), pp.1065–1078.

Hill, E.S. & Durfee, C.G., 2015. LED pumped laser device and method of use. *US Patent App.*

Holonyak, N. & Bevacqua, S.F., 1962. Coherent (visible) light emission from Ga(As1-xPx) junctions. *Applied Physics Letters*, 1(4), pp.82–83.

Htein, L. et al., 2013. Amplification at 1400-1450 nm of the large-core Nd-doped fiber by white LED pumping. *IEEE Photonics Technology Letters*, 25(11), pp.1081–1083.

Htein, L. et al., 2012. Amplification by white light-emitting diode pumping of large-core Er-doped fiber with 12 dB gain. *Optics letters*, 37(23), pp.4853–5.

Htein, L., Fan, W. & Han, W.-T., 2014a. Broad gain of the Er/Al-doped fiber amplifier by pumping with a white light-emitting diode. *Journal of Luminescence*, 146, pp.87–90.

Htein, L., Fan, W. & Han, W.-T., 2014b. Emission characteristics of the Yb3+-sensitized Tm3+-doped optical fiber upon pumping with infrared LED. *Journal of Luminescence*, 145, pp.198–201.

Huang, K. et al., 2015. 750-nm LED-pumped Nd:YAG laser. In *ASSL 2015*. p. 2331911.

Huang, K.-Y. et al., 2016. Efficient 750-nm LED-pumped Nd:YAG laser. *Optics Express*, 24(11), p.12043.

Hummel, P., 2011. Laboratory record: red LED breaks through the 200 lm/W barrier. *Optik & Photonik*, 6(4), p.16.

Iveland, J. et al., 2013. Direct measurement of auger electrons emitted from a semiconductor light-emitting diode under electrical injection: Identification of the dominant mechanism for efficiency droop. *Physical Review Letters*, 110(17), pp.1–5.

Iwamoto, K. et al., 1976. Room Temperature cw Operated Superluminescent Diodes for Optical Pumping

of Nd : YAG Laser. *Japanese Journal of Applied Physics*, 15(11), p.2191.

Jason, P.D., 2008. Organic lasers - LED pumps polymer laser. *Laser Focus World*, 44(6), pp.28–31.

Javan, A., Bennett, W.R. & Herriott, D.R., 1961. Population inversion and continuous optical maser oscillation in a gas discharge containing a He-Ne mixture. *Physical Review Letters*, 6(3), pp.106–110.

Kay, D.B., 1973. Header Assembly for Lasers. *United State Patent*.

Keyes, R.J. & Quist, T.M., 1964. Injection luminescent pumping of CaF2:U3+ with GaAs diode lasers. *Applied Physics Letters*, 4(3), pp.50–52.

Keyes, R.J. & Quist, T.M., 1962. Recombination radiation emitted by gallium arsenide. *Proc. IRE*, 50(8), pp.1822–1823.

Kiang, Y.C. & Farmer, G.I., 1972. Efficient optically coupled GaAlAs diode pumped Nd:YAG laser. In *Electron Devices Meeting*. p. 164.

Koechner, W., 1976. *Solid-State Laser Engineering* 1st editio. S. S. Media, ed., Springer Science+Business Media.

Krames, M.R. et al., 2007. Status and future of high-power light-emitting diodes for solid-state lighting. *IEEE/OSA Journal of Display Technology*, 3(2), pp.160–175.

Kubodera, K. & Otsuka, K., 1977. Diode-pumped miniature solid-state laser: design considerations. *Applied optics*, 16(10), pp.2747–52.

Kuratev, L.I., 1984. Solid-state lasers with semiconductor pumping. *Izvestiya Akademii Nauk SSSR. Seriya Fizicheskaya*, 48(8), p.1564.

Langner, W., 1999. LED-Gepumpter Hochleistungslaser.

Lee, H., Shin, J. & Park, N., 2005. Performance analysis of nanocluster-Si sensitized Er-doped waveguide amplifier using top-pumped 470nm LED. *Optics express*, 13(24), pp.9881–9889.

Lee, H., Shin, J.H. & Park, N., 2006. Amplification characteristics of nanocluster-Si sensitized Er-doped waveguide amplifier using top-pumped blue-green LED. In *Proc. of SPIE*. p. 63522R.

Lee, K., Bae, S., et al., 2011. Study of a QCW Light-emitting-diode (LED)-pumped Solid-state Laser. *Journal of the Korean Physical Society*, 59(5), p.3239.

Lee, K., Lee, S. & Yi, J., 2011. Solid-State Lasers Pumped by LED. In *CIOMP-OSA Summer Session: Lasers and …*. pp. 2–3.

Liu, X. et al., 2013. Possibility for Breaking the Unity Efficiency Barrier: Semiconductor Laser Optically Pumped by an Integrated Light Emitting Diode. In *CLEO:2013*. p. CTh1G.8.

Liu, X. et al., 2013. Semiconductor laser monolithically pumped with a light emitting diode operating in the thermoelectrophotonic regime. *Applied Physics Letters*, 102(8), p.81116.

Liu, Z. et al., 2009. Status and prospects for phosphor-based white LED packaging. *Frontiers of Optoelectronics in China*, 2(2), pp.119–140.

Luo, N. et al., 2005. Solid-state lasers employing incoherent monochromatic pump.

Lupton, J.M., 2008. Over the rainbow. *Nature*, 453, pp.459–460.

Maiman, T., 1960. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187, p.494.

Mottier, P., 2008. *Les diodes électroluminescentes pour l'éclairage* Lavoisier. Lavoisier, ed., Hermes Science.

Nakamura, S. et al., 1996. InGaN-based multi-quantum-well-structure laser diodes. *Japanese Journal of Applied Physics, Part 2: Letters*, 35(1B), p.L74.

Nakamura, S., 1998. The Roles of Structural Imperfections in InGaN-Based Blue Light-Emitting Diodes

and Laser Diodes. *Science*, 281(5379), pp.956–961.

Nakamura, S., Mukai, T. & Senoh, M., 1994. Candela-class high-brightness InGaN/AlGaN double-heterostructure blue-light-emitting diodes. *Applied Physics Letters*, 64(13), pp.1687–1689.

Newman, R., 1963. Excitation of the Nd3+ Fluorescence in CaWO4 by Recombination Radiation in GaAs. *Journal of Applied Physics*, 34(2), p.437.

Ochs, S.A. & Pankove, J.I., 1964. Injection-Luminescence Pumping of a CaF2:Dy2+ Laser. In *Proceedings of the IEEE*. pp. 713–714.

Ostermayer, F.W., 1971. GaAs1−xPx diode pumped YAG : Nd lasers. *Applied Physics Letters*, 18(3), p.93.

Ostermayer, F.W., Allen, R.B. & Dierschke, E.G., 1971. Room-Temperature cw Operation of a GaAs1−xPx Diode-Pumped YAG:Nd Laser. *Applied Physics Letters*, 19(8), p.289.

Ostermayer, F.W.J., 1970. High-efficiency diode-pumped lasers.

Ostermayer, J., 1977. LED End-Pumped Nd:YAG Lasers. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 13(1), pp.1–6.

Payne, S. a et al., 1994. Properties of Cr:LiSrAlF(6) crystals for laser operation. *Applied optics*, 33(24), pp.5526–36.

Pressley, R.J., 1982. Light-emitting-diode-pumped alexandrite laser. *European Patent Office*.

Rattier, M. et al., 2002. Toward ultrahigh-efficiency aluminum oxide microcavity light-emitting diodes: Guided mode extraction by photonic crystals. *IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics*, 8(2), pp.238–247.

Reinberg, A.R. et al., 1971. GaAs: Si LED Pumped Yb-Doped YAG Laser. *Applied Physics Letters*, 19(1), p.11.

Round, H.J., 1907. A note on carborundum. *Electrical World*, 49, p.309.

S. A. Belozerov et al., 1984. Nd : YAG solid-state ring laser pumped by a light-emitting diodes. *Soviet Journal of Quantum Electronics*, 10, p.19.

Samuel, I.D.W. & Turnbull, G. a., 2007. Organic semiconductor lasers. *Chemical reviews*, 107(4), pp.1272–95.

Saruwatari, M. et al., 1977. Fluorescence and Oscillation Characteristics of LiNdP4O12 Lasers at 1.317 μm. *IEEE journal of quantum electronics*, 13(10), pp.836–842.

Saruwatari, M. et al., 1975. LiNdP4O12 laser pumped with an AlxGa1−xAs electroluminescent diode. *Applied Physics Letters*, 27(12), p.682.

Saruwatari, M. & Kimura, T., 1976. LED pumped lithium neodymium tetraphosphate lasers. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 12(10), p.584.

Scheps, R., 2003. Solid state laser pumped by visible light-emitting-diode.

Shin, J.H. & Park, N., 2004. 470 nm LED-pumped optical waveguide amplifier based on nanocrystal-Si sensitized, Er-doped silica. In *1st IEEE International Conference on Group IV Photonics*. Ieee, p. FD2.

Shur, M. & Gaska, R., 2007. LED-based optical pumping for laser light generation.

Singh, S. et al., 1975. Emission cross section and fluorescence quenching of Nd3+ lanthanum pentaphosphate. *Journal of Applied Physics*, 46(3), p.1191.

Singh, S., Smith, R. & Uitert, L. Van, 1974. Stimulated-emission cross section and fluorescent quantum efficiency of Nd^{3+} in yttrium aluminum garnet at room temperature. *Physical Review B*, 10(6), p.2566.

Stone, J. et al., 1976. Nd:YAG single-crystal fiber laser: Room-temperature cw operation using a single LED as an end pump. *Applied Physics Letters*, 29(1), p.37.

Stone, J. & Burrus, C.A., 1979. Self-contained LED-pumped single-crystal Nd:YAG fiber laser. *Fiber and Integrated Optics*, 2(1), pp.19–46.

Tsiminis, G. et al., 2013. Nanoimprinted Organic Semiconductor Laser Pumped by a Light-Emitting Diode. *Advanced materials (Deerfield Beach, Fla.)*, 25(20), pp.2826–2830.

Turnbull, G. a. et al., 2008. Light-emitting diode pumped polymer lasers. In F. So & C. Adachi, eds. *SPIE*. p. 70511E–70511E–11.

Turnbull, G. a. et al., 2012. Nanoimprinted resonators for polymer lasers pumped by light-emitting diodes. In F. So & C. Adachi, eds. *Organic Light Emitting Materials and Devices XVI*. pp. 847611-847611–5.

Turnbull, G. a. & Samuel, I.D.W., 2010. Integrated organic photonics one step closer. In *SPIE*. pp. 2–3.

Vaxenburg, R. et al., 2013. The role of polarization fields in Auger-induced efficiency droop in nitride-based light-emitting diodes. *Applied Physics Letters*, 103(22), p.221111.

Vaxenburg, R., Lifshitz, E. & Efros, A.L., 2013. Suppression of Auger-stimulated efficiency droop in nitride-based light emitting diodes. *Applied Physics Letters*, 102(3), p.31120.

Villars, B., Hill, E.S. & Durfee, C.G., 2015. Design and development of a high-power LED-pumped Ce:Nd:YAG laser. *Optics letters*, 40(13), pp.3049–3052.

Wang, Y., Morawska, P.O., et al., 2013. LED pumped polymer laser sensor for explosives. *Laser & Photonics Reviews*, 7(6), pp.L71–L76.

Wang, Y., 2014. *Low Threshold Organic Semiconductor Lasers*. Springer.

Wang, Y., Tsiminis, G. & Kanibolotsky, A., 2013. Nanoimprinted polymer lasers with threshold below 100 W/cm^2 using mixed-order distributed feedback resonators. *Optics express*, 21(12), pp.9211–9216.

Washio, K. et al., 1976. Room-temperature cw operation of an efficient miniaturized Nd:YAG laser end-pumped by a superluminescent diode. *Applied Physics Letters*, 29(11), pp.720–722.

Weber, H., 1975. Nd pentaphosphate lasers. *Optical and Quantum Electronics*, 7(6), pp.431–442.

Wei, B. et al., 2006. Organic solid laser pumped by an organic light-emitting diode. *Optics express*, 14(20), pp.9436–43.

Winston, H. V., 1972. *Light-emitting diodes for laser pumping*,

Wu, L. et al., 2001. Miniature Fabry-Perot laser structure. *US Patent App.*

Yang, Y., Samuel, I.D.W. & Turnbull, G. a., 2009. The Development of Luminescent Concentrators for Pumping Organic Semiconductor Lasers. *Advanced Materials*, 21(31), pp.3205–3209.

Yang, Y., Turnbull, G. a. & Samuel, I.D.W., 2008. Hybrid optoelectronics: A polymer laser pumped by a nitride light-emitting diode. *Applied Physics Letters*, 92(16), p.163306.

Zakgeim, A.L. et al., 1978. Enhanced output of an Nd3+ : YAG laser with semiconductor pump system. *Sov. Tech. Phys. Lett.*, 4, p.281.

Zissis, G. & Logivière, X. De, 2011. Diodes électroluminescentes LED pour l'éclairage - Panorama et tendances technologiques. *Techniques de l'ingénieur*, p.IN18V2.

CHAPITRE II :

Pompage direct par LED

II. POMPAGE DIRECT PAR LED

Nous l'avons vu dans le chapitre précédent, les LEDs sont capables d'atteindre des éclairements de pompe suffisamment importants pour obtenir un effet laser. Si dans les années 1970, les investigations se sont surtout concentrées autour du Nd:YAG, les LEDs d'aujourd'hui nous permettront peut-être d'explorer d'autres cristaux se pompant dans le visible comme l'alexandrite, le Cr:LiSAF ou le Ti:saphir. Comment déterminer quels cristaux peuvent être pompés par LED ? Quel est le (ou les) critère(s) pertinent(s) ? À quelles particularités spécifiques au pompage par LED faut-il faire attention ?

Nous donnerons dans un premier temps des indications ainsi qu'une méthodologie permettant d'identifier les cristaux avec les plus forts potentiels. Puis, dans un second temps, nous détaillerons le premier démonstrateur laser que nous avons réalisé.

II.1 Étude théorique du pompage direct

II.1.1 Calcul théorique du gain laser

Pour que l'effet laser puisse exister et, il faut que le gain compense les pertes de la cavité laser. Ce principe, dans le cas d'une cavité linéaire, se traduit par l'Eq. II-1 :

$$G_0^2 R_1 R_2 (1-\alpha) \geq 1 \qquad \textit{Eq. II-1}$$

où R_1 et R_2 sont les coefficients de réflexion des miroirs de la cavité Fabry-Perot, α toutes les autres pertes que celles introduites par les miroirs et G_0 le gain laser petit-signal définit comme :

$$G_0 = \frac{P(L)}{P(0)} \qquad \textit{Eq. II-2}$$

avec P_0 et $P(L)$ les puissances signal en entrée et en sortie du milieu à gain et L la longueur du milieu à gain, voir Figure II-1.

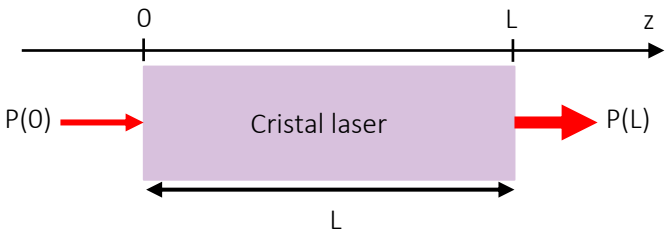


Figure II-1 : Schéma associé à la définition du gain laser.

Dans ces conditions, l'évolution de l'éclairement laser[10] E (W/cm²) au cours de sa propagation dans le milieu à gain s'écrit :

[10] Cette thèse ayant une composante importante en photométrie, nous avons décidé de ne pas utiliser les abus de langage usuels propres à la communauté laseriste. Ainsi, dans la suite nous parlerons d'éclairement (en W/cm²) et non d'intensité, ainsi que de luminance (en W/cm²/sr) et non de brillance.

$$\frac{dE}{dz} = g_{cw}(z).E(z) \qquad \textit{Eq. II-3}$$

Où $g_{cw}(z)$ est le gain linéique en régime continu et z l'axe optique. De plus, dans un premier temps, afin de ne pas s'ajouter une difficulté supplémentaire, nous allons privilégier les systèmes laser 4 niveaux aux 3 niveaux[11]. Nous considérons donc que la section efficace d'absorption à la longueur d'onde laser est négligeable ($\sigma_{al} \approx 0$). Partons ainsi de l'équation du gain linéique, valable une fois le régime permanent atteint et pour un pompage continu, adaptée aux systèmes 4 niveaux :

$$g_{cw}(z) = n_t \frac{\sigma_{el}.\sigma_{ap}.E_p(z).\frac{\lambda_p}{hc}}{\sigma_{ap}.E_p(z).\frac{\lambda_p}{hc} + \sigma_{el}.E(z).\frac{\lambda}{hc} + \frac{1}{\tau}} \qquad \textit{Eq. II-4}$$

où n_t est la densité totale en ion dopant dans la matrice, σ_{ap} la section efficace d'absorption à la longueur d'onde de pompe, σ_{el} la section efficace d'émission à la longueur d'onde signal, λ_p et λ les longueurs d'onde de pompe et signal, h la constante de Planck, c la vitesse de la lumière dans le vide, τ le temps de vie radiatif des ions dopants dans la matrice et enfin E_p, l'éclairement de pompe.

Nous pouvons procéder à quelques simplifications de l'Eq. II-4 du gain linéique :

- Dans le cas du pompage par LED, nous supposerons que l'éclairement de pompe restera suffisamment faible pour négliger la saturation d'absorption, d'où un éclairement E_p petit devant $1/\tau$. En effet, une LED émet un éclairement de l'ordre de la dizaine à la centaine de W/cm² alors que l'intensité de saturation vaut plusieurs dizaines de kW/cm² typiquement.
- Nous calculons le gain petit-signal, c'est-à-dire que l'éclairement signal en entrée du milieu à gain sera faible ($E \approx 0$). Ceci correspond donc au gain linéique g_{cw}, puis au gain laser petit-signal G_0.

Ces approximations nous permettent de simplifier l'expression du gain linéique de la façon suivante :

$$g_{cw}(z) = n_t.\sigma_{el}.\sigma_{ap}.E_p(z).\frac{\lambda_p}{hc}.\tau \qquad \textit{Eq. II-5}$$

Enfin, il faut garder en tête que cette relation est valable dans le cas d'un pompage continu. Dans notre cas, puisque les LEDs fonctionneront en régime impulsionnel, il suffirait que la durée d'impulsion de pompe soit suffisamment grande devant le temps de vie du matériau laser. Cependant, en fonction des LEDs utilisées, nous verrons que ce critère ne pourra pas toujours être respecté (à cause d'un échauffement des LEDs trop important lorsque les durées d'impulsion deviennent trop grandes). Le gain expérimental n'est alors pas celui que l'on pourrait obtenir en régime permanent. Compte tenu des équations d'évolution des populations, nous avons ainsi défini un gain linéique g_0 qui prend ce paramètre en compte et représente le gain effectif à la fin du créneau de pompe :

$$g_0 = g_{cw}\left(1 - e^{-\frac{\Delta t_p}{\tau}}\right) \qquad \textit{Eq. II-6}$$

où Δt_p est la durée de l'impulsion de pompe.

Il faut maintenant tenir compte du fait que notre source de pompe n'est pas monochromatique et que la répartition de l'éclairement de pompe dans le cristal n'est pas parfaitement homogène. Le

[11] Dans les faits, nous avons considéré le rubis par curiosité, nous avons réalisé quelques tests qui se sont avérés infructueux.

gain est donc une variable qui dépend de l'éclairement de pompe au point considéré. Ainsi, l'expression du gain linéique devient :

$$g_0(x,y,z) = \sigma_{el}.\tau \int_{\lambda_{p1}}^{\lambda_{p2}} \frac{n_t}{hc}.\sigma_{ap}(\lambda_p).\lambda_p.\frac{dE_p(x,y,z)}{d\lambda_p}.d\lambda_p.\left(1 - e^{-\frac{\Delta t_p}{\tau}}\right) \qquad \textit{Eq. II-7}$$

avec λ_{p1} et λ_{p2} les bornes du spectre d'émission de la LED utilisée et les variables spatiales x, y et z appartenant au repère définit par la Figure II-2.

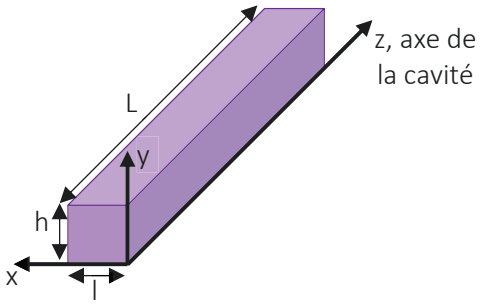


Figure II-2 : Cristal de hauteur h, de largeur l et de longueur L dans un repère (x,y,z).

L'évolution de l'éclairement à la longueur d'onde signal le long de l'axe z s'écrivant :

$$\frac{dE(x,y)}{dz} = g_0(x,y,z)E(x,y) \qquad \textit{Eq. II-8}$$

Nous pouvons en déduire l'expression de l'éclairement signal E_L en sortie d'un cristal laser de longueur L :

$$E_L(x,y) = E_0(x,y).e^{\int_0^L g_0(x,y,z)dz} \qquad \textit{Eq. II-9}$$

Pour rappel, l'Eq. II-2 définit l'expression du gain comme étant égal à :

$$G_0 = \frac{P(L)}{P(0)} = \frac{\iint_0^{w_x,w_y} E_L(x,y)dxdy}{\iint_0^{w_x,w_y} E_0(x,y)dxdy} \qquad \textit{Eq. II-10}$$

où w_x et w_y sont les diamètres du faisceau laser signal selon les axes x et y.
Finalement, en supposant une répartition transverse du faisceau en forme de chapeau (« top hat »), on obtient l'expression du gain petit-signal :

$$G_0 = exp\left[\frac{\int_{z=0}^{L}\iint_{x,y=0}^{w_x,w_y} g_0(x,y,z)dxdydz}{\pi.w_x.w_y}\right] \qquad \textit{Eq. II-11}$$

Nous avons finalement abouti à une expression littérale du gain laser petit-signal en simple passage. À cause des multiples réflexions dans le cristal laser, il est difficile d'avoir une formule analytique permettant de calculer les valeurs d'éclairement de pompe $E_p(x,y,z)$. C'est pourquoi, ces éclairements sont calculés à l'aide de LightTools avant d'être injectés dans cette expression du gain.

II.1.2 Étude des différents paramètres clés du gain laser

Le gain tenant compte à la fois des propriétés spectroscopiques du matériau et des propriétés d'émission de la pompe, cela en fait la grandeur la plus pertinente pour estimer la possibilité d'atteindre le seuil laser à partir d'un pompage par LED. Regardons maintenant un peu plus en détail les différents paramètres que comprend le gain, avec comme formule de référence l'expression de g_0 donnée par la relation Eq. II-7.

II.1.2.a Le pompage

II.1.2.a.1 Régime impulsionnel et choix du pompage

Un calcul rapide basé sur l'Eq. II-5 appliqué au Nd:YVO_4 (cristal qui, a priori, aurait le seuil laser le plus bas) nous permet de constater que les éclairements des LEDs en régime continu (donc au maximum de l'ordre de 100 W/cm²) sont tout juste suffisants pour atteindre le seuil laser. C'est pourquoi, afin d'avoir un gain laser plus conséquent, nous avons, pendant toute la suite de cette thèse, utilisé les LEDs en régime impulsionnel. Comme nous l'avons vu dans le Chapitre I, cela permet d'augmenter l'éclairement de sortie d'un facteur pouvant aller jusqu'à 11 (dans le cas des LEDs UV). Cette augmentation dépend bien entendu de la durée d'impulsion (plus cette durée est courte, plus l'échauffement de la LED sera limité et nous pourrons ainsi injecter un courant élevé). De la même façon, le gain apporté par le régime impulsionnel va varier d'une LED à une autre (pour une même durée d'impulsion) selon le matériau dans lequel est fait la LED.

Enfin, l'éclairement de pompe doit être suffisamment important pour obtenir une inversion de population au centre du cristal conséquente. En effet, un pompage transverse possède au moins deux avantages par rapport au pompage longitudinal. Tout d'abord, il est possible de placer plus de LEDs autour du cristal, permettant ainsi d'apporter une plus grande énergie de pompe (alors que bien souvent, il n'est possible de placer qu'une seule LED en pompage longitudinal). De plus, un pompage transverse n'impose aucune contrainte sur la longueur du barreau laser. Au contraire, dans le cas du pompage longitudinal, cette longueur sera limitée à la longueur d'absorption de la pompe, menant ainsi à des gains plus faibles (voir Figure II-3).

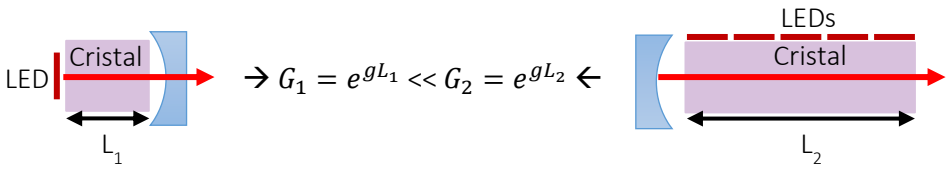


Figure II-3 : Comparaison des pompages longutudinal et transverse.

II.1.2.a.2 Couplage dans le milieu laser

Le flux lumineux émis par une LED diverge. Une LED lentillée aura une divergence typiquement comprise entre 40° et 120°, rarement plus, alors qu'une LED non-lentillée émet dans un angle solide de 2π sr un rayonnement dont la luminance ne dépend ni de la position, ni de l'orientation d'observation, c'est-à-dire un rayonnement lambertien. Propriété illustrée par la Figure II-4.

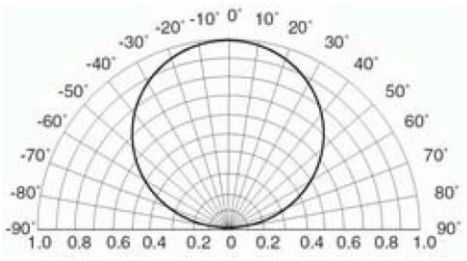


Figure II-4 : Indicatrice d'intensité (ou diagramme d'émission) d'une LED non-lentillée.

Rappelons également que la luminance (ou de manière équivalente, l'étendue géométrique) se conserve à travers tout système optique utilisant la réfraction, la réflexion ou la diffusion. Ceci signifie que pour une source donnée, le produit de sa taille par sa divergence est constant.

Il est important de comprendre ce qu'impliquent ces constats, car cela aura des conséquences sur toute la suite de cette thèse. Les LEDs ont une luminance, et donc un éclairement, plus faible que celui des diodes laser (de l'ordre de 100 kW/cm² pour ces dernières contre 100 W/cm² typiquement pour les LEDs). Ainsi, pour augmenter l'éclairement de pompe, nous sommes tentés d'utiliser un système optique afin de concentrer le flux émis par la LED dans le cristal laser considéré.

Utilisation d'un système optique imageant ?

Plaçons-nous dans le cas de la Figure II-5, c'est-à-dire avec un jeu de lentilles permettant de focaliser l'éclairement issu d'une LED non-lentillée.

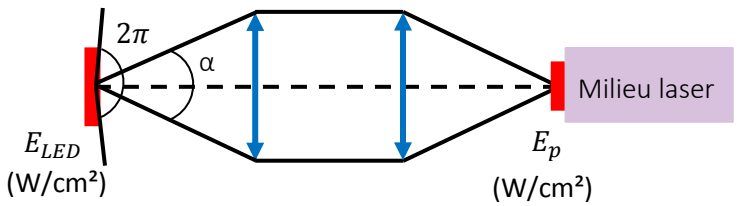


Figure II-5 : Focalisation de l'éclairement émis par une LED à l'aide d'un jeu de lentilles. E_{LED} = éclairement de la LED, E_p = éclairement de pompe incident sur le cristal laser, α = angle d'ouverture du système optique.

Afin de collecter le maximum de flux possible, il est important de choisir une lentille avec une ouverture la plus grande possible. Peu importe l'ouverture de la lentille choisie, elle ne le sera jamais assez pour récolter la totalité du flux émis par la LED (à moins d'utiliser une lentille à immersion avec comme inconnue l'effet de l'huile sur les LEDs et la durée de vie du système). Donc, nous allons perdre de la puissance à cette étape. De plus, pour concentrer ce flux, il faut que la seconde lentille utilisée soit encore plus ouverte que la première, ce qui pose problème puisque nous sommes censés avoir choisi la lentille la plus ouverte possible en premier lieu. Donc, au mieux, nous ne ferons qu'égaliser l'éclairement récolté par la première lentille.

En résumé, pour concentrer l'éclairement émis par une LED à l'aide d'un système optique imageant, il faudrait que ce dernier ait une ouverture plus grande que celle de la LED, ce qui est impossible puisqu'elle émet dans un demi-espace.

Utilisation d'un système optique non-imageant ?

Il vient facilement à l'esprit qu'un système de miroirs disposés en forme pyramidale ou d'entonnoir (à l'instar des *lens duct* comme dans cet exemple (Payne et al. 1994)) aurait pour conséquence de concentrer la lumière.

Un tel système est facilement modélisable avec le logiciel LightTools. Plaçons-nous dans le cas d'un entonnoir optique simulé par un cône parfaitement réfléchissant. La LED est placée devant la grande face de cet entonnoir et un capteur pour mesurer le flux qui en sort est placé derrière la petite

face (Figure II-6). Les calculs effectués par LightTools sont basés sur le tracé de rayons. Sur la simulation ci-dessous est représentée la trajectoire d'une centaine de rayons, bien que dans les faits, ce sont un million de rayons qui ont été utilisés pour le calcul. On remarque tout d'abord que la grande majorité des rayons ressortent par la grande face. Ceci s'explique simplement. À partir d'une certaine divergence de la source (qui dépend de l'angle de l'entonnoir considéré), une partie des rayons arrive, après plusieurs réflexions, avec le bon angle pour faire demi-tour dans l'entonnoir. Ceci ne se produit pas pour des faisceaux très peu divergents, qui à chaque réflexion, continuent leur progression dans le même sens. De plus, lorsque l'on fait la mesure de l'éclairement en sortie de l'entonnoir, on remarque qu'il est exactement égal à celui de la LED. Par ailleurs, LightTools nous permet de vérifier que le rayonnement en sortie de la petite face est également lambertien, pour preuve l'indicatrice de sortie qui est affichée.

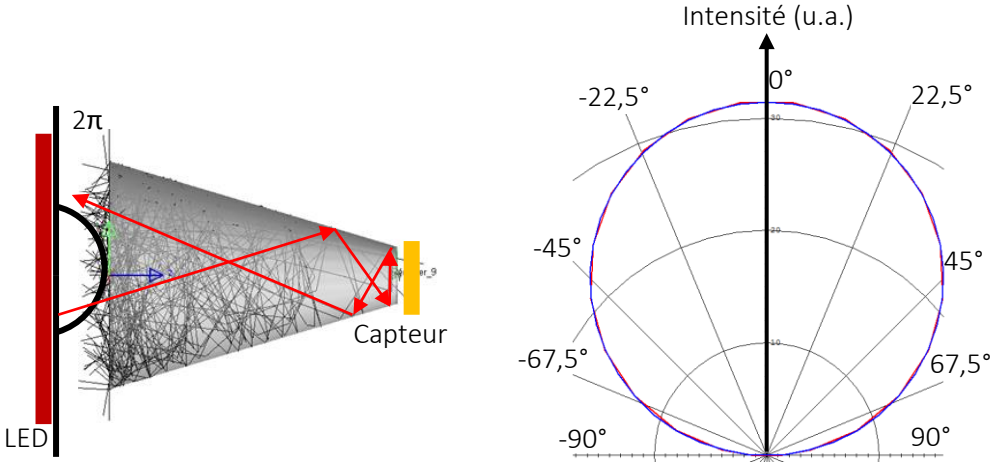


Figure II-6 : Simulation d'un cône concentrant la lumière de la LED (à gauche). Indicatrice de sortie de la petite face (à droite).

En conclusion, en sortie de cet entonnoir, on se retrouve avec un éclairement identique à celui de la LED et un rayonnement lambertien. Dit autrement : la luminance a été conservée ! Dans la pratique, un tel système ferait diminuer la luminance car le coefficient de réflexion de l'entonnoir ne serait pas de 100%.

L'architecture la plus efficace consiste donc à ne rien disposer entre les LEDs et le cristal pour éviter de perdre du flux par transmission des optiques. Maintenant, il est intéressant de calculer quel est l'éclairement reçu par le barreau.

Soit une surface éclairée par une LED :

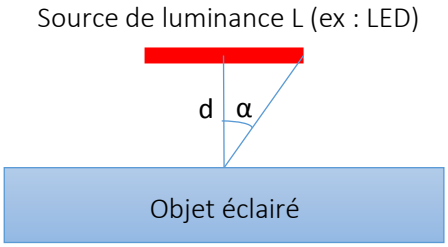


Figure II-7 : Objet éclairé par une source de luminance L.

Dans la configuration de la Figure II-7, l'éclairement d'une surface éclairée par une LED est donné par :

$$E = \pi L sin^2\alpha \qquad \textit{Eq. II-12}$$

Ainsi, si l'on veut l'éclairement le plus grand possible au centre du barreau, nous avons tout intérêt à mettre le plus de LEDs possible autour du cristal. Prenons le cas où nous plaçons 8 LEDs autour d'un cristal.

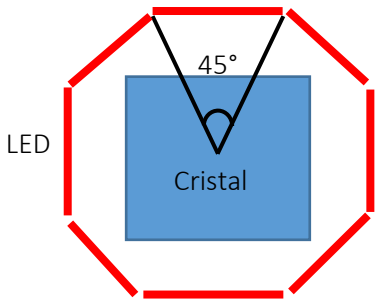


Figure II-8 : Cristal laser entouré de 8 LEDs à équidistance.

Supposons que l'angle sous-tendu soit de 45°. Dans cette configuration (Figure II-8), l'éclairement total est égal à :

$$E = 8\pi L sin^2 45° = 8\pi L \left(\frac{\sqrt{2}}{2}\right)^2 = 4\pi L \qquad \textit{Eq. II-13}$$

Maintenant, que deviendrait cet éclairement si nous prenions 2 fois moins de LEDs, mais positionnées le plus proche possible du cristal, comme dans la configuration de la Figure II-9 :

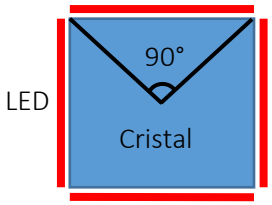


Figure II-9 : Cristal laser entouré de 4 LEDs.

L'éclairement perçu par le cristal serait aussi de $E = 4\pi L$. Ainsi, l'éclairement au centre du cristal reste le même alors que le nombre de LEDs a été divisé par deux.

Ainsi, la configuration nous permettant d'obtenir le meilleur éclairement avec le moins de LEDs possible est celle où les LEDs sont collées au milieu laser (car ce dernier est de taille comparable à celle des LEDs). C'est donc de cette façon que tous les cristaux étudiés dans cette thèse seront pompés[12].

II.1.2.a.3 Utilisation de LightTools

Dans le calcul du gain donné par la relation Eq. II-7, il est relativement aisé de trouver les informations spectroscopiques des cristaux dans la littérature (il est également possible de les mesurer si l'on est en possession des cristaux). Cependant, donner une estimation analytique et réaliste de l'éclairement de pompe $E_p(x, y, z)$ au sein du cristal avec un pompage par LED dépend énormément de l'architecture de pompage et constitue une tache bien plus difficile. En effet, la lumière issue des LEDs se propageant dans toutes les directions, le calcul ne se résume pas à la valeur de la transmission en exponentielle décroissante d'un faisceau de pompe gaussien au bout d'une distance de propagation u. C'est pourquoi, nous avons utilisé un logiciel de simulation basé sur du tracé de rayons : LightTools.

[12] Dans la pratique, nous n'utilisons que deux côtés du cristal sur les quatre pour des raisons d'encombrement liées au support des LEDs.

De plus, Effilux possède un grand savoir-faire avec LightTools puisqu'il est particulièrement bien adapté pour la simulation de systèmes de photométrie, notamment à base de LEDs.

Pour réaliser nos modélisations, nous rentrons dans LightTools toutes les grandeurs physiques de notre système laser : la forme, la taille des LEDs, du cristal, le spectre d'émission des LEDs, leur puissance, le spectre d'absorption du milieu à gain, la qualité des surfaces… voir Figure II-10.

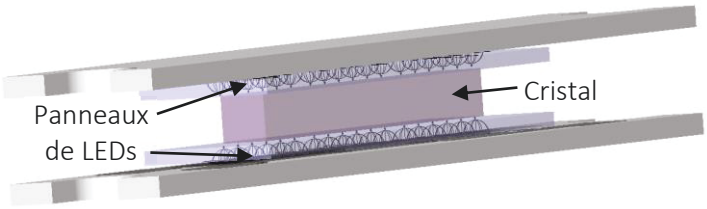


Figure II-10 : Exemple de modélisation sous LightTools d'un système pompage laser par LED.

Lorsque la simulation numérique est effectuée, LightTools est en mesure de nous fournir des cartes d'éclairement de pompe $E_p(x,y,z)$ après propagation dans le cristal, voir Figure II-11. À gauche de la Figure II-11 est représenté un schéma avec des LEDs pompant un cristal laser par deux de ses faces. À droite de cette figure est illustrée une coupe transversale de la répartition de l'éclairement de pompe dans le cristal. Nous voyons que cet éclairement est intense proche des deux bords pompés (c'est-à-dire là où la pompe n'a pas encore eu le temps d'être absorbée) et se réduit vers le centre ou encore les coins du cristal. Cet éclairement correspond à celui contenu dans la formule du gain linéique en début de chapitre, Eq. II-7. Nous extrayons ces cartes d'éclairement sous forme de tableau de valeurs, avant de les injecter dans un fichier annexe pour terminer le calcul du gain laser. Pour nos calculs, nous nous intéressons à l'éclairement de pompe au centre du cristal pour avoir un minorant du gain (car dans le cas d'un pompage symétrique, c'est au centre que l'éclairement de pompe sera le plus faible). Ce faisant, c'est donc le gain au centre du cristal (selon l'axe $(0,0,z)$) que nous calculons :

$$g_0(0,0,z) = \sigma_{el}\tau \int_{\lambda_{p1}}^{\lambda_{p2}} \frac{n_t}{hc}.\sigma_{ap}(\lambda_p)\lambda_p \frac{dE_p(0,0,z)}{d\lambda_p} d\lambda_p.\left(1 - e^{-\frac{\Delta t_p}{\tau}}\right) \qquad \textit{Eq. II-14}$$

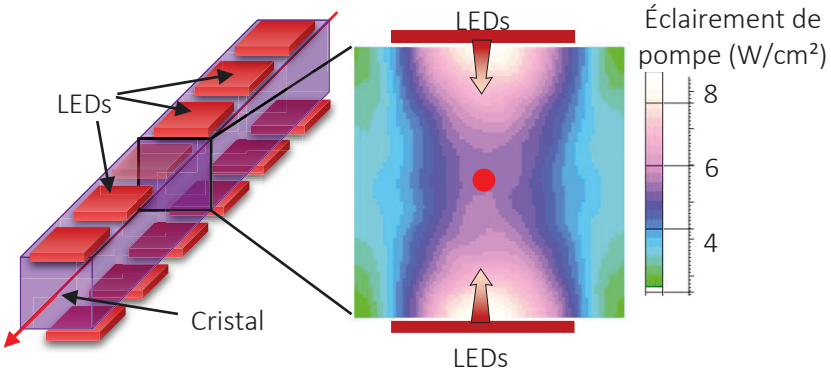


Figure II-11 : Carte d'éclairement de pompe au sein du cristal – coupe transversale.

Nous voyons très bien à travers cette illustration que la lumière des LEDs se fait absorber au fur et à mesure de la propagation dans le cristal. Cependant, on remarque également que la pompe est présente un peu partout dans le cristal, conséquence du pompage transverse et de la divergence des LEDs. Les rayons avec une faible divergence vont se propager directement vers le centre du cristal alors que ceux ayant un angle d'incidence élevé subiront des réflexions avant d'être complètement absorbés. LightTools permet de prendre en compte ces différents rayons.

II.1.2.b Spectre d'absorption et dopage des cristaux

Le premier paramètre auquel il faut veiller est l'absorption de la pompe par le matériau considéré. L'absorption dépend de deux grandeurs que sont la section efficace d'absorption à la longueur d'onde de pompe σ_{ap} (cm²) et le nombre d'ions dopants dans la matrice n_t (cm^{-3}). L'absorption A de notre matériau évoluera donc de la façon suivante :

$$A = 1 - T = 1 - e^{-\sigma_{ap} n_t u} \qquad \textit{Eq. II-15}$$

où T est la transmission du matériau à la longueur d'onde considérée et u une grandeur correspondant à la distance de propagation dans le repère (x, y, z).

Nous l'avons vu dans le Chapitre I, les LEDs ont une largeur d'émission typique de 20 nm. Ainsi, dans le but d'absorber la pompe efficacement, ces composants seront mieux adaptés aux matériaux présentant une bande d'absorption plutôt large (typiquement les milieux dopés aux ions métalliques comme le Ti:saphir, le Cr:LiSAF ou l'alexandrite par exemple) que ceux ayant de fines raies d'absorption (typiquement les milieux dopés aux ions terres rares comme le Nd:YVO_4, l'Yb:YAG ou le Pr:YLF par exemple). Cependant, nous verrons dans la sous-partie suivante (II.1.2.c) que les matériaux présentant une large bande d'absorption ne sont pas forcément les plus faciles à faire laser. En plus de la largeur de la bande d'absorption, nous devons faire attention à sa section efficace, ce qui va déterminer la longueur d'onde de pompe. Les LEDs émettant dans le visible et le proche infrarouge (typiquement 360 – 950 nm), nous allons nous limiter aux cristaux présentant une bande d'absorption dans cette gamme spectrale. Cela exclue donc les milieux à gain se pompant dans l'infrarouge plus lointain comme ceux dopés aux ions erbium, holmium ou encore thulium.

Enfin, l'absorption de la pompe dépend également de la concentration en ions dopants dans la matrice n_t. Ce paramètre (ajustable contrairement à la section efficace d'absorption) permet d'adapter l'absorption à la longueur de cristal traversée par la pompe. En effet, nous l'avons vu dans la partie sur l'état de l'art du pompage par LED dans le Chapitre I, la géométrie privilégiée est le pompage transverse, sur des distances typiques de quelques millimètres. Ainsi, les dopages privilégiés seront relativement élevés afin de garantir une bonne absorption de la pompe sur une largeur du cristal laser. Cependant, nous veillerons également à ne pas les choisir non plus trop élevés afin d'éviter le phénomène d'extinction de fluorescence par concentration (ou *concentration quenching*).

II.1.2.c Produit « Section efficace d'émission × temps de vie » : $\sigma_{el} \times \tau$

Un autre paramètre important dans g_0 est le produit de la section efficace d'émission σ_{el} par le temps de vie τ du matériau laser. Ceci va directement impacter le seuil laser. Par exemple, un cristal de Nd:YAG, avec un produit $\sigma_{el}.\tau$ deux fois plus faible que celui du Nd:YVO_4 aura un seuil laser plus difficile à atteindre et nécessitera des éclairements de pompe plus importants.

J'ai trié dans le Tableau II-1 suivant par ordre décroissant du produit $\sigma_{el}.\tau$ une série de matériaux laser communément utilisés pouvant être pompés dans le visible et le proche IR. J'y ai également ajouté la largeur de leur bande d'absorption afin d'apporter un élément de comparaison avec le point précédent en II.1.2.b.

Cristaux	Nd:YVO_4	Nd:YLF	Nd:YAG	Yb:YAG	Cr:LiSAF	Alexandrite	Ti:saphir
Longueur d'onde d'émission (nm)	1064	1047	1064	1030	850	755	780
Section efficace d'émission (10^{-21} cm²)	1 200	220	280	19	48	5	280
Temps de vie (µs)	90	450	230	1 000	67	260	3,2
$\sigma_{el}.\tau$ (µs.10^{-19} cm²)	**1404**	**873**	**644**	**190**	**32**	**13**	**9,6**
Concentration (at.%)	1,0	1,2	1,0	10	2,0	0,2	0,25
Coefficient d'absorption (cm^{-1})	36 (808 nm)	10 (792 nm)	10 (808 nm)	10 (940 nm)	8,6 (640 nm)	9,5 (600 nm)	1,5 (480 nm)
Bande d'absorption FWHM* (nm)	**4**	**3**	**1**	**18**	**100**	**90**	**130**

Tableau II-1 : Comparatif des produits $\sigma_{el}.\tau$ et des largeurs des bandes d'absorption de différents matériaux laser se pompant dans le visible. FWHM = Full Width at Half Maximum (largeur à mi-hauteur). En bleu, des milieux avec un produit $\sigma_{el}.\tau$ élevé, en orange une large bande d'absorption.

Nous pouvons remarquer que les matériaux dopés aux ions néodyme font partie de ceux ayant le plus grand produit $\sigma_{el}.\tau$, avec le Nd:YVO_4 loin devant, comme on pouvait s'y attendre. Cependant, leur raie principale d'absorption (située autour de 800 nm) est très fine, inférieure à 5 nm. Il faut noter que ces matériaux dopés néodyme possèdent également une importante bande d'absorption dans le visible, centrée autour de 590 nm qui présente à peu près les mêmes caractéristiques (même section efficace pour une largeur à peine plus grande). À l'extrême opposé, nous trouvons le Ti:saphir, qui présente des caractéristiques tout à fait complémentaires. Le Ti:saphir a un temps de vie (3,2 µs) et une section efficace d'émission (3.10^{-19} cm²) relativement faibles, expliquant sa dernière position dans ce classement. Cependant, il est également le milieu possédant la plus large bande d'absorption avec environ 130 nm à mi-hauteur.

II.1.3 Synthèse et représentation graphique du gain

Nous pouvons décomposer ce gain g_0 (voir Eq. II-7) en deux parties : une partie émission (le produit $\sigma_{el}.\tau$, en cm².s) et une partie absorption $\left(\int \frac{n_t}{hc}\sigma_{ap}\lambda_p \frac{dE_p}{d\lambda_p} d\lambda_p\right.$, en $cm^{-3}.s^{-1}$, qui dépend des LEDs et des propriétés spectrales des cristaux en absorption). Afin d'étudier les différents scénarii possibles, nous avons caractérisé les éclairements des LEDs avec des durées d'impulsion correspondant aux différents temps de vie des cristaux. Nous avons rentré la valeur de ces éclairements dans LightTools afin de calculer les éclairements de pompe au centre du barreau, après propagation dans des cristaux de 2x2x20 mm^3 (dont le dopage est indiqué dans le Tableau II-2). Les dimensions de ce cristal sont des valeurs typiques. Les boules de Nd:YVO_4 ne faisant que 30 mm au maximum, nous avons choisi une longueur de 20 mm afin de garantir une bonne homogénéité. La section de 2x2 mm² a été choisie de façon à être du même ordre de grandeur des LEDs. Ce sont ces valeurs d'éclairements dont nous nous sommes servis dans les calculs du gain.

Cristaux (dopage)	Longueur d'onde de pompe λ_p (nm)	Éclairement de pompe (W/cm²)	Puissance crête des LEDs (W)	Fabricant
Ti:saphir (0,2%)	460 (bleu)	407	6	LED Engin
Alexandrite (0,2%)	630 (rouge)	267	4	LED Engin
Cr:LiSAF (5%)	590 (Z PC Amber)	88	2	Lumileds
Cr:LiSAF (1,2%)	630 (rouge)	146	4	Seoul Semiconductor
Nd:YVO_4 (1%)	590 (ambre)	40	0,6	OSRAM Opto
	590 (Z PC Amber)	123	2	Lumileds
	850 (IR)	179	2	OSRAM Opto
Nd:YAG (1%)	590 (ambre)	53	0,6	OSRAM Opto
Nd:YAG (3%)	590 (Z PC Amber)	157	2	Lumileds
Nd:YAG (2,5%)	850 (IR)	160	2	OSRAM Opto

Tableau II-2 : Éclairements de pompe au milieu du cristal considéré issus de LightTools. Ces éclairements crêtes sont obtenus pour des durées d'impulsion de l'ordre du temps de vie du matériau correspondant.

Séparer les composantes d'absorption et d'émission permet de représenter le gain linéique sur un graphique du type *absorption = f(émission)* et de repérer facilement quel cristal nous permet d'obtenir un gain important. Cette représentation est illustrée par la Figure II-12.

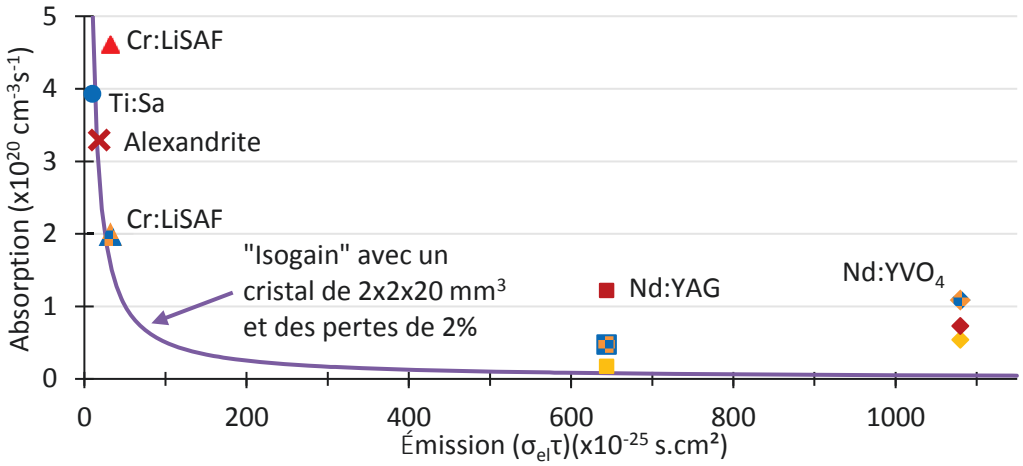


Figure II-12 : Graphique illustrant les propriétés d'absorption en fonction de celle d'émission pour différents cristaux laser. La couleur de chaque point correspond à la longueur d'onde de pompage. Les points dont la couleur est un damier orange et bleu correspond à des LEDs bleues recouvertes de phosphore ambré.

Explicitons chaque axe. Le terme d'absorption prend en compte le nombre d'ions dopants n_t (bien entendu plus il y en a, plus l'absorption sera grande), la longueur de pompe λ_p (plus elle est se rapproche de la longueur d'onde laser, plus le rendement quantique λ_p/λ est grand) et enfin le produit entre $\sigma_{ap}(\lambda_p)$ et $\int \frac{dE_p}{d\lambda_p} d\lambda_p$ tient compte la spectroscopie d'absorption du cristal et du profil spectral d'émission de la LED. Ainsi, on comprend bien que l'on a tout intérêt à rendre chaque terme le plus grand possible de façon à favoriser une valeur élevée en ordonnée. Concernant le terme d'émission, il comprend la section efficace d'émission σ_{el} et le temps de vie du niveau haut. De même, on comprend bien que l'on cherche les plus grandes valeurs possibles de $\sigma_{el}.\tau$. Ainsi, les points les plus intéressants sont ceux situés le plus à droite et le plus haut possible.

Pour un même cristal, il y a parfois plusieurs points. Pour chacun de ces points, la couleur illustrée représente la longueur d'onde des LEDs de pompage considérées. Ainsi, en fonction de la couleur de la LED, sa puissance va varier, son absorption par le cristal considéré également, ce qui nous donnera un point avec une valeur en ordonnée plus ou moins élevée. Il est important d'étudier plusieurs

scénarii de pompage (avec différentes longueurs d'onde) pour un même cristal. En effet, prenons l'exemple du Nd:YVO_4. Nous pouvons penser à première vue qu'un pompage dans l'infrarouge donnera un meilleur gain qu'un pompage dans l'ambre. Or, nous pouvons constater sur la Figure II-12 qu'il est possible d'obtenir un gain plus élevé en pompant avec des LEDs bleues recouvertes de phosphore qu'avec des LEDs IR. La puissance des LEDs bleues compense la baisse d'efficacité due à l'augmentation du défaut quantique.

Nous avons représenté en violet, la courbe dite d'« isogain ». Cette courbe représente le gain permettant de compenser 2% de pertes à partir d'un milieu à gain de 20 mm de longueur, quel que soit ses propriétés d'absorption et d'émission[13]. Il s'agit du seuil à franchir pour obtenir un effet laser. Tout point au-dessus de cette courbe signifie ainsi qu'il est possible d'obtenir un effet laser en pompant le cristal considéré avec la longueur d'onde correspondant à la couleur du point en question. L'expression du gain linéique (Eq. II-7) étant le produit du terme *d'émission* par celui *d'absorption*, la représentation de l'absorption en fonction de l'émission nous conduit nécessairement à une hyperbole (dit autrement, si nous avons absorption × émission = g_0, alors cette courbe est tout simplement absorption = g_0/émission). Pour calculer cette courbe, nous partons de la relation suivante :

$$G_0{}^2 R_1 R_2 (1-\alpha) = 1 \qquad \textit{Eq. II-16}$$

Cette relation est valable pour une cavité linéaire. Nous considérons qu'après un aller-retour, 2% de pertes sont introduites après propagation par le signal dans le milieu à gain (valeur typique pour α). Nous considérons également des miroirs hautement réfléchissants ($R_1 = R_2 = 100\%$, pour connaitre le seuil le plus bas possible). Le gain le plus faible à atteindre pour chaque cristal est alors :

$$G_0 = \frac{1}{\sqrt{0{,}98}} = 1{,}01 \qquad \textit{Eq. II-17}$$

En fixant la longueur du cristal L à 20 mm[14] et en supposant un gain g_0 uniforme, nous en déduisons le gain linéique :

$$g_0 = \frac{ln(G_0)}{L} = 5.10^{-3} cm^{-1} \qquad \textit{Eq. II-18}$$

À la lecture de ce graphique, nous retrouvons bien la tendance observée avec le Tableau II-1, c'est-à-dire des matériaux dopés néodymes fortement sur la droite, avec un grand produit $\sigma_{el}.\tau$. Ainsi, selon nos critères, le Nd:YAG sera plus difficile à faire laser en pompage par LED que le Nd:YVO_4.

À l'opposé du graphique, le Cr:LiSAF possède des propriétés d'absorption importantes. Cependant, cette tendance est déséquilibrée par des propriétés d'émission assez faibles, ce qui au final donnera une valeur de gain g_0 relativement modeste.

À la limite de l'effet laser se trouve l'alexandrite. Sa grande plage d'émission en fait un candidat intéressant, mais son seuil laser semble d'autant plus difficile à dépasser.

Enfin, on ne peut s'empêcher de remarquer le saphir dopé au titane (Ti:saphir) qui est situé à l'extrême gauche du graphique. Ce cristal a le mauvais goût de posséder de faibles grandeurs d'absorption combinées à de faibles valeurs d'émission. Ceci en fait réellement le cristal avec le seuil laser le plus élevé. Pourtant, c'est bien ce cristal que nous nous sommes fixés comme objectif à terme, car son intérêt est aussi grand que sa difficulté à le faire laser. En effet, sa très large plage d'émission

[13] Dans l'hypothèse d'une cavité avec deux miroirs HR, les seules pertes dont nous ne pouvons nous passer sont celles introduites par le milieu à gain, les pertes passives. Ainsi, considérer des pertes de 2% nous a semblé relativement typique et raisonnable.

[14] Afin de comparer les cristaux entre eux, nous avons choisi la même longueur pour tous les cristaux. Parmi eux, le Nd:YVO_4 sera probablement le cristal qui va être limitant puisque la longueur maximale des boules est de l'ordre de 30 mm. C'est pourquoi, nous avons choisi 20 mm comme longueur typique, pour être en dessous du maximum. De plus, cette longueur correspond bien avec un panneau de LEDs détaillé dans la suite de ce chapitre.

laser (700 – 1100 nm) en fait un cristal très utilisé comme source accordable pour la spectroscopie. Par ailleurs, c'est pour cette même raison que le Ti:saphir est un cristal que l'on retrouve également dès que l'on cherche à générer des impulsions femtoseconde. Réussir à faire laser un tel cristal à l'aide du pompage par LED constituera une vraie rupture technologique !

En conclusion, bien que le Nd:YVO_4 soit un matériau présentant de fines raies d'absorption, nous avons décidé de faire notre première démonstration de principe avec ce cristal pour plusieurs raisons. Tout d'abord, ce cristal a le produit $\sigma_{el}.\tau$ le plus élevé, près de 2 fois plus que le Nd:YAG. Nous pouvons voir sur la Figure II-12 que parmi tous les cristaux présentés, il s'agit de celui qui est le plus facile à faire laser car c'est celui qui est le plus au-dessus de la courbe d'« isogain ». De plus, son approvisionnement est rapide et sa croissance cristalline maitrisée, rendant ce cristal facile à se procurer pour un coût modeste.

II.2 Réalisation expérimentale

Afin d'étudier le pompage de ce cristal en détail, nous avons décidé d'utiliser les deux bandes principales d'absorption du Nd:YVO_4 (située autour de 590 nm et de 800 nm) avec trois types de LEDs différents. Pour cela, nous avons conçu un dispositif de pompage sur-mesure, entièrement adapté au vanadate et à nos besoins.

II.2.1 Dimensionnement du cristal

Le cristal étant choisi, nous devons le dimensionner et choisir son dopage. C'est une étape déterminante. En effet, un barreau trop large ou trop dopé va entrainer une trop forte absorption de la pompe au point qu'il n'en restera plus suffisamment au centre du barreau pour obtenir un gain conséquent (en supposant que l'effet laser apparaisse au centre du cristal). Au contraire, une pompe, aussi puissante soit-elle, n'inversera la population que si elle est absorbée. La géométrie du cristal compte aussi énormément.

La taille standard des LEDs est 1x1 mm². Par conséquent, nous avons choisi une section transverse du barreau de l'ordre du mm. Cependant, un barreau de 1 mm de diamètre n'étant pas pratique à manipuler, nous avons choisi une section 2x2 mm². De plus, il s'agit d'une section transverse carrée pour avoir des faces latérales planes et coller ainsi les LEDs au barreau. Plus le cristal est long, plus il y aura de gain. Cependant, les techniques de croissance du Nd:YVO_4 limitent la longueur des cristaux autour de 30 mm. Au-delà, cela devient vraiment difficile de trouver des cristaux avec une bonne homogénéité des ions dopants sur toute la longueur du cristal. Nous avons donc choisi une longueur standard de 20 mm.

Concernant le dopage, nous avons opté pour une concentration en ions néodyme de 1,0 at.%. Cette valeur a été choisie la plus élevée possible tout en s'assurant que le phénomène d'extinction de fluorescence par concentration reste négligeable (Sennaroglu 2000; Huang et al. 2005).

L'orientation du cristal (dit « a-cut ») a été choisie de façon à maximiser l'absorption de la pompe et l'émission laser, voir le schéma en Figure II-13. Deux des quatre faces de 2x20 mm² sont polies et servent au contact optique pour le pompage transverse. L'une des deux faces laser (2x2 mm²) est traitée hautement réfléchissante (HR) à 1064 nm, tandis que l'autre a un traitement antireflet (AR) à 1064 nm.

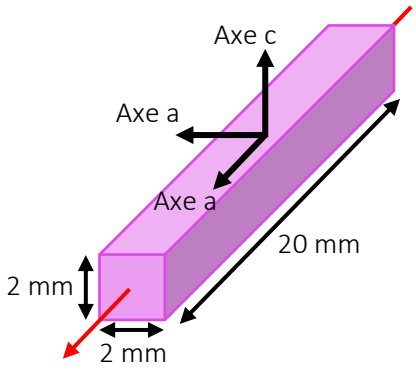


Figure II-13 : Orientation et dimensions du cristal de Nd:YVO4.

II.2.2 Choix des longueurs d'onde de pompe

Le choix des LEDs est conditionné par la spectroscopie du cristal. Ci-dessous est représentée la transmission d'un cristal de Nd:YVO_4 dopé 1,0 at.%.

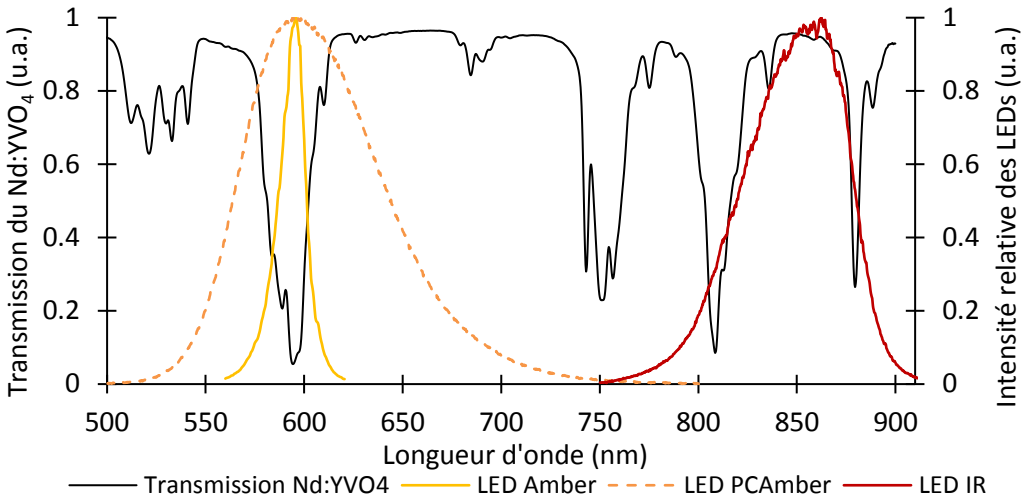


Figure II-14 : Transmission après une propagation de 2 mm dans un cristal de Nd:YVO₄ dopé 1,0 at.% (moyenne sur les axes a et c). Spectres d'émission de LEDs ambre, PC Amber et IR.

Sont superposés à cette transmission les spectres des LEDs ambre (590 nm), PC Amber (590 nm avec une largeur de 80 nm à mi-hauteur) et IR (850 nm). Naturellement, pour une recherche d'efficacité, nous avons tout d'abord regardé quelles LEDs étaient disponibles autour de la bande d'absorption à 808 nm. Il existe des LEDs infrarouges centrées à 850 nm avec une large bande spectrale ($\Delta\lambda \approx 50$ nm). Malgré cette largeur, les deux bandes contribuant à l'absorption sont celles à 808 nm et 885 nm. Il existe également des LEDs à 740 nm que nous n'avons pas considérées[15]. Nous avons alors cherché à exploiter une raie d'absorption dans le visible. Nous remarquons très rapidement que le spectre de la LED ambre est très bien superposé avec le pic d'absorption situé à 590 nm. De plus, les LEDs ambre ont le bon goût d'avoir un faible décalage spectral sous ampérage impulsionnel, ce qui nous assure que l'absorption devrait rester à peu près constante. Cependant, les LEDs ambre ont les puissances les plus faibles du marché. Elles ne supportent que de faibles ampérages et ont une mauvaise dissipation thermique. Nous en arrivons au 3ème type de LED que nous avons considéré pour le pompage, les LEDs Luxeon Z PC Amber. Il s'agit de LEDs bleues sur lesquelles est déposé un phosphore réémettant dans l'ambre. Leur spectre d'émission est un peu plus large que celui des LEDs ambre (80 nm à mi-hauteur au lieu de 20 nm), mais elles sont également centrées sur la raie d'absorption à 590 nm (dont la section efficace est aussi grande que celle à 808 nm !). Enfin, ces LEDs étant des LEDs bleues, nous bénéficions des avantages qui leurs sont associés, c'est-à-dire une très bonne gestion de la thermique, une capacité à supporter de forts ampérages et une puissance élevée.

II.2.3 Cavité laser

Pour commencer simplement, nous avons choisi une cavité plano-concave (voir Figure II-15) car cela permet de faire varier la taille du mode laser dans le cristal facilement. Le cristal étant pompé de façon transverse, l'inversion de population existe dans tout le cristal. Il faut donc définir un mode de cavité qui soit assez grand pour assurer une bonne extraction de la puissance de pompe dans le faisceau laser. Nous avons choisi un miroir ayant un rayon de courbure de 500 mm, ce qui nous permet de faire varier la taille du faisceau de 150 µm à 1 mm. Dans une cavité plano-concave, le waist est situé sur le miroir plan. Ainsi, pour une longueur de cavité donnée, plus le cristal est proche du miroir concave, plus le faisceau laser sera gros.

[15] En effet, même si c'est de moins en moins vrai aujourd'hui, leur puissance est bien plus faible que celle des LEDs à 850 nm (jusqu'à 3 fois plus faible au début de cette thèse). Cependant, ceci n'a pas empêché une équipe taïwanaise d'obtenir très récemment des performances respectables en pompant à cette longueur d'onde (Huang et al. 2016).

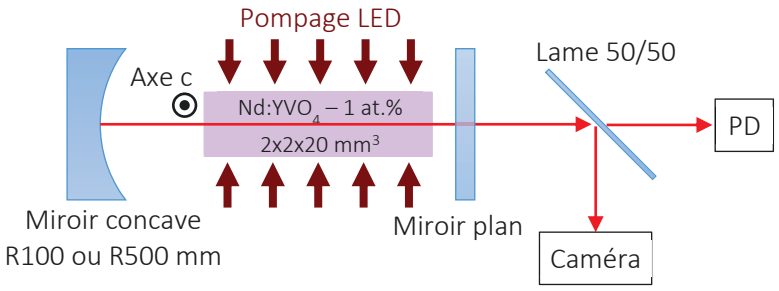


Figure II-15 : Architecture de la cavité laser. PD = photodiode.

Dans le cas d'un pompage par LED, l'alignement est assez simple. En effet, concernant la pompe, il suffit simplement de positionner les LEDs le plus proche possible du cristal. Il ne reste donc plus que l'alignement des miroirs de la cavité à faire. Pour cela, nous utilisons un laser auxiliaire pour aligner les différents composants (cristal et miroirs) par autocollimation. Enfin, nous disposons d'une caméra CCD ainsi qu'une photodiode rapide pour observer l'effet laser.

II.2.4 Présentation de la tête de pompage

II.2.4.a Mécanique et électronique

Avant de procéder à l'assemblage des différents composants de la cavité, il a fallu concevoir la partie mécanique du dispositif de pompage optique. Ce travail a été réalisé en collaboration avec Effilux à l'aide du logiciel SolidWorks. Le cahier des charges initial peut se résumer à la Figure II-16.

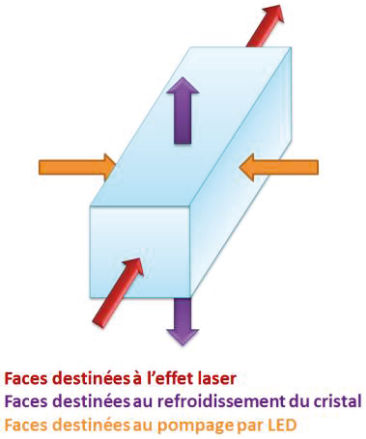


Figure II-16 : Définition du rôle de chacune des faces du cristal.

L'idée est d'utiliser deux faces du cristal pour le pompage optique, deux autres faces pour le refroidissement du cristal et enfin, les deux dernières faces sont destinées à l'axe optique du laser. Les deux faces longitudinales servant au pompage étaient polies et les deux faces servant au refroidissement étaient dépolies. Nous avons commandé deux types de traitements diélectriques sur les faces transverses des cristaux. Le premier type de cristal avait ses deux faces laser traitées antireflet (AR) à 1064 nm (abrégé par AR/AR) et le second type avait des faces laser traitées AR sur une face et hautement réfléchissant (HR) sur l'autre, à 1064 nm également (abrégé par AR/HR). Par ailleurs, il faut également que ce dispositif de pompage permette l'évacuation thermique à la fois des LEDs, car l'objectif est de les pousser à leurs limites et du cristal, car la section efficace du $Nd:YVO_4$ est très sensible à la température (Délen et al. 2011; Sato & Taira 2012).

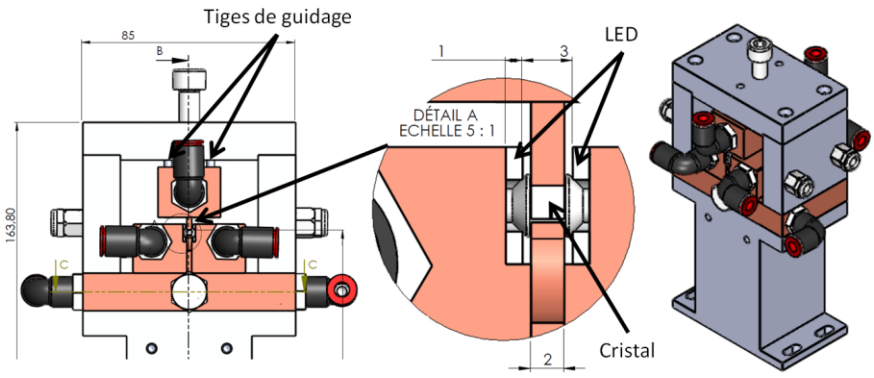


Figure II-17 : À gauche : Vue de face, au centre : zoom sur la zone du cristal, à droite : vue d'ensemble de la tête de pompage optique.

Voici un plan mécanique du dispositif de pompage en Figure II-17. Nous avons privilégié le cuivre pour les blocs directement en contact avec les composants à refroidir (cristal & LEDs) pour sa conductivité thermique. Il y a en tout 4 blocs, 2 pour le cristal (blocs supérieur et inférieur) ainsi que 2 autres pour les LEDs (blocs latéraux). Les LEDs sont directement vissées et collées aux blocs de cuivre afin d'avoir le meilleur contact thermique possible. À cause de l'encombrement des blocs de refroidissement des LEDs, deux « doigts » fins (Figure II-17 – au centre) sont nécessaires pour venir en contact avec le cristal. Le tout est refroidi par eau à l'aide d'un groupe de refroidissement. La mise en place du bloc de cuivre supérieur sur le dessus du cristal est guidée par 4 tiges métalliques que l'on peut apercevoir sur l'image de gauche de la Figure II-17. La vis centrale sur le capot de la tête a pour but de pousser le bloc supérieur vers le bas pour l'amener jusqu'au cristal et exercer une pression nécessaire à un bon contact thermique (réalisé grâce à une feuille d'indium de 200 µm). Enfin, les deux alimentations des LEDs (une de chaque côté) viennent se fixer sur les côtés du dispositif de pompage (voir Figure II-18).

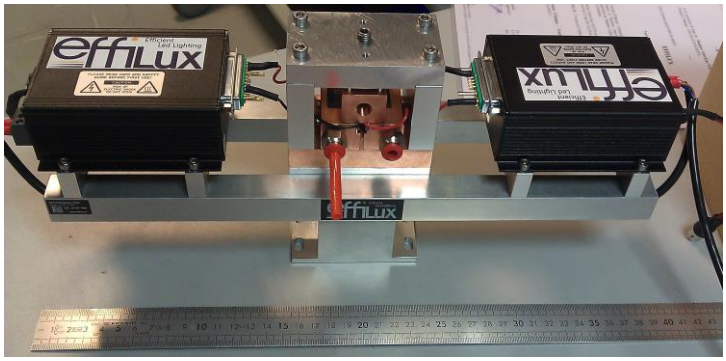


Figure II-18 : Photo du dispositif de pompage réalisé et assemblé avec les alimentations des LEDs de chaque côté.

Par la suite, pour injecter de plus forts courants, nous avons utilisé une alimentation de diode laser (PCO-6131 de Directed Energy, Inc) capable de délivrer jusqu'à 125 A (pour une tension maximale de 20 V) et des durées d'impulsion de 100 ns au continu, voir Figure II-19.



Figure II-19 : Alimentation PCO-6131 (Directed Energy, Inc) utilisées pour les LEDs ambre et IR.

II.2.4.b Géométrie des LEDs

Une fois la géométrie du cristal et l'architecture laser définies, l'étape suivante consiste à trouver des LEDs qui puissent être mises bout à bout afin de former une ligne de 2 mm de large et 20 mm de long la plus dense possible. Effilux a trouvé un fournisseur (Chip for Light ou C4L) de LEDs capable de disposer des LEDs à façon, c'est-à-dire de les poser les unes à côté des autres afin d'optimiser le taux de remplissage. Les LEDs, d'une taille standard de 1x1 mm², sont éloignées de 300 µm les unes des autres. Ainsi, nous avons pu nous procurer des lignes de 18 LEDs adaptées à la longueur du cristal (20 mm), voir la Figure II-20.

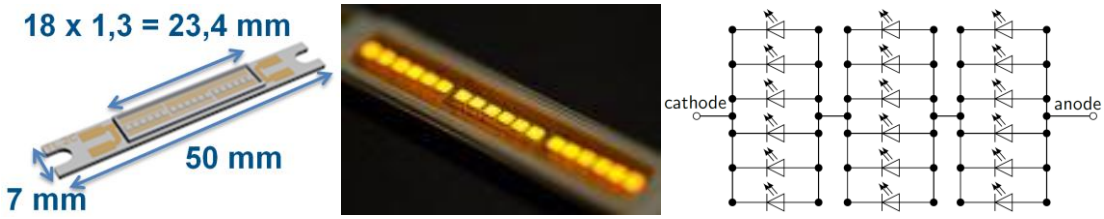


Figure II-20 : À gauche et au milieu: LED disposées linéairement utilisées pour le pompage du Nd:YVO$_4$, à droite : le circuit électrique de ces LEDs, source : Chips4Light.

Les puces de ce panneau de LEDs sont regroupées en 3 groupes branchés en série. Au sein d'un même regroupement, les LEDs sont branchées en parallèle (voir Figure II-20 à droite). Ainsi, en imposant un courant d'1 A aux bornes du panneau, chaque puce est traversée par seulement 167 mA[16]. Un fil d'or apporte le courant du circuit imprimé à la puce en semi-conducteur. La taille des fils d'or utilisés est de 1 mil, c'est-à-dire un millième de pouce (soit 25,4 µm). Le support de ces panneaux est en céramique (en nitrure d'aluminium, AlN plus précisément) pour une bonne dissipation thermique.

II.2.5 Performances des panneaux de LEDs

En accord avec les bandes d'absorption du Nd:YVO$_4$, nous avons commandé dans un premier temps des LEDs sous forme de panneaux linéaires (comme expliqué précédemment avec la Figure II-20). Dans un second temps, avec l'évolution croissante de la technologie des LEDs, nous nous en sommes procurés de nouvelles (les Luxeon Z PC Amber) qui permettent de les rapprocher davantage les unes des autres. Nous avons ensuite procédé à une série de mesures en régime impulsionnel afin de caractériser les trois types de LED. L'ordre de présentation des LEDs est historique.

[16] Étant donné que les LEDs de ces panneaux sont en parallèle, nous exprimerons plutôt le courant surfacique injecté (en A/mm²) pour gagner en clarté. Ainsi, un courant de 1 A/mm² signifie que chaque puce est traversé par un 1 A.

II.2.5.a LEDs ambre

Pour un courant injecté d'1 A/mm² dans chaque puce, chacune d'entre elles émet un flux de 270 mW. Ensuite, pendant des impulsions de 100 µs (correspondant au temps de vie du Nd:YVO_4), nous avons augmenté le courant d'injection jusqu'au maximum supportable par les LEDs pour connaitre leurs limites. Nous avons obtenu les courbes en Figure II-21.

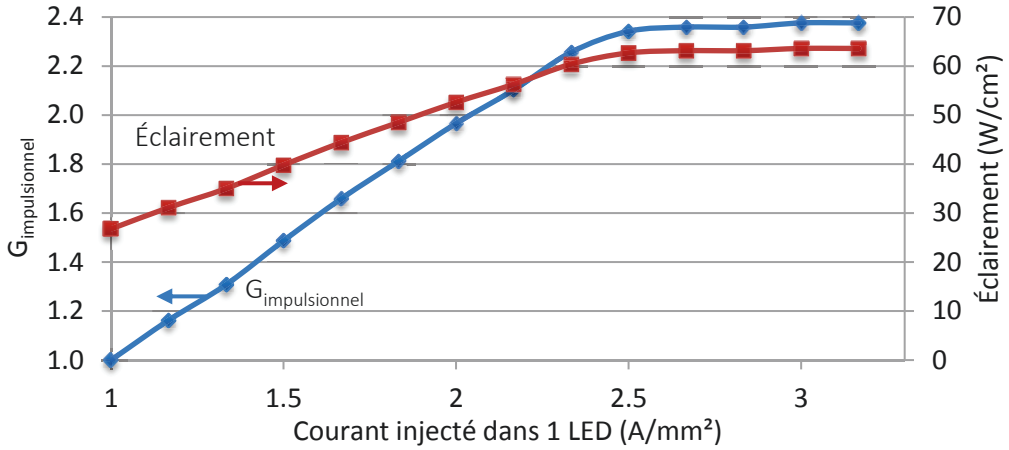


Figure II-21 : Éclairement émis par une LED ambre et gain $G_{impulsionnel}$ (pour des impulsions de 100 µs) en fonction du courant injecté.

Nous avons observé une saturation du flux émis à partir de 2,5 A/mm² injectés et une cassure à 3,2 A/mm². Cette saturation est due à l'échauffement interne de la LED. L'éclairement correspondant s'élève à 64 W/cm², en régime impulsionnel, ceci représente un gain de 2,4 par rapport au régime continu. Au-delà de 3,2 A/mm², le fil d'or amenant le courant ne supporte plus la densité (en A/mm²) et finit par se vaporiser comme le montre les photos ci-dessous.

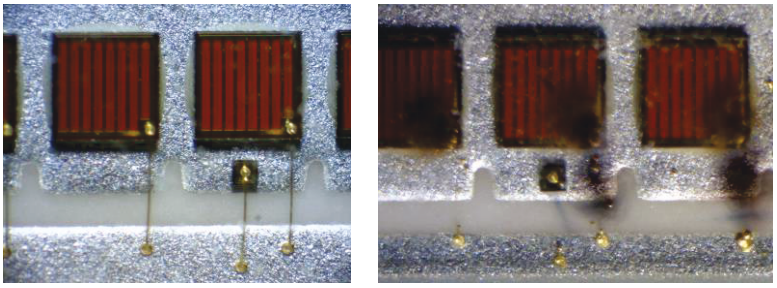


Figure II-22 : À gauche : connectique des LEDs ambre avant cassure, à droite : connectique après cassure.

En les pompant pendant 100 µs (pas plus car l'échauffement est déjà trop important et la puissance crête de la LED diminue de 30% à la fin de l'impulsion), nous disposons jusqu'à 2,4 mJ d'énergie de pompe pour les deux panneaux de 18 puces. Enfin, malgré une faible puissance d'émission, les LEDs ambre ont l'avantage d'avoir un spectre plutôt stable avec le courant comme le montre la Figure II-23.

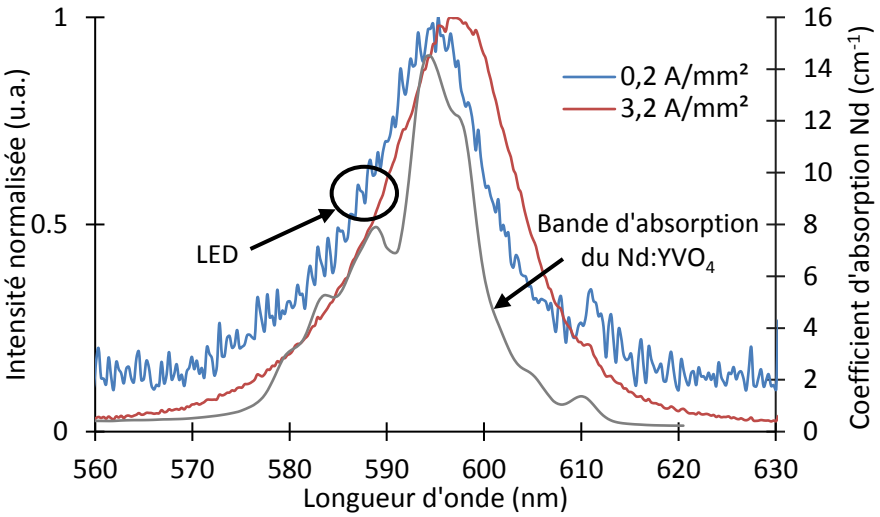


Figure II-23 : Spectres d'émission des LEDs ambre pour deux courants d'injection (0,2 A/mm² en continu et 3,2 A/mm² pendant 100 µs). Une superposition avec la raie d'absorption du Nd:YVO₄ sur la même plage spectrale est faite (moyenne des deux polarisations a et c pour un cristal dopé 1,0 at.%).

Cette stabilité garantit une bonne absorption de la pompe (estimée à 72% pour notre barreau de 2x2x20 mm³ dopé 1,0 at.% avec LightTools) à tous les courants, soit une énergie de pompe absorbée allant jusqu'à 1,1 mJ.

Enfin, nous avons limité la fréquence de répétition à 30 Hz à cause de l'échauffement que subissaient les LEDs. En effet, nous pouvons voir sur la Figure II-24 ci-dessous que même à faible fréquence, les LEDs ne parviennent pas à maintenir un flux constant sur 300 µs (ou même 100 µs).

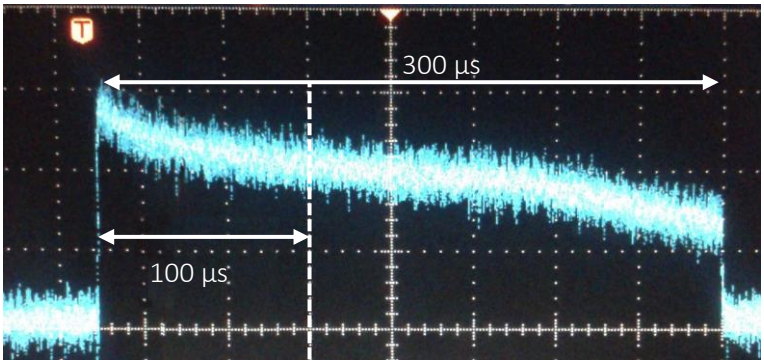


Figure II-24 : Profil temporel d'une impulsion de pompe émise par un panneau de LEDs ambre.

II.2.5.b LEDs IR

Afin d'exploiter les raies d'absorption du proche IR, nous avons sélectionné des LEDs centrées autour de 850 nm de la même géométrie que les LEDs ambre. Chaque puce de 1 mm² émet un éclairement de 25 W/cm² lorsqu'un courant continu d'1 A/mm² est injecté. Afin d'augmenter l'éclairement de pompe, nous avons également utilisé les LEDs en régime impulsionnel. Ainsi, nous avons été en mesure d'injecter jusqu'à 40 A dans les panneaux de LEDs (soit 6,7 A dans chaque puce) pendant 100 µs, nous permettant d'obtenir des éclairements de 200 W/cm², soit 8 fois plus importants qu'en continu. Nous avons ensuite mesuré le spectre d'émission des LEDs pour différents courants.

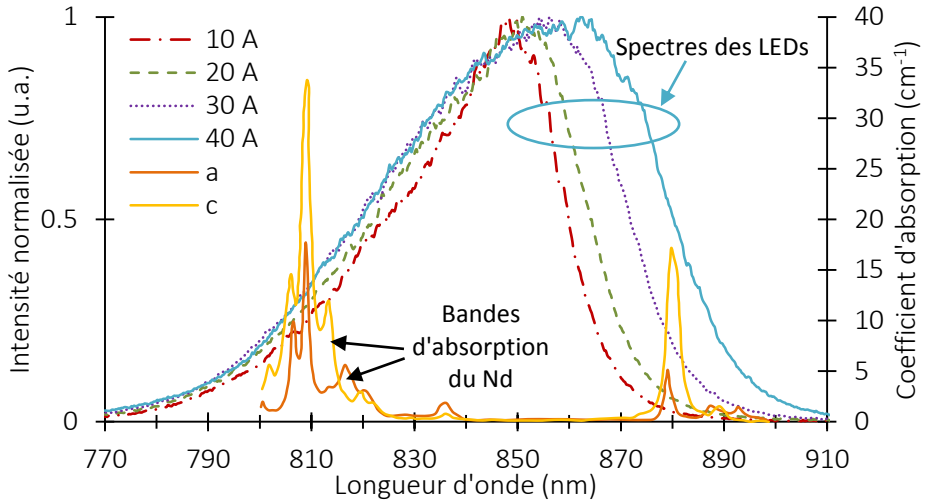


Figure II-25 : Déformation spectrale pour différents courants injectés et bandes d'absorption du Nd:YVO_4 pour un dopage de 1,0 at. % (Mcdonagh et al. 2006).

Comme nous pouvons le constater sur la Figure II-25, la largeur du spectre d'émission des LEDs est passé de 35 nm à 60 nm en augmentant le courant jusqu'à 6,7 A/mm². Ceci s'explique par l'élévation de température au sein de la jonction et comme nous l'avons vu dans le Chapitre I, la largeur spectrale augmente linéairement avec la température.

Les LEDs IR étant plus robustes que les LEDs ambre, nous avons pu mesurer l'énergie émise par les deux panneaux de 18 puces en fonction de la fréquence de répétition. La Figure II-26 illustre l'évolution de cette énergie émise pour un courant injecté de 6,7 A/mm².

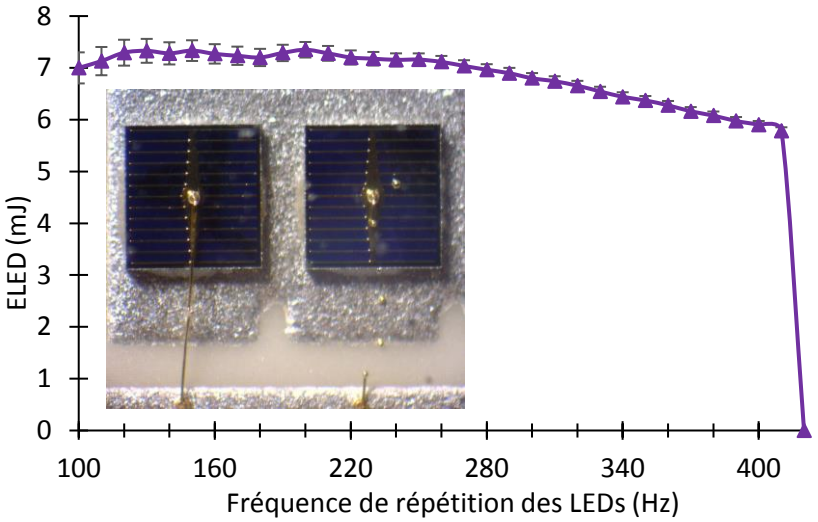


Figure II-26 : Étude en fréquence de l'énergie émise par les 2 panneaux de LEDs IR au courant maximal de 6,7 A/mm². Insert : photographie des LEDs IR après la cassure.

Nous observons qu'à ce courant, l'énergie en sortie des LEDs est constante (autour de 7,4 mJ) jusqu'à 250 Hz. Au-delà de cette fréquence, l'énergie commence progressivement à diminuer jusqu'à la cassure de la LED à 400 Hz. En effet, nous pouvons voir sur la photo de la Figure II-26, qu'à cette fréquence et ce courant, les fils d'or se sont mis à fondre. Notons que le seuil de ces deux types de cassure peut être repoussé en utilisant des fils d'or plus gros. Afin d'éviter ce problème et de bénéficier de l'énergie totale des panneaux, toute la suite de nos mesures ont été réalisées à une fréquence de 250 Hz avec ces LEDs.

II.2.5.c LEDs bleues recouvertes de phosphore : Luxeon Z PC Amber

Quelques mots pour expliquer leur nom. Ces LEDs utilisent la technologie des LEDs bleues Luxeon Z (LEDs idéales pour le COB (*Chip On Board*, voir Chapitre I), commercialisées par Lumileds). Un phosphore[17] déposé à la surface de la puce (PC pour *Phosphor converted*) réémet un rayonnement dans l'orange (on parle plutôt de couleur ambrée).

La technologie COB permet de disposer les LEDs selon un schéma complètement personnalisable. Dans notre cas, Effilux a réalisé deux lignes de 21 puces pour une longueur par panneau de 33 mm. Électriquement, les LEDs sont regroupées en 7 blocs de 6 puces réparties sur deux lignes (voir Figure II-27). Il n'y a donc plus de LED alimentée en parallèle par une même source électrique (contrairement aux panneaux de LEDs ambre et IR précédents).

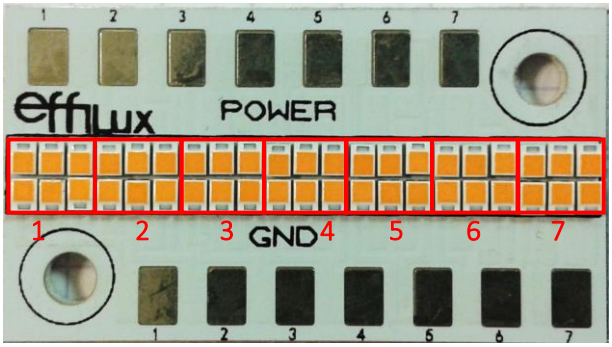


Figure II-27 : Illustration d'un panneau de LEDs Luxeon Z PC Amber avec la répartition en groupes de 6 puces.

Notre cristal laser de Nd:YVO_4 faisant 20 mm de long, nous n'avons utilisé dans la pratique que les blocs 2 à 6. En continu, ces LEDs émettent à un courant maximal de 700 mA une puissance de 0,5 W. En utilisant des impulsions de 100 µs, nous obtenons jusqu'à 2,1 W par puce pour un courant de 8 A, correspondant à une énergie totale de pompe émise par les 60 LEDs de 12,6 mJ. Pour tester la robustesse des LEDs PC Amber, nous avons également mesuré la puissance en sortie en fonction du courant, pour des impulsions de 300 µs cette fois-ci (correspondant à 3 fois le temps de vie du Nd:YVO_4). Nous avons obtenu les mêmes valeurs de puissance comme le montre la Figure II-28.

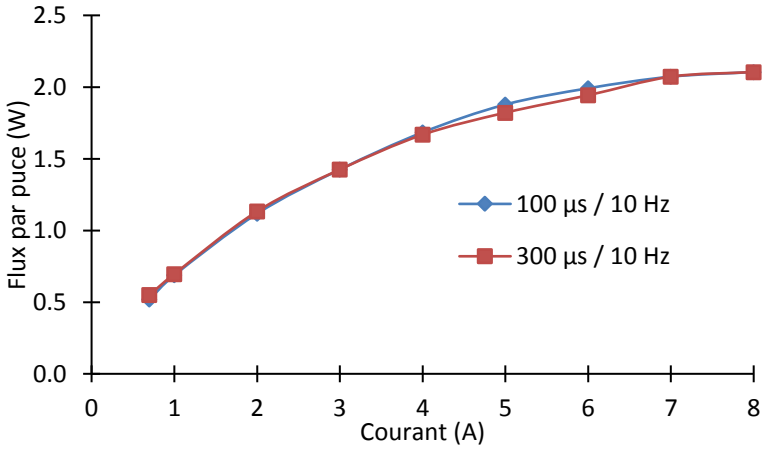


Figure II-28 : Évolution de la puissance en sortie d'une LED Z PC Amber en fonction du courant injecté, pour des impulsions de 100 µs et 300 µs, à 10 Hz.

[17] Nous ne parlons ici pas de l'élément chimique, mais du terme générique représentant un matériau plus complexe présentant des propriétés d'absorption et de réémission intéressantes pour les LEDs. Cette remarque est valable dans toute la suite de ce manuscrit.

La robustesse et la meilleure gestion de la thermique des LEDs bleues permettent d'obtenir des courbes presque parfaitement superposées.

Les LEDs Z PC Amber émettent un spectre large de 80 nm (à mi-hauteur), centré vers 600 nm (voir Figure II-29). Cette largeur est presque 4 fois plus grande que celle d'une LED ambre et est donc bien plus large que la bande d'absorption du Nd:YVO_4 à 590 nm. Cependant, cette largeur est le prix à payer pour pouvoir bénéficier des avantages (stabilité et puissance) des LEDs bleues.

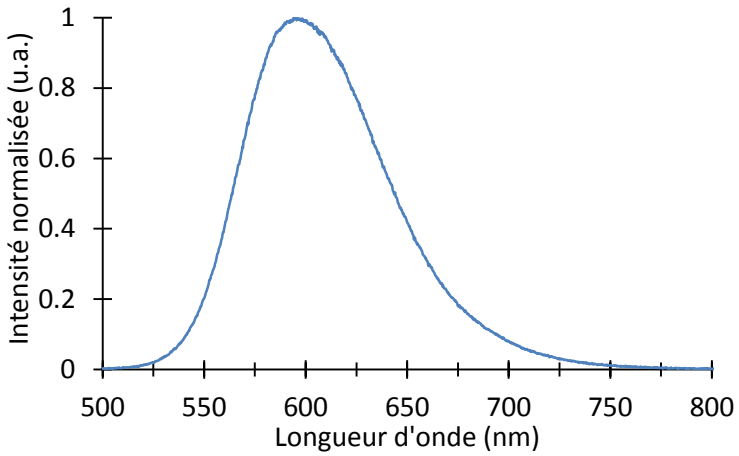


Figure II-29 : Spectre d'émission d'une LED Z PC Amber en continu à 700 mA.

II.2.6 Résultats laser

Regardons maintenant les performances laser que nous avons obtenues avec chacun de ces pompages.

II.2.6.a Performances laser avec un pompage ambre

Pour le pompage avec les LEDs ambre, nous avons utilisé un cristal de Nd:YVO_4 ayant ses faces laser traitées AR/HR. La cavité laser était donc faite d'un traitement HR comme miroir de fond de cavité et d'un coupleur concave. Les LEDs ambre étant peu puissantes, nous avons fait le choix de prendre un rayon de courbure 100 mm pour le miroir concave afin d'avoir de plus petites tailles de faisceau laser et donc des seuils plus bas. Nous avons limité la fréquence de répétition à 30 Hz, afin de limiter l'échauffement des LEDs ambre. Les performances laser sont décrites dans la Figure II-30. Une énergie laser maximale de 11,7 µJ a été obtenue avec le coupleur ayant une transmission de 1%. Pour une énergie de pompe de 2,4 mJ, ceci correspond à une efficacité de 0,49%. Nous avons obtenu un effet laser jusqu'à un coupleur ayant une transmission de 4%.

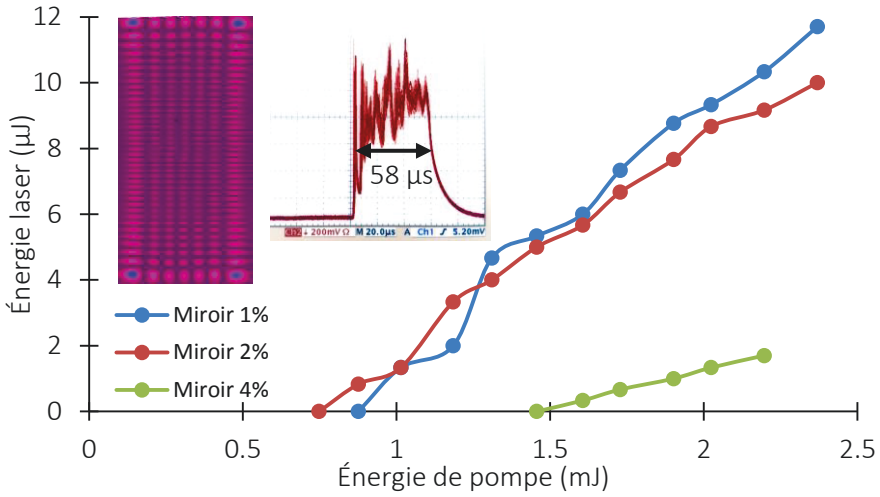


Figure II-30 : Énergie laser en fonction de l'énergie de pompe émise par les deux panneaux de LEDs ambre. Durée de pompe : 100 µs, fréquence : 30 Hz, rayon de courbure du coupleur : 100 mm. Insert : photos des profils spatial et temporel du laser.

Nous avons également mesuré le profil spatial du laser à l'aide d'une caméra Spiricon et avons pu constater le régime fortement multimode du laser comme le montre l'image dans l'insert de la Figure II-30. Nous nous sommes aussi intéressés au profil temporel de l'impulsion laser et avons mesuré un temps de création variant entre 25 µs et 40 µs environ pour des durées d'impulsion typique de 60 µs. Sur le profil temporel de la Figure II-30, nous pouvons clairement voir le régime transitoire du laser. Cette démonstration représente le 1er effet laser que nous ayons obtenu ainsi que le 1er laser Nd:YVO_4.

II.2.6.b Performances laser avec un pompage IR

Pour cette configuration, nous avons utilisé un cristal dont les deux faces laser étaient traitées AR (avec une réflectivité à 1064 nm inférieure à 0,1%). La cavité plano-concave est composée d'un miroir de fond de cavité HR à 1064 nm ayant un rayon de courbure de 500 mm et d'un coupleur de sortie plan dont la transmission peut varier de 1% à 6%. Nous avons ajusté la longueur de la cavité de 200 à 500 mm pour optimiser l'énergie de sortie en fonction des pertes introduites par le coupleur.

Nous avons donc mesuré les performances du système pour différentes transmissions de coupleur de sortie (illustrées par la Figure II-31).

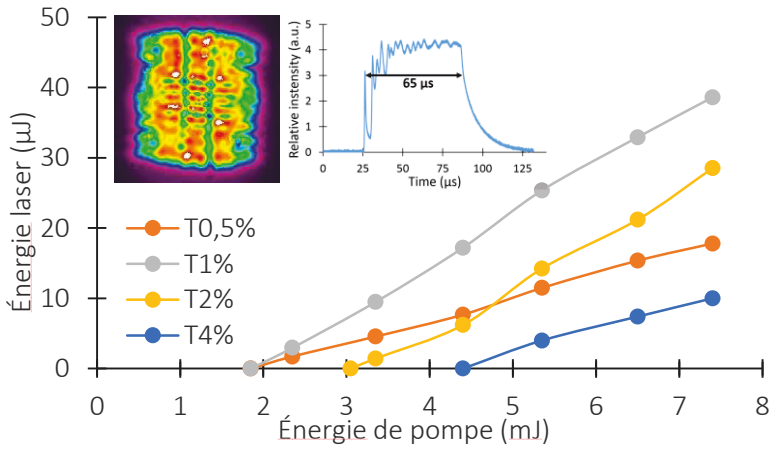


Figure II-31 : Énergie laser en fonction de l'énergie de pompe émise par les deux panneaux de LEDs IR. Durée de pompe : 100 µs, fréquence : 250 Hz, rayon de courbure du miroir HR : 500 mm. Insert : photos des profils spatial et temporel du laser.

Notre meilleur résultat a été obtenu avec le coupleur ayant une transmission de 1%. Dans cette configuration, nous avons mesuré un seuil laser à une énergie de 1,84 mJ et avons obtenu près de 40 µJ à une énergie de pompe maximale de 7,4 mJ, correspondant à une efficacité optique de 0,52%. La fréquence de répétition du laser est de 250 Hz. Par ailleurs, nous avons mesuré le profil spatial du laser en imageant le faisceau laser avec une lentille de focale 75 mm en configuration 2f-2f. Ce profil est représenté dans la Figure II-31. En utilisant une caméra Dataray, nous avons mesuré une qualité de faisceau M^2 de 19, pour une taille de faisceau de 2 à 3 mm après une propagation de quelques cm. Ce profil très largement multimode s'explique par le grand volume pompé (conséquence du pompage transverse). Nous avons également mesuré le comportement temporel du laser. Ainsi, pour une durée de pompe de 100 µs, nous avons obtenu des impulsions laser de 65 µs à un courant de 6,7 A/mm². Ici aussi, nous pouvons constater les transitoires du laser en début d'impulsion. Puis, dans la seconde moitié, le laser semble converger vers une valeur constante, correspondant au régime quasi-continu.

Le pompage avec les LEDs IR nous permet d'extraire plus de 3 fois plus d'énergie qu'en pompant avec des LEDs ambre pour une efficacité légèrement supérieure. En effet, entre le pompage ambre et le pompage IR, le défaut quantique passe de 45% à 20%. De plus, les LEDs IR sont 3 fois plus puissantes que les LEDs ambre, ce qui nous permet de compenser la faible absorption de la pompe (estimée à 30%).

II.2.6.c Performances laser avec un pompage bleu avec phosphore

Dans ce cas, le cristal utilisé est identique à celui du pompage ambre, c'est-à-dire qu'il s'agit d'un Nd:YVO_4 traité AR/HR. Ici, la cavité est composée d'un coupleur de sortie concave ayant un rayon de courbure de 500 mm, dont la transmission varie de 1% à 10%. Avec ces LEDs et le spectre donné en Figure II-29, l'absorption de la pompe est estimée autour de 38%. Afin de limiter la thermique au sein du cristal, nous avons réglé la fréquence de répétition des LEDs à 30 Hz. Dans ces conditions, nous avons obtenu une énergie maximale proche de 60 µJ avec le coupleur ayant une transmission de 5%, pour une énergie de pompe de 12,6 mJ, voir Figure II-32. Ceci correspond à une efficacité optique de 0,46%.

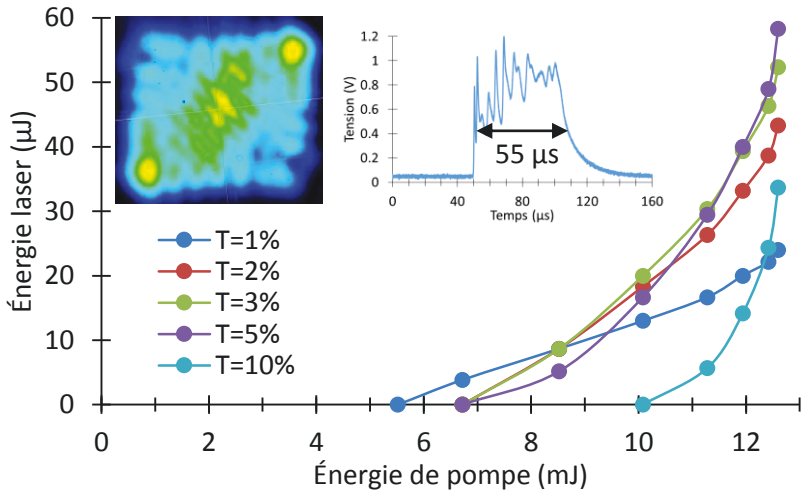


Figure II-32 : Énergie laser en fonction de l'énergie de pompe émise par les deux panneaux de LEDs Z PC Amber. Durée de pompe : 100 µs, fréquence : 30 Hz, rayon de courbure du miroir HR : 500 mm. Insert : photos des profils spatial et temporel du laser.

L'allure des courbes obtenues peut paraitre surprenante. Nous attribuons cette allure au fait que les réglages de la cavité ont été optimisés avec une charge thermique introduite par une énergie de pompe maximale. Ainsi, pour les points de mesure correspondant à de plus faibles énergies de pompe, la thermique du système était différente, expliquant une optimisation probablement moins bonne. Ceci pourrait également être l'origine de l'allure de la courbe correspondant au pompage par les LEDs Z PC Amber sur la Figure II-35.

Comme pour les deux cas précédents, nous avons mesuré les profils temporel et spatial du laser pour le coupleur optimal (ici celui de 5%). Les mesures obtenues sont similaires, c'est-à-dire un mode transverse largement multimode et une impulsion laser d'une durée comprise entre 50 µs et 60 µs.

Par ailleurs, nous avons également poussé les LEDs en les allumant pendant 250 µs, afin de pomper pendant une durée de l'ordre de 3 fois le temps de vie du matériau. Ceci correspond à une énergie de pompe de 31,5 mJ. Ainsi, toujours avec ce coupleur, nous avons obtenu en sortie du laser une énergie de 181 µJ, correspondant à une efficacité optique de 0,6%. Nous avons également exploré dans ces conditions l'énergie laser avec un profil monomode transverse (voir Figure II-33). Nous avons ainsi obtenu 32 µJ, correspondant à une efficacité de 0,1%.

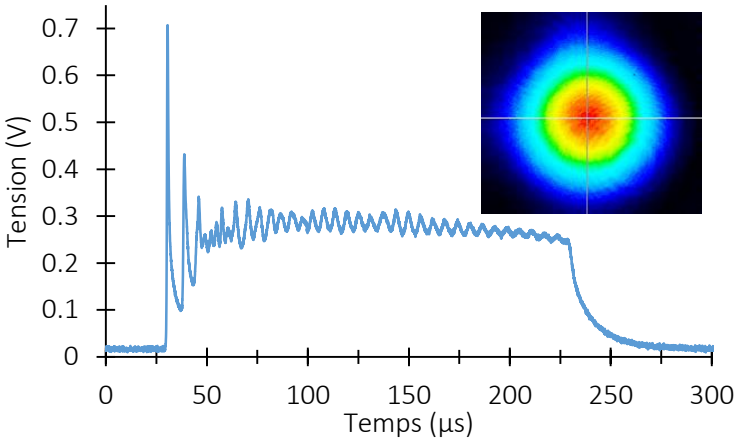


Figure II-33 : Profils temporel et spatial du laser en configuration monomode transverse.

II.2.6.d Comparaison des différents types de pompage

Comparons maintenant ces trois types de pompage d'un point de vue des performances laser, mais également du point de vue du gain accessible. En traçant dans le graphique suivant, la meilleure performance pour chacun des pompages, nous obtenons la Figure II-34.

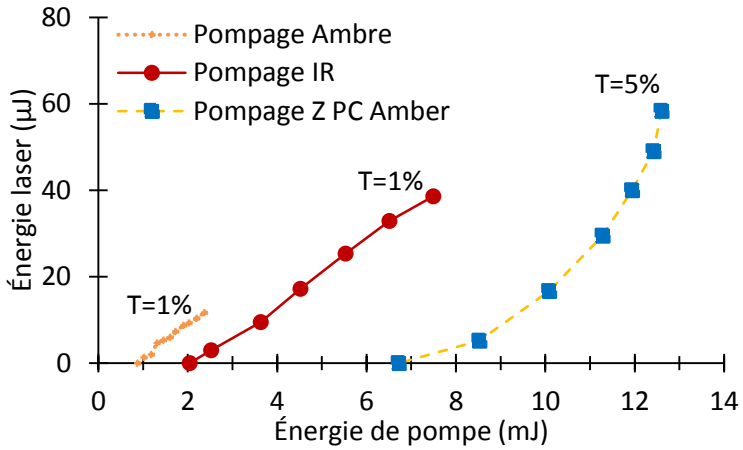


Figure II-34 : Comparaison des énergies laser en fonction de l'énergie de pompe pour un pompage dans l'ambre, dans l'IR ou avec des LEDs Z PC Amber. Durée de pompe 100 µs.

Tout d'abord, nous ne constatons pas de saturation de la puissance, nous permettant de penser que ces performances ne sont pas limitées par un échauffement du cristal ou des LEDs. Nous avons effectivement veillé à travailler à des cadences peu élevées afin de limiter la thermique dans le système. Enfin, nous voyons clairement la limitation en puissance des LEDs ambre et l'intérêt de changer de LEDs pour atteindre des énergies plus élevées. La puissance des LEDs bleues (à travers les PC Amber) permet

même d'atteindre des énergies en monomode quasiment aussi élevées qu'en multimode avec un pompage dans l'IR.

De même, en traçant l'énergie nécessaire pour atteindre le seuil laser pour chaque transmission de coupleur utilisé, nous pouvons en extraire l'allure du gain G_0 en fonction de l'énergie de pompe.

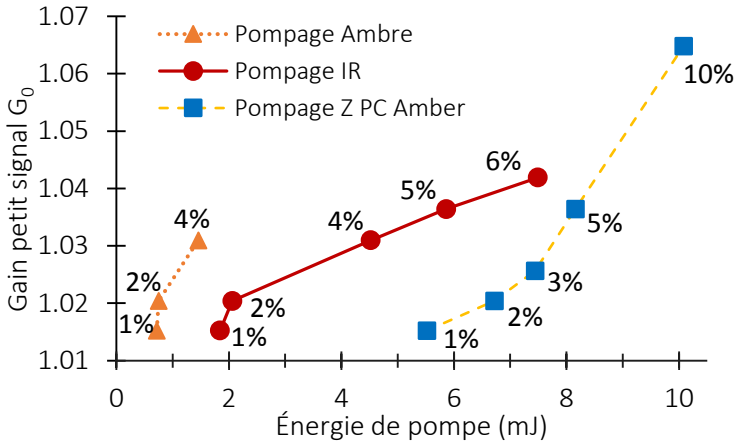


Figure II-35 : Gain petit signal G_0 en fonction de l'énergie de pompe nécessaire pour atteindre le seuil laser, pour différentes transmissions de coupleur, pour chacun des pompages.

Nous remarquons sur la Figure II-35 que, pour un même coupleur de sortie, le seuil le plus faible est obtenu avec le pompage dans l'ambre. En effet, la très bonne absorption de la pompe dans cette configuration (72%) permet d'obtenir des inversions de population relativement élevées malgré une faible énergie de pompe. Dans le cas des pompages dans l'IR et avec les Z PC Amber, la raison est légèrement différente. En effet, les seuils plus faibles obtenus avec le pompage dans l'IR ne peuvent s'expliquer entièrement par l'absorption de la pompe, puisque celle-ci est du même ordre de grandeur dans les deux cas (les deux spectres étant larges, l'absorption n'est que de 30% pour l'IR et 38% pour les Z PC Amber). La différence se cache dans le rendement quantique. En effet, il est de 80% dans le cas du pompage dans l'IR contre 55% dans le cas des Z PC Amber. De plus, nous constatons également une très forte saturation du gain avec le pompage IR comparé aux deux autres pompages qui ne présente pas (ou très peu) de saturation. Nous verrons dans la prochaine partie II.2.7, que cette saturation n'est pas liée à un échauffement thermique du cristal, mais à la déformation du spectre d'émission des LEDs IR (suite à l'injection des forts courants dans les puces). Enfin, le gain est d'autant plus grand que l'énergie de pompe disponible est importante. Le gain maximal atteignable est donc passé de 1,031 avec le pompage dans l'ambre à un gain de 1,064 avec le pompage par les LEDs Z PC Amber (en ayant mesuré 2% de pertes linéiques par aller-retour dans le cristal).

II.2.6.e Comparaison avec l'état de l'art

Récemment, de nouvelles équipes se sont lancées dans le pompage par LED de cristaux laser. (Villars et al. 2015) ont exploité la raie d'absorption du Ce:Nd:YAG autour de 450 nm pour pomper leur laser avec des LEDs bleues et ont réussi à obtenir une énergie de 18 mJ en sortie d'un cristal de 75 mm de long et 6 mm de diamètre. Ce faisant, ils ont obtenu une efficacité optique globale de 6% et une efficacité (*slope efficiency*) de 13%. Au début de l'année 2016, (Huang et al. 2016) ont démontré qu'en utilisant une architecture laser intéressante (avec une cavité en Z), il était possible d'obtenir une efficacité (*slope efficiency*) de 14% pour une énergie laser de 350 µJ, en pompant à 750 nm. Il n'y a, à notre connaissance, aucune publication rapportant un pompage par LED avec un cristal de Nd:YVO_4, qui plus est, avec des gains laser aussi élevés que les nôtres. En effet, que ce soit dans les travaux des années 1970 ou les plus récents, la transmission la plus élevée avec laquelle l'effet laser a été obtenu n'a jamais

excédé 5%, là où nous avons réussi à faire laser un coupleur de 6% dans l'IR (Barbet et al. 2014) et 10% avec les Z PC Amber.

II.2.7 Validation expérimentale des simulations et analyse théorique

Ces premiers résultats obtenus sur le pompage par LED nous permettent de vérifier la cohérence de nos simulations et de les calibrer si besoin. Pour cela, nous avons tenté de comprendre l'origine de la saturation observée sur la courbe de gain avec le pompage IR (voir Figure II-35).

Comme décrit au début de ce chapitre, nos simulations sont basées sur le calcul du gain linéique, donné par l'Eq. II-7. À partir de cette relation, il nous est ainsi possible de tracer l'évolution du gain théorique en fonction de l'énergie de pompe, tel que représenté par la Figure II-36.

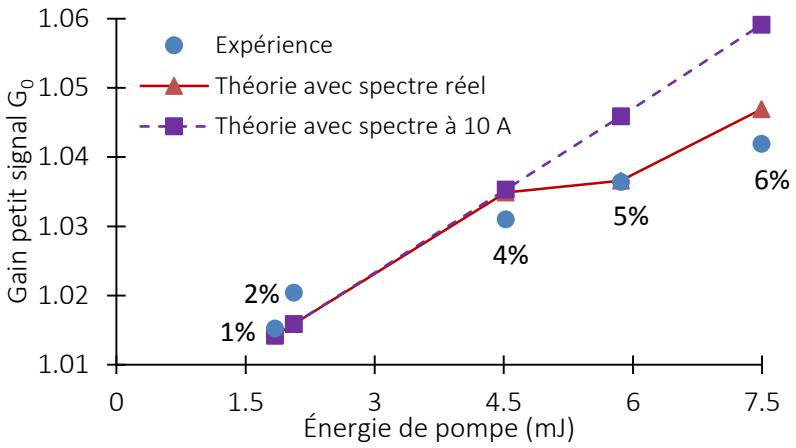


Figure II-36 : Gain petit signal G_0 théorique et expérimental en fonction de l'énergie de pompe en sortie des deux panneaux de LEDs IR nécessaire pour atteindre le seuil laser, pour différentes transmissions de coupleur.

Les courbes en trait plein ou en pointillés représentent l'évolution théorique du gain et les points bleus sont issus des résultats expérimentaux. Comme expliqué précédemment, pour obtenir ces courbes, nous avons injecté les valeurs d'éclairement de pompe au centre du barreau laser calculées par LightTools dans la formule du gain linéique (Eq. II-7 puis Eq. II-11). Ces simulations mettent en évidence l'influence de la déformation spectrale des LEDs sur le gain. En effet, la courbe en pointillées représente l'évolution théorique du gain petit signal lorsque l'on considère une largeur de spectre typique de 35 nm (tel que celui mesuré pour un courant 1,6 A dans les LEDs) constante peu importe le courant injecté dans les LEDs. Au contraire, la courbe en trait plein, tient compte de l'élargissement du spectre (de 35 nm à 60 nm) lorsque le courant augmente. Ceci s'explique par une répartition différente de l'énergie spectrale des LEDs. Lorsque 40 A sont injectés dans les panneaux, une partie de l'énergie des LEDs migre dans les nouvelles longueurs d'onde, qui ne sont pas forcément superposées aux bandes d'absorption du Nd:YVO_4, voir Figure II-25. Nous pouvons en conclure que l'élargissement du spectre des LEDs (ou de manière générale, toute déformation spectrale) constitue un paramètre important et critique, pouvant limiter sérieusement le gain laser et donc les performances.

Par ailleurs, puisque nous avons pu valider nos simulations avec les valeurs expérimentales, nous avons cherché à connaitre l'influence de deux autres paramètres importants auxquels nous avons été confrontés pendant nos mesures : l'éloignement et le désalignement des LEDs par rapport au cristal. Nous avons nommé la distance entre le cristal et les LEDs X et le désalignement des LEDs par rapport au cristal Y (voir Figure II-37).

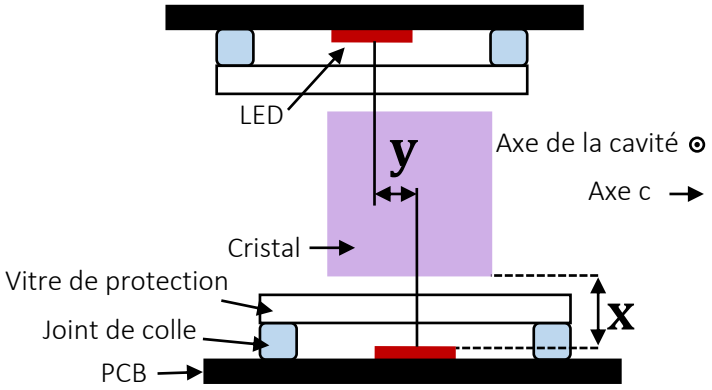


Figure II-37 : Vue transverse du schéma de pompage avec le cristal au centre et les panneaux de LEDs de part et d'autre. X et Y sont les deux paramètres clés.

La Figure II-38 montre l'évolution du gain petit signal G_0 en fonction de ces paramètres. Le gain théorique calculé ci-après prend toujours comme exemple le pompage avec les panneaux de LEDs IR. Cette figure nous montre à quel point le gain petit signal est sensible à la distance entre les LEDs et le cristal X. En effet, l'éclairement d'une source, orientée d'un angle θ par rapport à la surface considérée varie avec l'inverse de la distance entre le cristal et les LEDs, au carré (il s'agit de la loi de Bouguer) :

$$E = \frac{I\cos\theta}{d^2} \qquad \textit{Eq. II-19}$$

Avec E l'éclairement de pompe incident, I l'intensité de la source considérée, θ l'angle entre la normale à la surface et la source et d la distance entre la source et le cristal. Ainsi, une petite variation de ce paramètre X peut induire une forte diminution du gain à l'intérieur du cristal. Dans notre montage, cette distance ne pouvait être inférieure à 700 µm à cause de la vitre de protection devant les puces (voir Figure II-37), réduisant le gain de 30% comparé à la valeur maximale de 1,11 (atteinte lorsque les LEDs sont presque en contact avec le cristal).

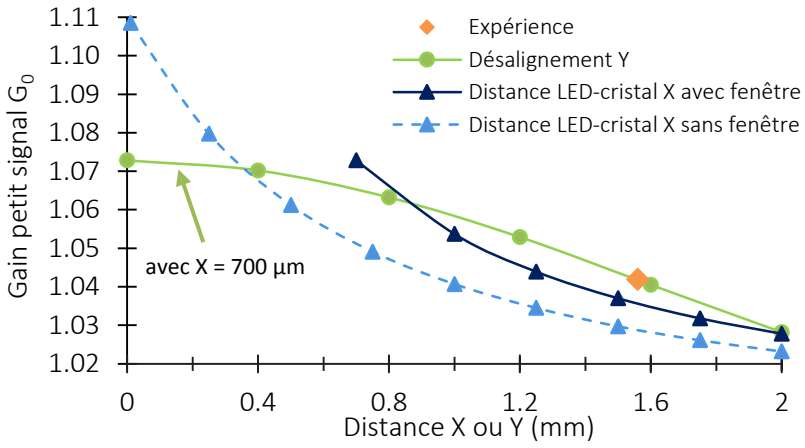


Figure II-38 : Évolution du gain petit signal théorique G_0 en fonction du désalignement entre les deux panneaux de LEDs IR (Y) et la distance entre les LEDs et le cristal (X).

Sur la Figure II-38, nous avons tracé l'évolution du gain petit signal en fonction du désalignement Y, pour une distance entre les LEDs et le cristal correspondant à notre expérience (à savoir 700 µm environ). Nous pouvons voir que l'influence de ce paramètre est moins critique (grâce à la forte divergence des LEDs). Cependant, nous devons tout de même prêter attention à ce paramètre puisqu'un désalignement de 1 mm (typiquement la moitié de la taille du cristal) entre les panneaux de LEDs et le cristal suffit pour entrainer une baisse de 20% sur la valeur du gain. Nous avons également

placé sur cette courbe la valeur expérimentale du gain obtenu (1,04), nous permettant d'en déduire une estimation du désalignement des LEDs dans notre montage : proche de 1,5 mm (entre les deux panneaux, soit 0,7 mm entre un panneau et le cristal). Cette valeur peut paraitre un peu élevée, mais elle s'explique par le fait que notre montage ne nous permettait pas de régler précisément la hauteur des LEDs par rapport à celle du cristal.

Ainsi, l'efficacité optique de 0,52% obtenue dans le cas du pompage par les LEDs IR en section II.2.6.b est à relativiser. En effet, à cause de la distance entre les LEDs et le cristal, seulement 78% de l'énergie des LEDs atteint le cristal. Ensuite, 10% supplémentaire sont perdus à cause des réflexions de Fresnel sur les faces pompées du cristal (non traitées AR, avec un indice de 2,2). De plus, comme nous pouvions nous y attendre en analysant la Figure II-25, l'absorption de la pompe est relativement faible. Ceci est partiellement compensé par le chemin optique parcouru par les rayons ayant un angle d'incidence différent de la normale, augmenté par réflexions totales internes (RTI) à l'intérieur du cristal. En prenant en compte tous les rayons émis par les LEDs, nous estimons en utilisant LightTools que 30% de l'énergie de pompe est absorbée. Ainsi, sur les 7,4 mJ initialement émis par les LEDs, seuls 1,5 mJ sont réellement absorbés. Ceci nous mène à une efficacité optique de 2,6%. Ces résultats ont fait l'objet d'une publication dans la revue *Optics Letters* (Barbet et al. 2014) ainsi que dans deux conférences internationales (*Europhoton 2014* et *Photonics West 2015*) et une nationale (*Optique Bretagne 2015*).

II.3 Bilan et perspectives

Nous avons considéré le gain laser comme le critère le plus pertinent pour estimer le potentiel du pompage par LED. La divergence des LEDs rendant difficile la simulation analytique du système de pompage, nous l'avons modélisé avec un logiciel de conception optique (LightTools) utilisant le tracé de rayons non-séquentiel. Cette modélisation nous permet de connaitre précisément l'éclairement de pompe au centre du milieu à gain (pour avoir un minorant du gain car dans le cas d'un pompage symétrique, c'est là où l'éclairement de pompe sera le plus faible). Ces simulations nous ont permis d'étudier la faisabilité d'un pompage par LED pour différents matériaux laser. Nous en avons déduit qu'avec l'état de l'art des éclairements des LEDs actuel, il n'était pas possible d'obtenir un effet laser pour des milieux à gain comme le Ti:saphir ou l'alexandrite par exemple. C'est pourquoi nous nous sommes plutôt intéressés à des matériaux dopés à l'ion néodyme. Après une étude plus détaillée de la spectroscopie de ces matériaux, notre choix s'est porté sur le Nd:YVO_4, principalement pour son produit $\sigma_{el}.\tau$ élevé.

Nous avons alors étudié différents types de pompage en fonction des LEDs disponibles et de leurs éclairements respectifs. Trois types de LEDs ont ainsi été testés : les LEDs ambre (avec un éclairement faible mais fortement absorbé), les LEDs IR (bien plus puissantes, réduisant le défaut quantique, mais avec un rayonnement très peu absorbé du fait de la largeur spectrale de ces LEDs) et enfin des LEDs bleues recouvertes de phosphore, émettant un large spectre dans l'ambre (LEDs très puissantes avec une absorption légèrement meilleure que celle des LEDs IR).

Ces différents systèmes nous ont permis d'augmenter progressivement l'énergie en sortie de notre laser pour atteindre jusqu'à 60 µJ avec des impulsions de pompe de 100 µs, puis jusqu'à 180 µJ en pompant 250 µs. Les temps de création typiquement mesurés sont de l'ordre de 20 à 40 µs. Des profils spatiaux largement multimode ont été observés, s'expliquant par la géométrie du cristal, l'architecture de pompage (transverse) et la forte divergence des LEDs, générant une amplification laser dans tout le volume du cristal. Nous avons obtenu un effet laser avec des coupleurs ayant une transmission aussi élevée que 10%, correspondant à un gain petit-signal en simple passage de 1,06.

Plusieurs pistes sont envisageables pour améliorer nos performances. Tout d'abord, nous pouvons nous inspirer des travaux réalisés par d'autres équipes de recherche dans le domaine. En effet, nous pourrions augmenter l'efficacité de notre système en recyclant davantage l'énergie des LEDs par l'utilisation d'une cavité ou d'une chambre de pompage plus réfléchissante (en spectralon ou en téflon par exemple). Ce faisant, (Villars et al. 2015) ont réussi à augmenter leur efficacité d'absorption de 4% à 30% ! De plus, réaliser des cavités laser avec plus de passages dans le milieu à gain par aller-retour (comme l'ont fait cette équipe (Huang et al. 2016) avec des cavités en V et en Z) pourrait également permettre d'extraire plus d'énergie, avec un profil spatial plus proche du monomode.

Enfin, pour améliorer radicalement nos performances et essayer d'atteindre les seuils laser actuellement inaccessibles (comme celui du Ti:saphir), nous avons besoin d'éclairements de pompe plus importants. C'est ce que nous proposons d'étudier dans le prochain chapitre.

BIBLIOGRAPHIE CHAPITRE II

Balembois, F. et al., 2011. Low-wavelength emission of Nd-doped lasers. *Laser & Photonics Reviews*, 5(5), pp.659–676.

Barbet, A. et al., 2015. LED side-pumped Nd3+: YVO4 laser at room temperature. In *SPIE LASE*. p. 934210.

Barbet, A. et al., 2014. Revisiting of LED pumped bulk laser: first demonstration of Nd:YVO4 LED pumped laser. *Optics Letters*, 39(23), p.6731.

Délen, X., Balembois, F. & Georges, P., 2011. Temperature dependence of the emission cross section of Nd:YVO4 around 1064 nm and consequences on laser operation. *J. Opt. Soc. Am. B*, 28(5), pp.972–976.

Huang, K.-Y. et al., 2016. Efficient 750-nm LED-pumped Nd:YAG laser. *Optics Express*, 24(11), p.12043.

Huang, Z. et al., 2005. Theoretical study on the laser performances of Nd3+:YAG and Nd3+:YVO4 under indirect and direct pumping. *JOSA B*, 22(12), pp.2564–2569.

Mcdonagh, L. et al., 2006. High-efficiency 60 W TEM00 Nd:YVO4 oscillator pumped at 888 nm. *Optics Letters*, 31(22), pp.3297–3299.

Sato, Y. & Taira, T., 2012. Temperature dependencies of stimulated emission cross section for Nd-doped solid-state laser materials. *Optical Materials Express*, 2(8), p.1076.

Sennaroglu, A., 2000. Influence of neodymium concentration on the strength of thermal effects in continuous-wave diode-pumped Nd: YVO4 lasers at 1064 nm. *Optical and quantum electronics*, 32, pp.1307–1317.

Villars, B., Hill, E.S. & Durfee, C.G., 2015. Design and development of a high-power LED-pumped Ce:Nd:YAG laser. *Optics letters*, 40(13), pp.3049–3052.

CHAPITRE III :

Comment augmenter la luminance des LEDs ?

III. COMMENT AUGMENTER LA LUMINANCE DES LEDS ?

Nous allons voir dans cette partie une solution pour augmenter significativement la luminance des LEDs. Cette solution consiste en l'insertion d'un élément intermédiaire, entre le milieu à gain et la source de pompage ayant la propriété de concentrer la lumière, au prix de quelques compromis.

Ainsi, dans la première partie de ce chapitre, nous dresserons un bref état de l'art des concentrateurs existant aujourd'hui, avant d'aborder le cas des concentrateurs luminescents. Puis, dans un second temps, nous présenterons une étude théorique (détaillant les paramètres clés menant à un concentrateur efficace) qui sera illustrée par une caractérisation expérimentale d'un cristal de Ce:YAG.

III.1 État de l'art des concentrateurs

III.1.1 Rôle des concentrateurs de lumière

Aujourd'hui, l'utilisation principale des concentrateurs consiste à générer de l'électricité à partir de l'énergie solaire. Après concentration, cette lumière peut être exploitée de trois manières différentes. Tout d'abord, on peut s'intéresser à l'énergie lumineuse et convertir directement cette lumière en électricité (à l'aide de cellules photovoltaïques, on parle alors de *concentrator photovoltaics*, dits CPV). Ensuite, on peut s'intéresser à l'énergie thermique et chercher à en extraire les calories (à l'aide d'un échangeur thermique et d'une turbine à vapeur ou *concentrated solar power*, dits CSP). Ces systèmes se sont fortement développés dans des pays tels que la Chine, les Etats-Unis, l'Espagne ou encore l'Afrique du Sud. Enfin, la dernière technologie qui exploite l'énergie solaire est un mélange des deux précédentes. Appelés CPVT pour *concentrator photovoltaics and thermal*, ces systèmes sont la combinaison de cellules photovoltaïques avec un échangeur thermique et offrent la possibilité d'avoir des efficacités supérieures aux deux systèmes précédents. Cependant, pour l'instant de tels systèmes ne sont limités qu'à des projets de démonstration. Bien qu'entre les systèmes CPV et CSP, la façon dont l'électricité est générée diffère, les concentrateurs utilisés, eux, sont quasiment identiques d'un cas à l'autre. C'est pourquoi, je ne vais décrire ici que les principaux concentrateurs utilisés.

La grandeur pertinente pour caractériser les concentrateurs entre eux est le facteur de concentration C, qui compare l'éclairement en sortie du concentrateur à l'éclairement du soleil et s'exprime en nombre de soleils. Par exemple, un concentrateur qui a un facteur de concentration de 300 signifie que l'éclairement reçu par la cellule photovoltaïque est 300x supérieur à celui reçu par le concentrateur. De manière plus littérale, nous pouvons écrire que le facteur de concentration est :

$$C = \frac{E_{concentrateur}}{E_{incident}} \qquad \textit{Eq. III-1}$$

III.1.2 Les différents types de concentrateurs

III.1.2.a Concentrateurs imageants

On peut tout d'abord citer les concentrateurs imageants. Leur principal avantage est qu'ils permettent d'obtenir de grands facteurs de concentration (> 300). Cependant, ils ont souvent deux défauts qui leur sont intrinsèques. Le premier, lié au fort pouvoir de concentration, est l'échauffement. En effet, étant donnée la puissance lumineuse reçue par la cellule photovoltaïque, il est nécessaire que cette dernière soit collée à un système de refroidissement (si possible passif pour ne pas diminuer le rendement global, comme un radiateur ou alors actif en faisant circuler un liquide caloporteur dans le support de la cellule). Le second inconvénient est lié au caractère imageant de ce type de concentrateur.

Lorsque le soleil tourne dans le ciel, son image va également bouger. C'est pourquoi, il est nécessaire de compléter ces concentrateurs de systèmes de suivi du soleil (*tracking systems*), pour garantir un éclairement optimal de la cellule tout au long de la journée.

La solution la plus rapide ou la plus simple qui vient à l'esprit d'un opticien quand on lui demande de concentrer la lumière consiste très probablement à focaliser cette dernière en un point à l'aide d'une lentille ou d'un miroir concave.

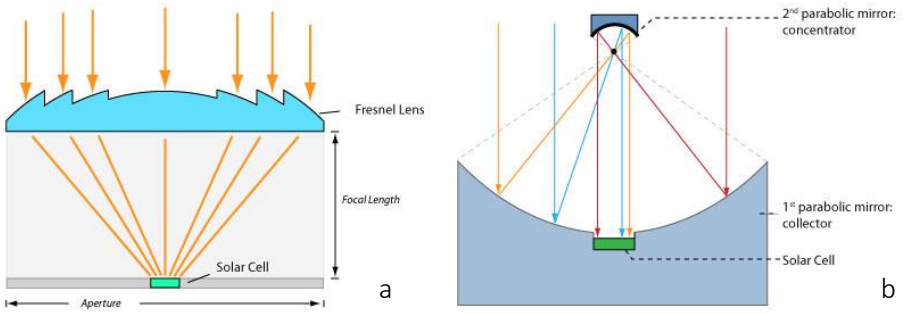


Figure III-1: (a) lentille de Fresnel illuminant une cellule photovoltaïque, (b) concentrateur à deux miroirs paraboliques.[18]

Le facteur de concentration atteignable avec un système à base de lentilles de Fresnel est de l'ordre de 500. Si l'on veut augmenter la surface de collection, une solution réflective plutôt que réfractive s'impose. Il est ainsi possible d'utiliser de grands miroirs paraboliques pour concentrer la lumière, la cellule photovoltaïque étant placée au foyer du système. En fonction de la complexité et de l'encombrement du système global, le concentrateur pourra être composé d'un ou plusieurs miroirs paraboliques. Un concentrateur parabolique peut atteindre des facteurs de concentration supérieurs à 500, voire 1000.

Il est également possible d'accoler plusieurs miroirs paraboliques les uns à côtés des autres pour former une seule grande parabole (un peu à l'instar des miroirs primaires des grands télescopes en astronomie). C'est plus souvent employé dans les configurations thermiques (appelées *Dish Stirling*), car couplé à un moteur Stirling ou à vapeur.

III.1.2.b Concentrateurs non imageants

Il y a ensuite les dispositifs de concentration non imageants. Ceux-ci sont caractérisés par des facteurs de concentration plus faibles (< 300). Ainsi, contrairement aux deux exemples donnés précédemment, ils n'ont pas nécessairement besoin d'un système de suivi angulaire ou de refroidissement.

Les CPC :

Le premier d'entre eux est le CPC (pour *Compound Parabolic Concentrator*). Ce sont également des concentrateurs paraboliques, cependant ils présentent un angle d'acceptation typique compris entre 25° et 40°, les rendant plus tolérants angulairement bien que certains soient tout de même équipés de système de suivi. Ils sont conçus pour concentrer des rayons quasi-collimatés, issus de sources distantes, donc idéaux pour la concentration solaire.

[18] Illustrations empruntées à : http://www.greenrhinoenergy.com

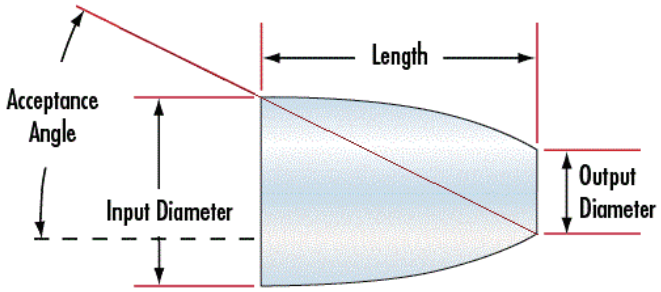


Figure III-2 : Paramètres importants d'un CPC.

Une version équivalente mais avec des bords hyperboliques au lieu de paraboliques existe également. Ces concentrateurs ont la particularité d'être relativement compacts et peuvent donc servir comme concentrateurs secondaires. Les facteurs de concentration accessibles avec ces types de concentrateur sont de l'ordre de 1 à 10 fois l'éclairement du soleil.

Les LSC :

Le second concentrateur non imageant est le concentrateur luminescent ou LSC (pour *luminescent solar concentrator*). Comme son nom l'indique, le principe d'un LSC est basé sur la luminescence, c'est-à-dire la capacité à réémettre la lumière, et c'est là tout l'intérêt de ce type de concentrateur. De manière générale, un LSC a une forme parallélépipédique et est composé d'une matrice (en polymère, en verre ou en matériau cristallin) contenant des luminophores. Ces luminophores peuvent être des phosphores (de Boer et al. 2012; de Boer et al. 2016), des colorants (Currie et al. 2008), des nano-cristaux ou encore des boites quantiques, aussi appelées plus fréquemment par leur terme anglo-saxon *Quantum Dots* (Bomm et al. 2011; Purcell-Milton & Gun'ko 2012; Erickson et al. 2014; Meinardi et al. 2014; Bradshaw et al. 2015). Une revue récente retrace de manière relativement complète l'évolution des recherches faites ces 30 dernières années sur les LSC (Debije & Verbunt 2012). Une illustration et le principe de fonctionnement d'un LSC sont décrits dans la Figure III-3 ci-dessous et seront décrits plus en détail dans la partie suivante du chapitre, *Étude théorique du concentrateur luminescent*.

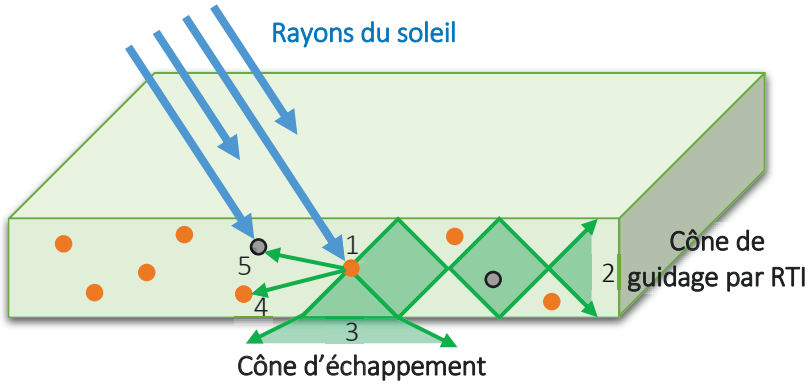


Figure III-3 : Principe de fonctionnement d'un LSC. 1) les rayons du soleil sont absorbés par les luminophores qui réémettent un rayonnement lumineux, 2) la lumière réémise est guidée par réflexions totales internes (RTI)[19] jusqu'aux bords du concentrateur, 3) une partie de la lumière, non comprise dans le cône de RTI, s'échappe du concentrateur et est perdue, 4) une partie de la lumière réémise est réabsorbée par un luminophore, 5) des défauts dans la matrice peuvent absorber ou diffuser la lumière incidente ou réémise.

[19] Étant donné que dans les deux prochains chapitres, ce terme est répété un certain nombre de fois, il sera par la suite abrégé par RTI.

Étant donné que ce type de concentrateur repose sur le principe d'absorption / réémission, l'angle d'incidence des rayons du soleil est beaucoup moins critique que dans les autres cas énoncés précédemment (la seule réelle influence se verra sur la réflexion de Fresnel à l'interface air/concentrateur) et ne nécessite donc pas de système de suivi.

III.1.2.c Choix du type de concentrateur

Tous ces concentrateurs ont été pensés pour concentrer les rayons du soleil. Ce dernier, avec un diamètre angulaire 0,5° est radicalement différent d'une LED, ce qui explique les facteurs de concentration élevés (plusieurs centaines) qu'il est possible d'obtenir. Cependant, quelles sont les performances que nous pouvons en attendre lorsqu'il s'agit de rayons issus d'une LED ?

Les trois premiers cas ont le point commun d'être basés sur le même principe : on concentre une même quantité de lumière sur une surface plus petite en augmentant la divergence des faisceaux de la source considérée. C'est le principe de conservation de la luminance. Dans le cas des LEDs, tout change. Les rayons ne sont plus collimatés comme dans le cas du soleil, ils sont émis dans un demi-espace, dans 2π sr. Il n'est donc pas possible d'augmenter davantage cette divergence, et par conséquent il n'est pas non plus possible d'obtenir une taille image plus petite que la taille de la LED. Ainsi, ces concentrateurs n'auront aucun effet à partir d'une source lumineuse à base de LEDs, et arriveront au mieux à égaler la luminance d'une LED.

Le dernier cas est le seul concentrateur intégrant un processus d'absorption et de réémission ; et c'est ce détail qui va faire toute la différence. En effet, l'unique moyen de « violer » le principe de conservation de la luminance est de changer de longueur d'onde (voir les études de Yablonovitch 1980; Ries 1982; Smestad et al. 1990). En se basant sur des considérations thermodynamiques, ces équipes de recherche ont établi que le facteur de concentration pourrait aller jusqu'à :

$$C \leq \left(\frac{\nu'}{\nu}\right)^2 e^{\frac{h(\nu-\nu')}{kT}}, \qquad \textit{Eq. III-2}$$

avec ν et ν' les fréquences de l'onde absorbée et émise respectivement. Nous allons en reparler par la suite, mais nous pouvons dors et déjà constater que ce facteur dépend de la différence de fréquence entre ces deux ondes, c'est-à-dire du déplacement de Stokes. Ainsi, il serait possible selon ce modèle d'atteindre des facteurs de concentration dépassant 10 000, voire même 10^5. Cependant, un article récemment publié dans la revue Optica (Papakonstantinou Ioannis & Tummeltshammer Clemens 2015) vient apporter quelques précisions sur les considérations faites il y a 20 à 30 ans par Yablonovitch et ses confrères et tente d'expliquer pourquoi les valeurs des facteurs de concentration mesurés expérimentalement jusqu'à aujourd'hui sont plusieurs ordres de grandeur en deçà de ce qui est prédit par la thermodynamique. Outre la notion d'absorption et de réémission, il faut noter que la concentration est rendue possible parce que cette réémission se produit à l'intérieur d'un matériau ayant un indice supérieur à son environnement.

Ainsi, pour augmenter la luminance des LEDs, le seul choix qui s'impose est celui des concentrateurs luminescents.

III.1.3 Cas des concentrateurs luminescents

Pour un concentrateur luminescent, l'effet de concentration provient tout d'abord de la géométrie. La lumière de la pompe est collectée par les grandes surfaces et la lumière réémise est guidée vers les tranches. Ainsi, plus la surface de collecte est grande, plus la quantité de lumière guidée vers les tranches sera importante. De la même façon, à puissance lumineuse absorbée fixée, l'éclairement en sortie des tranches sera d'autant plus grand que l'épaisseur du concentrateur sera faible. Nous commençons à comprendre pourquoi la géométrie parallélépipédique est privilégiée. Bien entendu, ce ne sont pas les seuls critères à prendre en compte pour obtenir un concentrateur efficace, les autres paramètres seront discutés en détail dans la suite de ce chapitre. Cependant, de ces premiers

critères, nous pouvons distinguer trois configurations de concentrateurs luminescents que l'on retrouve régulièrement (voir Figure III-4) et qui sont décrits dans la suite.

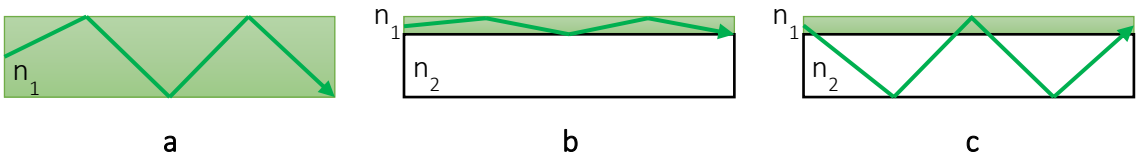


Figure III-4 : (a) concentrateur massif uniformément dopé, (b) colorant sur lame bas indice $n_1 > n_2$, (c) colorant sur lame haut indice $n_1 < n_2$.

Le cas a) est le cas d'un concentrateur dit « massif » car d'un seul bloc. L'absorption des rayons lumineux se fait dans la totalité du volume. Ce type de concentrateur a plutôt une taille macroscopique (une épaisseur de plusieurs centaines de µm jusqu'à quelques mm et une longueur pouvant aller jusqu'à la centaine de mm). Étant donné qu'il s'agit d'un bloc monolithique, la dissipation thermique sera relativement efficace (selon que la matrice est en plastique ou cristalline). Avec ce type de système, une équipe néerlandaise a obtenu un facteur de concentration de 4,5 en pompant avec des LEDs un barreau de Ce:YAG (de Boer et al. 2016).

Les cas b) et c) justement, sont des cas où le critère de l'épaisseur du concentrateur est poussé à l'extrême. Pour faire des couches de concentrateur très fines (de quelques dizaines de nm jusqu'à la centaine de µm), l'utilisation d'un cristal n'est plus possible pour des raisons technologiques. La solution adoptée dans ces cas est l'utilisation de colorants (comme la Rhodamine 6G par exemple) ou de boites quantiques que l'on insère dans une matrice (en PMMA ou en SU8 par exemple). Ce mélange se dépose ensuite par centrifugation (ou plus communément *spin-coating*) sur un substrat (en silice par exemple). De plus, avec ces deux types de luminophores, il est aisé de changer la concentration des solutions appliquées, et donc leur absorption. C'est pourquoi, avoir des épaisseurs de concentrateur plus fines qu'avec des cristaux n'est pas un problème pour absorber toute la lumière de pompe incidente. Cependant, en deçà de quelques dizaines de nm, la concentration en luminophores nécessaire pour absorber la totalité de la pompe peut entrainer des agrégats ou une extinction de fluorescence. C'est selon ce schéma qu'une équipe de l'université de Saint Andrews, en Écosse (Yang et al. 2009; Turnbull & Samuel 2010), a réussi à obtenir un facteur de concentration de 7 en pompant avec un OPO un concentrateur fait de SU8 dopé à la coumarine 6 (indice $n_1 = 1,62$) sur un substrat en silice ($n_2 = 1,5$). Cependant, en observant la tranche de leur concentrateur, ils ont constaté que la surface d'émission était légèrement plus large que l'épaisseur de leur tranche. Ils en ont conclus qu'il existait des rayons ayant un angle de propagation proche de l'angle critique de RTI qui étaient couplés dans le substrat (rayons qu'ils appellent « modes de fuite »).

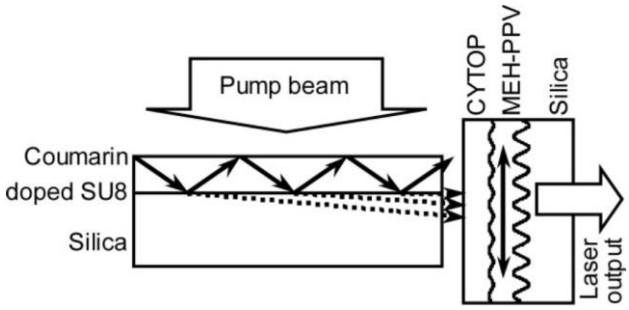


Figure III-5 : Schéma d'un laser pompé par un concentrateur luminescent avec entre autres, les modes guidés dans le concentrateur en trait plein et les modes de fuite en pointillés (Yang et al. 2009).

Pour diminuer la part des rayons couplés dans le substrat, ils ont fabriqué de nouveaux concentrateurs ayant une couche supplémentaire insérée entre la coumarine et la silice (couche

transparente NORLAND 60 d'indice 1,56). Cette astuce a permis de réduire les pertes de leur concentrateur d'un facteur 3 et d'augmenter ainsi le facteur de concentration à 10. Cette solution semble être idéale et permet d'obtenir de grands facteurs de concentration. Cependant, de tels systèmes sont limités par leur taille. Les solutions du type « colorant » ont le mauvais goût d'avoir deux défauts majeurs. Le premier défaut concerne les pertes par propagation, correspondant aux pertes par diffusion ou absorption dans la masse, mais également aux pertes par réabsorption (le déplacement de Stokes, ou *Stokes shift*, étant bien souvent trop faible pour que ce phénomène soit négligeable). À cause de ces pertes, le libre parcours moyen d'un rayon lumineux dans ces milieux est bien inférieur à celui de la lumière dans des milieux cristallins. Ainsi, la longueur typique de ces concentrateurs va de quelques mm à quelques dizaines de mm tout au plus ! Au-delà de quelques cm de longueur, la fluorescence générée à une extrémité du concentrateur ne participe plus à l'augmentation de la puissance de sortie à l'autre extrémité. Ce phénomène est le plus souvent contourné en choisissant des matériaux avec un grand déplacement de Stokes bien que diverses équipes de recherche (Giebink et al. 2011) travaillent sur d'autres solutions (comme la variation de l'épaisseur de la couche luminescente pour faire varier le couplage de la lumière s'y propageant avec le substrat, minimisant ainsi la réabsorption, technique appelée *resonance-shifting*). Enfin, comparés aux matrices cristallines, les colorants (et les boites quantiques) ont le défaut d'être très sensibles au photoblanchiment (même si ces dernières le sont un peu moins que les colorants) ; rendant ces systèmes moins robustes sur le long terme.

C'est pour limiter l'influence de ces deux derniers défauts que le cas c) est envisagé. Lorsque le substrat a un indice plus élevé que le concentrateur, la lumière n'est plus guidée uniquement dans le colorant et peut se propager dans tout l'ensemble « substrat + colorant ». Ainsi, la fluorescence générée se propage moins souvent dans le colorant et subit moins de pertes et de réabsorption, avant d'arriver jusqu'à une tranche. Enfin, cette configuration offre d'autres avantages par rapport au cas b) : elle permet également d'améliorer la gestion de la thermique du concentrateur ou encore de déposer plus facilement un traitement antireflet sur la tranche de sortie. La contrepartie est que par conséquent, l'ensemble de la tranche émet de la lumière et plus uniquement l'épaisseur du colorant déposé ; réduisant ainsi l'éclairement de sortie du système. À partir de données fournies par une équipe de recherche (El-Bashir et al. 2014), il est possible de calculer le facteur de concentration de leur système, s'élevant à 4,7. Un autre cas est également illustré par (Baldo 2009), toutefois sans donner d'informations sur le facteur de concentration.

Ce sont pour ces dernières raisons que notre recherche s'est orientée principalement vers les concentrateurs luminescents massifs avec comme objectif de limiter les pertes par propagation.

III.2 Étude théorique du concentrateur luminescent massif pompé par LED

III.2.1 Définition des grandeurs

Définissons un concentrateur tel que schématisé en Figure III-6 ayant toutes ses faces polies, de dimensions *L x l x h*, pompé de façon uniforme sur l'une de ses grandes faces ($S_{pompée} = L \times l$). La lumière réémise par les luminophores est guidée par RTI vers toutes les faces du concentrateur. Nous choisissons ensuite une des faces comme face de sortie S_{sortie} ($S_{sortie} = l \times h$).

Les performances du concentrateur sont définies par le facteur de concentration C, c'est-à-dire le rapport de l'éclairement de sortie par l'éclairement incident (voir Eq. III-1). En toute rigueur, cette comparaison devrait se faire à partir des luminances de chaque source. Cependant, les concentrateurs massifs ayant un diagramme d'émission identique à celui des LEDs (i.e. lambertien), le raisonnement peut être intégralement fait à partir du rapport des éclairements. Plus de détails sur ce point sont disponibles en Annexe 1. Ce facteur peut être aussi écrit comme le produit du facteur de concentration géométrique G (égal à $S_{pompée}/S_{sortie}$) par l'efficacité optique $\eta_{o/o}$:

$$C = \frac{E_{sortie}}{E_{pompe}} = \frac{P_{sortie}}{P_{pompe}} \frac{S_{pompée}}{S_{sortie}} = \eta_{o/o} G, \qquad \textit{Eq. III-3}$$

où P_{pompe} est la puissance de pompe incidente traversant la face pompée ($E_{pompe} = P_{pompe}/S_{pompée}$) et P_{sortie} est la puissance de sortie du concentrateur à travers la face S_{sortie} ($E_{sortie} = P_{sortie}/S_{sortie}$). Dans le cas où toute la puissance de pompe se retrouverait à sortir par la face de sortie (c'est-à-dire $\eta_{o/o} = 1$), le facteur de concentration ne dépenderait que de la géométrie du concentrateur et nous aurions alors $C = S_{pompée}/S_{Sortie} = G$, le facteur de concentration géométrique.

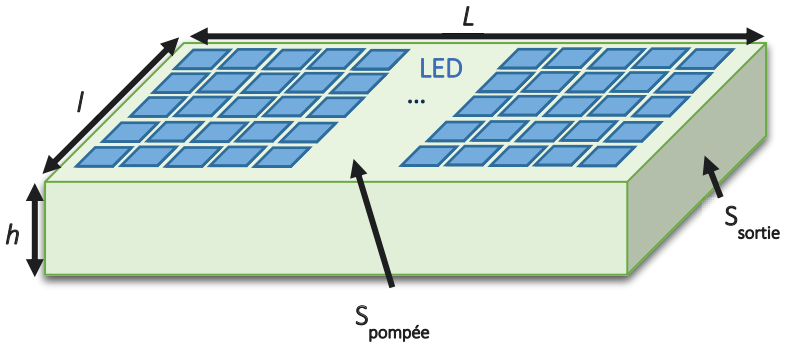


Figure III-6 : Schéma d'un concentrateur pompé par des LEDs, avec les faces pompée et de sortie.

Comme expliqué précédemment, les concentrateurs ont été initialement pensés avec le soleil comme source lumineuse, c'est-à-dire avec une surface éclairée de façon homogène par un front d'onde plan. Cependant, dans le cas du pompage par LED, l'éclairage de pompe est non-uniforme et est composé d'une multitude de points sources. Ainsi, pour prendre ce paramètre en compte, nous avons décidé de définir un nouveau facteur de concentration C_{LED}. Ce nouveau facteur ne devra donc plus comparer l'éclairement de sortie du concentrateur avec l'éclairement du soleil, mais avec l'éclairement d'une LED (en W/cm²). Cela correspondra directement à combien de fois nous avons été capables d'augmenter l'éclairement d'une LED. Ce facteur dépendra naturellement du nombre de LEDs impliquées et donc de la surface émettrice totale de pompe. Cette quantité peut se résumer en une grandeur que nous avons décidé de symboliser par η_{fill} que l'on appellera « facteur de remplissage ». Ce terme se définit comme le nombre de LEDs qu'il est possible de disposer à la surface du

concentrateur, multiplié par le rapport de la surface émettrice d'une LED S_{LED} (1 mm² pour toutes les LEDs que nous utilisons) par la surface pompée du concentrateur :

$$\eta_{fill} = \#\ de\ LEDs \frac{S_{LED}}{S_{pompée}}, \qquad \textit{Eq. III-4}$$

Nous obtenons alors l'expression du facteur de concentration C_{LED} :

$$C_{LED} = \frac{Eclairement\ en\ sortie\ de\ concentrateur}{Eclairement\ d'une\ LED} = \eta_{o/o}\eta_{fill}G, \qquad \textit{Eq. III-5}$$

L'efficacité optique $\eta_{o/o}$ peut se décomposer en plusieurs termes :

$$\eta_{o/o} = \eta_{exc}\eta_{Q}\eta_{RTI}\eta_{extr}, \qquad \textit{Eq. III-6}$$

où

- η_{exc} est le rendement d'excitation. C'est la part de la puissance de pompe collectée par $S_{pompée}$ et absorbée par les luminophores (c'est-à-dire que l'on tient compte de la réflexion de Fresnel à l'interface air/concentrateur) : $\eta_{exc} = \frac{P_{absorbée}}{P_{pompe}}$. Le dopage doit être choisi de manière à absorber le plus de pompe possible en un seul passage (ou alors deux passages si on recycle le reste de pompe non absorbée avec un miroir par exemple), tout en évitant les phénomènes d'extinction de fluorescence.
- η_{Q} est le rendement quantique du concentrateur : $\eta_{Q} = \frac{P_{réémise}}{P_{absorbée}}$. Ce rendement tient compte du rendement quantique de photoluminescence du luminophore η_{PLQY} (ou PLQY pour *photoluminescent quantum yield*), c'est-à-dire que de la quantité de désexcitations radiatives sur le nombre de désexcitations totales (radiatives et non-radiatives). Il tient également compte de la différence d'énergie entre le photon de pompe et celui réémis. Ainsi, le rendement quantique maximal qu'il est possible d'obtenir est $\lambda_{pompe}/\lambda_{réémis}$ (dans ce cas, le rendement quantique de photoluminescence est de 100%).
- η_{RTI} est la part de la lumière réémise guidée par RTI jusqu'aux bords du concentrateur : $\eta_{RTI} = \frac{P_{RTI}}{P_{réémise}}$. Au cours de sa propagation, cette lumière guidée subit des pertes (par absorption ou par diffusion essentiellement).
- η_{extr} est l'efficacité d'extraction du concentrateur, c'est-à-dire la part de lumière que nous arrivons à extraire par la face S_{sortie}. Cela peut s'exprimer par le rapport de la puissance de sortie P_{sortie} par la puissance lumineuse guidée par RTI : $\eta_{extr} = \frac{P_{sortie}}{P_{RTI}}$. Bien entendu, la quantité de lumière extraite dépend de la différence d'indice entre le concentrateur et son environnement.

Ainsi, pour maximiser le facteur de concentration, il faut :

- Une efficacité optique $\eta_{o/o}$ élevée.
- η_{fill} le plus grand possible (tendre vers 1)
- Travailler sur la géométrie

Dans la suite, nous étudions les paramètres clefs pour maximiser C_{LED}.

III.2.2 La géométrie

Nous l'avons vu avec l'Eq. III-5, l'efficacité optique étant par définition inférieure ou égale à 1, c'est la géométrie du concentrateur qui va prioritairement apporter cet effet de concentration. La

conception de cette géométrie se fait en deux temps, un premier sur la forme, tandis que le second sera plutôt axé sur les dimensions du concentrateur.

Nous comprenons que pour avoir un effet de concentration, il va falloir privilégier une dimension par rapport aux deux autres, ce paramètre reste valable peu importe la forme. Jusqu'à maintenant, nous n'avons parlé que de formes parallélépipédiques, mais est-ce la plus adaptée à notre application ? Est-ce qu'une autre forme, cylindrique par exemple ne serait pas meilleure ? L'Eq. III-5 nous permet de comprendre que pour maximiser C_{LED}, la surface de pompe doit être aussi grande que possible. Cela signifie que dans le cas d'un parallélépipède nous allons pomper le concentrateur des deux côtés (par les plus grandes faces, le dessus et le dessous). Ainsi, nous avons désormais $S_{pompée} = 2L \times l$. Or, les surfaces pompées et de sortie ayant une dimension commune (la largeur), cela permet de simplifier l'expression du facteur de concentration géométrique à $G = S_{pompée}/S_{sortie} = 2L/h$. C_{LED} devient alors égal à $C_{LED} = \frac{2L}{h}\eta_{fill}\eta_{o/o}$. Il s'agit d'une forme très simple, idéale pour disposer les LEDs le plus proche possible, voir Figure III-7.

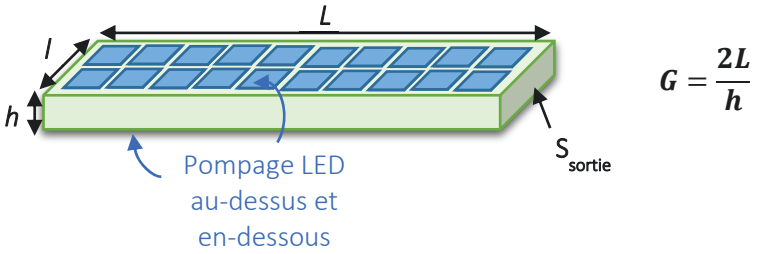


Figure III-7 : Schéma de pompage d'un concentrateur parallélépipédique.

Une deuxième forme étudiée consiste à insérer un angle dans le concentrateur (ce dernier adopte donc une forme prismatique, voir Figure III-8). Il a été montré (Hughes et al. 2013) que des concentrateurs ayant cette forme pouvaient avoir des performances meilleures que les concentrateurs parallélépipédiques mais uniquement sous certaines conditions bien définies (comme avec un éclairage directif orienté convenablement, ce qui ne peut s'appliquer aux LEDs).

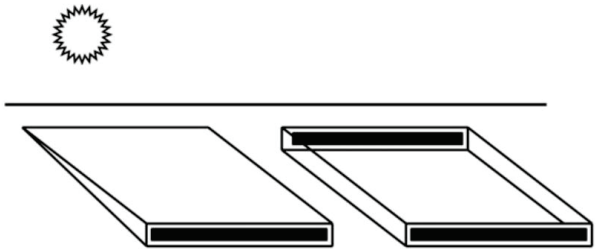
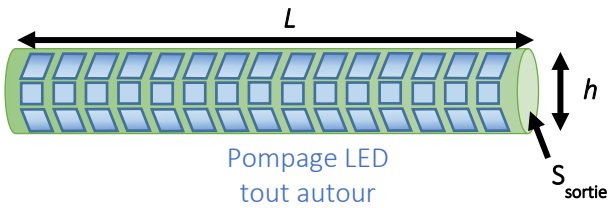


Figure III-8 : À gauche, le concentrateur prismatique ("wedged") proposé par Hughes et. al, à droite un concentrateur parallélépipédique, avec les faces de sortie en noir.

Une dernière forme simple à réaliser technologiquement parlant est la forme cylindrique. Les barreaux laser ont pendant très longtemps eu cette forme (et c'est encore le cas aujourd'hui), ne serait-il pas judicieux de conserver cette forme pour le concentrateur ? Cette question est tout à fait légitime puisqu'elle a fait l'objet de plusieurs études (Nightingale et al. 2004; McIntosh et al. 2007; Jones 2011; Green 2014). La disposition se présenterait de la façon suivante :



$$G = \frac{4L}{h}$$

Figure III-9 : Schéma de pompage d'un concentrateur cylindrique.

Calculons le facteur de concentration associé à un concentrateur cylindrique de diamètre h et de longueur L :

$$G = \frac{S_{pompée}}{S_{sortie}} = \frac{L\pi h}{\pi h^2/4} = \frac{4L}{h} \qquad \textit{Eq. III-7}$$

Ainsi, à première vue, un concentrateur cylindrique permet d'obtenir des facteurs de concentration intrinsèquement 2 fois plus grands qu'un concentrateur parallélépipédique. Afin d'avoir une valeur plus précise, nous avons réalisé une simulation d'un concentrateur cylindrique avec le logiciel LightTools, que nous avons comparé avec une simulation d'un concentrateur parallélépipédique de même dimension (L = 100 mm et h = 1 mm). Dans les deux cas, la source pompait toute la longueur du concentrateur et était distante de 0,5 mm de ce dernier. Nous avons obtenu un rendement en puissance de 6,8% pour le concentrateur cylindrique et 6,4% pour le parallélépipède. Ainsi, nous pouvons voir qu'en matière de rendement, ces deux géométries sont relativement équivalentes. En revanche, si l'on tient compte du facteur de concentration géométrique, cela nous conduit à des facteurs de concentration de 27 (= 6,8 x 400) pour le cas cylindrique et 13 pour le cas parallélépipédique. Nous voyons donc tout l'intérêt d'une telle forme.

Cependant, le concentrateur cylindrique est sujet à plusieurs inconvénients. Le premier est que nous ne pouvons pas « coller » les LEDs au concentrateur de façon aussi proche qu'avec le parallélépipède. Pour le faire, il faudrait tapisser les LEDs sur une surface courbe afin d'épouser la forme du barreau, ce qui est possible, mais bien plus compliqué technologiquement parlant. Ensuite, l'avantage de la géométrie parallélépipédique est que l'on peut augmenter la largeur du concentrateur sans changer le facteur de concentration géométrique G (puisque la largeur est commune aux deux surfaces en jeu), ce qui n'est pas le cas du concentrateur cylindrique. Si l'on souhaite pomper une plus grande surface, il faut nécessairement augmenter le diamètre h du cylindre et donc diminuer G par la même occasion. Par ailleurs, le refroidissement d'un cylindre est plus difficile à assurer qu'un parallélépipède. En effet, il est plus simple d'avoir un bon contact thermique avec une face plane qu'avec une face courbe.

Dans la suite de cette thèse, nous ne parlerons donc que de la géométrie parallélépipédique. Une fois la forme de base choisie, il faut décider de la dimension. Pour cela, nous partons une nouvelle fois de l'expression du facteur de concentration géométrique G. Quelle que soit la géométrie, la concentration sera d'autant plus grande que le rapport L/h est élevé. Ainsi, le concentrateur idéal aura une longueur aussi grande et une épaisseur aussi fine que possible. Cependant, des considérations d'ordre pratique et technologique vont limiter ce rapport. Elles sont au moins au nombre de trois.

- La première, la plus pragmatique est la limite technologique. Les techniques de croissance cristallines actuelles permettent d'obtenir des cristaux ayant une longueur pouvant aller jusqu'à 150-200 mm, mais guère plus. Pour beaucoup de matériaux, l'épaisseur va souvent être le paramètre qui va limiter la longueur maximale que peuvent atteindre les fournisseurs. De plus, pour avoir un guidage par RTI, les faces du cristal doivent être polies et les plus parallèles possible. En effet, les rayons lumineux subissent un nombre important de réflexions au cours de leur propagation dans le concentrateur. Ainsi, des surfaces non polies feront perdre une

grande quantité d'énergie par rayon. De même, des faces non parallèles peuvent, au fur et à mesure de la propagation d'un rayon, changer son angle d'incidence sur l'une des faces du concentrateur. En conséquence, un rayon initialement en RTI peut, après de multiples réflexions, sortir du concentrateur, mettant ainsi un terme à sa propagation vers S_{sortie}. Or, plus le cristal est fin, plus ces critères sont difficiles à respecter.

- La seconde limite concerne essentiellement l'épaisseur du concentrateur en lien avec l'absorption de la pompe. Afin de sortir le maximum de puissance du concentrateur, nous avons tout intérêt à le pomper par ses deux faces principales. Pour le faire efficacement, il faut que toute la pompe soit absorbée en un seul passage. Ainsi, si nous prenons un concentrateur trop fin, toute la pompe ne sera pas absorbée après avoir traversé l'épaisseur du concentrateur. Ceci peut se compenser en dopant davantage le concentrateur, jusqu'à une certaine limite, soit fixée par la technique de croissance utilisée par les fournisseurs, soit par le dopage limite avant l'extinction de fluorescence.
- Enfin, la dernière limite concerne principalement les pertes du concentrateur. Plus un concentrateur est long, plus on peut utiliser de LEDs et plus le signal en sortie sera intense. Cependant, bien que les matrices cristallines soient généralement de bonne qualité, les pertes par propagation ne sont pas pour autant inexistantes. Étant donné le nombre important de réflexions que les rayons subissent lors de leur propagation ; ces pertes, aussi faibles soient-elles, peuvent avoir un effet dévastateur sur les performances d'un concentrateur. Il s'agit là d'un paramètre déterminant pour obtenir un concentrateur efficace et donc déterminant dans le choix de la longueur et de l'épaisseur de ce dernier.

III.2.3 Le choix des indices

Un aspect permettant d'augmenter l'efficacité d'un concentrateur est l'extraction de la lumière réémise. En effet, de par la géométrie et l'indice du concentrateur, une quantité de rayons (et donc d'énergie) importante peut rester piégée par RTI. Cette part peut représenter plus de 50% de la quantité totale de rayons (voir en Annexe 2 l'étude analytique de Sébastien Chénais, partenaire du projet et attaché au laboratoire de Physique des Lasers). L'enjeu de cette partie est de comprendre quelles sont les pistes pour en extraire le plus possible.

Pour amener le plus de lumière possible jusqu'à la face S_{sortie}, trois étapes vont se succéder. Il faut premièrement absorber le plus de lumière de pompe possible, il faut ensuite guider la lumière réémise jusqu'à S_{sortie} et enfin, il faut l'extraire. Le guidage des rayons repose sur la RTI. Ainsi, pour extraire la lumière préférentiellement par une face, il faut frustrer cette RTI à l'interface considérée (S_{sortie}). C'est possible si le milieu laser est collé au concentrateur. Cela va bien entendu imposer des contraintes sur les indices des différents matériaux entrants en jeu et plus précisément sur les différences d'indice (voir Figure III-10).



Figure III-10 : Différences d'indices optiques à prendre en compte pour extraire le plus de lumière possible : $\Delta n_{21}=n_2-n_1$ et $\Delta n_{32}=n_3-n_2$.

III.2.3.a Différence d'indice $\Delta n_{21} = n_2-n_1$

Pour avoir un bon guidage par RTI, il nous faut a priori Δn_{21} le plus grand possible. Pour cela, le plus simple est de choisir un concentrateur avec un indice optique le plus élevé possible et un environnement avec un indice optique le faible possible (l'air est un parfait candidat). Cependant, un indice élevé pour le concentrateur signifie également augmenter les réflexions de Fresnel à la longueur

d'onde de pompe à l'interface air/concentrateur et donc diminuer η_{exc}. Existe-t-il un compromis ? Pour le déterminer, nous nous proposons d'étudier un terme qui serait le produit de la transmission de Fresnel à la longueur d'onde de pompe λ_p par la quantité de lumière guidée par RTI. Si nous arrivons à optimiser ce produit, alors nous serons capables d'amener le maximum de lumière jusqu'à S_{sortie}. Il nous « suffira » de l'extraire. La réflexion de Fresnel en polarisation TE (cas le plus pessimiste) est par définition :

$$R = \left(\frac{n_1 cos\theta_1 - n_2 cos\theta_2}{n_1 cos\theta_1 + n_2 cos\theta_2}\right)^2 \qquad \textit{Eq. III-8}$$

Avec θ_1 l'angle d'incidence du rayon de pompe considéré (compris entre -90° et 90°) et θ_2 l'angle de ce même rayon après réfraction dans le concentrateur, qui peut s'exprimer en fonction de θ_1 :

$$\theta_2 = sin^{-1}\left(\frac{n_1}{n_2} sin\theta_1\right) \qquad \textit{Eq. III-9}$$

Ainsi, nous pouvons calculer la transmission de Fresnel globale à la longueur d'onde de pompe, qui tient compte de la divergence des rayons issus des LEDs ainsi que de l'intensité de chaque rayon (en pondérant par l'indicatrice de sortie d'une LED) :

$$T_{12} = 1 - R = 1 - \frac{\iint_{\theta_1=-90°}^{\theta_1=90°} n_1 cos(\theta_1).\left(\frac{n_1 cos\theta_1 - n_2 cos\theta_2}{n_1 cos\theta_1 + n_2 cos\theta_2}\right)^2 d\theta_1}{\int_{\theta_1=-90°}^{\theta_1=90°} n_1 cos\,(\theta_1)\, d\theta_1} \qquad \textit{Eq. III-10}$$

Dans l'Eq. III-10, l'expression de θ_2 n'a pas été remplacée pour une question de lisibilité, mais dans les faits, le calcul dépend bien uniquement de l'indice du concentrateur n_2 (n_1 ayant été fixé à 1) et de l'angle d'incidence des rayons θ_1.

Ainsi, on peut maintenant en déduire l'efficacité d'excitation qui est égale à $\eta_{exc} = T_{12} \times \eta_{absorption}$, où $\eta_{absorption}$ serait l'efficacité d'absorption du concentrateur à la longueur d'onde de pompe. Cette efficacité dépend du coefficient d'absorption (en cm^{-1}) du matériau concentrateur ainsi que du chemin parcouru par les rayons de pompe à l'intérieur du concentrateur. Pour simplifier la suite des calculs, cette efficacité sera supposée égale à 100% (nous le verrons par la suite, cette hypothèse n'est pas si éloignée des résultats de mesure). Donc, dans le cas précis d'une absorption totale des faisceaux de pompe, l'expression de **l'efficacité d'excitation est tout simplement égale à celle de la transmission en Eq. III-10**.

Considérons maintenant la lumière guidée par RTI. L'angle de réflexion totale interne est égal à :

$$\alpha = sin^{-1}\left(\frac{n_1}{n_2}\right) \qquad \textit{Eq. III-11}$$

L'angle solide associé est :

$$\Omega_{21} = 2\pi(1 - cos\,\alpha) \qquad \textit{Eq. III-12}$$

En négligeant les sorties directes par les faces latérales, le pourcentage de lumière ne sortant pas par les grandes faces et guidée est (voir Figure III-11) :

$$\eta_{RTI} = \frac{4\pi - 2\Omega_{21}}{4\pi} \qquad \textit{Eq. III-13}$$

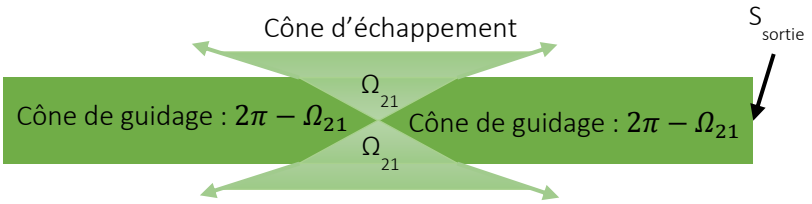


Figure III-11 : Cônes de guidage et d'échappement d'un concentrateur luminescent parallélépipédique.

Ainsi, en considérant que toute la pompe transmise est absorbée, que toute l'énergie de pompe est réémise ($\eta_Q = 1$), qu'il n'y a pas de perte par propagation et un concentrateur infiniment large, alors l'évolution du produit des équations Eq. III-10 et Eq. III-13 en fonction de l'indice du concentrateur (avec l'indice n_1 fixé à 1 pour l'air) nous permet d'identifier un maximum pour un indice du concentrateur autour de 1,83 (voir la courbe en Figure III-12).

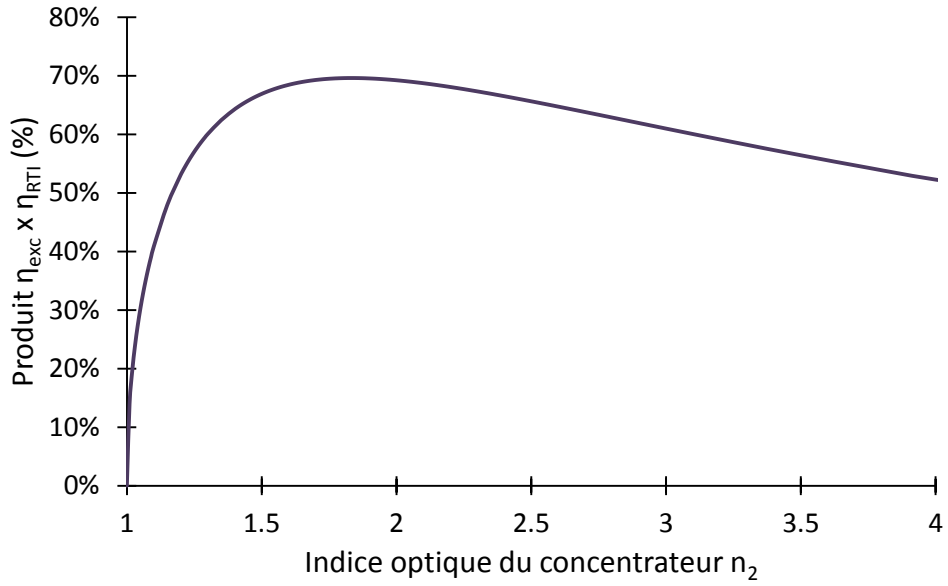


Figure III-12 : Évolution du produit η_{exc} x η_{RTI} en fonction de l'indice du concentrateur (η_Q = 1, n_1 = 1).

III.2.3.b Différence d'indice $\Delta n_{32} = n_3 - n_2$

De la même façon que précédemment, nous pouvons déterminer la quantité de lumière transmise par la face de sortie par la relation :

$$\Omega_{23} = 2\pi(1 - cos\,\beta), \; avec \; \beta = sin^{-1}\left(\frac{n_3}{n_2}\right) \qquad \textit{Eq. III-14}$$

Ainsi, en supposant un concentrateur sans perte, le pourcentage de lumière traversant la surface S_{sortie} est :

$$\eta_{extr} = \frac{\Omega_{23}}{2\pi} \times T_{23} \qquad \textit{Eq. III-15}$$

Avec T_{23}, la transmission de Fresnel à l'interface entre le concentrateur et le milieu laser d'indice n_3. En supposant un rayonnement lambertien à l'intérieur du concentrateur, cette transmission est égale à :

$$T_{23} = 1 - R = 1 - \frac{\iint_{\theta_3=-90°}^{\theta_3=90°} n_3 cos(\theta_3).\left(\frac{n_3 cos\theta_3 - n_2 cos\theta_2}{n_3 cos\theta_3 + n_2 cos\theta_2}\right)^2 d\theta_3}{\int_{\theta_3=-90°}^{\theta_3=90°} n_3 cos\,(\theta_3)\, d\theta_3} \qquad \textit{Eq. III-16}$$

où θ_3 est l'angle en sortie du concentrateur et incident au milieu laser pompé.

En négligeant les réflexions totales internes sur la face opposée à la face de sortie et en supposant que tout rayon partant vers la face de sortie intercepte celle-ci, la quantité maximale correspond à la moitié de ce qui est guidé par RTI (les rayons qui partent dans le bon sens). Sur cette quantité qui arrive jusqu'à S_{sortie}, l'objectif est d'en extraire le maximum. Il parait évident que le maximum sera atteint lorsque la différence d'indice Δn_{32} sera nulle. Cependant, il n'est pas toujours aisé de trouver un matériau laser qui ait le même indice optique que le concentrateur utilisé pour le pomper. En conséquence, une partie seulement de la lumière arrivant jusqu'à S_{sortie} sera extraite du concentrateur vers le matériau laser. Ainsi, pour obtenir la quantité de lumière extraite, c'est-à-dire $\eta_{o/o}$ finalement, il suffit de multiplier cette efficacité d'extraction par le produit précédent. Voici ci-dessous l'expression détaillée de l'efficacité optique-optique, avec pour rappel les différents termes :

$$\eta_{o/o} = T_{12}.\eta_{absorption}.\eta_{PLQY}.\frac{\lambda_{pompe}}{\lambda_{émission}}.\frac{\eta_{RTI}}{2}.\frac{\Omega_{23}}{2\pi}.T_{23} \qquad \textit{Eq. III-17}$$

Pour différents indices optiques de matériau adaptateur d'indice (colle ou cristal laser), nous obtenons les courbes suivantes :

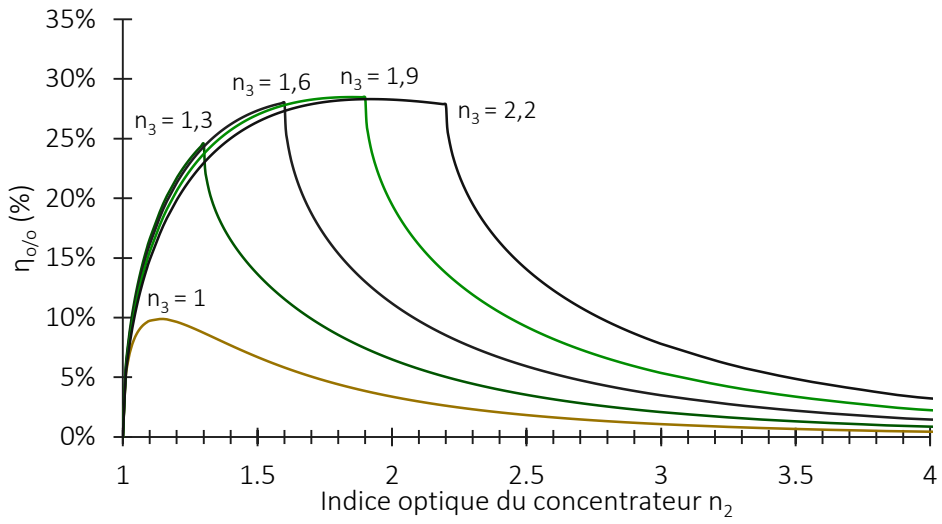


Figure III-13 : Efficacité optique $\eta_{o/o}$ du concentrateur en fonction de son indice, pour différents indices optiques du milieu laser, en supposant un concentrateur sans perte avec $\eta_Q = 1$.

Nous pouvons observer deux régimes sur ces courbes, avec une discontinuité lorsque $n_2 = n_3$. En effet, lorsque l'indice du concentrateur n_2 est inférieur à celui du milieu laser n_3, la lumière est entièrement transmise à travers la surface S_{sortie}, à l'exception de la réflexion de Fresnel. Cependant, dès que n_2 devient supérieur à n_3, la lumière est de nouveau guidée par RTI au niveau de l'interface S_{sortie}, réduisant de façon importante l'efficacité d'extraction, et de fait, l'efficacité globale.

La conclusion apportée par ce graphique est que la plus grande quantité de rayons qu'il est possible d'extraire est obtenue pour un concentrateur ayant un indice optique autour de 1,8. Bien entendu, la quantité maximale de lumière extraite est atteinte pour des matériaux ayant le même indice optique que le concentrateur, et peut atteindre 30%. Cependant, utilisons maintenant ce graphique pour illustrer un cas pratique. Prenons un concentrateur optimal, ayant un indice optique de 1,8. Collons

ce concentrateur à un barreau laser avec une colle UV d'indice optique 1,6 (indice un peu élevé pour une colle, mais soyons optimistes). On voit ainsi que cette quantité de lumière extraite chute à 15%. Cependant, cela reste tout de même plus de 3,5 fois plus important que la configuration sans adaptation d'indice (extraction dans l'air). Dans les faits, l'indice optique d'une colle UV est typiquement autour de 1,5, ce qui signifie que l'apport de la colle par rapport à une extraction dans l'air est plutôt d'un facteur 2,9. Ceci montre l'importance du choix du concentrateur (et donc de son indice optique) ainsi que de l'indice de la colle associée pour extraire la lumière réémise qui constituera la pompe du barreau laser considéré. À noter qu'il est tout à fait possible de récupérer une partie de la lumière guidée vers l'autre extrémité à l'aide d'un miroir par exemple et ainsi de doubler la quantité de lumière extraite (dans la pratique, cette augmentation est plutôt comprise entre 50% et 60% à cause des pertes).

Ainsi, avec une approche purement d'optique géométrique, sans aucune considération sur la géométrie du concentrateur mais uniquement sur son indice optique, il est possible d'obtenir un majorant du rendement global du concentrateur $\eta_{o/o}$.

Pour rappel, cette approche utilise quelques approximations comme une absorption totale de la pompe ($\eta_{absorption} = 1$), un rendement quantique de fluorescence maximal ($\eta_{PLQY} = 1$) et une absence de pertes dans le concentrateur. Ces grandeurs pourraient facilement être prises en compte en ajoutant un coefficient multiplicatif. Cependant, elles sont plus difficiles à estimer précisément. Par exemple, il est beaucoup plus complexe d'essayer de trouver une expression analytique du libre parcours moyen effectué par les rayons réémis, et donc des pertes rencontrées lors de cette propagation. De plus, dans les faits, le concentrateur luminescent n'est pas infiniment large, ainsi le guidage est également plus complexe puisque la lumière réémise va dépendre de la position du point source considéré (s'il est proche d'un bord ou pas…). Ce sont pour ces raisons que l'utilisation d'un logiciel de tracé optique non-séquentiel tel que LightTools devient nécessaire.

III.2.4 L'effet des pertes

Les pertes vont influer sur $\eta_{o/o}$ au niveau de η_{extr} et η_{RTI}. Nous allons appeler « pertes » tout phénomène physique induisant une diminution de la puissance d'un rayon lumineux au cours de sa propagation. Nous ferons également la distinction entre deux types de pertes.

La première catégorie concerne les pertes par absorption de la matrice due à des impuretés (par exemple). Il s'agit là de pertes pures et simples pour lesquelles le photon incident (de pompe ou réémis) n'a aucune chance d'être réémis sous forme lumineuse. Pour diminuer ces pertes, nous ne pouvons compter que sur la qualité cristalline des concentrateurs utilisés.

Nous allons regrouper dans la seconde catégorie, les pertes par diffusion ainsi que les pertes par réabsorption (définie comme la superposition des bandes d'absorption et d'émission de l'élément fluorescent du concentrateur, voir Figure III-14). En effet, dans les deux cas, le photon incident a une probabilité non-nulle d'être réémis au sein du concentrateur. Cependant, étant donné qu'il s'agit d'un processus d'émission spontanée, ce dernier a lieu dans tout l'espace (4π sr !). Ceci signifie que la direction du rayon absorbé change à chaque rediffusion/réabsorption et que son énergie est redistribuée. Enfin, dans le cas de la réabsorption, s'ajoute le rendement quantique de fluorescence, qui lorsqu'il est différent de 1, peut engendrer une émission de chaleur suite à l'absorption d'un photon incident.

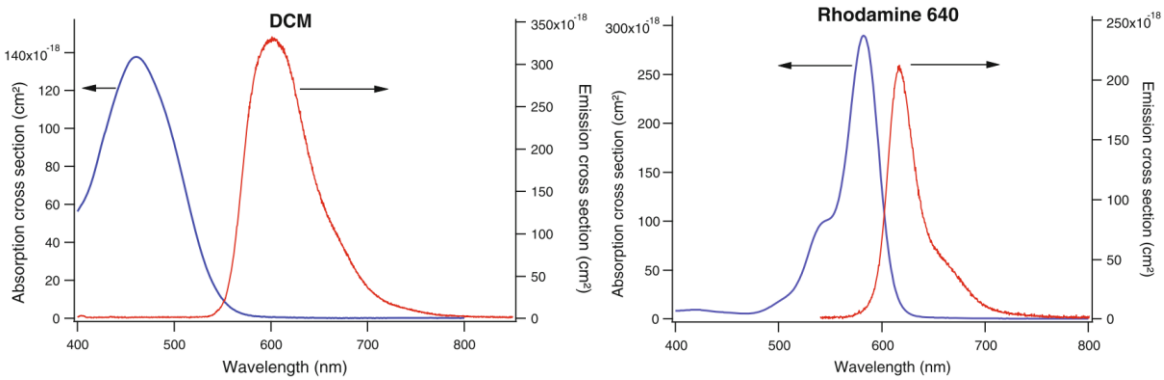


Figure III-14 : Exemples de matériaux présentant un fort (DCM) et un faible (Rhodamine 640) déplacement de Stokes (ou « Stokes shift ») (Forget & Chénais 2013).

Les exemples de la Figure III-14 ont été choisis parmi des colorants, mais bien entendu, cela reste valable pour tout matériau présentant un processus d'absorption et de réémission. Ainsi, bien que les deux matériaux présentés émettent sur la même plage spectrale (≈ 580-700 nm), nous privilégierions plutôt le DCM pour le très faible recouvrement spectral entre la bande d'absorption et d'émission.

De manière générale, le libre parcours moyen d'un rayon se propageant à l'intérieur d'un concentrateur est supérieur à la longueur de ce dernier, car la majorité des rayons ne se propage pas directement vers les faces de sortie et subissent une grande quantité de réflexions avant de sortir du concentrateur. Ainsi, même les pertes les plus faibles peuvent avoir une incidence non négligeable sur la puissance de sortie. Cette tendance est illustrée par des simulations réalisées à l'aide de LightTools en Figure III-15.

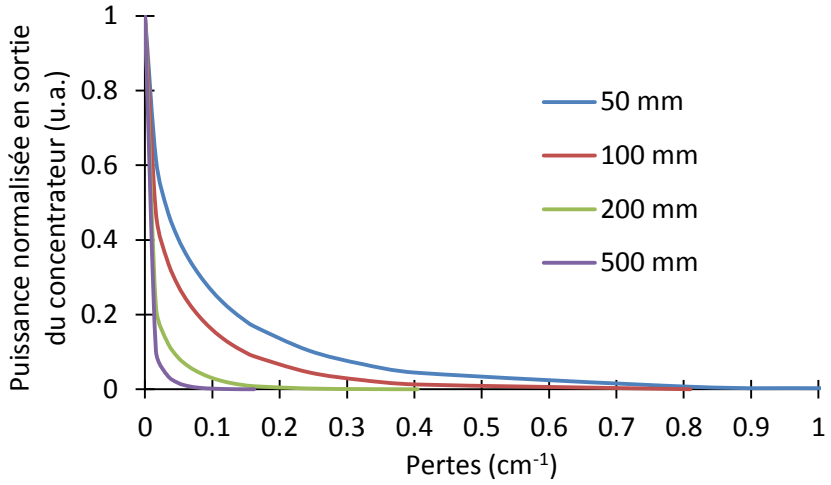


Figure III-15 : Évolution de la puissance (normalisée) en sortie d'un concentrateur parallélépipédique (100x2,5x1 mm³), pour différents libres parcours moyens, en fonction des pertes passives de la matrice.

III.2.5 Bilan : comment définir un concentrateur ?

En conclusion, pour définir un concentrateur efficace, permettant d'obtenir des facteurs de concentrations élevés, il est nécessaire de prêter attention à certains critères importants comme :

- Avoir un rapport L/h le plus élevé possible,
- Tapisser le concentrateur avec le plus de LEDs possible,
- En lien avec le 1er critère, il faut choisir un matériau dont les techniques de croissance cristalline autorisent de grandes longueurs, tout en garantissant de très faibles pertes. Pour cela, outre la qualité cristalline, il faut également privilégier les matériaux avec un déplacement de Stokes

aussi faible que possible (afin de limiter le défaut quantique) tout en garantissant un recouvrement des spectres d'absorption et d'émission le plus faible possible,
- Le matériau choisi doit avoir un rendement quantique de fluorescence le plus élevé possible,
- Une géométrie parallélépipédique, bien adaptée au pompage par LED,
- Enfin, dans la mesure du possible, il faut choisir un matériau ayant un indice optique autour de 1,8.

Dans la suite de cette thèse, nous tacherons de respecter au mieux ces différents critères dans le choix de notre concentrateur.

III.3 Étude expérimentale

Sur le papier, les concentrateurs semblent avoir un fort potentiel pour augmenter l'éclairement des LEDs. Bien évidemment, nous avons voulu tester dans la pratique ce qu'il en était. Nous allons dans la suite de ce chapitre exposer les principaux concentrateurs existants couvrant la gamme du visible, afin de voir quels peuvent être les triplets « LED + concentrateur + milieu à gain » envisageables. Pour cela, il faut bien évidemment un accord spectral entre les LEDs, le concentrateur et le milieu laser. Les propriétés d'émission et d'absorption de ces composants doivent donc vérifier : $\lambda_{LED}^{émission} = \lambda_{concentrateur}^{absorption} \rightarrow \lambda_{concentrateur}^{émission} = \lambda_{laser}^{absorption}$. Par ailleurs, les colorants et les boites quantiques introduisant trop de pertes, la composition des concentrateurs considérés se réduit essentiellement à des matrices cristallines dopées par des ions terres rares.

III.3.1 Choix du concentrateur pour un pompage laser

Le critère de sélection d'un matériau concentrateur est fait à partir des matériaux laser que l'on souhaite pomper par la suite et à partir des LEDs que l'on peut utiliser pour le pomper. Il se trouve que dans le cadre de cette thèse, les matériaux laser qui nous intéressent doivent pouvoir se pomper dans le visible ou le proche infrarouge, avec comme objectif principal le saphir dopé au titane. C'est pourquoi, nous allons privilégier les matériaux concentrateur émettant dans cette gamme spectrale. Il se trouve que nombre de scintillateurs inorganiques respectent cette contrainte (matériau massif émettant dans le visible) et s'avèrent être de très bons candidats. Bien entendu, il existe une variété très importante de scintillateurs différents, aussi, je ne présenterai ici que les principaux et/ou les plus courants, qui répondent à notre problématique. Pour une description plus exhaustive, je vous renvoie vers un site très complet et bien référencé : http://scintillator.lbl.gov/.

Les scintillateurs sont particulièrement utilisés en physique des particules, pour la détection de rayons alpha, beta ou gamma, ils servent aussi comme imageurs UV, XUV et rayons X ou encore de faisceaux d'électron et de proton. Un recueil de proceedings issus d'une conférence sur les scintillateurs inorganiques tenue à Delft en 1995 regroupe nombre d'applications (Dorenbos & Caret W.E. van Eijk 1995). Une application répandue est la tomoscintigraphie par émission de positons (TEP ou *PET scan* en anglais). Dans toutes ces applications, les scintillateurs ont le rôle de « compteur à scintillation ». Pour cela, les scintillateurs sont souvent couplés à un photomultiplicateur qui va amplifier la lumière qu'il reçoit. Il est ainsi possible d'estimer le flux de photons dans le scintillateur et de remonter au nombre de particules (ou plus généralement, de « dépôts énergétiques ») incident sur le scintillateur. Étant donnée la plus forte efficacité des photomultiplicateurs dans le visible et le proche UV, les scintillateurs ont surtout été développés pour émettre dans cette gamme de longueurs d'onde. Cependant, de plus en plus de travaux visent la fabrication de concentrateurs luminescents émettant dans le rouge (Xie et al. 2008) et le proche infrarouge (Wang 2011).

III.3.1.a Accord LED – concentrateur : $\lambda_{\text{émission LED}} = \lambda_{\text{absorption concentrateur}}$

L'émission des LEDs de puissance couvre approximativement tout le spectre visible (de 365 nm à 940 nm environ). Ceci exclu donc le pompage des matériaux concentrateur ayant une bande d'absorption inférieure à 365 nm. Les scintillateurs sont prévus pour être excités par des particules ou des rayonnements fortement énergétiques, ce qui explique leur tendance à absorber dans les basses longueurs d'onde.

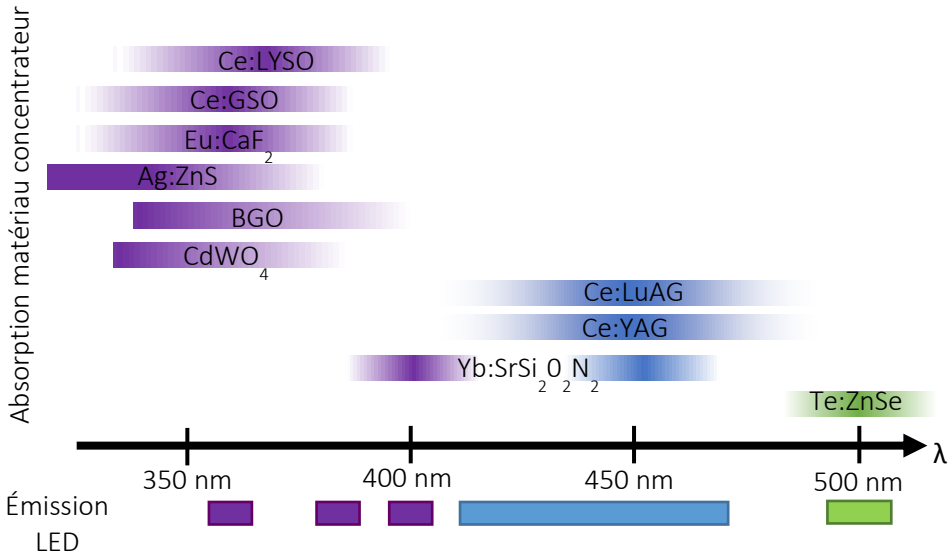


Figure III-16 : Comparaison des bandes d'absorption des matériaux concentrateur (en haut) et d'émission des LEDs (en bas).

Il existe trois bandes majeures d'émission pour les LEDs UV (365 nm, 385 nm et 405 nm), on trouve de façon quasi-continue des LEDs bleues de 430 nm à 470 nm et enfin, quelques LEDs vertes autour de 500 – 515 nm. Les LEDs émettant à des longueurs d'onde plus élevées ne sont pas représentées ici car mes recherches bibliographiques ne m'ont pas permis de trouver des matériaux concentrateur ayant une bande d'absorption située au-delà de 500 nm. Certains concentrateurs (comme le BGO ou le $CdWO_4$) ont une absorption croissante vers les basses longueurs d'onde.

Concernant les plages d'émission des scintillateurs, elles varient beaucoup en fonction de la combinaison « matrice + dopant », voir la Figure III-17 ci-dessous.

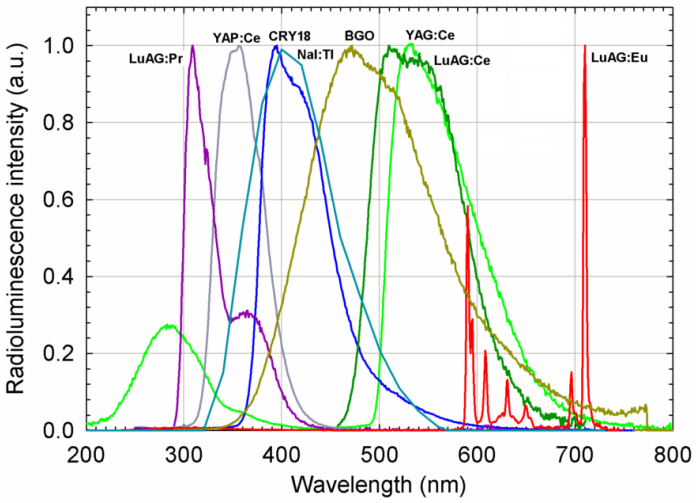


Figure III-17 : Exemples de scintillateurs couvrant le spectre visible (source : Crytur).

Par exemple, les matrices dopées aux ions europium émettent plutôt des pics relativement fins alors que les matériaux dopés cérium eux, émettent un spectre large. L'émission peut également changer en fonction de la nature de la matrice : différents spectres peuvent être obtenus selon que la matrice est un cristal ou une céramique par exemple.

Voici un tableau récapitulant certains paramètres physiques de différents scintillateurs.

Scintillateur	Longueur d'onde d'émission (nm)	Largeur spectrale FWHM (nm)	Temps de vie (ns)	Indice optique	Hygroscopie
Ce:LYSO	420	125	40	1.82	non
Ce:GSO	430	65	60	1.85	non
Eu:CaF_2	435	30	940	1.44	non
Ag:ZnS	450	70	110	2.36	non
BGO	480	150	300	2.15	non
$CdWO_4$	490	130	5 000	2.2-2.3	non
Ce:LuAG	515	100	70	1.84	non
Ce:YAG	550	100	70	1.83	non
Yb:$SrSi_2O_2N_2$	615	120	25 000	1.75	-
Te:ZnSe	645	40	50 000	2.6	non

Tableau III-1 : Paramètres physiques de quelques scintillateurs, classés par longueur d'onde d'émission croissante (sources : SAINT GOBAIN CRYSTAL; Crytur; Baccaro et al. 1995; Melcher 2000; SELLÈS 2006).

III.3.1.b Accord concentrateur – matériau laser : $\lambda_{\text{émission concentrateur}} = \lambda_{\text{absorption laser}}$

Les différentes caractéristiques spectrales de ces matériaux concentrateurs font que certains d'entre eux sont plus appropriés pour le pompage laser dans le visible que d'autres. Afin de déterminer quels matériaux concentrateur seront les plus polyvalents ou seront à privilégier pour tel ou tel cristal laser (se pompant dans le visible et correspondant à ceux qui ont été discutés dans les chapitres précédents), nous proposons de synthétiser ces informations sous forme de tableau.

		Matériaux laser				
		Dopés Nd^{3+} (YVO_4, YLF, YAG)	Cr:LiSAF	Alexandrite	Ti:saphir	Total de vert
Matériaux concentrateur	Longueur d'onde d'absorption (nm)	340, 520, 590	450 et 640	420 et 600	490	
	Largeur spectrale FWHM (nm)	5	60 et 100	60 et 90	130	
	Ce:LYSO					2
	Ce:GSO					2
	Eu:CaF_2					2
	Ag:ZnS					1
	BGO					2
	$CdWO_4$					2
	Ce:LuAG					1
	Ce:YAG					2
	Yb:$SrSi_2O_2N_2$					1
	Te:ZnSe					1

Tableau III-2 : Récapitulatif du recouvrement des bandes spectrales d'émission du matériau concentrateur et d'absorption du matériau laser. Accord spectral parfait, accord spectral partiel, désaccord spectral.

Si nous voulons utiliser des concentrateurs, c'est certes pour augmenter l'éclairement des LEDs, mais c'est aussi et surtout pour essayer de pomper des cristaux laser avec une source plus puissante. Ainsi, le critère n°1 dans le choix du concentrateur repose sur l'accord spectral entre la bande d'émission du concentrateur et de la bande d'absorption du (ou des) cristal(ux) laser que l'on souhaite pomper. L'objectif long terme de cette thèse est d'essayer de faire laser un cristal de saphir dopé titane. En se basant sur la classification faite dans le Tableau III-2, nous remarquons que 4 cristaux ont leur bande

d'émission bien située par rapport à celle d'absorption du Ti:saphir (le BGO, le $CdWO_4$, le Ce:LuAG et le Ce:YAG).

Dans l'optique de réutiliser ces concentrateurs pour d'autres cristaux laser que le Ti:saphir, le BGO, le $CdWO_4$ (aussi appelé CWO) et le Ce:YAG semblent être les plus intéressants (car ils totalisent le plus d'accords spectraux parfaits). Au moment de départager ces trois matériaux, notre choix s'est plutôt porté vers le Ce:YAG pour plusieurs raisons. Tout d'abord, la matrice YAG est une matrice connue depuis longtemps, avec un processus de croissance maitrisé. De très nombreuses publications scientifiques (Bhattacharjee et al. 2002; Zhao et al. 2003; Mihóková et al. 2007; Bachmann et al. 2009; Zhang et al. 2014), thèses (Sidahmed 2014) et brevets (Nightingale et al. 2004; Brukilacchio 2012; Oxborrow 2013) portent sur ce matériau, bien plus que pour le BGO ou le $CdWO_4$. Ce fait s'explique par sa très large utilisation comme scintillateur et comme phosphore pour la fabrication de LEDs blanches. Par ailleurs, le Ce:YAG est un cristal plus disponible commercialement (Crytur, Castech, Roditi ou encore Scientific Materials). Le Ce:YAG, avec une plage d'indices comprise entre 1,83 et 1,84 sur son spectre d'émission, encadre très bien l'indice optimal (1,835, voir la Figure III-12). Au contraire, le BGO et le $Cd:WO_4$ possèdent des indices tous deux supérieurs ou égaux à 2,15. Enfin, le Ce:YAG a une bande d'absorption à 450 nm là où le BGO et le $CdWO_4$ absorbent surtout en deçà de 350 nm. Or, les LEDs bleues comprises entre 430 nm et 470 nm sont très utilisées par le marché de l'éclairage (pour faire des LEDs blanches). Elles sont puissantes (1 W/mm² à 1 A en continu), efficaces (≈ 30% de rendement électrique-optique) et très peu chères (≈ 0,5€/puce de 1 mm²) ; ce qui est moins le cas des LEDs UV.

Concernant les dimensions du cristal, nous sommes partis sur une longueur de 100 mm et une épaisseur de 1 mm. Trois largeurs différentes ont été utilisées : des cristaux de 2,5 mm de large, de 9 mm et de 14 mm. Les raisons de ces largeurs sont liées aux dispositifs de pompage utilisés et seront expliquées plus en détail dans le prochain chapitre. Pour les largeurs de 9 mm et 14 mm, la longueur maximale que notre fournisseur pouvait réaliser était 120 mm. Cependant, nous avons préféré commencer avec des barreaux de 100 mm (peu importe la largeur) afin de garantir une bonne homogénéité des cristaux. Les cristaux ont été pompés par des LEDs à 435 nm et 450 nm, disposées le plus proche possible des concentrateurs.

Chaque concentrateur a été mesuré un à un. Comme le suggère la Figure III-23, à cause de l'encombrement mécanique, le concentrateur a été avancé afin de pouvoir coller (au sens « être le plus proche possible ») le puissance-mètre et ne rien perdre en sortie (dû au rayonnement lambertien de la face). Or, dans le cas où le concentrateur pompe un cristal, la totalité du concentrateur est pompé par les LEDs, ainsi, les puissances de sortie considérées sont les puissances mesurées et calculées à partir d'un produit en croix (ce qui est acceptable dans le cas où les pertes linéiques du cristal sont faibles).

III.3.2 Mesures des pertes et de l'absorption

Une des grandeurs importantes est les pertes par propagation dans le cristal. En propageant un laser à 532 nm sur 100 mm, ces pertes ont été estimées à $1{,}62.10^{-2}$ cm^{-1}. Par ailleurs, cette valeur constitue plutôt un majorant, car cette longueur d'onde se situe dans la queue du spectre d'absorption et proche de la plage d'émission du Ce:YAG. Ainsi, les pertes au pic d'émission (à 550 nm) sont a priori plus faibles car il y a moins de réabsorption.

Nous avons ensuite mesuré les spectres d'absorption et d'émission des cristaux à l'aide d'un spectromètre et d'une sphère intégrante GL OPTI SPHERE 205, nous avons obtenu les résultats illustrés en Figure III-18. Le dopage en ions cérium se situe entre 0,2% et 0,3% (les indications du fournisseur n'étant pas plus précises).

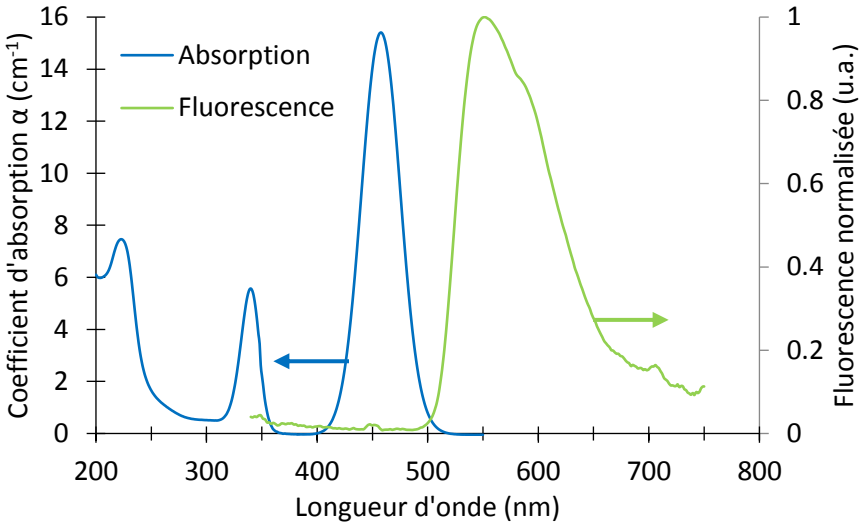


Figure III-18 : Spectres d'absorption et d'émission du Ce:YAG.

Nous avons mesuré l'absorption à l'aide d'un spectromètre et d'un puissance-mètre. Nous avons placé les LEDs devant deux diaphragmes afin de ne garder que les rayons les moins divergents. Le Ce:YAG est placé ou non entre les diaphragmes pour pouvoir mesurer l'absorption. Voici ci-dessous un schéma qui résume le montage expérimental :

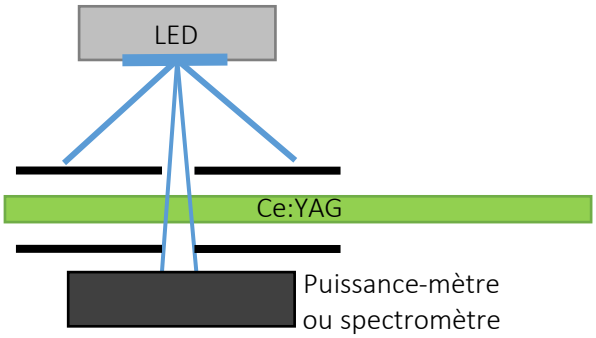


Figure III-19 : Schéma expérimental pour mesurer l'absorption du Ce:YAG après 1 mm de propagation.

Deux longueurs d'onde différentes nous ont servi à pomper les concentrateurs. Dans un premier temps, nous avons utilisé des LEDs bleues à 430 nm (nous avions choisi cette longueur d'onde car les LEDs devaient également servir pour pomper un cristal de rubis, qui absorbe à 400 nm). Les mesures avec le puissance-mètre nous ont permis d'établir que la lumière émise par les LEDs à 430 nm était absorbée à hauteur de 75% (après déduction de la contribution des pertes de Fresnel). Puis, dans un second temps, avec l'évolution rapide de la technologie des LEDs, nous avons utilisé d'autres LEDs bleues, à 450 nm cette fois-ci (le pic d'absorption du Ce:YAG est à cette longueur d'onde). Nous avons mesuré cette fois une absorption de 93%. Cette tendance se retrouve également très nettement sur les spectres mesurés.

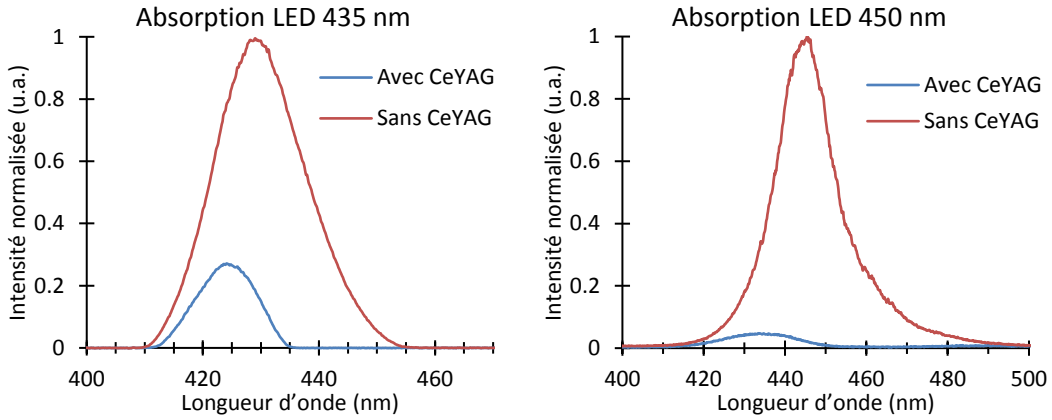


Figure III-20 : Spectres des LEDs mesurés avant et après une propagation de 1 mm dans un concentrateur en Ce:YAG.

Malgré une absorption moins efficace à 430 nm qu'à 450 nm, une grande majorité du spectre est tout de même absorbée par le Ce:YAG.

III.3.3 Mesures de C (avec $\eta_{fill} = 1$)

Afin d'étudier les limites des concentrateurs, nous avons cherché à les placer dans une configuration de pompage idéale (c'est-à-dire proche d'un éclairage avec le soleil). Nous avons décidé de faire ce test avec le concentrateur de 9 mm. Pour cela, nous avons éloigné notre source de pompe du concentrateur (d'une distance supérieure ou égale à 50 cm) afin d'éclairer ce dernier de façon homogène, avec de faibles angles d'incidence, et ce, sur toute la surface de collecte. Cette situation correspond au cas où nous avons artificiellement augmenté notre facteur de remplissage pour atteindre $\eta_{fill} = 1$. Dans ce cas, C_{LED} devient donc équivalent à C. Nous avons mesuré le facteur de concentration dans cette configuration. Or, nous savions que les pertes du Ce:YAG étaient faibles, donc nous avons voulu savoir à partir de quelle longueur ces pertes devenaient non-négligeables. Étant donné qu'il n'est pas possible de se procurer des concentrateurs monolithiques de 200 mm de long, nous avons placé un miroir à l'extrémité opposée à la face de sortie. Nous avons également fait cette mesure lorsque deux concentrateurs de 100 mm étaient disposés l'un derrière l'autre, séparés par une lame d'air, avec et sans miroir. Ces mesures ont été effectuées en pompant le(s) concentrateur(s) que d'un seul côté. Dans ce cas $G = 100$. Ces configurations ont également été simulées à l'aide du logiciel LightTools, avec des concentrateurs sans perte, pour comparer nos performances à la théorie. Voici résumé dans le tableau ci-dessous les résultats que l'on a obtenus :

Configurations		Facteurs de concentration C	
		Expérience	Simulation
Ce:YAG 100 mm		8,7	8,8
Ce:YAG 100 mm + miroir		13	15,3
2 Ce:YAG 100 mm		14,3	15,4
2 Ce:YAG 100 mm + miroir		19,3	23,7

Tableau III-3 : Comparaison des différentes mesures de facteur de concentration, configuration avec $\eta_{fill} = 1$ et sans perte.

Ces résultats montrent que nos concentrateurs ont une très bonne qualité cristalline et que dans une configuration idéale ($\eta_{fill} = 1$), nous aurions des performances proches du maximum théorique. Notre résultat obtenu avec la configuration la plus simple (un seul barreau, sans miroir) se place parmi les meilleurs résultats de l'état de l'art (l'équipe de (Yang et al. 2009) a obtenu un facteur de concentration de 7, puis de 10 une fois leur configuration optimisée, voir la partie III.1.3). Ils montrent également que malgré l'effet des pertes dans les concentrateurs, le cas où deux concentrateurs sont disposés l'un derrière l'autre reste intéressant. Avec cette dernière configuration et un miroir, nous avons obtenu un facteur de concentration de presque 20, ce qui est bien au-dessus de ce que nous avons pu trouver dans la littérature.

III.3.4 Description des concentrateurs pompés par LED

Contrairement au cas idéal, la technologie des LEDs ne nous permet pas encore d'avoir des surfaces émettrices aussi grandes que les concentrateurs, et donc d'avoir un taux de remplissage η_{fill} égal à 1. η_{fill} étant un paramètre clef intervenant dans le calcul du facteur de concentration, il est primordial qu'il soit le plus élevé possible. Dans cette perspective, nous avons mené plusieurs développements sur les LEDs afin de le maximiser.

III.3.4.a Panneaux matriciels de LEDs

La « deuxième génération » de LEDs se démarque de la première (voir Chapitre II) de par les dimensions des panneaux. Il ne s'agit plus de panneaux linéaires (avec 1 x N LEDs), mais de matrices (avec N x N LEDs). Ainsi, pour le Ce:YAG de 9 mm, 14 panneaux de 25 LEDs chacun (voir Figure III-21), soit 350 LEDs en tout ont été utilisées pour le pompage. Comparé à ce qu'il est possible d'obtenir commercialement (typiquement des taux de remplissage pouvant atteindre jusqu'à 10%), un effort technologique a été réalisé pour obtenir ces panneaux. Effilux a contacté une société spécialisée dans la pose de puces semi-conductrices (il ne s'agit ici que de la partie émettrice seulement, sans l'emballage entourant la LED) et leur a demandé de développer ces panneaux spécifiquement à nos besoins pour dépasser les taux de remplissage disponibles à cette époque. Ainsi, chaque puce n'est séparée que de 0,3 mm de sa voisine dans une direction et de 0,8 mm dans l'autre. Le taux de remplissage obtenu est donc de :

$$\eta_{fill} = \#\ de\ LEDs \frac{S_{LED}}{S_{pompée}} = 350 \times \frac{1\ mm^2}{2 \times 900\ mm^2} = 19{,}4\% \qquad \textit{Eq. III-18}$$

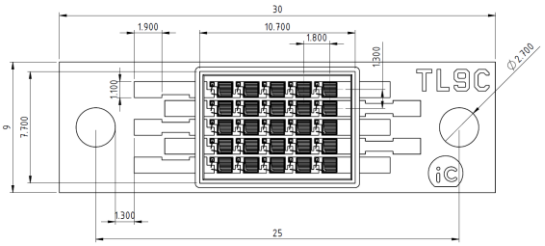


Figure III-21 : Plan des 14 panneaux de LED utilisés pour le concentrateur de 9 mm. Les dimensions sont en mm.

III.3.4.b Matrices de LEDs à haut taux de remplissage

Quelques mois plus tard, avec l'apparition de nouvelles LEDs et suite aux caractérisations faites sur le concentrateur de 9 mm, nous avons pu concevoir une nouvelle architecture de pompage pour de nouveaux cristaux de Ce:YAG. Ce pompage comprenait également de nouvelles LEDs avec un taux de remplissage encore plus élevé car elles peuvent être placées beaucoup plus proches les unes des autres. Une nouvelle fois, c'est Effilux qui est à l'origine de ces nouvelles LEDs. Ils ont trouvé un fournisseur

capable de poser les LEDs « à façon », c'est-à-dire de les placer selon un schéma fourni par le client. Ce fournisseur est capable de réduire l'espace entre deux LEDs à 50 µm, voire même en dessous. Cependant, en deçà de cet espacement, le processus de positionnement se complexifie de façon conséquente et devient moins précis et plus coûteux. Ainsi, pour avoir un taux de remplissage le plus élevé possible, nous avons disposé les LEDs tête-bêche deux à deux, nous conduisant à une largeur minimale de 2,5 mm (voir Figure III-22). Pour être tout à fait rigoureux, nous pourrions augmenter encore un peu plus le taux de remplissage en ne prenant qu'une seule ligne de LEDs au lieu de deux, réduisant la largeur du concentrateur à 1 mm. Cependant, nous avons jugé que ce cas comportait au moins deux défauts bloquants. Le premier est qu'il implique d'avoir un cristal laser de 1x1 mm² de section, ce qui n'est pas pratique à manipuler et encore plus difficile à refroidir. Enfin, une largeur de concentrateur de même dimension que la surface émettrice des LEDs signifie que l'on ne peut pas se permettre la moindre erreur dans la conception de la mécanique pour éviter tout désalignement entre les LEDs et le concentrateur.

Ainsi, pour le Ce:YAG de 2,5 mm, 288 LEDs ont été utilisées. Le facteur de remplissage s'élève donc à $288/(2 \times 250) = 58\%$. Concernant le Ce:YAG de 14 mm, il faut cette fois-ci 1152 LEDs pour couvrir la totalité des surfaces pompées. Ce sont les mêmes que celles utilisées pour le concentrateur de 2,5 mm. Dans ce cas, un taux de remplissage de $1152/(2 \times 1400) = 41\%$ est obtenu. Nous nous attendions à ce que ce dernier soit plus faible que dans le cas du concentrateur de 2,5 mm. En effet, il y a plus de zones non-émettrices dans le cas du pompage du Ce:YAG de 14 mm du fait des contacts électriques.

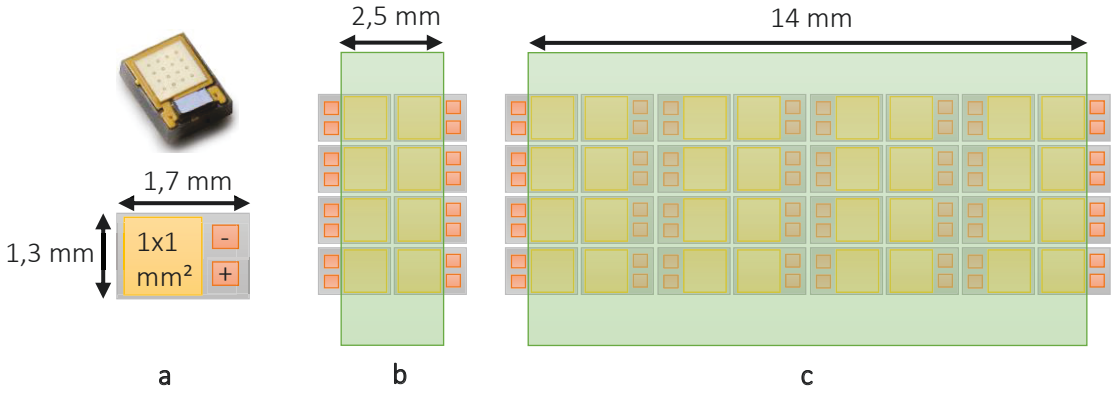


Figure III-22 : (a) schéma et photo d'une LED Luxeon, (b) configuration de pompage Ce:YAG 2,5 mm, (c) configuration de pompage Ce:YAG 14 mm.

III.3.5 Mesures de C_{LED}

Pour chacun de ces cristaux (2,5 mm de large, 9 mm et 14 mm), nous avons mesuré leur rendement optique-optique et en avons déduit le tableau ci-après. Pour cela, nous avons procédé de la façon suivante :

1) La puissance en sortie des concentrateurs est mesurée en les approchant le plus possible du puissance-mètre (tel qu'illustré en Figure III-23). Étant donnée l'indicatrice de sortie du concentrateur, nous considérons que la quasi-totalité du flux est récoltée par le puissance-mètre lorsqu'il y a contact avec le concentrateur.

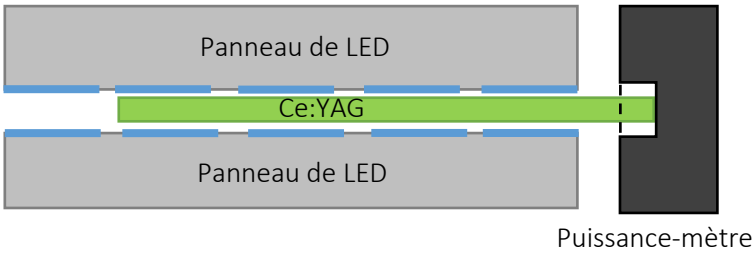


Figure III-23 : Disposition des LEDs autour des Ce:YAG pour les mesures d'efficacité.

2) Pour mesurer la puissance de pompe, issue des LEDs, nous avons procédé de deux manières en fonction de ce qui était possible de faire. Lorsque la mécanique nous le permettait, nous disposions les LEDs à l'entrée d'une sphère intégrante (préalablement calibrée) et mesurions la puissance. Dans le cas où l'encombrement du support des LEDs rendait cette manipulation impossible, nous placions au-dessus des LEDs un puissance-mètre avec une grande surface sensible pour récolter le plus de flux possible, tel qu'illustré en Figure III-24. Cette méthode sous-estime la puissance des LEDs et surestime donc l'efficacité. Si nous comparons les angles solides rentrant en jeu (voir Figure III-24), nous pouvons déterminer que le puissance-mètre collecte environ 95% du flux émis par chaque LED.

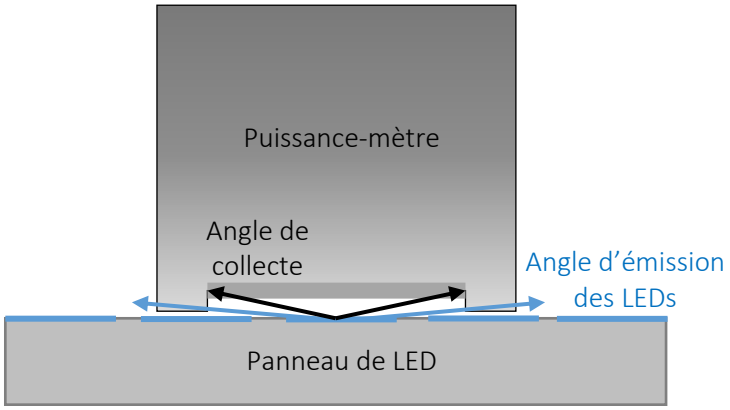


Figure III-24 : Mesure de la puissance des panneaux de LEDs lorsqu'il n'était possible de le faire avec une sphère intégrante.

Voici les résultats que nous avons obtenus pour chacun des concentrateurs :

- Le Ce:YAG de 9 mm a été pompé par les 14 panneaux de 25 LEDs émettant à 430 nm. Les LEDs sont pilotées en régime impulsionnel et émettent chacune des impulsions de 1,86 W crête pendant 100 µs (soit une puissance totale de 650 W) à quelques dizaines d'hertz. Le concentrateur émet en sortie une puissance crête de 43 W (et donc un éclairement de sortie d'environ 480 W/cm²), ce qui correspond à une efficacité de 6,6% et un facteur de concentration C_{LED} de 2,6.
- Le Ce:YAG de 2,5 mm a été pompé par 288 LEDs émettant chacune jusqu'à 5,5 W crête (à 8 A). Différents régimes impulsionnels ont été testés (avec des durées d'impulsion allant de 15 µs à 800 µs et des fréquences de la dizaine d'hertz au kilohertz). Ces LEDs (Luxeon Z) ont un spectre centré à 450 nm car elles ont été prévues pour pomper le Ce:YAG. Pour un courant de 8 A et des impulsions de 15 µs, l'éclairement mesuré s'élève à 3,5 kW/cm², avec une émission dans l'air. L'efficacité du concentrateur a été mesurée à 6,1% (± 0,5% en fonction de la durée d'impulsion choisie). Ainsi, le facteur de concentration obtenu est de 7,1.
- Le Ce:YAG de 14 mm a été pompé par 1152 LEDs. Dans ce cas, l'éclairement maximal mesuré est de 3,1 kW/cm² (impulsions de 15 µs à 8 A). Cet éclairement plus faible que dans le cas du 2,5 mm s'explique simplement par un taux de remplissage moins bon (en effet, nous venons de voir qu'il n'était que de 41% au lieu de 58% pour le concentrateur de 2,5 mm). L'efficacité

moyenne mesurée est de 7,2% (± 0,5% en fonction de la durée d'impulsion choisie). Cela correspond à un facteur de concentration de 5,9. Cette largeur a été choisie en lien avec la conception de la tête de pompage du saphir dopé au titane (voir Chapitre IV).

Ce:YAG	2,5 mm	9 mm	14 mm
$P_{crête,\ sortie}$ (W)	87 (15 µs)	43 (100 µs)	434 (15 µs)
$E_{crête,\ sortie}$ (kW/cm²)	3,5	0,48	3,1
Efficacité $\eta_{o/o}$ expérimentale (et théorique)	6,1% (8%)	6,6% (8,3%)	7,2% (8,4%)
Taux de remplissage η_{fill}	58%	19%	41%
Facteur de concentration C_{LED} expérimental (et théorique)	7,1 (9,3)	2,6 (3,2)	5,9 (6,9)

Tableau III-4 : Récapitulatif des grandeurs d'intérêt dans l'air pour 3 largeurs de Ce:YAG.

Dans les publications sur les concentrateurs luminescents disponibles dans la bibliographie, on remarque que les résultats mis en avant sont souvent portés sur les propriétés spectroscopiques (absorption, luminescence, réabsorption…) des matériaux concentrateur, sur leurs efficacités (bien souvent optique-électrique car couplées à des cellules photovoltaïques) ou encore sur leur nature (utilisations de matériaux organiques, scintillateurs, boites quantiques…). Ainsi, ce n'est que très récemment que le potentiel des concentrateurs en tant que source lumineuse de puissance a été considéré (de Boer et al. 2016). Cette équipe de recherche a obtenu une luminance de 110 W/cm²/sr en sortie de leur concentrateur (à l'aide d'un CPC) en régime continu. En ce qui nous concerne, nous avons été capables d'obtenir des luminances **supérieures à 1,1 kW/cm²/sr** (dans l'air), encore jamais rapportées auparavant. De plus, avec des éclairements de quelques kW/cm², la différence jusque-là existante avec les diodes laser se réduit. Cette différence est encore plus faible dans le cas où le concentrateur est collé à un barreau laser.

Ensuite, nous remarquons que l'efficacité diminue lorsque la largeur du concentrateur diminue (Tableau III-4). Nous avons plusieurs pistes pour expliquer cette diminution : la première est liée aux faces latérales. Pour un rayon ayant une inclinaison donnée, la probabilité d'interception d'une face latérale est d'autant plus grande que le milieu est étroit (voir Figure III-25).

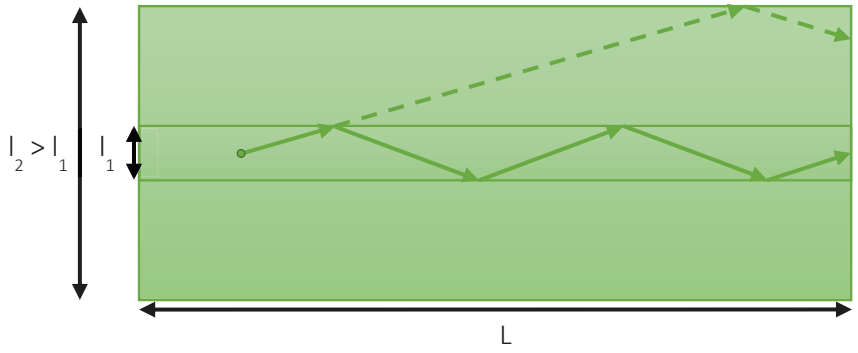


Figure III-25 : Différence dans le nombre de réflexions en fonction de la largeur du concentrateur.

Les faces latérales étant à 90° des grandes faces pompées, un rayon en RTI par rapport aux faces pompées n'est pas forcément en RTI sur les faces latérales. Il y a donc plus de rayons qui sortent d'un concentrateur étroit. La simulation LightTools est capable de prendre en compte cet effet et nous observons l'augmentation théorique de $\eta_{o/o}$ avec la largeur.

Les deux pistes suivantes sont technologiques : la seconde pourrait être liée à l'effet des coins du concentrateur sur le guidage par RTI. Dans la pratique, les coins des concentrateurs ne sont pas parfaitement à angle droit et cet angle pourrait être une source de fuite des rayons (voir l'illustration en Figure III-26).

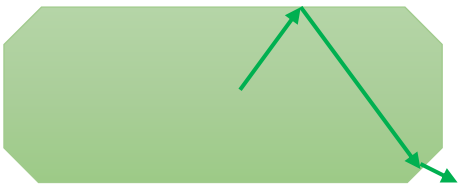


Figure III-26 : Effet des coins sur le guidage des rayons.

Enfin, la qualité du poli des faces du concentrateur peut avoir une influence sur la RTI (Godard 2016). Avec le nombre de réflexions plus important sur un concentrateur étroit, cet effet deviendrait non-négligeable.

Nous venons de le voir, l'efficacité optique des concentrateurs que nous avons testés, dans l'air, peut dépasser les 7%. Ces mesures ont été réalisées avec 8 A injectés dans les LEDs pendant des impulsions de 15 µs. Dans ces conditions, les LEDs ont une efficacité électrique-optique de l'ordre de 15%, ce qui signifie que l'efficacité électrique-optique des concentrateurs est de l'ordre de 1% ; efficacité qui peut être améliorée en utilisant un milieu d'indice.

III.4 Bilan

Nous avons vu dans cette partie l'intérêt des concentrateurs. Lorsqu'une source lumineuse telle qu'une LED émet déjà dans un demi-espace, l'unique moyen d'augmenter sa luminance est de passer un composant utilisant le processus d'absorption et de réémission. En s'inspirant de ce qui existait pour la concentration solaire, nous avons adapté cet outil à notre besoin en redéfinissant le facteur de concentration.

Par ailleurs, nous avons soulevé trois aspects déterminants dans la réalisation d'un concentrateur efficace : les pertes par propagation, la forme géométrique et l'extraction de la lumière. Afin de valider expérimentalement cette étude, nous avons arrêté notre choix sur un matériau bien connu et approprié au pompage par LEDs bleues, le Ce:YAG. Nous avons obtenu des facteurs de concentration atteignant 7 fois l'éclairement d'une LED (dépassant même la dizaine de fois dans l'hypothèse où un matériau d'indice tel qu'un cristal laser est en contact optique avec la face de sortie). Nous avons également vu qu'il était possible d'obtenir plusieurs kW/cm² en sortie d'un concentrateur, même dans l'air ! Ainsi, les concentrateurs constituent une source lumineuse ayant un éclairement plusieurs fois supérieur à celui des LEDs tout en émettant dans le visible. Ils nous paraissent tout à fait appropriés pour le pompage de cristaux laser solides dans le visible.

BIBLIOGRAPHIE CHAPITRE III

Baccaro, S. et al., 1995. Scintillation properties of YAP:Ce. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 361(1–2), pp.209–215.

Bachmann, V., Ronda, C. & Meijerink, A., 2009. Temperature quenching of yellow Ce3+ luminescence in YAG: Ce. *Chemistry of Materials*, 126(9), pp.2077–2084.

Baldo, M., 2009. Luminescent Solar Concentrators. In *Optics and Photonics for Advanced Energy Technology*. p. ThD4.

Bhattacharjee, T. et al., 2002. Comparative studies of YAG(Ce) and CsI(Tl) scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 484(1–3), pp.364–368.

de Boer, D.K.G. et al., 2012. Progress in phosphors and filters for luminescent solar concentrators. *Optics express*, 20(10), pp.A395-405.

de Boer, D.K.G., Bruls, D. & Jagt, H., 2016. High-brightness source based on luminescent concentration. *Optics Express*, 24(14), p.A1069.

Bomm, J. et al., 2011. Fabrication and full characterization of state-of-the-art quantum dot luminescent solar concentrators. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 95(8), pp.2087–2094.

Bradshaw, L.R. et al., 2015. Nanocrystals for luminescent solar concentrators. *Nano Letters*, 15(2), pp.1315–1323.

Brukilacchio, T.J., 2012. Light emitting diode illumination system. *US Patent 8,525,999 B2*.

Crytur, www.crytur.cz.

Currie, M.J. et al., 2008. High-efficiency organic solar concentrators for photovoltaics. *Science (New York, N.Y.)*, 321(5886), pp.226–8.

Debije, M.G. & Verbunt, P.P.C., 2012. Thirty years of luminescent solar concentrator research: Solar energy for the built environment. *Advanced Energy Materials*, 2, pp.12–35.

Dorenbos, P. & Caret W.E. van Eijk, 1995. Inorganic Scintillators and their applications. In P. Dorenbos & C. W. E. van Eijk, eds. *INORGANIC SCINTILLATORS and THEIR APPLICATIONS*. Delft University.

El-Bashir, S.M., Barakat, F.M. & AlSalhi, M.S., 2014. Double layered plasmonic thin-film luminescent solar concentrators based on polycarbonate supports. *Renewable Energy*, 63, pp.642–649.

Erickson, C.S. et al., 2014. Zero-Reabsorption Doped-Nanocrystal Luminescent Solar Concentrators. *Acs Nano*, 8(4), pp.3461–3467.

Forget, S. & Chénais, S., 2013. *Organic Solid-State Lasers* Springer S. Springer, ed., Springer.

Giebink, N.C., Wiederrecht, G.P. & Wasielewski, M.R., 2011. Resonance-shifting to circumvent reabsorption loss in luminescent solar concentrators. *Nature Photonics*, 5(11), pp.694–701.

SAINT GOBAIN CRYSTAL, www.crystals.saint-gobain.com.

Godard, A., 2016. *Sources paramétriques optiques et applications*.

Green, A.P., 2014. *Optical Properties of Luminescent Solar Concentrators*.

Hughes, M.D. et al., 2013. Performance comparison of wedge-shaped and planar luminescent solar concentrators. *Renewable Energy*, 52, pp.266–272.

Jones, B., 2011. *Investigation of YAG: Ce Scintillating Fiber Properties Using Silicon Photomultipliers*.

McIntosh, K.R., Yamada, N. & Richards, B.S., 2007. Theoretical comparison of cylindrical and square-

planar luminescent solar concentrators. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 88(2), pp.285–290.

Meinardi, F. et al., 2014. Large-area luminescent solar concentrators based on "Stokes-shift-engineered" nanocrystals in a mass-polymerized PMMA matrix. *Nature Photonics*, 8(5), pp.392–399.

Melcher, C.L., 2000. Scintillation crystals for PET. *Journal of nuclear medicine : official publication, Society of Nuclear Medicine*, 41(6), pp.1051–5.

Mihóková, E. et al., 2007. Luminescence and scintillation properties of YAG:Ce single crystal and optical ceramics. *Journal of Luminescence*, 126(1), pp.77–80.

Nightingale, J.L. et al., 2004. SYSTEM AND METHOD UTILIZING GUIDED FLUORESCENCE FOR HIGH INTENSITY APPLICATIONS.

Oxborrow, M., 2013. Maser assembly.

Papakonstantinou Ioannis & Tummeltshammer Clemens, 2015. Fundamental limits of concentration in luminescent solar concentrators revised: the effect of reabsorption and nonunity quantum yield. *Optica*, 2(10), p.841.

Purcell-Milton, F. & Gun'ko, Y.K., 2012. Quantum dots for Luminescent Solar Concentrators. *Journal of Materials Chemistry*, 22(33), p.16687.

Ries, H., 1982. Thermodynamic limitations of the concentration of electromagnetic radiation. *Journal of the Optical Society of America*, 72(3), p.380.

SELLÈS, O., 2006. *Halogénures de lanthane dopés cérium Des scintillateurs rapides pour l'imagerie médicale*.

Sidahmed, A., 2014. *DESIGN AND ANALYSIS OF FLUORESCENT Ce:YAG SOLAR CONCENTRATOR*.

Smestad, G. et al., 1990. The thermodynamic limits of light concentrators. *Solar Energy Materials*, 21, pp.99–111.

Turnbull, G. a. & Samuel, I.D.W., 2010. Integrated organic photonics one step closer. In *SPIE*. pp. 2–3.

Wang, C., 2011. *Efficiency Enhancement of Luminescent Solar Concentrations for Photovoltaic Technologies*.

Xie, R.-J. et al., 2008. White light-emitting diodes (LEDs) using (oxy)nitride phosphors. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 41(14), p.144013.

Yablonovitch, E., 1980. Thermodynamics of the fluorescent planar concentrator. *JOSA*, 70(11), pp.1362–1363.

Yang, Y., Samuel, I.D.W. & Turnbull, G. a., 2009. The Development of Luminescent Concentrators for Pumping Organic Semiconductor Lasers. *Advanced Materials*, 21(31), pp.3205–3209.

Zhang, R. et al., 2014. A new-generation color converter for high-power white LED: transparent Ce3+:YAG phosphor-in-glass. *Laser & Photonics Reviews*, 8(1), pp.158–164.

Zhao, G. et al., 2003. Characteristics of large-sized Ce:YAG scintillation crystal grown by temperature gradient technique. *Journal of Crystal Growth*, 253(1–4), pp.290–296.

CHAPITRE IV :

Pompage indirect par LED

IV. POMPAGE INDIRECT PAR LED

Nous avons vu au chapitre précédent qu'il était possible d'augmenter la luminance d'une LED par le biais d'un concentrateur luminescent. Ainsi, dans la suite de ce manuscrit, nous nous proposons d'utiliser cet ensemble « LED + concentrateur » comme source de pompage : pompage que nous appelons indirect.

Tout d'abord, nous verrons au travers d'une expérience préliminaire la faisabilité de ce principe encore jamais démontré auparavant. Nous étudierons par la suite quels sont les matériaux laser qui étaient inaccessibles en pompage direct et qui sont désormais accessibles en pompage indirect avec un concentrateur en Ce:YAG. Enfin, nous énoncerons les résultats laser que nous avons obtenus sur les différents matériaux grâce à la conception d'un dispositif de pompage optimisé.

IV.1 Démonstration de principe de la faisabilité d'un pompage indirect

IV.1.1 Principe

Afin de valider le potentiel des concentrateurs comme source de pompage, nous avons décidé de réaliser un second dispositif de pompage et de réutiliser le cristal de $Nd:YVO_4$ utilisé en pompage direct dans le Chapitre II. Nous avons choisi ce cristal laser car il possède des bandes d'absorption comprises dans le spectre d'émission du Ce:YAG (voir Figure IV-1). Nous savons également qu'il s'agit d'un cristal qui a fonctionné auparavant ; il nous sert ainsi de cristal de référence pour les systèmes de pompage futurs que nous comptons concevoir. Enfin, en utilisant le même cristal, nous pourrons directement comparer les résultats obtenus en pompage direct par LED et indirect, par le biais d'un concentrateur. Pour rappel, ce cristal laser avait pour dimensions 2x2x20 mm^3, était dopé 1 at.% et était orienté « a-cut ».

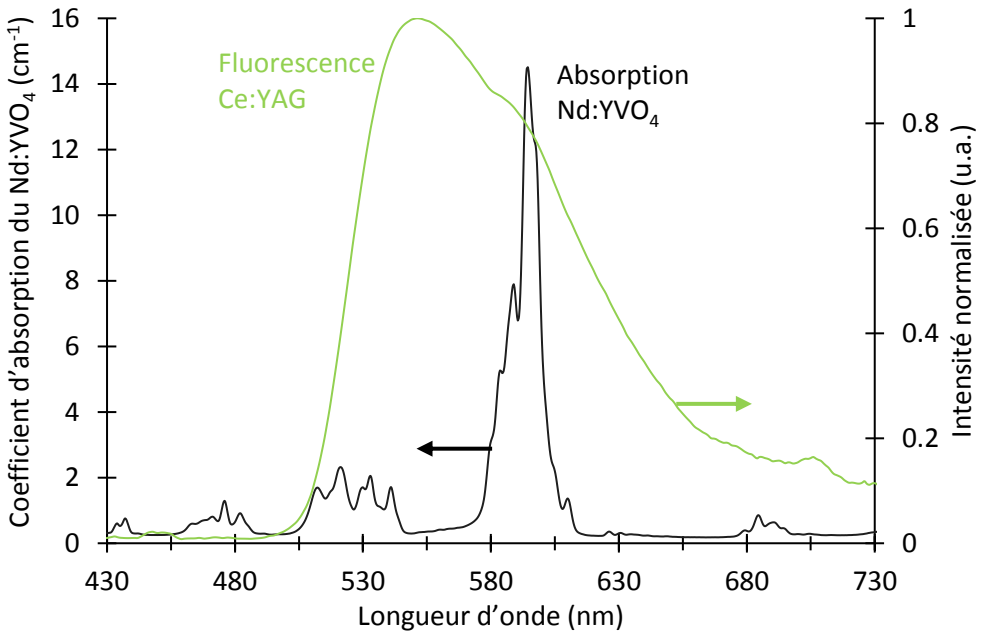


Figure IV-1 : Spectres d'absorption du $Nd:YVO_4$ (moyenne des axes a et c) et de fluorescence du Ce:YAG.

Comme pour le premier dispositif de pompage réalisé (Chapitre II), la mécanique du concentrateur a été pensée autour du cristal de Ce:YAG pompé. Ainsi, deux faces du concentrateur sont

consacrées au pompage par LED (les grandes faces), deux faces pour l'émission de lumière (avec S_{sortie} d'un côté et l'autre extrémité à laquelle nous pourrons mettre un miroir ou un second cristal) et enfin les deux dernières faces pour le maintien mécanique (voir Figure IV-2). Ces deux faces pouvant difficilement servir au refroidissement car elles contribuent à la RTI : le contact mécanique est limité au minimum pour éviter de frustrer la RTI. C'est pourquoi nous privilégierons une faible fréquence de répétition pour limiter l'échauffement du concentrateur.

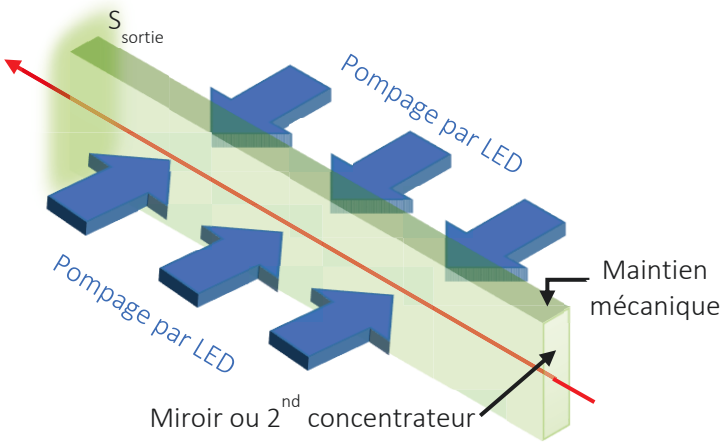


Figure IV-2 : Schéma d'utilisation du concentrateur.

Le milieu laser est collé au concentrateur via un milieu adaptateur d'indice (Figure IV-3). Nous avons conçu une cavité laser très simple, plan-concave. Le traitement HR du cristal laser constitue le miroir de fond de cavité et un miroir concave avec un rayon de courbure de 500 mm sert de coupleur de sortie. La transmission du coupleur varie de 1% à 20%. La longueur de la cavité peut varier de 50 mm à 500 mm pour optimiser l'énergie de sortie. Le laser fonctionne en régime relaxé avec un pompage impulsionnel.

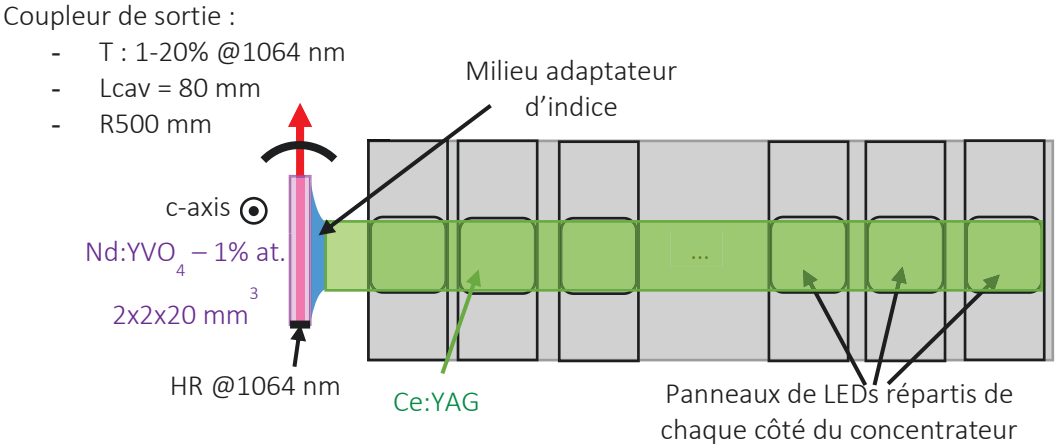


Figure IV-3 : Schéma complet de l'expérience.

IV.1.2 Réalisation

Pour cette démonstration, les LEDs utilisées sont celles en matrices de 5x5 LEDs, présentées dans la partie III.3.4.a du Chapitre III. La matrice fait 9 mm de côté, c'est pourquoi le choix d'un concentrateur en Ce:YAG de 9 mm de largeur a été fait. Un développement technologique auprès du fournisseur de LEDs a été nécessaire pour obtenir ces modules. Les modules sont disposés les uns à côté

des autres afin de pomper le concentrateur sur toute sa longueur, comme l'illustre la Figure IV-4. Ces modules sont placés sur deux blocs en aluminium, qui sont refroidis par eau. La fabrication des blocs, le positionnement des modules et les soudures ont entièrement été assurées par Effilux. Au total, 24 modules de 25 LEDs (répartis sur deux blocs) ont été utilisés, soit 650 LEDs, émettant à 430 nm. Cependant, une utilisation prolongée des LEDs autour de leurs limites (fréquence et courant notamment) a entrainé la cassure de plusieurs d'entre elles. Ainsi, les résultats qui seront présentés dans la suite ont été obtenus avec 350 LEDs, soit l'équivalent de 14 modules.

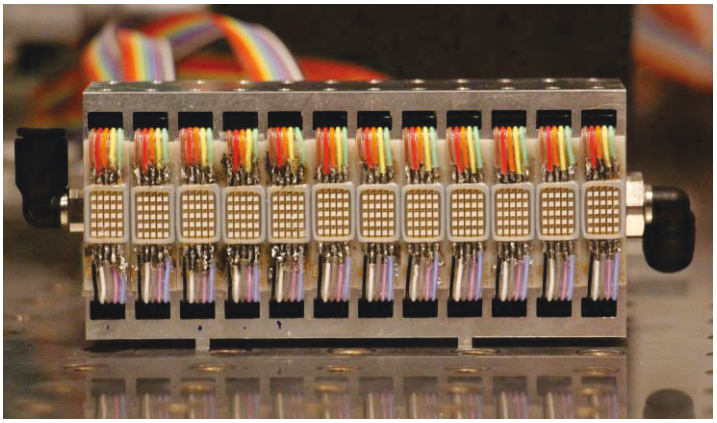


Figure IV-4 : Photo d'un des deux blocs de LEDs. 12 modules de 25 LEDs sont disposés sur chaque bloc. Des connecteurs à eau permettent le refroidissement de l'ensemble.

L'électronique de contrôle a été réalisée spécifiquement à nos besoins par un sous-traitant d'Effilux, suite à l'établissement d'un cahier des charges. Elle est composée de 24 cartes « filles » réparties sur deux cartes « mères ». Chaque carte « fille » contrôle un module de 25 LEDs en régime impulsionnel uniquement. 4 calibres permettent de faire varier la durée des impulsions électriques (5 µs, 100 µs, 3 ms et 10 ms). Quant au courant injecté dans les LEDs, l'électronique développée permet de le faire varier de 3 A à 4 A selon une dizaine de calibres. Une armoire électrique permet d'alimenter les cartes de contrôle.

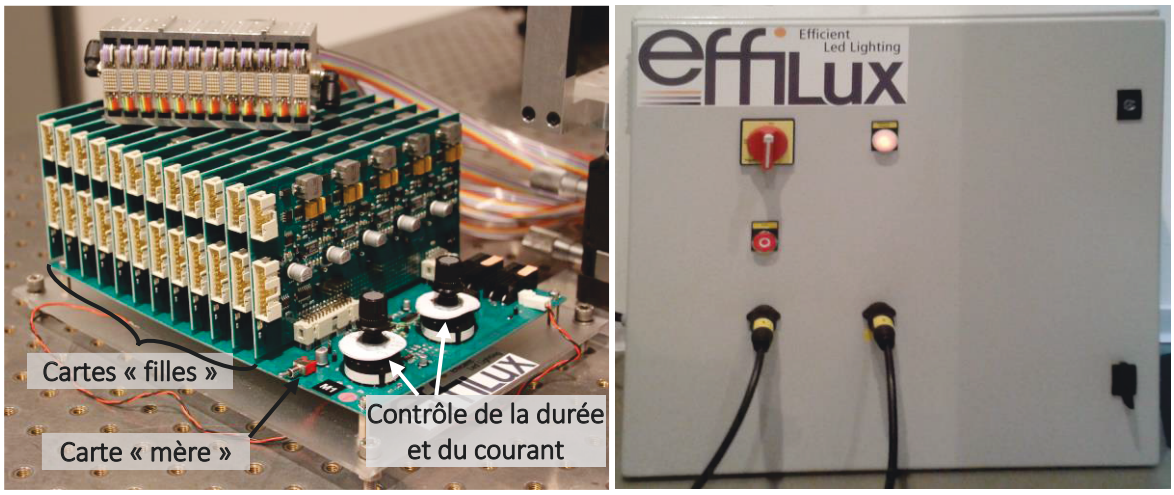


Figure IV-5 : (À gauche) photo de l'électronique développée, avec 12 cartes « filles » clipsées sur la carte « mère ». Un second exemplaire permet de piloter les autres LEDs ; (à droite) photo de l'armoire électrique alimentant l'ensemble.

Des translations selon les axes X, Y et Z permettent de positionner le cristal avec précision. Un seul concentrateur de Ce:YAG de 1x9x100 mm^3 a été utilisé pour cette démonstration.

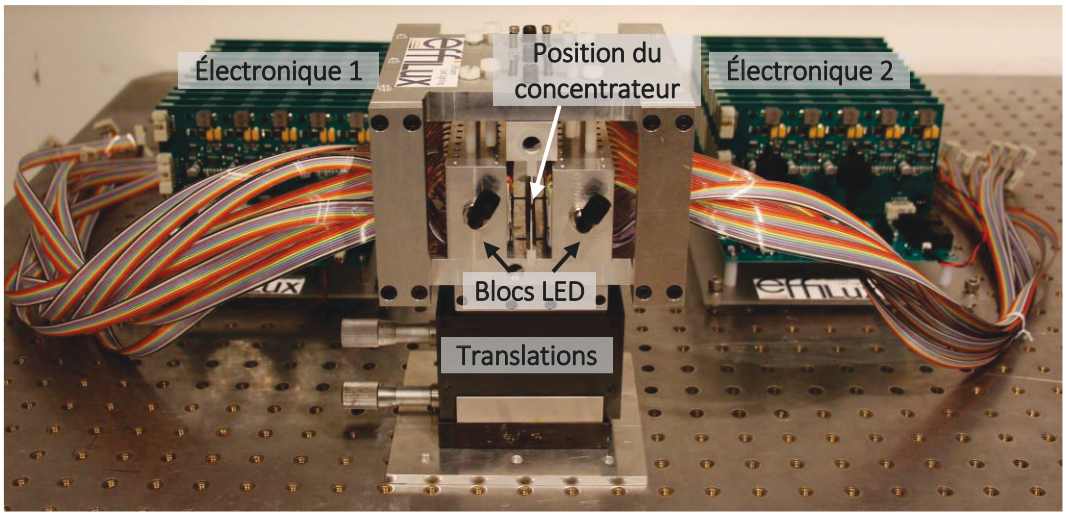


Figure IV-6 : Ensemble de la tête de pompage 2ème génération.

Concernant le contact entre le concentrateur et le cristal laser, la solution idéale serait l'adhérence moléculaire. Cette technique permet de supprimer tout effet d'interface entre deux composants optiques de même nature. Cependant, pour des surfaces aussi petites que les nôtres, l'adhérence sera plutôt fragile. Comme compromis, nous avons testé différentes solutions de contact optique, et en particulier les huiles et les colles. Le principal avantage des huiles est la variété d'indices optiques disponibles. Il est possible de trouver sans trop de difficulté des huiles ayant un indice optique allant jusqu'à 1,8 (au-delà, il y a moins de fournisseurs et la composition des huiles augmente en toxicité). Cependant, les huiles ont une fâcheuse tendance à sécher, ce qui supprime tout effet de « vidange optique » du concentrateur. De plus, dans ces cas, un résidu gras pollue l'interface. Lorsque cela se produit, il faut démonter le système, le nettoyer et remettre de l'huile… ce qui est relativement contraignant. Au contraire, les colles résistent plutôt bien au temps et aux contraintes mécaniques. Ainsi, si au cours du temps les cristaux se mettent à bouger même légèrement, pour une raison quelconque (thermique, serrage mécanique…) ; le contact optique est toujours assuré et est d'autant meilleur que la surface collée est grande. C'est principalement pour cette robustesse mécanique que nous avons choisi d'utiliser de la colle UV (séchage rapide et simple) comme matériau adaptateur d'indice dans nos systèmes laser, malgré un indice plus faible que les huiles. La colle que nous avons utilisée est la Vitralit VBB-1.

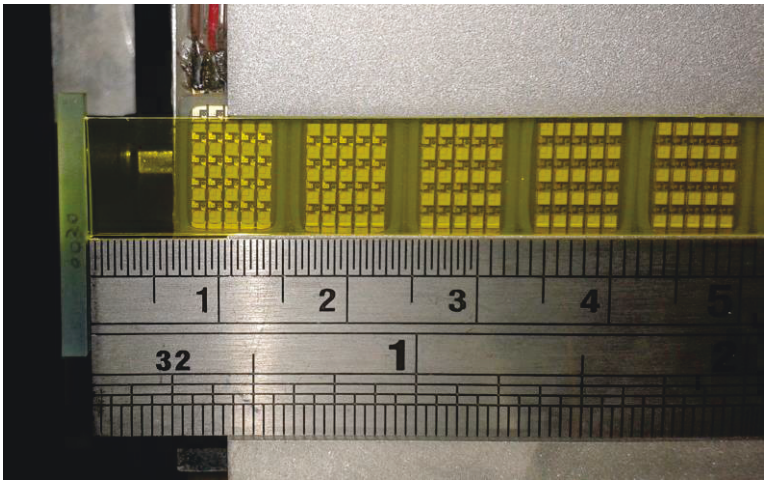


Figure IV-7 : Zoom sur le concentrateur en Ce:YAG de 9 mm collé au cristal de Nd:YVO_4, dans la tête de pompage.

IV.1.3 Résultats laser

Pour rappel, l'électronique à disposition nous permet de pomper le Nd:YVO_4 pendant 100 µs à une fréquence de répétition de 100 Hz. Pendant cette durée, les LEDs sont capables d'émettre chacune 1,86 W crête (et donc un éclairement de 186 W/cm²), pour une puissance totale de pompe de 650 W (ou une énergie de 65 mJ).

En sortie du concentrateur, une puissance crête de 43 W est obtenue sur une surface de 9 mm² (soit un éclairement d'environ 480 W/cm²). D'après nos simulations LightTools, nous estimons qu'une colle d'indice 1,5 permet d'augmenter la puissance de sortie du concentrateur d'un facteur 2,5. Ainsi, la puissance que nous estimons être couplée dans le milieu à gain est d'environ 107 W (énergie de 10,7 mJ) pour un éclairement de pompe d'environ 1,2 kW/cm².

Le seuil laser apparait pour une énergie de pompe en sortie du concentrateur autour de 2 mJ. La transmission maximale du coupleur avec laquelle nous avons observé un effet laser s'élève à 20% avec un seuil à 8 mJ, voir la Figure IV-8.

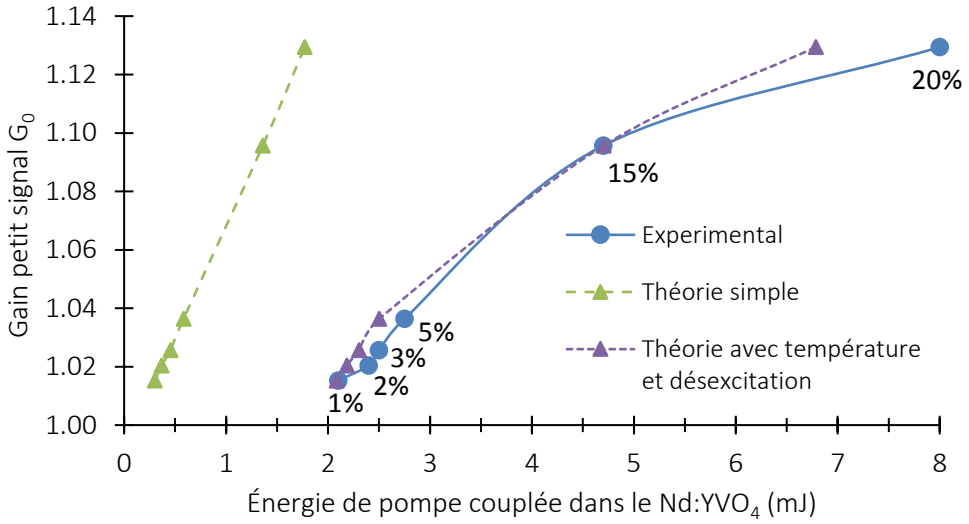


Figure IV-8 : Évolution du gain petit signal en simple passe G_0 en fonction de l'énergie couplée dans le Nd:YVO_4, pompage avec le concentrateur de 9 mm.

D'après nos simulations, les seuils pour atteindre le gain nécessaire à l'obtention de l'effet laser ne devraient pas être aussi élevés. Il s'agit d'un décalage que nous n'avons pas observé en pompant avec les LEDs IR par exemple (voir Chapitre II). Face à ce constat, nous pensons que plusieurs paramètres peuvent être à l'origine de cet écart. Parmi ces paramètres, il se pourrait que le couplage de la pompe dans le Nd:YVO_4 (i.e. injection dans le cristal + absorption par ce dernier) ne soit pas aussi bon que le prévoie notre simulation. Même si ce facteur ne suffit pas à lui seul d'expliquer la totalité de l'écart, il pourrait y contribuer. Nous avons également une piste d'explication concernant une (ou plusieurs) désexcitation(s) non-radiative(s) du niveau excité vers des niveaux intermédiaires autre que celui de la transition laser (nous donnons quelques détails dans l'Annexe 3). Enfin, nous avons pensé à l'influence de l'échauffement thermique sur la spectroscopie du Nd:YVO_4 (diminution des sections efficaces et du temps de fluorescence (Délen, Balembois, and Georges 2011)). Cependant, cela permettrait d'expliquer la courbure pour les plus hautes énergies, mais pas la différence de seuils pour les plus faibles coupleurs (car pour ces coupleurs, l'énergie de pompe requise pour atteindre le seuil est relativement faible).

Parmi les différentes configurations testées (voir Figure IV-9), l'énergie maximale de 360 µJ a été obtenue avec le coupleur ayant une transmission de 3%, pour une énergie de pompe de 10,8 mJ, correspondant à une efficacité de 3,3% par rapport à l'énergie en sortie du Ce:YAG qui est couplée dans le cristal de Nd:YVO_4.

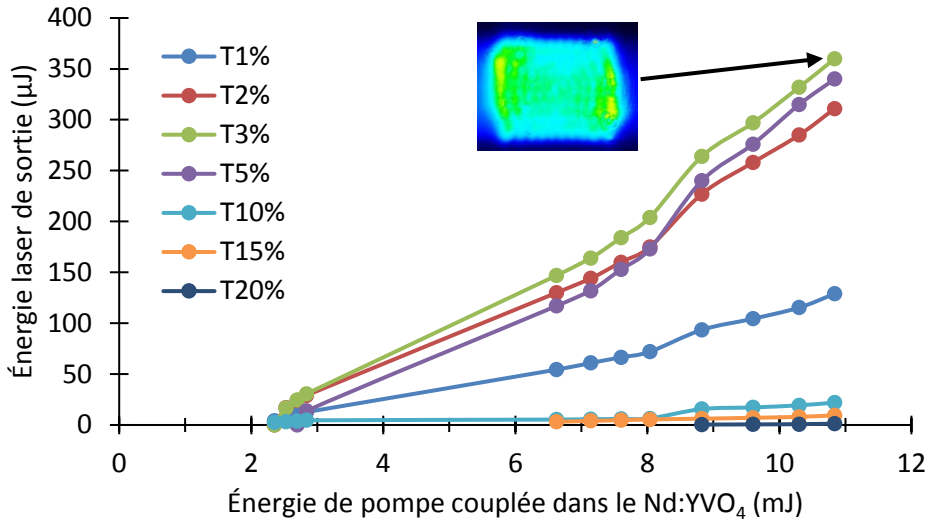


Figure IV-9 : Évolution de l'énergie en sortie du laser en fonction de l'énergie couplée dans le Nd:YVO₄, pour différentes transmissions du coupleur de sortie. Pompage avec le concentrateur de 9 mm pendant 100 µs à 100 Hz, cavités plans-concaves, longueurs = 70 - 85 mm.

Nos simulations sous LightTools tiennent compte du recouvrement spectral entre la bande d'émission du Ce:YAG et d'absorption du Nd:YVO₄, elles nous permettent donc d'estimer la quantité de lumière qui est absorbée par notre milieu à gain. Pour ce système, cette grandeur est estimée à 36%. Ainsi, par rapport à l'énergie réellement absorbée par notre barreau de Nd:YVO₄, l'efficacité précédente s'élève dorénavant à 9,3%. Enfin, si l'on compare maintenant à l'énergie totale émise par les LEDs, l'efficacité optique-optique est de 0,6%.

Par ailleurs, nous pouvons voir avec la Figure IV-10 l'effet de la thermique sur le système laser. En trait continu bleu est tracée l'évolution expérimentale de l'énergie laser en fonction de la transmission des coupleurs utilisés. Nous constatons qu'avec une énergie de pompe maximale de 10,8 mJ, le coupleur optimal se situe autour de 4-5% de transmission. Nous avons souhaité expliquer l'allure de cette courbe théoriquement. Pour cela, nous sommes partis de la formule exprimant l'éclairement de sortie laser en fonction des pertes introduites par le coupleur de sortie :

$$E_{out} = T\left[\frac{E_p}{p_p + ln\left(\frac{1}{1-T}\right)} - \frac{Es}{2}\right] \qquad \textit{Eq. IV-1}$$

où T est la transmission du coupleur de sortie, E_p est l'éclairement de pompe, E_s l'éclairement de saturation et p_p les pertes passives introduites par le cristal. Ainsi, en utilisant la relation Eq. IV-1, nous obtiendrions le tracé en pointillés rouges. Nous remarquons qu'au-delà de cette transmission optimale, les énergies obtenues expérimentalement diminuent rapidement pour se limiter à quelques dizaines de µJ tout au plus, marquant une nette différence avec la courbe théorique. Nous attribuons cette baisse d'énergie à l'effet de la thermique qui est plus marquée pour les hautes transmissions. En effet, pour ces coupleurs, le seuil laser étant plus élevé, l'inversion de population à atteindre l'est également, augmentant la charge thermique au sein du cristal.

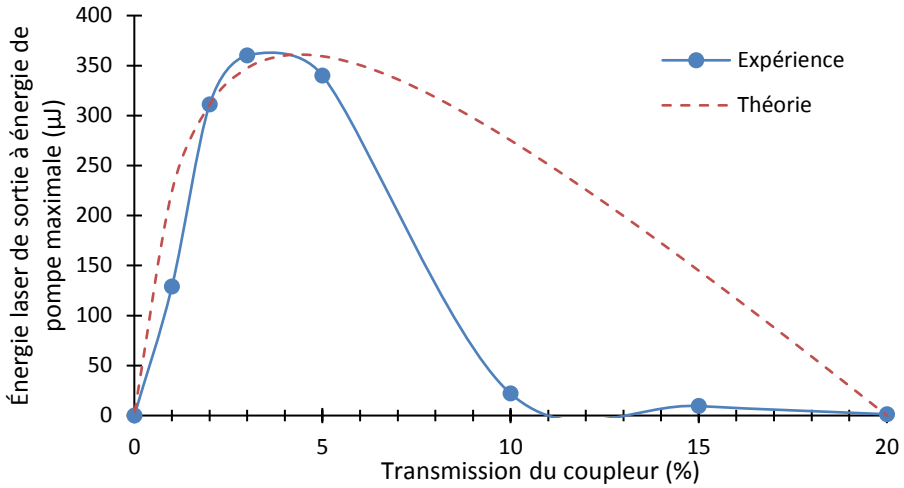


Figure IV-10 : Évolution de l'énergie de sortie à énergie de pompe maximale (10,8 mJ) en fonction de la transmission des coupleurs de sortie.

Ces travaux ont fait l'objet d'une publication dans la revue *Optica* (Barbet et al. 2016) (disponible en Annexe 4) ainsi que d'un brevet (n°1562823 déposé le 18/12/2015).

Ainsi, en comparant ces résultats avec ceux obtenus dans la partie II.2.6.c en pompage direct par les LEDs Z PC Amber (qui ont également une émission autour de 590 nm), voici ce que nous pouvons en dire :

	Pompage direct par Z PC Amber	Pompage indirect par Ce:YAG
Énergie de sortie (µJ)	180	360
Énergie des LEDs (mJ)	31,5	65
Efficacité optique $\eta_{laser/LED}$ (%)	0,58	0,55

Tableau IV-1 : Comparaison entre le pompage par LED direct et indirect, durée de pompe 250 µs.

Nous remarquons que l'énergie laser obtenue en pompage indirect est deux fois plus grande qu'en pompage direct, pour une efficacité identique, malgré un composant intermédiaire (le concentrateur) ! L'avantage majeur du pompage indirect est la montée en puissance. En effet, en pompage direct, le nombre de LEDs est limité par la surface de pompage du cristal laser. Dans le cas du pompage indirect, c'est justement le concentrateur qui permet de déporter le nombre de LEDs sur des surfaces de pompage différentes de celles du cristal laser, permettant ainsi d'en utiliser beaucoup plus. À noter que dans le cas du pompage indirect, le barreau laser (long de 20 mm) n'a été pompé que d'un côté et sur 9 mm seulement ! Ceci nous permet d'envisager une énergie bien plus importante dans le cas du pompage indirect.

Suite à ce constat, nous décidons de reconsidérer des cristaux laser qui étaient inaccessibles en pompage direct et qui deviennent dorénavant envisageables en pompage indirect par concentrateur. Maintenant que nous avons une démonstration de principe, nous pouvons calibrer nos simulations avec et étudier le potentiel du pompage indirect pour des cristaux tels que le saphir dopé au titane.

IV.2 Cristaux envisageables en pompage indirect par Ce:YAG

Bien que cette étude puisse également s'appliquer à d'autres matériaux concentrateurs, elle ne sera faite que dans les conditions fixées par la fin du chapitre précédent : concentrateur en Ce:YAG massif, parallélépipédique, d'épaisseur 1 mm, de longueur 100 mm et de largeur variable (2,5 mm et 14 mm). Lorsque nous regardons le Tableau III-2, le Ce:YAG semble bien adapté pour pomper l'alexandrite et le Ti:saphir et légèrement moins pour les matériaux dopés aux ions néodyme. Qu'en est-il dans les faits ? Que peut-on réellement attendre d'un pompage par Ce:YAG ? Cette partie va tenter de donner quelques éléments de réponse.

IV.2.1 Nouveaux spectres et éclairements de pompe à considérer dans les simulations

Comme pour le Chapitre II, le critère d'importance est le gain laser. Pour plus de précisions dans les simulations, le concentrateur en Ce:YAG est simulé avec l'aide du logiciel LightTools. Il existe un module dédié à la simulation de phosphores, prenant en compte les processus d'absorption, de réémission et de réabsorption. Ce module est traditionnellement utilisé pour simuler les LEDs blanches ayant un dépôt de phosphore, mais il est parfaitement possible de simuler le cas d'un « bloc » de phosphore (représentant un cristal par exemple). Pour cela, il suffit de rentrer certains paramètres comme le rendement quantique ou encore les spectres d'absorption et d'émission du matériau. Toujours dans le cadre de l'ANR EDELVEIS, Thomas Gallinelli, doctorant au LPL, m'a apporté un grand soutien dans la mise en place de ces simulations. Nous pouvons ainsi représenter l'intégralité du système laser (les LEDs, les concentrateurs, la colle et le cristal laser) avec LightTools. Toujours d'après le Tableau III-2, le spectre d'émission du Ce:YAG a un recouvrement non nul avec les matériaux dopés néodyme, l'alexandrite et enfin le saphir dopé titane. Voici une représentation spectrale de ces recouvrements respectifs.

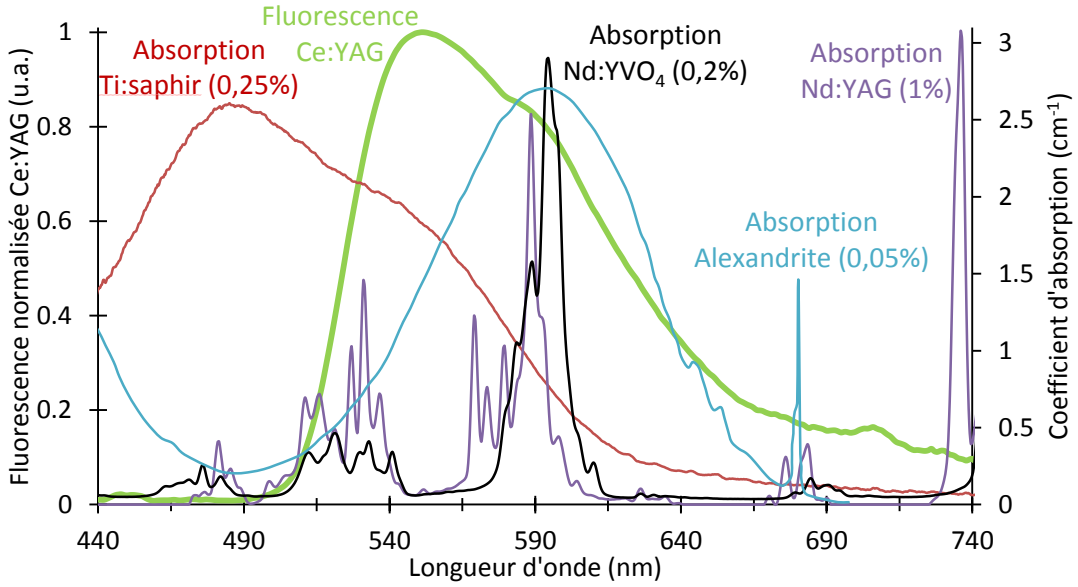


Figure IV-11 : Spectres d'émission du Ce:YAG et d'absorption du Ti:saphir (moyenne des axes a et c), du Nd:YAG, du $Nd:YVO_4$ (axe c) et de l'alexandrite (parallèle à l'axe b)[20], avec les dopages associés.

Pour chaque cristal, nous adaptons la durée des impulsions de pompe au temps de vie τ du matériau choisi (le temps de pompe varie typiquement de τ à 3τ en fonction du matériau et de l'électronique de contrôle utilisée). De la même façon, le courant maximal que l'on peut injecter dans

[20] Courbe issue de (Walling et al. 1979)

les LEDs dépend grandement de la durée d'impulsion. La fréquence de répétition maximale dépend elle-même des deux précédents paramètres (courant + durée). Ainsi, en fonction du matériau choisi, nous n'aurons pas la même puissance crête de pompe issue des LEDs, voir le récapitulatif dans le Tableau IV-2.

Cristaux	Ti:saphir	$Nd:YVO_4$	Nd:YAG	Alexandrite
Temps de pompe (µs)	15	250	250	750
Courant maximal (A)	7	5	5	2,5
Puissance crête LED (W)	5	3,5	3,5	2,1
Énergie totale des LEDs (J)	0,11	1,27	1,27	2,27
Éclairement de pompe dans le cristal (kW/cm^2)	8,0	15,7	24,8	2,4

Tableau IV-2 : Tableau récapitulatif des caractéristiques des LEDs pour chaque cristal envisagé par un pompage par concentrateur en Ce:YAG.

Enfin, le gain dépend naturellement de la géométrie de pompage. Ainsi, afin de déterminer le gain théorique que l'on peut attendre de notre système de pompage, la configuration simulée consiste à utiliser deux concentrateurs, de différentes largeurs (2,5 mm et 14 mm) pour pomper le milieu à gain considéré à la fois longitudinalement et transversalement (voir Figure IV-12).

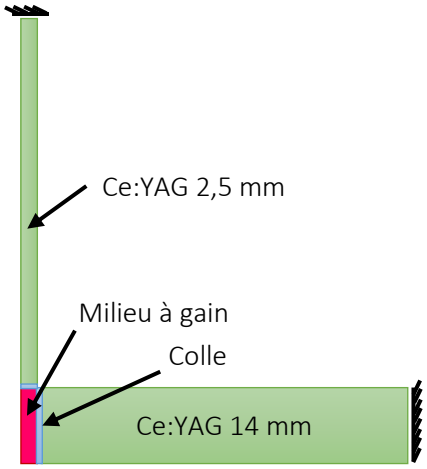


Figure IV-12 : Géométrie du dernier dispositif de pompage conçu.

Après avoir rentré tous ces paramètres dans LightTools et avoir lancé la simulation, nous en extrayons l'éclairement de pompe spectral à l'intérieur du cristal $\frac{dE_p}{d\lambda_p}(0,0,z)$ pour injecter cette information dans l'équation du calcul de gain linéique (Eq. II-14, de la même manière que dans le Chapitre II).

IV.2.2 Bilan : peut-on de nouveau considérer ces matériaux laser ?

De façon analogue au Chapitre II, en calculant le gain petit signal simple passage G_0, nous obtenons les résultats du Tableau IV-3 :

Cristaux	Ti:saphir	$Nd:YVO_4$	Nd:YAG	Alexandrite
Dopage (at.%)	0,25	1,0	1,0	0,22
Temps de vie (µs)	3	90	230	260
Gain théorique simple passage G_0	1,07	5,0	3,7	1,05

Tableau IV-3 : Récapitulatif des résultats de simulation avec un pompage analogue à celui de la Figure IV-12, pour les puissances par LED affichées dans le Tableau IV-2.

Nous pouvons tirer deux conclusions de ce tableau. Tout d'abord, nous voyons qu'en théorie, il est possible d'atteindre le seuil laser pour tous les milieux considérés. Ainsi, le pompage par concentrateurs luminescents permet d'atteindre le seuil de cristaux laser qui étaient auparavant inaccessibles en pompage direct par LED, comme l'alexandrite ou le Ti:saphir par exemple.

Dans la suite, nous allons nous intéresser à trois cristaux en particulier : le Nd:YAG, le Nd:YVO_4 et le Ti:saphir. En effet, les deux matériaux dopés aux ions néodyme présentent un gain théorique conséquent et sont largement répandus dans la communauté ainsi que dans les systèmes laser commerciaux. Nous avons également voulu faire un test sur un cristal de Ti:saphir car il s'agit du matériau solide ayant le seuil laser le plus élevé et celui qui est visé à terme par le projet EDELVEIS.

IV.3 Résultats expérimentaux des lasers pompés par concentrateur

IV.3.1 Description du dispositif de pompage optimisé

Pour atteindre les seuils laser les plus élevés (tel que celui du Ti:saphir), nous avons essayé d'exploiter au mieux le potentiel des concentrateurs en concevant un nouveau dispositif de pompage exploitant la forte compacité des nouvelles LEDs Luxeon. C'est ce dernier dispositif qui a été utilisé pour le pompage des trois milieux à gain abordés dans la suite de cette partie. Pour allier puissance et efficacité, nous avons décidé de pomper ces derniers transversalement et longitudinalement. Cette géométrie de pompage conditionne les dimensions des milieux à gain. Le pompage longitudinal impose une largeur du cristal laser de 2,5 mm et le pompage transverse impose une longueur de cristal de 14 mm. Un effort de compacité sur le positionnement des LEDs a été fait pour tendre vers un taux de remplissage le plus grand possible (voir Chapitre III). Dans ces conditions, un total de 1440 LEDs est nécessaire pour pomper les concentrateurs. Voici une illustration de la tête de pompage en Figure IV-13, entièrement réalisée par Effilux.

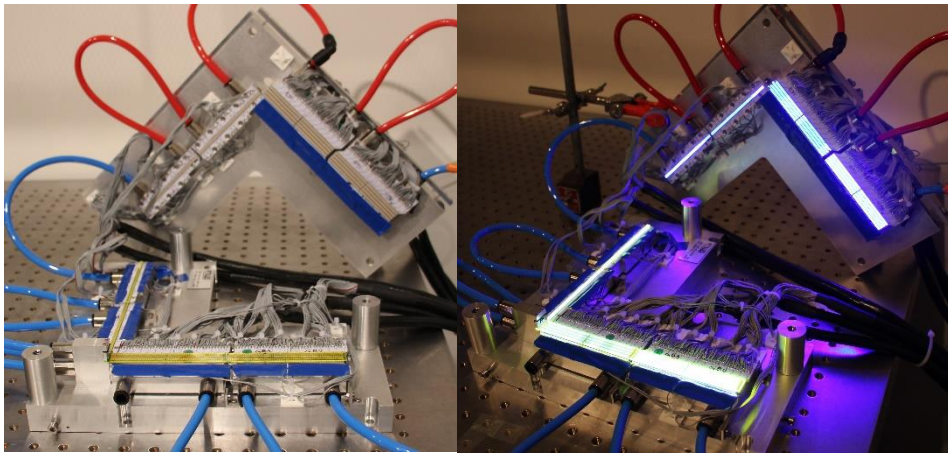


Figure IV-13 : Photos de la tête de pompage à l'arrêt (à gauche) et en fonctionnement (à droite).

Dans un souci de coût et de temps d'approvisionnement, l'alimentation des LEDs est assurée par des contrôleurs électroniques commerciaux (voir Figure IV-14), solution déjà éprouvée par Effilux pour leurs produits. Le câblage des LEDs a été prévu pour que chaque contrôleur puisse piloter 4x16 LEDs en série, soit 64 LEDs. Il faut donc un total de 22 contrôleurs et de 3 alimentations de puissance pour piloter l'ensemble des 1440 LEDs. L'ensemble peut être contrôlé par ordinateur à l'aide d'un logiciel spécialement modifié pour nos besoins. Avec un tel montage électronique, il nous est possible d'envoyer des impulsions électriques de la µs à la ms (au-delà de quelques ms, la tension requise pour alimenter les LEDs dépasse celle que peut fournir les contrôleurs) ou un signal continu (mais avec un courant inférieur à l'ampère dans ce cas). Ceci nous permet de tester le pompage de tous les matériaux laser cités précédemment.

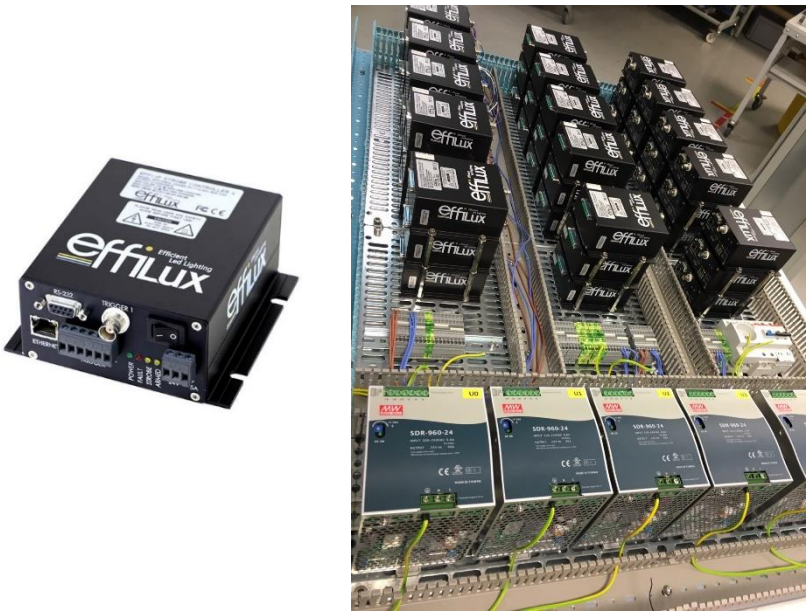


Figure IV-14 : Photos d'un contrôleur et de l'armoire électrique, en cours de montage.

Afin de « calibrer » cette nouvelle tête de pompage, nous avons commencé par pomper une nouvelle fois un cristal de Nd:YVO_4, ayant des dimensions adaptées à ce nouveau dispositif de pompage (1 x 2,5 x 14 mm^3).

IV.3.2 Laser Nd:YVO_4

Le cristal de Nd:YVO_4 est dopé à hauteur de 1 at.% pour avoir une absorption aussi grande que possible tout en évitant les effets d'extinction de fluorescence (ou *concentration quenching*). Également, l'orientation du cristal a été choisie de façon à maximiser l'absorption, c'est-à-dire que le pompage se fait selon les axes (a,c). Toutes les faces du cristal sont polies pour que la pompe puisse se réfléchir sur les faces internes. Sur l'une des faces laser (1 x 2,5 mm^2), un traitement antireflet (AR) à 1064 nm a été appliqué alors que sur l'autre face, un traitement dichroïque laisse passer les longueurs d'onde du concentrateur en pompage longitudinal (HT > 95% sur 550 – 650 nm) et réfléchi complètement la longueur d'onde signal (HR > 99,5% à 1064 nm).

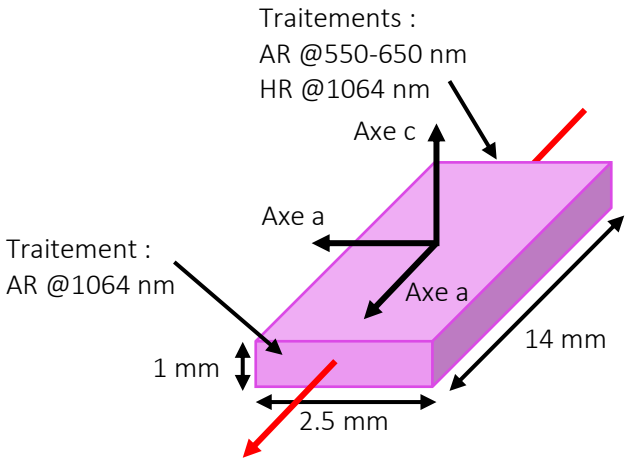


Figure IV-15 : Orientation cristalline du Nd:YVO_4 utilisé.

Le contact entre les grandes faces du cristal (14 x 2,5 mm^2) et la mécanique refroidie à l'eau est assurée par de la graisse thermique ou des feuilles d'indium.

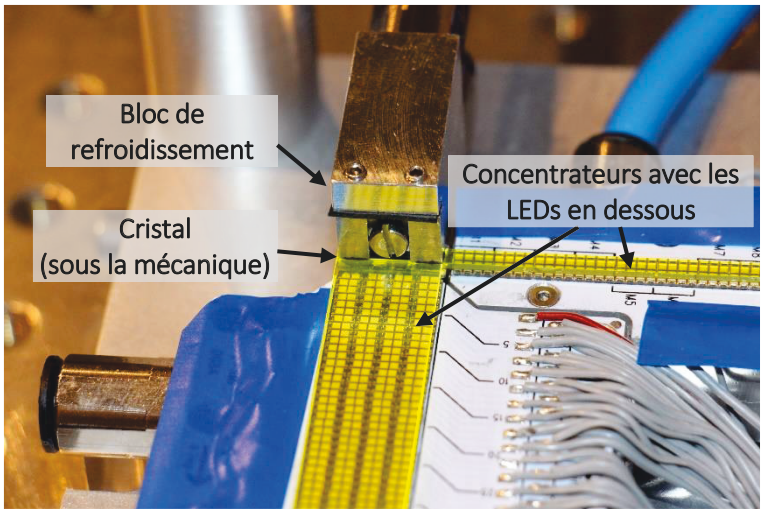


Figure IV-16 : Illustration du bloc de refroidissement du cristal.

Nous avons testé différentes configurations de pompage : des pompages longitudinaux uniquement, transversaux uniquement, puis les deux à la fois. Par ailleurs, nous également testé différentes cavités laser : des cavités linéaires plan-concave ou plan-plan, cavités en V (avec un rebond sur la face HR du Nd:YVO_4) plan-concave ou plan-plan également ou encore des cavités en losange (avec un rebond sur trois faces du cristal laser, voir Figure IV-17).

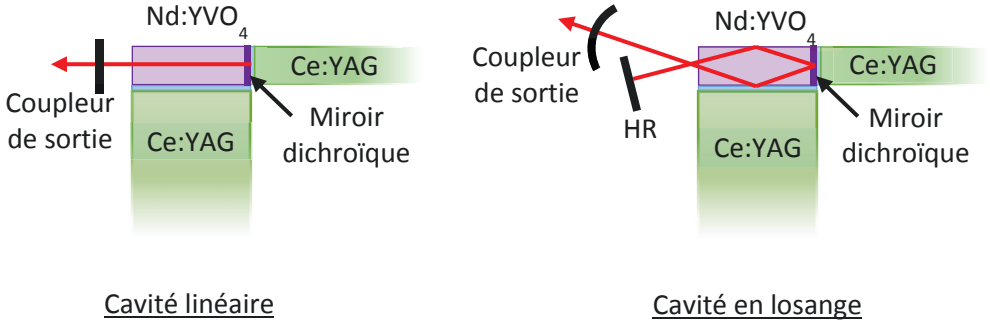


Figure IV-17 : Types de cavités laser testées.

IV.3.2.a Cavité plan-plan

Parmi toutes ces configurations, celle qui nous a permis d'obtenir les meilleurs résultats est celle avec la cavité linéaire plan-plan. En pompant pendant 250 µs à une cadence de 30 Hz, nous avons été en mesure d'obtenir un effet laser pour des coupleurs de sortie ayant une transmission jusqu'à 80% ! Ceci correspond à un gain petit-signal en simple passage G_0 de 2,26. L'énergie maximale que nous avons mesurée en sortie du laser est de 6 mJ avec un coupleur ayant une transmission de 20%, pour un courant injecté dans les LEDs de 5 A. Pour ce courant, l'énergie en sortie des concentrateurs Ce:YAG, couplée dans le cristal de Nd:YVO_4 s'élève à 204 mJ. Celles émise par les LEDs à 1,27 J (3,5 W crête par LED). Ceci correspond à des efficacités optique-optique de 3% et de 0,5% respectivement. Après quelques cm de propagation en sortie de la cavité, la taille du faisceau était de l'ordre de 1,4 x 2,5 mm².

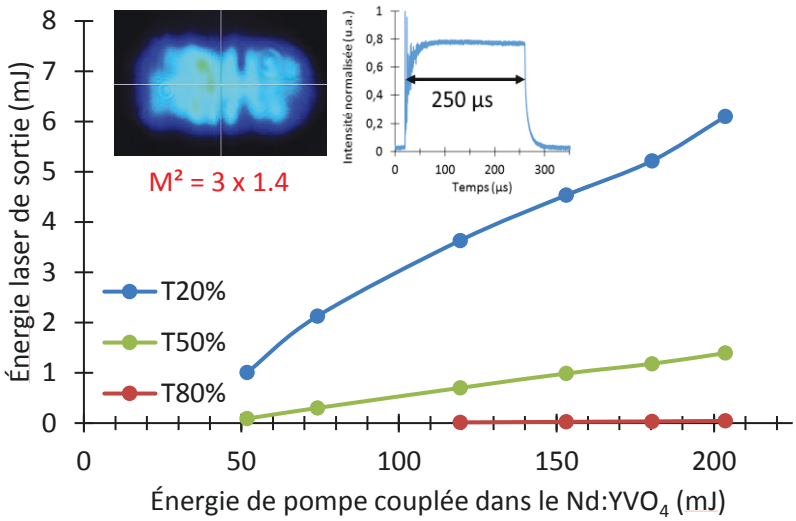


Figure IV-18 : Évolution de l'énergie en sortie du laser en fonction de l'énergie couplée dans le Nd:YVO₄, pour différentes transmissions du coupleur de sortie. Pompage avec les concentrateurs de 2,5 et 14 mm pendant 250 µs à 30 Hz, cavités plan-plan, longueur = 35 mm.

IV.3.2.b Cavité plan-concave

Pendant les mesures, nous avons remarqué la présence de deux autres taches laser, en plus du faisceau laser principal émettant 6 mJ. Nous attribuons l'existence de ces deux points supplémentaires à un mode pouvant laser de façon stable dans une cavité en losange en plus de la cavité linéaire (voir la Figure IV-19).

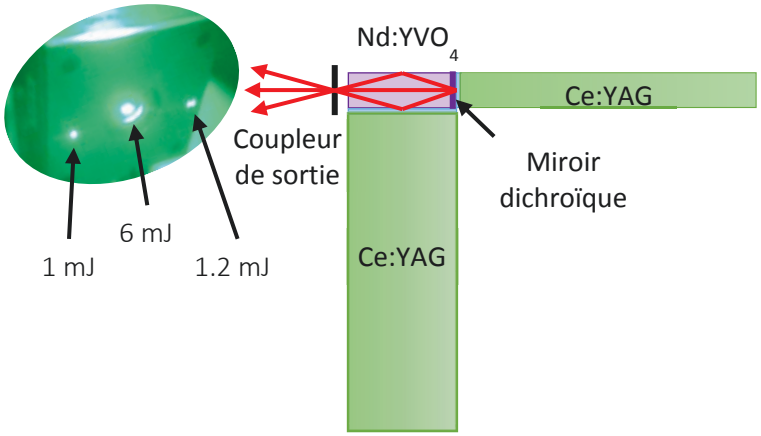


Figure IV-19 : Trois points laser en sortie de la cavité plan-plan.

Nous avons alors mesuré la puissance et nous sommes aperçus que plus de 2 mJ étaient contenus dans ce mode, soit 30% de l'énergie du point central ! C'est pourquoi nous avons conçu une cavité en losange telle que celle présentée en Figure IV-17 afin d'essayer de récupérer cette énergie supplémentaire dans un seul et unique faisceau laser. Pour ce faire, nous avons utilisé un miroir plan HR à 1064 nm sur l'une des deux voies de sortie et un coupleur de sortie concave, avec un rayon de courbure de 500 mm sur l'autre voie. La longueur totale de la cavité était d'environ 150 mm.

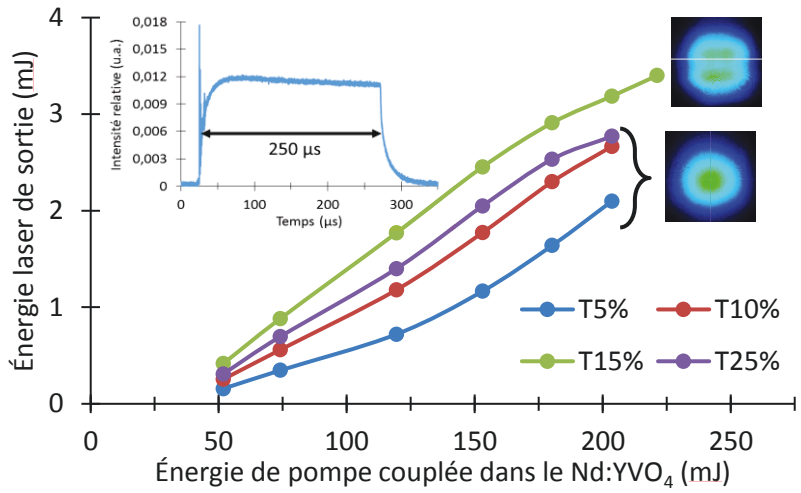


Figure IV-20 : Évolution de l'énergie en sortie du laser en fonction de l'énergie couplée dans le Nd:YVO₄, pour différentes transmissions du coupleur de sortie. Pompage avec les concentrateurs de 2,5 et 14 mm pendant 250 µs à 30 Hz, cavités losange plan-concave, longueur = 150 mm.

Nous avons réussi à obtenir un peu moins de 3 mJ dans un profil monomode transverse (dont la taille est d'environ 1,4 mm à 4σ), pour des transmissions de coupleurs allant jusqu'à 25%. Ainsi, nous pouvons comparer ces résultats à ceux obtenus avec les deux autres dispositifs de pompage que nous avons utilisés pour concevoir un laser Nd:YVO₄ et observer les améliorations réalisées.

Type de pompage	Direct			Indirect Ce:YAG 9 mm	Indirect Ce:YAG 2,5/14 mm
	Ambre	IR	ZPC Amber		
Longueur cristal (mm)	20	20	20	20	14
Nombre de LEDs en jeu	36	36	60	350	1 440
Temps de pompage (µs)	100	100	250	100	250
Puissance crête par LEDs (W)	0,64	2	2,1	1,9	3,5
Énergie totale des LEDs (mJ)	2,3	7,4	31,5	65	1 270
Énergie laser (µJ)	11,7	40	180	360	6 100
Efficacité du système (%)	0,51	0,54	0,57	0,55	0,47

Tableau IV-4 : Comparatif entre les différents systèmes laser Nd:YVO₄ développés.

Depuis notre première démonstration le 14 juin 2013 avec le laser Nd:YVO₄ pompé par des LEDs ambre, quelques progrès ont été réalisés. Nous sommes partis d'une énergie en sortie de cavité d'à peine 12 µJ à plus de 6 mJ avec la dernière version, soit quasiment **3 ordres de grandeur** d'amélioration. Au cours des évolutions des dispositifs de pompage, nous nous sommes progressivement dirigés vers des systèmes utilisant des LEDs bleues, bien plus puissantes que toutes les autres (grâce notamment au marché de l'éclairage). En effet, avec de telles LEDs, il est possible d'injecter des courants plus élevés pendant un temps plus long générant ainsi des puissances crêtes toujours plus grandes. Même en pompant à une longueur d'onde plus faible et avec un concentrateur, les systèmes de pompage indirect conservent une efficacité autour de 0,5%. Ceci est rendu possible grâce à un éclairement de pompe plus important, générant un gain plus grand. Ceci conduit à un laser plus efficace qui compense l'inefficacité du système de pompage. De plus, les concentrateurs permettent d'augmenter radicalement la surface de pompage et de déporter l'encombrement des LEDs loin du cristal laser. Ainsi, alors que l'on était limité à quelques dizaines de LEDs en pompage direct, les concentrateurs nous permettent de dépasser le millier de LEDs tout en utilisant un cristal laser plus petit ! De plus, bien qu'a priori, la large bande d'émission du Ce:YAG entraine une plus faible absorption de la pompe (et donc une plus faible efficacité), cette dernière peut être partiellement compensée car cette largeur permet d'exploiter

plusieurs bandes d'absorption du Nd:YVO_4. Ces travaux ont été présentés à l'occasion de deux conférences internationales (*Europhoton 2016* et *ASSL 2016*, voir Annexe 4).

À notre connaissance, en dehors de nos travaux, aucune autre équipe de recherche n'a réalisé de laser Nd:YVO_4 pompé par LED, que ce soit en pompage direct ou indirect.

IV.3.3 Laser Nd:YAG

Le second matériau laser que nous avons voulu considérer est le Nd:YAG. En effet, le Nd:YAG présente plusieurs avantages : il a un plus long temps de vie que le Nd:YVO_4 (230 µs au lieu de 90 µs) et donc un plus long temps de stockage de l'énergie de pompe. Il y a de très nombreuses publications parmi l'état de l'art sur le pompage par LED portant sur le Nd:YAG, particulièrement dans les années 1970 mais également très récemment avec (Villars, Hill, and Durfee 2015; Huang et al. 2016). Ensuite, le Nd:YAG possède une conductivité thermique légèrement supérieure à celle du Nd:YVO_4 (Délen 2013), ce qui est un bon atout dans la gestion de la thermique et la montée en cadence. La matrice de YAG est également largement répandue dans les systèmes utilisant l'adhérence moléculaire (*Adhesive free-bonding* dans la langue de Shakespeare), ce qui permet de coller d'autres matériaux (comme le Cr:YAG ou le Ce:YAG par exemple) tout en garantissant une absence totale d'interface entre eux. Enfin, le dernier argument en faveur du Nd:YAG est justement lié aux points précédents : il est possible de réaliser un laser Nd:YAG déclenché passivement bas coût en utilisant un absorbant saturable, qui peut être adhéré au milieu à gain. Cette application rentre parfaitement dans la logique du pompage par LED qui permet la réalisation de systèmes laser bas coûts.

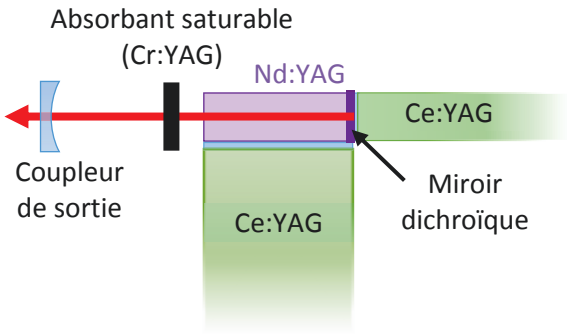


Figure IV-21 : Schéma de la cavité laser en déclenchement passif à l'aide d'absorbants saturables.

Les cristaux de Nd:YAG ont les mêmes caractéristiques que les Nd:YVO_4, c'est-à-dire qu'ils sont également dopés à hauteur de 1 at.%, qu'ils ont pour dimensions 1 x 2,5 x 14 mm^3 et que toutes leurs faces sont polies. Sur les faces laser (1 x 2,5 mm^2), les mêmes traitements ont été appliqués (AR à 1064 nm d'un côté et un traitement dichroïque laissant passer les longueurs d'onde de pompe et réfléchissant la longueur d'onde signal de l'autre), voir Figure IV-21.

À éclairements de pompe égaux, le Nd:YAG ayant un gain plus faible que le Nd:YVO_4, nous avons choisi d'utiliser une cavité plan-concave pour garantir la stabilité. La longueur de cette cavité est d'environ 80 mm. À l'exception de la Figure IV-26, tous les coupleurs de sortie utilisés ont un rayon de courbure de 500 mm. Toutes les mesures ont été réalisées à une cadence de 10 Hz[21].

Nous avons dans un premier temps étudié notre laser en régime relaxé. Pour cela, nous avons mesuré pour un courant fixé à 4 A, la puissance en sortie de la cavité pour différentes transmissions de coupleurs, nous avons obtenu les résultats en Figure IV-22.

[21] J'en profite d'ailleurs pour remercier Daniel Blengino pour son aide précieuse dans la collecte de ces mesures.

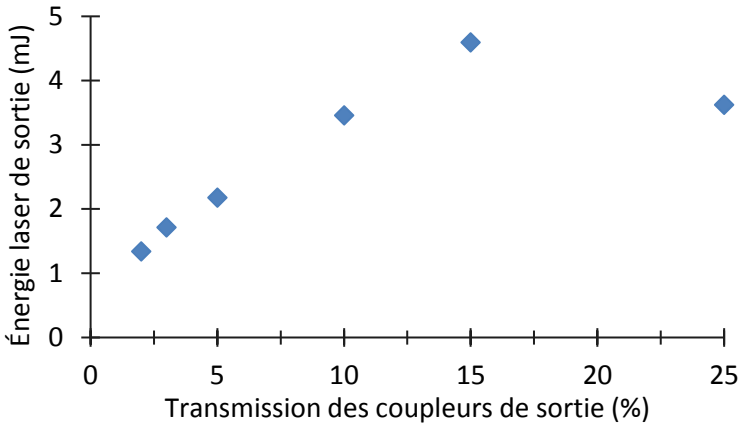


Figure IV-22 : Énergie laser pour différentes transmissions des coupleurs de sortie (R = 500 mm), en régime relaxé. Pompage avec les concentrateurs de 2,5 et 14 mm pendant 250 µs à 10 Hz, cavité plan-concave, L_{cav} = 80 mm.

Nous avons également mesuré l'énergie laser en sortie de la cavité pour une transmission de coupleur de sortie fixée à 25%. Ainsi, lorsque 5 A sont injectés pendant 250 µs dans les 1 440 LEDs (pompage longitudinal et transversal), nous obtenons jusqu'à 5 mJ, pour une énergie en sortie des concentrateurs de 204 mJ (soit une efficacité de 2,5%) et émise par les LEDs de 1,27 J (soit une efficacité de 0,4%). Cette caractérisation est illustrée en Figure IV-23.

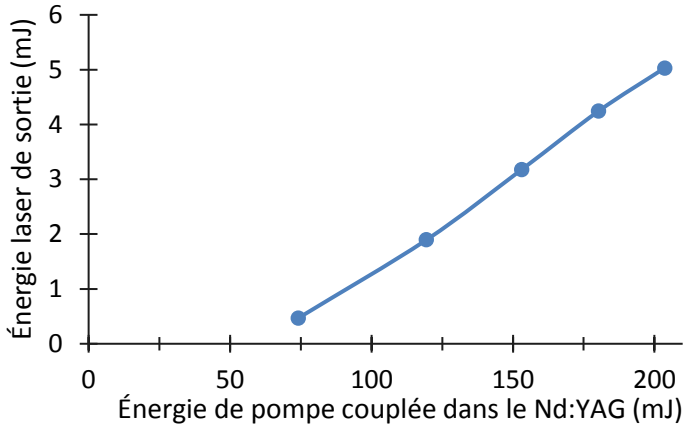


Figure IV-23 : Évolution de l'énergie en sortie du laser en régime relaxé en fonction de l'énergie couplée dans le Nd:YAG, pour une transmission du coupleur de sortie de 25%, R = 500 mm. Pompage avec les concentrateurs de 2,5 et 14 mm pendant 250 µs à 10 Hz, cavité plan-concave, L_{cav} = 80 mm.

Cette démonstration constitue à notre connaissance la première réalisation d'un laser Nd:YAG pompé par des concentrateurs (en Ce:YAG) pompés par LED. Il ne s'agit pas du premier laser Nd:YAG pompé par LED, loin de là. Les plus récents travaux sur ce type de matériau ont été réalisés par (Villars, Hill, and Durfee 2015) et (Huang et al. 2016). Ces équipes ont pompé leur milieu à gain pendant 1 ms, alors que nous l'avons fait pendant 250 µs uniquement. Ainsi, en pompant pendant une durée équivalente, nous serions en mesure d'extraire une vingtaine de mJ environ (c'est-à-dire 1000/250*5 = 20 mJ, ce qui suppose une évolution linéaire de l'énergie, hypothèse raisonnable étant donnée l'absence de saturation sur la Figure IV-23).

Une fois notre laser caractérisé, nous avons investigué ses performances en régime déclenché. Pour cela, nous avons utilisé deux absorbants saturables en Cr:YAG que nous avons placé dans la cavité. Le premier absorbant possède une transmission initiale en simple passage T_0 de 85% et le second de 80%. Dans le but de connaître le nouveau comportement du laser après avoir inséré l'absorbant

saturable ayant une transmission de 85% (dans un premier temps) dans la cavité, nous avons refait le même type de mesure que pour la Figure IV-22 (à savoir, la mesure de la puissance en sortie du laser pour différents coupleurs). Nous avons obtenu la même tendance que sans absorbant saturable, voir la Figure IV-24 ci-dessous.

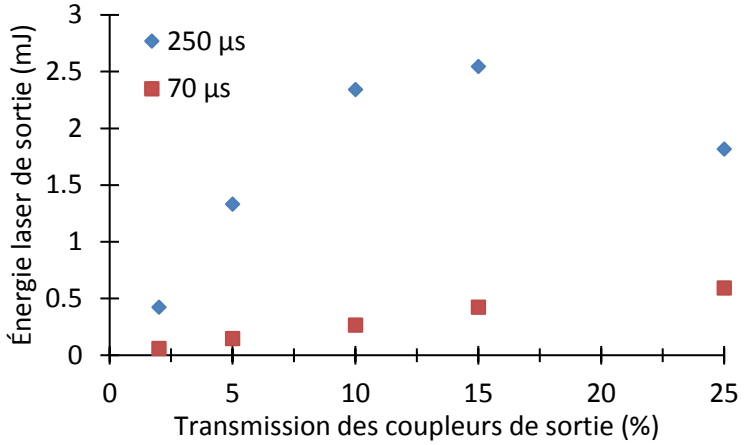


Figure IV-24 : Énergie laser pour une émission multimode transverse pour différentes transmissions des coupleurs de sortie, en régime déclenché. Pompage avec les concentrateurs de 2,5 et 14 mm pendant 250 µs ou 70 µs à 10 Hz, cavité plan-concave (R = 500 mm), absorbant saturable T_0 = 85%, L_{cav} = 80 mm.

Comme pour le régime relaxé, un optimum semble se situer pour un coupleur ayant une transmission autour de 15%. Pendant une durée de pompe de 250 µs, l'absorbant a le temps de saturer à plusieurs reprises (3 à 5 fois selon les pertes introduites par le coupleur utilisé). Ainsi, afin de ne mesurer l'énergie comprise que dans une seule impulsion laser, nous avons réduit la durée de l'impulsion de pompe à 70 µs (voir Figure IV-25).

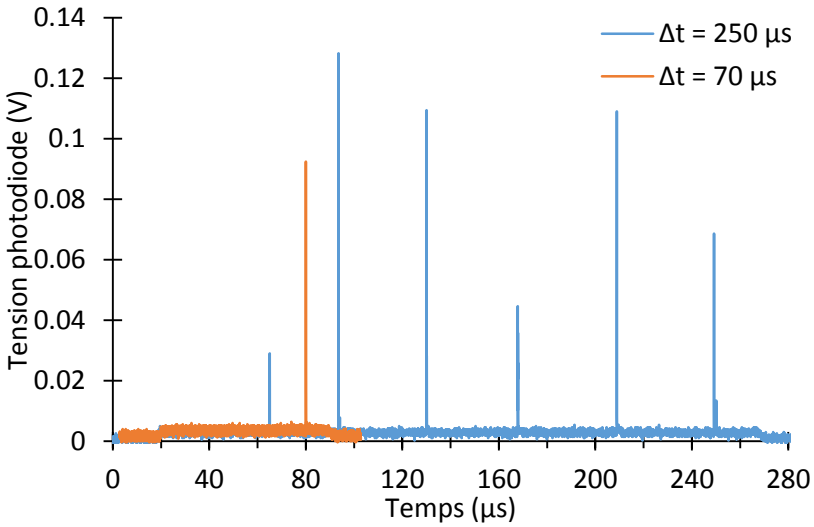


Figure IV-25 : Profil temporel typique des impulsions laser Q-switch pour des durées de pompe différentes. Mesures réalisées avec un oscilloscope Tektronix TDS3032 (bande passante = 300 MHz).

Cette fois-ci, l'énergie augmente graduellement et l'optimum ne semble pas encore atteint. Afin de poursuivre cette caractérisation, nous avons par la suite aligné la cavité de façon à obtenir un mode spatial purement monomode, ceci pour différents coupleurs de sortie et toujours avec une transmission de l'absorbant saturable de 85%.

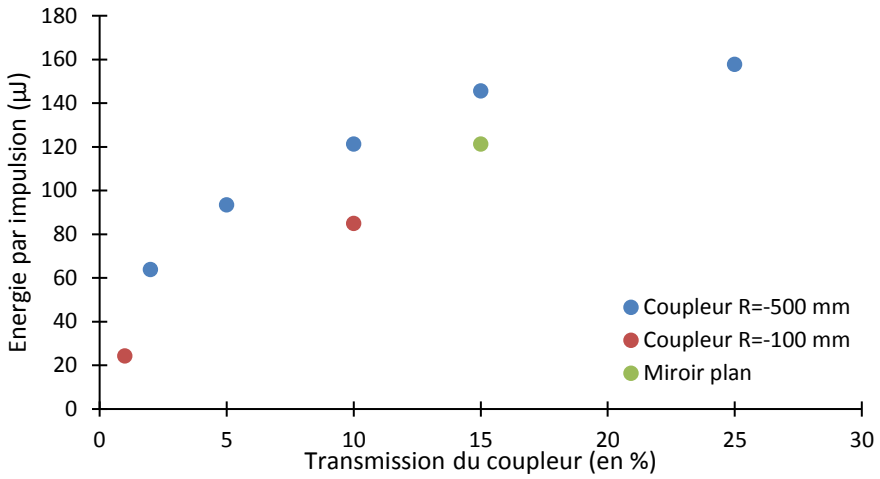


Figure IV-26 : Énergie laser pour une émission monomode transverse pour différents coupleurs de sortie, en régime déclenché. Pompage avec les concentrateurs de 2,5 et 14 mm pendant 80 µs à 10 Hz, absorbant saturable T_0 = 85%, L_{cav} = 80 mm.

On voit ainsi que les meilleures performances sont obtenues avec le coupleur de sortie concave ayant un rayon de courbure de 500 mm. Malheureusement, pour ce rayon de courbure, nous n'avions pas de coupleur avec une transmission supérieure à 25%. Ainsi, pour augmenter les pertes et espérer avoir des énergies plus grandes, nous avons utilisé l'absorbant saturable ayant une transmission initiale T_0 de 80%.

Ainsi, avec ce nouvel absorbant, nous avons obtenu le meilleur résultat avec le coupleur ayant une transmission de 10%. Cette configuration nous a permis d'extraire jusqu'à 263 µJ dans des impulsions de 33 ns, correspondant à une puissance crête de 8 kW. La bande passante (de 300 MHz) de l'oscilloscope utilisé (Tektronix 3032) étant trop faible pour assurer un bon échantillonnage des impulsions, nous avons utilisé un analyseur de spectre optique. Voici ci-dessous les profils temporel et spatial de ces impulsions.

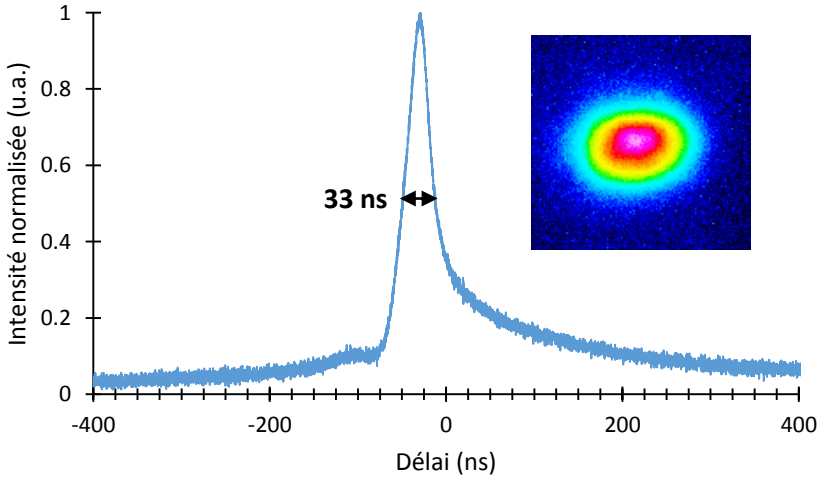


Figure IV-27 : Profils temporel et spatial de l'impulsion laser monomode transverse, ayant une énergie de 263 µJ. Pompage avec les concentrateurs de 2,5 et 14 mm pendant 250 µs à 10 Hz, absorbant saturable T_0 = 80%, coupleur de sortie T = 10%, R = 500 mm, L_{cav} = 80 mm.

Il est important de noter que notre démonstration n'est pas la première en son genre. En effet, une publication du début des années 1980 (Kuratev 1984) présente, pour la première fois, les résultats d'un laser Nd:YAG pompé par LED fonctionnant en régime impulsionnel à l'aide de déclenchements actifs ou passifs. Kuratev obtint ainsi entre 6 et 10 µJ en utilisant des éléments acouto-optiques et

électro-optiques (pour des durées entre 60 et 100 ns) et 2,5 µJ en déclenchement passif (pour une durée d'impulsion de 35 ns), correspondant à une puissance moyenne de 50 µW. Avec plus de 250 µJ pour des durées d'impulsions identiques et une puissance moyenne de 50 mW, notre démonstration fait état d'énergies 100 fois plus importantes, voire 1 000 fois au regard de la puissance moyenne. Enfin, contrairement à notre système, Kuratev a fait sa démonstration à des températures bien en deçà de la température ambiante, améliorant ainsi les performances globales de son système laser.

Comparons avec les puissances crêtes qu'il est possible d'obtenir aujourd'hui à partir de systèmes laser déclenchés passivement. Il existe deux moyens de générer de fortes puissances crêtes $P_{crête}$, on peut soit augmenter l'énergie laser E_{laser}, soit diminuer la durée des impulsions Δt.

La première catégorie, qui cherche à diminuer la durée des impulsions, est celle des micropuces (ou *microchip* en anglais). Ces composants étant généralement monolithiques pour garantir des longueurs de cavité de quelques mm, permettent d'obtenir des impulsions plus courtes, de l'ordre de quelques dizaines à centaines de picosecondes, pour des énergies rapportées de quelques centaines de µJ, c'est le cas de (Zayhowski 2000) par exemple qui a obtenu 250 µJ dans des impulsions de 218 ps.

Plutôt que de jouer sur la durée des impulsions, le but de la seconde catégorie est d'obtenir les énergies les plus élevées possibles. Pour cela, l'utilisation de cavités laser étendues avec des cristaux de taille centimétrique sera privilégiée. Les longueurs de cavité étant bien plus grandes que précédemment, les durées d'impulsion obtenues seront plutôt de l'ordre de la dizaine de ns. En contrepartie, de fortes énergies peuvent être extraites de ces systèmes, de l'ordre de plusieurs dizaines de mJ (Lee et al. 2012; Lebedev et al. 2014; Zendzian, Kaskow, and Jabczynski 2014; Adnan et al. 2016).

Ces pompages laser sont certes plus performants (ces deux technologies permettent d'obtenir des puissances crêtes de l'ordre de plusieurs MW) mais potentiellement plus chers, du fait de l'utilisation de puissantes diodes de pompage.

IV.3.4 Preuve de concept sur le Ti:saphir

IV.3.4.a Montage expérimental

L'objectif le plus ambitieux de cette thèse est très probablement le fait de vouloir faire laser un cristal de Ti:saphir avec un pompage par LED. Nous avons vu que les simulations nous permettent d'espérer un gain théorique maximal d'environ 1,15. Nous avons voulu relever expérimentalement ce défi.

Pour cela, de façon analogue aux autres milieux à gain, nous nous sommes procurés deux cristaux de saphir dopés au titane ayant des dimensions adaptées à la tête de pompage (1 x 2,5 x 14 mm^3), ayant toutes leurs faces polies et ayant cette fois-ci, un dopage de 0,25 at.%. Un traitement AR autour de 800 nm et un traitement dichroïque HR 800 nm + HT 550-650 nm ont été appliqués sur les faces laser (1 x 2,5 mm^2) du cristal de Ti:saphir.

Compte tenu de la difficulté, nous avons mis en place un montage spécifique utilisant un laser auxiliaire (un Verdi de Coherent émettant jusqu'à 6,5 W à 532 nm). Ce laser a plusieurs rôles. Tout d'abord, il nous sert de laser d'alignement et nous permet donc d'aligner la cavité laser par autocollimation. Ensuite, il nous sert à valider la qualité du cristal (par l'effet laser). Le cristal de Ti:saphir étant pompé transverse, il y aura plus de gain d'un côté du cristal que de l'autre. Ainsi, nous pouvons même explorer un peu plus en détail la qualité cristalline d'une part, mais également la qualité du traitement dichroïque d'autre part ; ceci afin de déterminer quel côté est le plus apte à être pompé (dans le cas où le cristal serait inhomogène). De la même manière, nous avons choisi nos composants (cristal + miroirs) ainsi que la position dans le cristal de façon à minimiser le seuil laser obtenu avec le Verdi. Enfin, nous verrons que ce laser nous permet également de quantifier la contribution des LEDs parmi le gain total du laser.

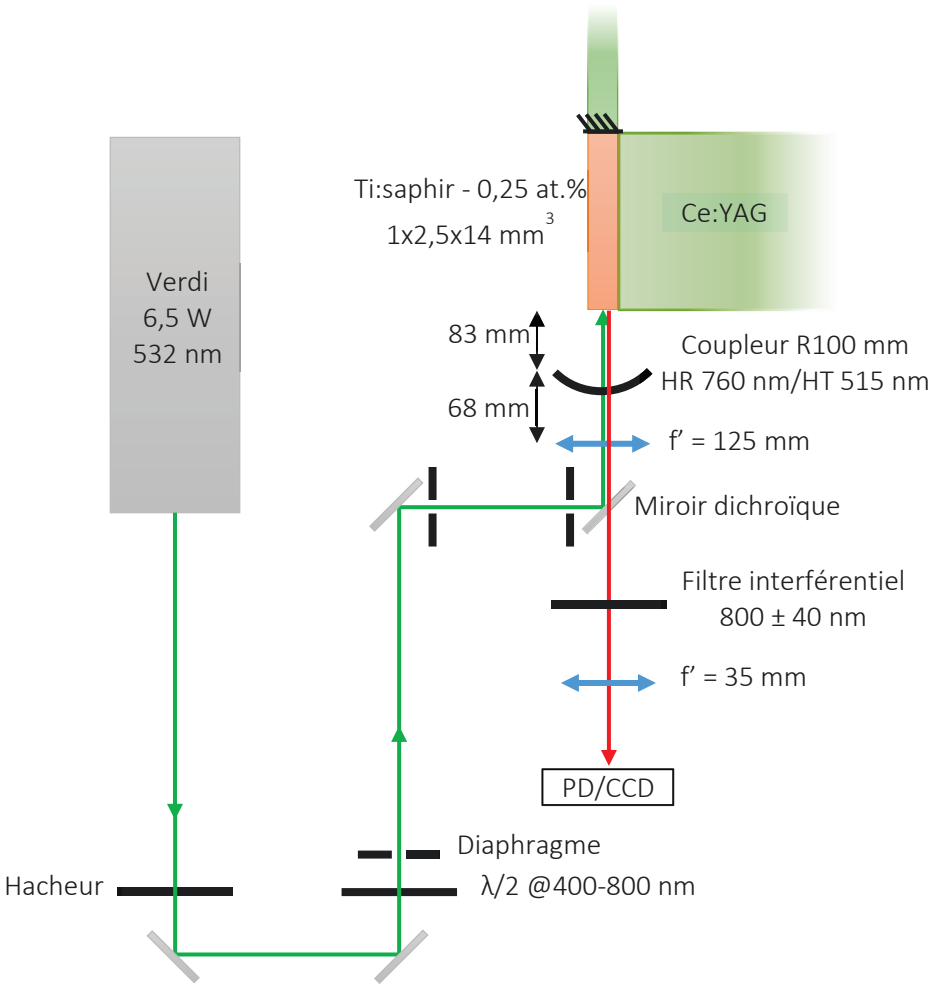


Figure IV-28 : Montage expérimental du laser Ti:saphir pompé par LED assisté d'un Verdi, PD = photodiode.

Nous avons placé un hacheur en sortie du Verdi afin de réduire la puissance moyenne de pompe (et donc l'échauffement dans le cristal). Ce hacheur nous permet d'obtenir des impulsions de pompe de 230 µs à une fréquence de 33 Hz. Une lame demi-onde nous permet de régler la polarisation du laser de pompe afin de maximiser son absorption par le cristal de Ti:saphir. Plusieurs diaphragmes sont disposés à divers endroits pour faciliter aussi bien l'alignement du faisceau de pompe que sa réflexion sur les différentes optiques pour l'aligner par autocollimation la cavité. Plusieurs miroirs de transport et un miroir dichroïque permettent d'amener la pompe jusqu'au milieu à gain tout en extrayant le signal une fois la cavité laser alignée. Une lentille convergente de 125 mm de focale permet d'imager le faisceau de pompe dans le cristal sur un diamètre compris entre 150 et 200 µm. La cavité laser est formée de la face du cristal ayant le traitement dichroïque décrit précédemment et d'un coupleur de sortie concave ayant un rayon de courbure de 100 mm étant HR à 760 nm et HT à 515 nm. Après propagation à travers toutes les optiques, la puissance maximale du Verdi disponible à l'entrée du cristal est de 5,2 W (pour une puissance de consigne de 6,5 W). Une lentille de 35 mm nous permet d'imager le signal laser sur une caméra ou une photodiode pour réaliser les mesures des profils temporel et spatial. Enfin, un filtre interférentiel nous permet d'éliminer la pompe résiduelle restant après le miroir dichroïque.

IV.3.4.b Résultats laser

Résultats des seuils

Malgré les précautions expérimentales mises en place, nous n'avons pu réussir à obtenir un effet laser en pompant uniquement par les LEDs. Par conséquent, pour essayer de quantifier l'apport des LEDs dans le pompage, nous avons décidé d'utiliser le Verdi, seul, dans un premier temps et de noter la puissance au seuil $P_{Verdi\ seul}$. Puis, dans un second temps, lorsque l'effet laser est obtenu, nous allumons les LEDs. La contribution des LEDs permet d'abaisser le seuil et donc la puissance du Verdi nécessaire pour atteindre ce dernier. La puissance apportée par les LEDs peut donc s'exprimer en fonction de celle du Verdi : $P_{LED} = P_{Verdi\ seul} - P_{Verdi+LED}$, correspondant à un gain laser simple passage que l'on peut exprimer en fonction de la puissance :

$$G_{LED} = e^{g_{LED}L} = e^{KP_{LED}} = e^{K(P_{Verdi\ seul} - P_{Verdi+LED})} \qquad Eq.\ IV\text{-}2$$

où K est une constante comprenant l'expression du gain linéique g_{LED} (à l'exception de la puissance de pompe) et la longueur du cristal L. Pour déterminer la constante K, une étape de calibration est nécessaire. Nous nous servons de la valeur de seuil mesurée lorsque seul le Verdi pompe le cristal pour étalonner notre système.

Ainsi, en pompant avec la configuration de la Figure IV-28, c'est-à-dire avec des durées d'impulsions issues des concentrateurs (de 2,5 mm et de 14 mm) de 15 µs et de 230 µs en sortie du hacheur, voici à quoi ressemble le créneau de pompe :

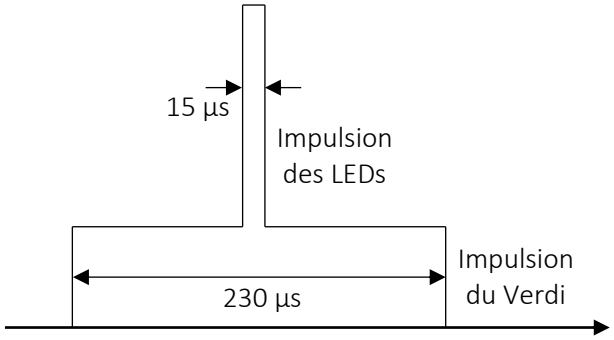


Figure IV-29 : Schéma des impulsions de pompe.

Ceci nous a permis de mesurer les seuils suivants :

Courant LED (A)	$P_{crête,LED}$ (W)	Énergie sortie Ce:YAG (mJ)	P_{Verdi} à fournir (W)	G_{LED}
0	0	0	3,67	1,000
1	1,3	4,3	3,25	1,004
2	2,1	7,8	2,99	1,007
3	2,8	10,6	2,80	1,009
4	3,5	12,8	2,64	1,010
5	4,1	14,8	2,48	1,012
6	4,6	16,6	2,37	1,013
7	5,0	18,1	2,28	1,014

Tableau IV-5 : Gain laser apporté par les LEDs en pompant un cristal de Ti:Al_2O_3 avec des durées d'impulsion de 15 µs et 230 µs.

Ainsi, au courant maximal, les LEDs parviennent à abaisser la puissance nécessaire à fournir de la part du Verdi de 3,67 W à 2,28 W, soit 1,4 W. Ceci correspond à un gain laser d'environ 1,4%, alors que les pertes estimées sont plutôt de l'ordre de 8% (la FOM du cristal est spécifiée pour être supérieure

à 250, ce qui correspond à environ 2,5% de pertes en simple passage sur 14 mm, une transmission du coupleur de sortie de 1,5% et une réflexion du traitement dichroïque sur la face laser du cristal de 99,5%). Ainsi, nous pensons qu'il faudrait une puissance 2,5 plus grande environ pour atteindre le seuil laser uniquement avec les LEDs. Ceci est envisageable en choisissant un cristal de Ti:saphir un peu plus dopé, pour absorber toute la pompe en un seul passage, ce qui permettrait de pomper transversalement des deux côtés et multiplier ainsi la puissance de pompe par 2.

Enfin, outre les améliorations que l'on pourrait apporter aux concentrateurs, il serait possible de combler la puissance manquante en améliorant la gestion de la thermique au sein du cristal. En effet, afin de recycler le plus de pompe possible et maximiser son absorption, nous avons disposé un diffuseur en papier autour du cristal laser, dégradant probablement de façon conséquente son refroidissement (d'où un fonctionnement à une fréquence de répétition faible, ici 33 Hz). On peut voir avec la Figure IV-30 ci-dessous, que dans l'hypothèse où le cristal est très bien refroidi (maintenu à température ambiante), il serait possible d'atteindre des gains laser de plusieurs pourcents.

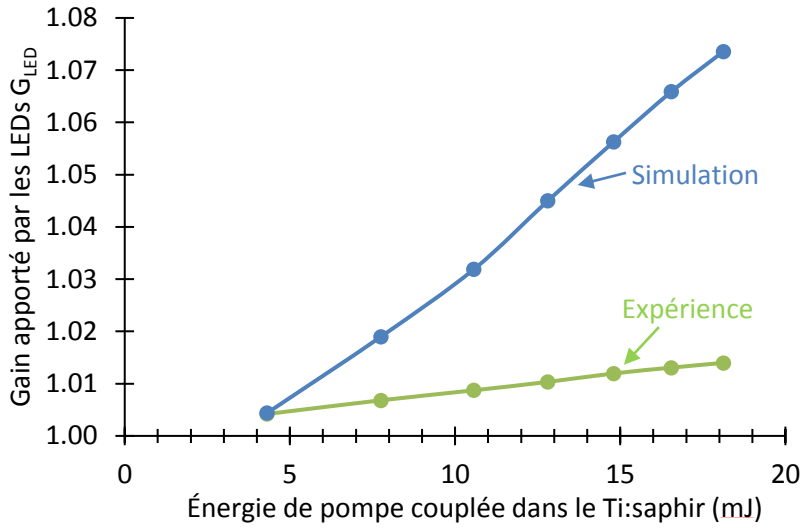


Figure IV-30 : Comparaison théorique et expérimentale du gain laser apporté par les LEDs en fonction de l'énergie de pompe en sortie des concentrateurs en Ce:YAG.

Cependant, si dorénavant nous considérons une augmentation linéaire de la température avec l'énergie de pompe, ce gain théorique diminue fortement jusqu'à atteindre 1% pour des élévations de température d'environ 90 à 100 °C. Cette élévation de température est prise en compte dans l'expression du gain linéique (voir Eq. IV-3) par la diminution du temps de vie τ des ions Ti^{3+}. Ce phénomène, appelé *temperature quenching*, a été étudié par (Moulton 1986). Ainsi, l'évolution de ce temps de vie est basée sur cette étude.

$$g_0(0,0,z) = \sigma_{el}.\boldsymbol{\tau}(\boldsymbol{\Gamma}) \int_{\lambda_{p1}}^{\lambda_{p2}} \frac{n_t}{hc}.\sigma_{ap}(\lambda_p).\lambda_p.\frac{dE_p(0,0,z)}{d\lambda_p}.d\lambda_p.\left(1 - e^{-\frac{\Delta t_p}{\tau}}\right) \qquad \textit{Eq. IV-3}$$

Où Γ est la température du cristal de Ti:saphir.

Résultats temporels

L'électronique de contrôle permet de faire au minimum des impulsions de 15 µs (ce qui correspond à 5 fois le temps de vie du Ti:saphir, soit 99% de la valeur maximale du gain). En sortie du hacheur, le Verdi délivre des impulsions de 230 µs. Ainsi, pour synchroniser le pompage entre le Verdi et les LEDs, ces dernières étaient déclenchées par une horloge externe (un générateur de délai Stanford DG645). Voici ce que l'on pouvait mesurer temporellement :

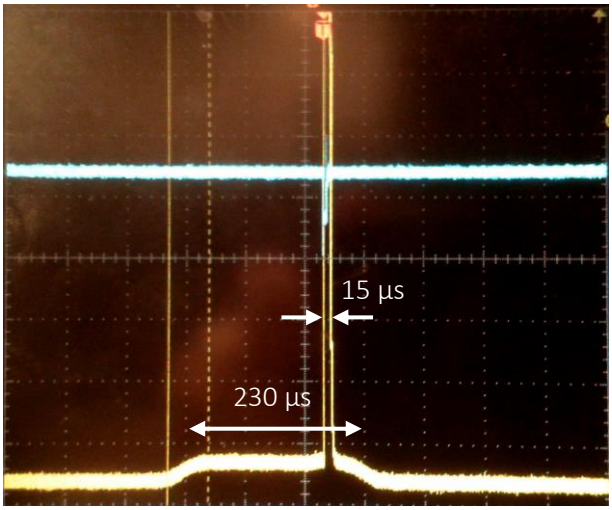


Figure IV-31 : Signal temporel de l'impulsion laser en sortie du laser Ti:saphir.

Nous pouvons constater que la puissance crête délivrée par les concentrateurs Ce:YAG est bien plus grande que celle délivrée par le Verdi. Ainsi, les LEDs ne permettent pas d'atteindre le seuil. Cependant, l'effet sur le signal laser est parfaitement visible. Expérimentalement, il n'était pas possible, à l'oscilloscope, d'observer à la fois la totalité du pic laser sans « écraser » le signal correspondant au Verdi. Ainsi, la Figure IV-31 ne nous permet pas d'observer proprement l'évolution du signal laser, au sommet de l'impulsion de 15 µs. C'est exactement ce que représente le schéma en Figure IV-32.

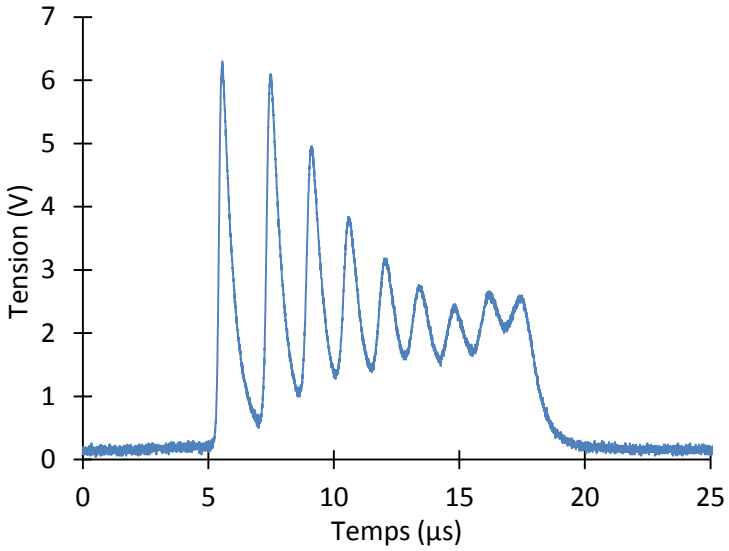


Figure IV-32 : Zoom sur le sommet du profil temporel de l'impulsion laser.

Ainsi, en zoomant sur le profil de l'impulsion, il est possible d'observer les oscillations de relaxation correspondant au mode transitoire du laser (les *spiking* en anglais) lié au pompage par LED.

IV.4 Conclusion et perspectives

Dans un premier temps, nous avons validé notre hypothèse de départ qui consistait à vérifier la faisabilité d'un pompage laser par LED à l'aide d'un concentrateur luminescent en Ce:YAG. Pour illustrer cette démonstration, nous avons réalisé un dispositif de pompage laser utilisant des matrices de LEDs adaptées à la géométrie d'un concentrateur. Nous avons également réutilisé un cristal de $Nd:YVO_4$, cristal qui nous sert de référence et de point de comparaison dans cette thèse car c'est celui avec lequel nous avons obtenu un effet laser en pompage direct par LED. Cette architecture de pompage nous a permis d'obtenir 360 µJ d'énergie laser en sortie et un gain petit-signal en simple passage G_0 de 1,13 (correspondant aux pertes introduites par un coupleur ayant une transmission de 20%).

Suite à cette preuve de principe, nous avons étudié théoriquement quels étaient les cristaux laser qu'il était possible de pomper à partir d'un système à base de concentrateurs en Ce:YAG. Nous en avons sélectionné trois parmi les quatre identifiés. Pour concevoir ces lasers, une nouvelle monture mécanique a été réalisée. De même, de nouvelles LEDs offrant un meilleur taux de remplissage ont été utilisées.

Ainsi, un premier système, dont le milieu à gain est un cristal de $Nd:YVO_4$, nous a permis d'explorer le potentiel de ce dispositif de pompage et de tester différentes configurations de cavités laser. Ces investigations nous ont permis d'obtenir des énergies record en sortie d'un laser $Nd:YVO_4$ pompé par LED. En effet, près de 3 mJ ont été obtenus dans un profil monomode transverse et plus de 6 mJ en sortie d'une cavité plan-plan avec un faisceau faiblement multimode (M^2 de 3 x 1,4). Nous avons observé un effet laser pour des transmissions allant jusqu'à 80%, correspondant à un gain petit-signal G_0 de 2,26 !

Un second système, nous a permis d'obtenir des performances en puissance inédites à partir d'un laser Nd:YAG en régime déclenché passivement à l'aide d'un absorbant saturable en Cr:YAG. En effet, nous avons obtenus 5 mJ en régime relaxé et plus de 260 µJ dans des impulsions de 33 ns (correspondant à une puissance crête de 8 kW) dans un régime de déclenchement passif.

Enfin, grâce à la mise en place d'un montage spécifique, nous avons pu avoir une estimation du gain apporté par les LEDs dans un système laser basé sur un cristal de saphir dopé au titane. Nous avons montré que les LEDs contribuent à l'effet laser (en abaissant le seuil et en augmentant l'énergie de sortie). Un pompage de ce cristal par un autre type de concentrateur (comme le Ce:LuAG par exemple qui présente une bande d'émission plus proche de celle d'absorption du Ti:saphir) permettrait de gagner en efficacité et se rapprocher d'une configuration entièrement pompée par LED.

Différentes pistes d'amélioration sont envisageables. Tout d'abord, nous nous sommes aperçus au cours de nos manipulations, que la colle qui relie tous les cristaux entre eux avait une forte influence sur les performances globales du système, malgré les fines épaisseurs en jeu. Il est important dans la suite du projet de poursuivre une étude afin de trouver une colle qui soit à la fois suffisamment transparente, tout en étant résistante aux fortes températures. Des colles du type NOA164 ou OAD61, non encore testées peuvent s'avérer intéressantes.

Ensuite, différents facteurs peuvent contribuer à l'augmentation de la puissance de sortie. Dans les trois cas testés précédemment, la pompe en sortie du Ce:YAG n'est pas suffisamment absorbée dans le milieu à gain. Utiliser des matériaux avec un dopage plus élevé permettrait de pomper transversalement des deux côtés et de doubler la puissance de pompe, et donc, à efficacité constante, la puissance de sortie. Certaines matrices comme le YAG peuvent avoir des longueurs allant jusqu'à 150 mm. Ainsi, pour augmenter la puissance en sortie du laser, il est tout à fait envisageable de pomper transversalement un milieu à gain plus long. Avec un dopage un peu plus élevé et une longueur 10 fois plus grande (140 mm typiquement), nous pourrions obtenir des énergies en sortie jusqu'à 20 fois plus élevées et atteindre ainsi la centaine de mJ en régime relaxé ou bien la centaine de kW crête en régime déclenché. Aussi, nous avons vu que l'efficacité des concentrateurs augmentait avec la largeur. Nous pourrions donc imaginer des concentrateurs aussi larges que la longueur du milieu à gain.

Enfin, il est envisageable de pomper d'autres cristaux avec le Ce:YAG. C'est le cas de l'alexandrite qui présente une large bande d'émission ou bien du rubis.

BIBLIOGRAPHIE CHAPITRE IV

Adnan, N.N., N. Bidin, N.A.M. Taib, H. Haris, M. Fakaruddin, A.M. Hashim, G. Krishnan, and S.W. Harun. 2016. "Passively Q-Switched Flashlamp Pumped Nd:YAG Laser Using Liquid Graphene Oxide as Saturable Absorber." *Optics & Laser Technology* 80. Elsevier: 28–32.

Barbet, Adrien, Amandine Paul, Thomas Gallinelli, François Balembois, Jean-Philippe Blanchot, Sébastien Forget, Sébastien Chénais, Frédéric Druon, and Patrick Georges. 2016. "Light-Emitting Diode Pumped Luminescent Concentrators: A New Opportunity for Low-Cost Solid-State Lasers." *Optica* 3 (5): 465.

Délen, Xavier. 2013. "Amplificateurs Laser À Cristaux Massifs Pompés Par Diode : Fibres Cristallines Yb:YAG et Cristaux Nd:YVO4."

Délen, Xavier, François Balembois, and Patrick Georges. 2011. "Temperature Dependence of the Emission Cross Section of Nd:YVO4 around 1064 Nm and Consequences on Laser Operation." *J. Opt. Soc. Am. B* 28 (5): 972–76.

Huang, Kuan-Yan, Cheng-Kuo Su, Meng-Wei Lin, Yu-Chung Chiu, and Yen-Chieh Huang. 2016. "Efficient 750-Nm LED-Pumped Nd:YAG Laser." *Optics Express* 24 (11): 12043.

Kuratev, L. I. 1984. "Solid-State Lasers with Semiconductor Pumping." *Izvestiya Akademii Nauk SSSR. Seriya Fizicheskaya* 48 (8): 1564.

Lebedev, V. F., a. P. Pogoda, S. N. Smetanin, a. S. Boreisho, and a. V. Fedin. 2014. "Generation Regimes of a Pulsed Nd:YAG Laser with Transverse LED Pumping and Multiloop Self-Pumped Phase-Conjugate Cavity." *Technical Physics* 59 (12): 1844–48.

Lee, Kangin, Hyeon Cheor Lee, Joon Yong Cho, Jae Cheul Lee, and Jonghoon Yi. 2012. "Passively Q-Switched, High Peak Power Nd:YAG Laser Pumped by QCW Diode Laser." *Optics and Laser Technology* 44 (7). Elsevier: 2053–57.

Moulton, Peter F. 1986. "Spectroscopic and Laser Characteristics of Ti:Al203." *J. Opt. Soc. Am. B* 3 (1): 125–33.

Villars, Brenden, E. Steven Hill, and Charles G Durfee. 2015. "Design and Development of a High-Power LED-Pumped Ce:Nd:YAG Laser." *Optics Letters* 40 (13): 3049–52.

Walling, J. C., H P Jenssen, R C Morris, E W O'Dell, and O G Peterson. 1979. "Tunable-Laser Performance in BeAl(2)O(4):Cr(3+)." *Optics Letters* 4 (6): 182–83.

Zayhowski, J.J. 2000. "Passively Q-Switched Nd:YAG Microchip Lasers and Applications." *Journal of Alloys and Compounds* 303–304: 393–400.

Zendzian, Waldemar, Mateusz Kaskow, and Jan K. Jabczynski. 2014. "Diode-Pumped, Actively Q-Switched Nd:YAG Laser with Self-Adaptive, Reciprocal, Closed-Loop Resonator." *Optics Express* 22 (25): 30657.

Zverev, Gm, Gy Kolodnyi, and Am Onishchenko. 1971. "Nonradiative Transitions between Levels of Trivalent Rare Earth Ions in Yttrium Aluminum Garnet Crystals." *Sov. Phys. JETP* 33 (3): 497.

CHAPITRE V :

Conclusion générale et perspectives

V. CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

V.1 Bilan des travaux

Dans le Chapitre I, nous avons analysé les différents systèmes laser réalisés aussi bien dans les débuts du laser qu'à nos jours. Les améliorations constantes de la technologie des LEDs permettent aujourd'hui de revisiter complètement le pompage par LED, avec des matériaux pompés tels que des polymères, des fibres, des cristaux ou encore des semi-conducteurs. Les différentes configurations des LEDs (CC, FC, VTF, TFFC) ont contribué à l'augmentation de l'extraction de la lumière émise et donc de la puissance des puces. Enfin, les LEDs actuelles émettent un rayonnement pouvant couvrir le visible (au sens large, c'est-à-dire la bande 360 – 940 nm) avec des éclairements typiques de 100 W/cm² lorsqu'elles sont alimentées par un courant d'1 A. Un régime impulsionnel des LEDs permet d'augmenter leur éclairement crête jusqu'à un ordre de grandeur pendant quelques µs.

Le Chapitre II a été le sujet du calcul du gain laser. Nous avons établi comment nous estimions ce paramètre déterminant en utilisant LightTools. Ce logiciel de tracé de rayons nous permet de modéliser une grande diversité de systèmes optiques et d'en déduire l'éclairement de pompe au sein des cristaux laser. Ces différentes simulations nous ont permis d'en déduire quel était le cristal le plus à même de produire un effet laser avec un pompage par LED. Nous avons ainsi choisi le Nd:YVO_4 pour faire nos premiers tests de pompage en direct, à l'aide de trois types de LEDs différentes. Pour cela, un dispositif de pompage sur-mesure a été réalisé, donnant lieu à des énergies laser allant jusqu'à 180 µJ, pour une énergie de pompe de 31,5 mJ, correspondant à une efficacité optique de 0,6%. Ces tests nous ont permis de calibrer nos simulations en étudiant l'influence de certains paramètres comme l'évolution du spectre d'émission des LEDs avec le courant, la distance entre les LEDs et le cristal ou encore le désalignement des LEDs par rapport à ce dernier. Ces travaux constituent, à notre connaissance, la première démonstration d'un laser Nd:YVO_4 pompé par LED. Enfin, nous en avons conclu que pour tenter de pomper d'autres cristaux comme le saphir dopé titane, nous aurions besoin d'une source de pompage avec un éclairement plus élevé.

Nous nous sommes donc attelés à trouver une solution, qui consiste à utiliser des concentrateurs luminescents. Le Chapitre III expose les principes qui permettent à un tel composant optique d'augmenter l'éclairement d'une source incidente. Après avoir présenté les critères auxquels il faut prêter attention pour concevoir des concentrateurs efficaces, nous avons sélectionné le Ce:YAG qui peut être pompé par LED et qui est adapté au pompage laser. La grandeur appropriée pour quantifier le pouvoir concentrateur se nomme le coefficient de concentration C_{LED}. Nous avons mesuré des coefficients de concentration dans l'air pouvant aller jusqu'à 19 (c'est-à-dire que l'éclairement en sortie du concentrateur est 19 fois plus élevé que l'éclairement incident). De plus, des éclairements en sortie (toujours dans l'air) jusqu'à 3,5 kW/cm² ont été mesurés. Nous avons également montré qu'il est possible d'augmenter l'efficacité d'un concentrateur en choisissant un matériau d'indice adapté en sortie du concentrateur. Ainsi, en accolant un matériau d'indice 1,5 à la face de sortie du concentrateur, nous estimons que ses performances sont améliorées d'un facteur 2,5. Ces sources de lumière viennent combler le manque qui existe entre les LEDs (quelques centaines de W/cm²) et les diodes laser (de quelques kW/cm² à plusieurs dizaines de kW/cm²).

La quatrième partie de cette thèse se concentre sur la réalisation de systèmes laser pompés indirectement par des concentrateurs en Ce:YAG. Pour valider le concept, nous avons conçu un dispositif de pompage comprenant 650 LEDs pour une puissance crête totale d'environ 1 kW. Cette validation s'est faite sur notre cristal de référence qu'est le Nd:YVO_4. Elle nous a permis de nous confronter aux différentes difficultés que pouvaient entrainer cette nouvelle source de pompage

(comme un éclairement de pompe relativement faible ou encore une émission lambertienne). Étant mieux préparés, nous avons pu concevoir un dispositif de pompage optimisé, plus puissant afin de tenter d'obtenir un effet laser avec des cristaux comme le saphir dopé titane. Ce nouveau système est capable de délivrer pas moins de 6 kW de puissance optique (crête) puisqu'il est composé de près de 1 500 LEDs. Nous avons ainsi obtenu jusqu'à 6 mJ d'énergie en sortie d'un laser Nd:YVO_4 avec un profil multimode et près de 3 mJ en monomode. Un laser basé sur un cristal de Nd:YAG nous a permis quant à lui d'obtenir 5 mJ d'énergie de sortie. Un régime impulsionnel déclenché passivement à l'aide d'absorbants saturables a également été obtenu. Nous avons mesuré des énergies allant jusqu'à 260 µJ dans des impulsions de 33 ns, menant à des puissances crêtes inédites pour un système pompé par LED de 8 kW. Enfin, à l'aide d'un montage spécifique, nous avons pu obtenir une estimation expérimentale du gain en pompant par LED un laser à saphir dopé titane. Cette estimation s'élève à environ 1%.

En conclusion, ce n'est pas moins de 7 dispositifs laser qui ont été réalisés au cours de cette thèse (3 en pompage direct et 4 en indirect). Voici résumées dans le tableau suivant leurs principales caractéristiques et performances.

Dispositifs laser		Nombre de LEDs en jeu	Puissance de pompe crête totale (W)	Énergie de sortie (µJ)
Cristal	Pompage			
Nd:YVO_4	LED ambre	36	23	11,7
Nd:YVO_4	LED IR	36	74	40
Nd:YVO_4	LED Z PC Amber	60	315	180
Nd:YVO_4	Ce:YAG 9 mm	350	665	360
Nd:YVO_4	Ce:YAG 2,5 mm + 14 mm	1 440	5 040	6 100
Nd:YAG	Ce:YAG 2,5 mm + 14 mm	1 440	5 040	5 000
Ti:saphir	Ce:YAG 2,5 mm + 14 mm	1 440	7 200	-

Tableau V-1 : Caractéristiques principales des dispositifs laser réalisés.

Nous voyons ainsi qu'en trois ans, la technologie des LEDs et l'utilisation des concentrateurs permettent de multiplier le nombre de LEDs participant au pompage et donc la puissance crête à disposition. Ceci nous a permis de multiplier par 500 l'énergie de sortie entre le premier système laser que nous avons conçu et le dernier.

V.2 Perspectives

Outre une série de résultats, ces trois années de travail ont engendré plusieurs pistes d'investigation et d'amélioration.

Parmi les investigations possibles, l'étude d'un laser utilisant un cristal d'alexandrite serait probablement la première d'entre elles. Les simulations prévoient un gain laser plus important qu'avec le Ti:saphir, ce qui permettra peut-être d'obtenir un effet laser avec un pompage par LED uniquement. Ce cristal est intéressant car il présente également une bande large d'émission (700 – 820 nm environ, voir Annexe 5) ainsi qu'une large bande d'absorption dans le visible. Différentes applications utilisent ce cristal comme le détatouage ou encore l'imagerie médicale photoacoustique. De plus, à l'heure actuelle, les diodes laser rouges ont des efficacités bien inférieures à celles dans le proche infrarouge.

Avec les concentrateurs comme source de lumière de forte luminance, nous pouvons non seulement nous intéresser à d'autres matériaux cristallins avec un seuil laser élevé, mais également à d'autres milieux à gain. Il serait tout à fait envisageable, en imaginant une architecture adaptée, de pomper des semi-conducteurs ou des fibres optiques par exemple.

Concernant les améliorations, elles sont nombreuses, nous pouvons les regrouper en trois catégories (voir Figure V-1) : celles portant sur les concentrateurs, sur le milieu adaptateur d'indice et sur les cristaux et cavités laser.



Figure V-1 : Regroupement des pistes d'amélioration en 3 parties : 1) concentrateurs, 2) milieu adaptateur d'indice et 3) matériau et cavité laser.

Ces pistes d'amélioration sont regroupées dans le tableau suivant et détaillées dans la suite.

Groupe	Composant(s)	Suggestion d'amélioration
1	Concentrateurs	Géométrie optimisée (h = 0,5 mm, L > 100 mm)
	Concentrateurs	Améliorer η_{extr} (frustration RTI, structures photoniques)
	Concentrateurs	Diversité des concentrateurs (cristaux laser, boites quantiques)
2	Colle	Trouver des colles haut indice et résistantes aux hautes températures
3	Cristal laser	Améliorer η_{exc} en recyclant la pompe non-absorbée
	Cavité laser	Architectures plus complexes (plusieurs passages dans milieu à gain)
	Laser déclenché	Utilisation d'AOM/EOM ou de cavités ultra-compactes (collage des AS)

Tableau V-2 : Résumé des pistes d'amélioration suggérées. AS = Absorbant saturable.

Plusieurs pistes d'amélioration sont envisageables pour les concentrateurs. Nous pourrions encore améliorer le pouvoir de concentration en adaptant la géométrie. Les limites technologiques acutelles permettent d'obtenir des concentrateurs de 0,5 mm d'épaisseur, multipliant ainsi le facteur de concentrateur par un facteur 2. Des longueurs supérieures à 100 mm doivent également être atteignables. L'efficacité d'extraction peut également être améliorée. Pour cela, il existe au moins deux solutions : la première basé sur la frustration de la RTI à l'interface S_{sortie} et la seconde sur l'utilisation de structures photoniques guidant la lumière préférentiellement dans une direction. Enfin, augmenter la diversité des concentrateurs permettrait d'offrir un choix de sources lumineuses couvrant une bande spectrale plus large. Pour ce faire, il serait envisageable d'utiliser des matériaux laser comme concentrateurs ou bien des matériaux à base de boites quantiques, permettant de choisir la longueur d'émission à loisir. Davantages de détails sur ces propositions sont disponibles en Annexe 6.

De manière plus générale, je pense que pour les futurs systèmes laser, il est important de se diriger vers des sources émettant dans le proche infrarouge pour gagner en efficacité (dans le cas des matériaux dopés néodyme par exemple). C'est justement une part du travail que doit accomplir le doctorant qui prend la suite de ces travaux. De même, afin de gagner en efficacité, nous pourrions, pour les systèmes laser à venir, nous inspirer des architectures imaginées par (Huang et al. 2016) en concevant une cavité laser avec plusieurs passages dans le milieux à gain. Ceci entrainerait un meilleur recouvrement entre le signal et la pompe en utilisant des zones du cristal pompées non exploitées.

Une piste d'amélioration concernant à la fois les concentrateurs et les cristaux laser, est la recherche d'un matériau d'indice adhéquat. En effet, coller les barreaux entre eux par adhérance moléculaire serait une solution idéale, à l'exception que cela rendrait l'ensemble très fragile. Se tourner vers une solution à base colle comme nous l'avons fait, permet de garder une certaine souplesse (il est facile de changer de cristal si besoin en disolvant la colle dans de l'alcool par exemple). Cependant, il est

important de trouver une colle ayant un indice suffisamment élevé (idéalement, du même ordre de grandeur que le concentrateur et le milieu à gain), mais qui supporte également de fortes températures, de forts éclairements et qui soit suffisamment transparente. En effet, pendant nos expériences, nous avons constaté à plusieurs reprises que certaines colles brulaient parce que leur transmission n'était pas suffisamment élevée, même sur une épaisseur de quelques dizaines de µm. De plus, adopter un protocole de collage précis permettra de gagner en répétabilité et ainsi éviter de trop fortes variations dans les performances laser entre deux collages.

Pour certains matériaux, il arrive que le coefficient d'absorption en jeu soit trop faible pour un pompage transverse (soit à cause d'un dopage limité par l'extinction de fluorescence, soit parce que la largeur du cristal est trop faible). Ainsi, il est important d'imaginer d'autres solutions pour augmenter l'absorption de la pompe dans le milieu à gain. Cela peut aller d'un simple miroir placé à l'autre extrémité du cristal qui réfléchit la pompe non-absorbée à une chambre réfléchissante (comme dans le cas du pompage par flash) ou diffusante. Par exemple, (Villars et al. 2015) ont réussi à multiplier l'absorption de leur barreau de Ce:Nd:YAG d'un facteur 3 à 7 (ils ont utilisé deux types de LED) en plaçant leur cristal et leurs LEDs dans une chambre diffusante faite de teflon. Cette remarque est aussi bien valable pour les cristaux laser que pour les concentrateurs pour absorber encore plus efficacement la lumière des LEDs.

Concernant le laser Nd:YAG que nous avons développé, plusieurs axes peuvent être investigués pour améliorer ses performances. Nous pouvons d'un côté réduire la taille de la cavité au maximum afin qu'elle ne soit limitée que par la taille du milieu à gain. Ceci est possible en collant l'absorbant saturable au milieu à gain et le coupleur de sortie à l'absorbant saturable, comme dans le cas d'un micro-laser d'une certaine façon. Cela demande une qualité d'alignement élevée puisqu'il ne sera plus possible de le modifier après collage. Par ailleurs, il est possible d'utiliser un modulateur acousto ou électro-optique pour déclencher le laser. Cela entrainerait moins de pertes, mais demanderait de fortes tensions d'alimentation. Enfin, une dernière piste serait d'utiliser des coupleurs de sortie ayant des rayons de courbures plus élevés, afin d'obtenir des modes laser plus gros, permettant une meilleure extraction de l'énergie de pompe.

Enfin, dans cette thèse, nous nous sommes particulièrement intéressé à l'exploration du pompage par LED, c'est-à-dire que notre but consistait essentiellement à étudier dans un premier temps si l'effet laser est atteignable avec un cristal donné. Puis, dans un second temps, quelles sont les performances énergétiques (puisque nous utilisons les LEDs en régime impulsionnel) que nous pouvons atteindre, dans l'hypothèse où notre laser est limité seulement par l'éclairement de pompe. C'est pourquoi, pour la plupart des résultats présentés, la fréquence de répétition était limitée à quelques dizaines de hertz afin que l'échauffement thermique ne soit pas un facteur limitant par exemple. Cependant, toujours dans la perspective d'une industrialisation des systèmes laser développés dans cette thèse, il est nécessaire de considérer ces autres facteurs limitants, et en premier lieu la dissipation thermique. En effet, malgré nos faibles cadences de travail, nous avons pu constater dans certains cas l'influence de ce paramètre sur nos performances laser. Ce fut également le cas de (Villars et al. 2015), qui ont certes réussi à extraire jusqu'à 18 mJ de leur système laser, mais par « intermittence ». C'est-à-dire que leur système ne fonctionnait à 10 Hz que pendant quelques secondes avant de l'éteindre pendant plusieurs minutes le temps qu'il se refroidisse, et ainsi de suite. Ainsi, dans le cadre d'une montée en énergie des futurs systèmes, il sera crucial de s'attarder à la qualité du contact thermique entre la mécanique de refroidissement et les cristaux (concentrateur ou laser).

Références bibliographiques :

Huang, K.-Y. et al., 2016. Efficient 750-nm LED-pumped Nd:YAG laser. *Optics Express*, 24(11), p.12043.

Villars, B., Hill, E.S. & Durfee, C.G., 2015. Design and development of a high-power LED-pumped Ce:Nd:YAG laser. *Optics letters*, 40(13), pp.3049–3052.

ANNEXES

ANNEXE 1 – ANALYSE DE L'INDICATRICE DE SORTIE D'UN CONCENTRATEUR LUMINESCENT MASSIF

Cette annexe compare le diagramme d'émission d'une LED avec celui en sortie d'un concentrateur luminescent massif, afin de démontrer qu'un calcul du facteur de concentration basé sur les luminances ou les éclairements est équivalent, dans ce cas bien précis.

Dans le cas de concentrateurs solaires, le raisonnement se fait à partir de l'éclairement car les cellules photovoltaïques étant collées au concentrateur, l'angle d'incidence n'a pas d'importance, tant que tout le flux en sortie est récolté. Cependant, dans le cas du pompage par LED, le but est d'obtenir une source de pompage ayant une plus forte luminance que celle des LEDs. Or, pour un concentrateur luminescent massif, le rayonnement émis par chacune des faces est également lambertien. Pour s'en convaincre, nous avons simulé chacun de ces systèmes sous LightTools. Avec ce logiciel, il est possible de placer un récepteur en sortie d'une source lumineuse afin de déterminer certaines de ses caractéristiques physiques (comme le flux émis par cette source, son éclairement, la longueur d'onde d'émission et en particulier son intensité). Ainsi, il est possible de créer une LED non-lentillée, ayant une taille typique de 1 x 1 mm² (par exemple) et de mesurer son diagramme d'émission (ou indicatrice de sortie). C'est ce qui est représenté à gauche de la Figure A1- 1. Ce diagramme est l'illustration parfaite d'un rayonnement lambertien.

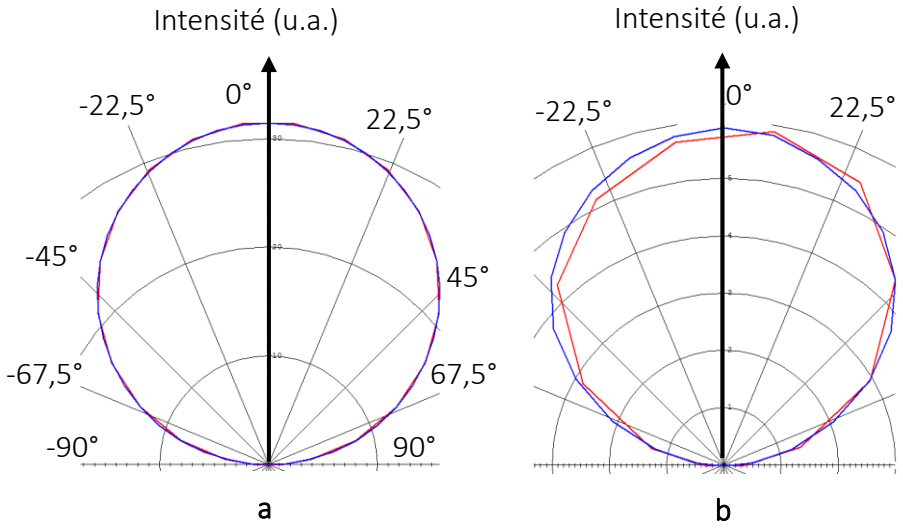


Figure A1- 1 : Diagrammes d'émission (a) d'une LED et (b) d'un concentrateur luminescent, avec en rouge et en bleu les indicatrices dans les directions verticale et horizontale. Simulations obtenues avec LightTools.

Maintenant, si nous créons un concentrateur constitué de millions de petites particules de phosphores sous LightTools, que nous l'illuminons par des LEDs dont leur spectre d'émission est absorbé par ce concentrateur, alors ce concentrateur va réémettre de la lumière et va à son tour devenir une source lumineuse. Comme précédemment, LightTools dispose des outils permettant de caractériser les propriétés physiques de n'importe quelle source. Ainsi, vous avez à droite, le cas (b) qui illustre le rayonnement en sortie d'un concentrateur luminescent parallélépipédique, de dimensions 1 x 2,5 x 100 mm^3. Nous constatons tout d'abord que le rayonnement en sortie du concentrateur est également lambertien. Il y a un léger décalage entre les directions horizontale et verticale qui s'explique par la dissymétrie de la géométrie du concentrateur. Ainsi, dans le cas particulier d'un concentrateur luminescent massif, dire qu'un tel dispositif augmente la luminance d'une LED d'un facteur x revient exactement à dire qu'il augmente son éclairement de ce même facteur x.

Attention, j'insiste bien sur le fait que cette équivalence de raisonnement entre luminance et éclairement n'est valable que dans le cas d'un concentrateur massif, monolithique. Ceci deviendra faux dans le cas d'un concentrateur constitué d'une fine couche de polymère déposé sur un substrat par exemple. Pour avoir plus de détails sur ce sujet, il est possible de consulter un article récemment publié par une équipe anglaise, basé sur une analyse théorique et expérimentale de la distribution angulaire de concentrateurs solaire luminescents (Parel et al. 2015)[22].

[22] Parel, T.S. et al., 2015. Modelling and experimental analysis of the angular distribution of the emitted light from the edge of luminescent solar concentrators. *Optical Materials*, 42, pp.532–537.

ANNEXE 2 – ÉTUDE ANALYTIQUE DES FACTEURS DE CONCENTRATION ET DE LA LUMIÈRE PIÉGÉE DANS UN CONCENTRATEUR

Cette annexe expose certaines réflexions de Sébastien Chénais autour des concentrateurs. L'objectif de cette étude est d'obtenir un outil analytique permettant de donner une approximation raisonnable de la partie de la lumière (réémise) qui est piégée dans un concentrateur, ceci sans aucun présupposé sur la géométrie du concentrateur. Elle apporte également quelques indications sur les facteurs de concentration que l'on peut attendre d'un concentrateur (une fois la géométrie fixée).

Géométrie et notations

Soit un concentrateur parallélépipédique de dimensions (L, l, h) :

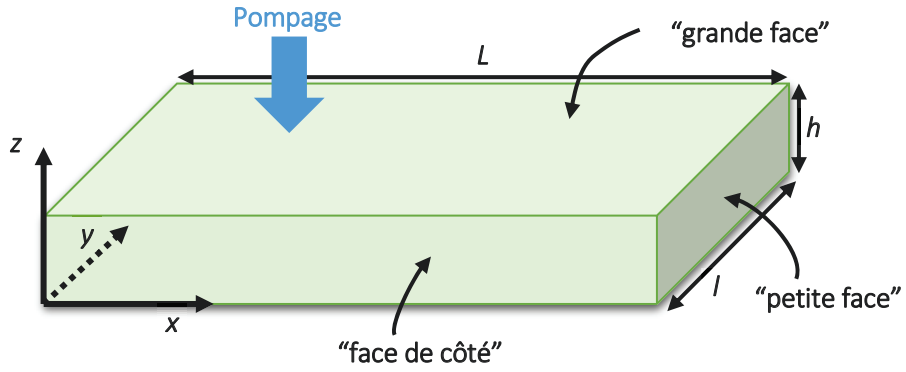


Figure A2- 1 : Géométrie du concentrateur considéré.

Nous nommons les faces de ce concentrateur de la façon suivante :

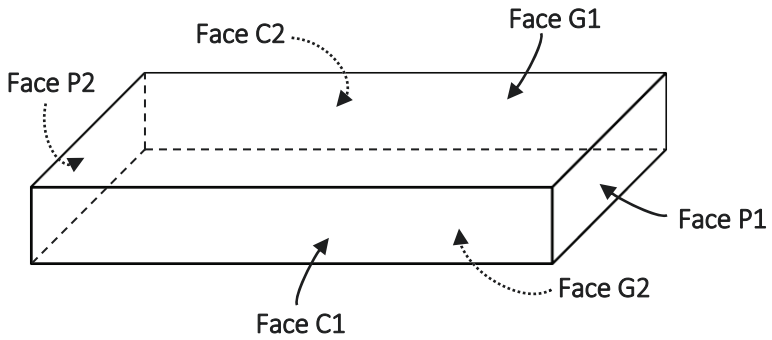


Figure A2- 2 : Dénomination des faces.

Soit n l'indice du concentrateur (milieu supposé isotrope) et n_0 l'indice de son environnement. Nous nous intéressons au flux lumineux sortant par la face P1 : Φ_{P1}.
Nous définissions le facteur de concentration en éclairement C_E comme :

$$C_E = \frac{émittance\ de\ la\ face\ P1}{éclairement\ incident\ sur\ G1} = \left(\frac{\Phi_{P1}}{l.h}\right)\left(\frac{L.l}{\Phi_{G1}^{inc}}\right) = \left(\frac{L}{h}\right)\frac{\Phi_{P1}}{\Phi_{G1}^{inc}} \qquad Eq.\ A2\text{-}1$$

Dans le cas idéal où toute la lumière incidente se retrouverait à sortir par la face P1, on aurait :

$$C_E = (C_E)_{max} = \frac{L}{h} = facteur\ de\ concentration\ géométrique\ G \qquad Eq.\ A2\text{-}2$$

Enfin, nous considérons que la réémission de lumière à l'intérieur du concentrateur est isotrope.

Quelle est la condition pour laquelle les rayons sortent par l'une des 6 faces ou soient piégés ? Pour répondre à cette question, nous allons raisonner en termes de vecteur d'onde. Soit $\vec{k}$ le vecteur d'un rayon lumineux. Nous avons $\vec{k} = n\overrightarrow{k_0}$ avec $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda} n_0 = \frac{2\pi}{\lambda}$.
Tous les rayons existant dans le concentrateur sont donc décrits par un point sur une sphère de rayon k dans l'espace réciproque. On va utiliser les coordonnées sphériques avec correspondant à la plus petite dimension.

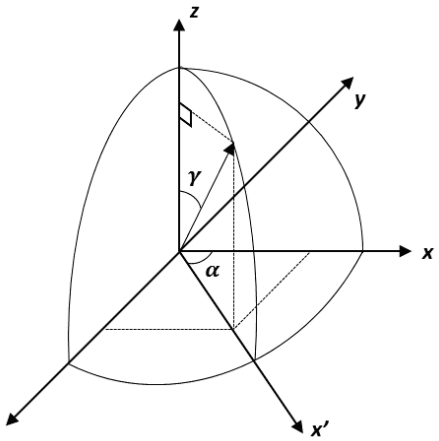


Figure A2- 3 : Repère dans lequel sont définies les coordonnées sphériques.

Les coordonnées de $\vec{k}$ sont donc :

$$\vec{k} = nk_0 \begin{pmatrix} sin\,\gamma\ cos\,\alpha \\ sin\,\gamma\ sin\,\alpha \\ cos\,\gamma \end{pmatrix} \qquad Eq.\ A2\text{-}3$$

Les rayons qui sortent par les grandes faces sont ceux qui sont compris dans le cône de ½-angle α_0 tel que $\alpha_0 = \sin^{-1}(1/n)$.

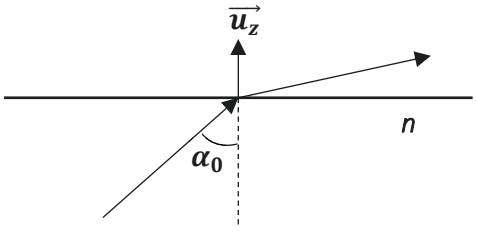


Figure A2- 4 : Angle limite avant réflexion totale interne àl'interface entre l'air et un matériau d'indice n.

De manière générale, les rayons qui sortent, pour un vecteur $\vec{k}$ quelconque dans le milieu d'indice n, incident sur une surface dont la normale est $\vec{n}$, sont les rayons tels que $\alpha < \alpha_0$.

$$\begin{aligned} \left\|\vec{k}.\vec{n}\right\| &\geq nk_0|\cos\alpha_0| \\ &\geq nk_0\sqrt{1-sin^2\alpha_0} \\ &\geq nk_0\sqrt{1-\frac{1}{n^2}} \\ \left\|\vec{k}.\vec{n}\right\| &\geq k_0\sqrt{n^2-1} \end{aligned}$$

Eq. A2-4

Ceci est la condition de sortie d'un rayon $\vec{k}$ incident sur une surface de normale $\vec{n}$.
Ainsi, pour la grande face $\vec{n} = \pm\overrightarrow{u_z}$ et $\vec{k}.\overrightarrow{u_z} = k_z$. La condition devient : $|k_z| \geq k_0\sqrt{n^2-1}$. Il s'agit des points appartenant à la calotte sphérique d'angle solide Ω_{G1} associés aux rayons sortant par la grande face, avec $\Omega_{G1} = 2\pi(1-\cos\alpha_0)$.

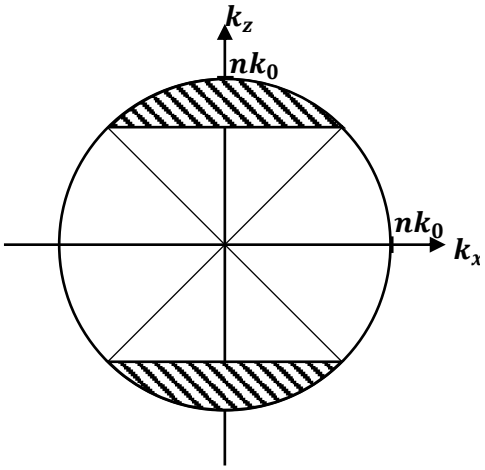


Figure A2- 5 : Calottes sphériques (en hachuré) pour lesquelles les rayons s'échappent.

Le même raisonnement s'applique aux 5 autres faces, indépendamment de leur taille. Par exemple, pour qu'un rayon sorte par la face P1 (celle qui nous intéresse), il faut qu'il ne soit pas réfléchi totalement, soit $|k_x| \geq k_0\sqrt{n^2-1}$, c'est-à-dire $nk_0|sin\,\gamma\,cos\,\alpha| \geq k_0\sqrt{n^2-1}$. Et de la même façon, $|k_y| \geq k_0\sqrt{n^2-1}$.

Pour imaginer à trois dimensions les rayons qui sortent du concentrateur, il faut imaginer l'intersection de la sphère de rayon $k = nk_0$ avec un cube de côté $a = 2k_0\sqrt{n^2-1}$.

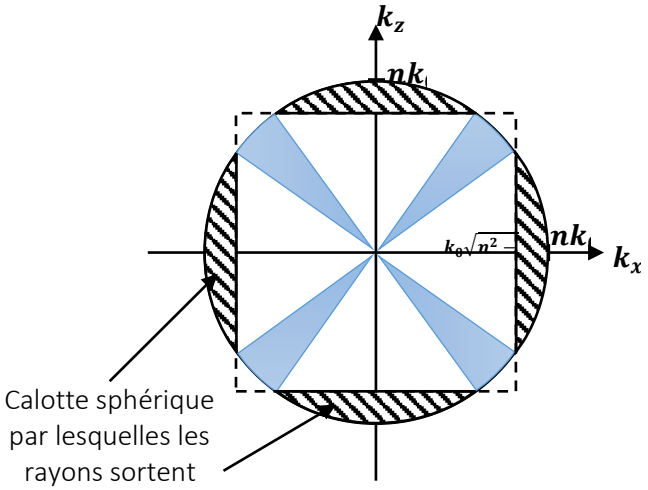


Figure A2- 6 : Coupe à 2D des rayons sortant et piégés.

Les rayons dans la zone bleue correspondent à des vecteurs $\vec{k}\begin{pmatrix}k_x\\k_z\end{pmatrix}$ qui ne peuvent sortir par aucune face car aucune de leur 2 (mais en général 3) composantes n'est assez grande. Ce sont les rayons piégés. Ils correspondent à :

$$\begin{pmatrix}|k_x| \leq k_0\sqrt{n^2-1}\\ |k_y| \leq k_0\sqrt{n^2-1}\\ |k_z| \leq k_0\sqrt{n^2-1}\end{pmatrix} \qquad \textit{Eq. A2-5}$$

Si une seule de ces relations n'est pas vérifiée, il y aura réflexion totale sur les faces pour lesquelles elles sont vérifiées, puis le rayon va sortir.

À deux dimensions

On voit facilement quelle est la condition pour qu'il existe des rayons piégés : il suffit que l'angle de réflexion totale α_0 soit inférieur à 45°.

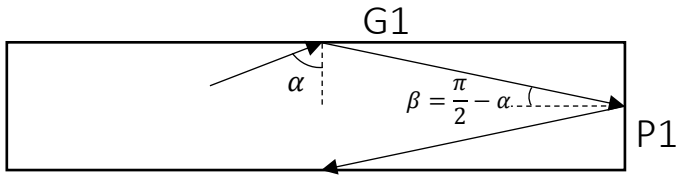


Figure A2- 7 : Condition pour qu'il y ait guidage à 2D.

En effet, si l'angle d'incidence sur la face G1 est α, après réflexion, ce rayon arrive sur P1 avec l'angle $\beta = \frac{\pi}{2} - \alpha$. Il y a piégeage si α et β sont supérieurs à $\alpha_0 = \sin^{-1}\left(\frac{1}{n}\right)$. Ainsi, cela revient à résoudre :

$$\begin{cases}\alpha > \alpha_0\\ \frac{\pi}{2} - \alpha > \alpha_0\end{cases} \Leftrightarrow \begin{cases}\alpha > \alpha_0\\ \alpha < \frac{\pi}{2} - \alpha_0\end{cases} \qquad \textit{Eq. A2-6}$$

Cette condition est vérifiée si $\alpha_0 = \sin^{-1} 1/n < \frac{\pi}{4}$, c'est-à-dire si $n > \sqrt{2}$.

En conclusion, en l'absence d'absorption, il est possible que des rayons soient piégés définitivement dès que l'indice du concentrateur devient supérieur à $\sqrt{2} \approx 1{,}41$. Graphiquement, cela correspond à cette situation (les zones bleues ont été réduites à un trait) :

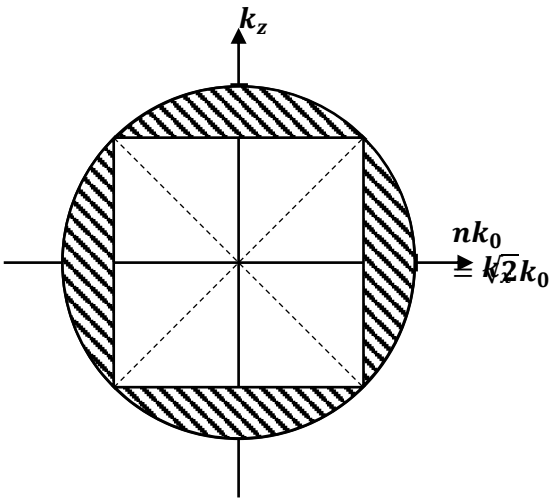


Figure A2- 8 : En 2D, la condition limite pour qu'il y ait des rayons piégés est $n > \sqrt{2}$.

Qu'en est-il à trois dimensions ?

C'est un peu plus difficile à imaginer, en trois dimensions, la situation précédente se schématise de la manière suivante, ce qui permet de mettre en évidence qu'il reste des rayons piégés.

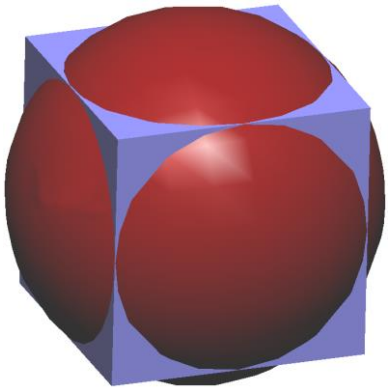


Figure A2- 9 : Représentation en 3D de la sphère de rayon nk_0 avec le cube de côté $2k_0\sqrt{n^2-1}$.

Il n'y aura plus de rayons piégés quand le cube sera totalement inscrit dans la sphère, ce qui arrive lorsque le diamètre de la sphère 2R est égal à la diagonale d du cube : $d = a\sqrt{3}$. Or, nous savons que $R = nk_0$ et $a = 2k_0\sqrt{n^2-1}$.

Nous n'avons donc plus de rayons piégés lorsque :

$$\begin{aligned} d &\leq 2R \\ 2k_0\sqrt{3}\sqrt{n^2-1} &\leq 2nk_0 \\ 4k_0^2(n^2-1)\times 3 &\leq 4n^2{k_0}^2 \\ n^2 &\leq \sqrt{(3/2)} \approx 1{,}22 \end{aligned} \qquad \textit{Eq. A2-7}$$

Dans la pratique, il n'existe pas beaucoup de matériaux pouvant faire office de concentrateur ayant un indice si faible. Ainsi, nous pouvons quasiment conclure qu'il y a toujours des rayons qui sont piégés.

D'accord, mais dans quelle proportion ?

L'angle solide d'une calotte de ½-angle au sommet $\alpha_0 = \sin^{-1}\left(\frac{1}{n}\right)$ est :

$$\begin{aligned} \Omega &= 2\pi(1-\cos\alpha_0) \\ &= 2\pi\left(1-\sqrt{1-sin^2\alpha_0}\right) \\ &= 2\pi\left(1-\sqrt{1-1/n^2}\right) \end{aligned} \qquad \textit{Eq. A2-8}$$

Il y a 6 calottes comme celle-ci (une par face), donc la fraction de rayons piégés vaut :

$$X_{piégé} = 1 - \frac{6\Omega}{4\pi} = 1 - \frac{3\Omega}{2\pi}$$
$$X_{piégé} = 1 - 3\left(1 - \sqrt{1 - \frac{1}{n^2}}\right) \qquad \textit{Eq. A2-9}$$
$$X_{piégé} = \frac{3\sqrt{n^2 - 1} - 2n}{n}$$

On a $X_{piégé} \geq 0$ pour $n \geq 3/\sqrt{5} \approx 1{,}34$. Pourquoi obtient-on un résultat différent du raisonnement avec la diagonale du cube ?
On peut dire que ce qui n'est pas piégé sort par uniquement une des 6 faces, si les calottes ne se chevauchent pas, ce qui est le cas dès que $\alpha_0 < \frac{\pi}{4}$, c'est-à-dire si $n > \sqrt{2} \approx 1{,}41$. En deçà de cette valeur, un même rayon peut sortir par plusieurs faces, ce qui signifie que chaque calotte contribue un peu plus d'une fois au calcul.

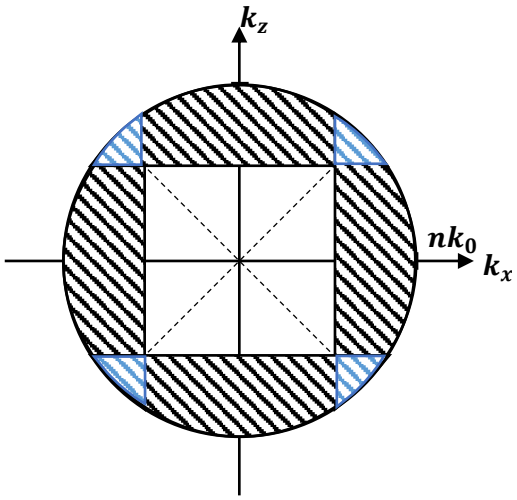
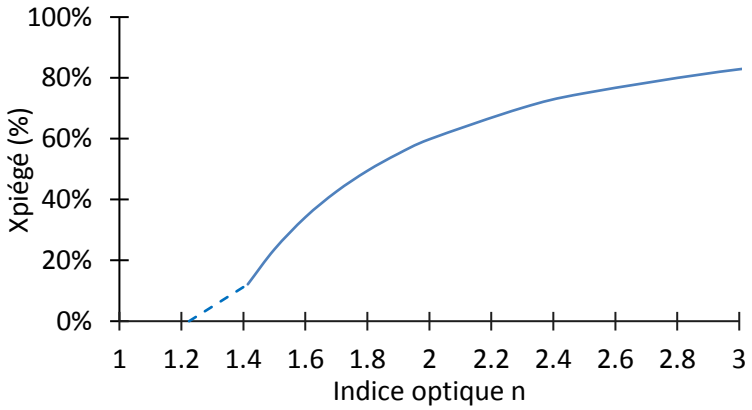


Figure A2- 10 : Lorsque l'indice du concentrateur est inférieur à $\sqrt{2}$, les calottes sphériques finissent par se superposer[23].

Donc la formule $X_{piégé} = \frac{3\sqrt{n^2-1}-2n}{n}$, n'est valable que pour $n \geq \sqrt{2}$. Le calcul analytique pour $1{,}22 < n < 1{,}41$ n'est pas très utile car comme le montre le Tableau III-1 résumant les concentrateurs les plus courants, aucun n'ont un indice optique inférieur à 1,41. Voici à quoi ressemble la tendance :



[23] La calotte dans le plan de la feuille (selon l'axe y) n'est pas dessinée pour plus de lisibilité.

Figure A2-1 : Évolution de la quantité de rayons piégés en fonction de l'indice du concentrateur.

Remarque : tous ces raisonnements sont indépendants de la taille du concentrateur, la seule hypothèse porte sur sa géométrie.

Quelle est le rendement du concentrateur ?
Si nous nous intéressons à la fraction de la puissance qui sort par la face P1, nous avons :

$$\eta = \frac{\phi_{P1}}{\phi_{total\,émis}} = \frac{\Omega}{4\pi}\eta_{PLQY} \quad \text{où } \Omega = 2\pi(1 - cos\,\alpha_0) \qquad \textit{Eq. A2-10}$$

Avec η_{PLQY} le rendement quantique de fluorescence du concentrateur considéré. Approximations faites pour ce calcul : nous négligeons la contribution des réflexions de Fresnel des rayons sortants. En remplaçant α_0 par sa définition en fonction de l'indice, nous obtenons la relation suivante :

$$\eta = \frac{1}{2}\left(1 - \sqrt{1 - \frac{1}{n^2}}\right) \qquad \textit{Eq. A2-11}$$

Voici la représentation graphique :

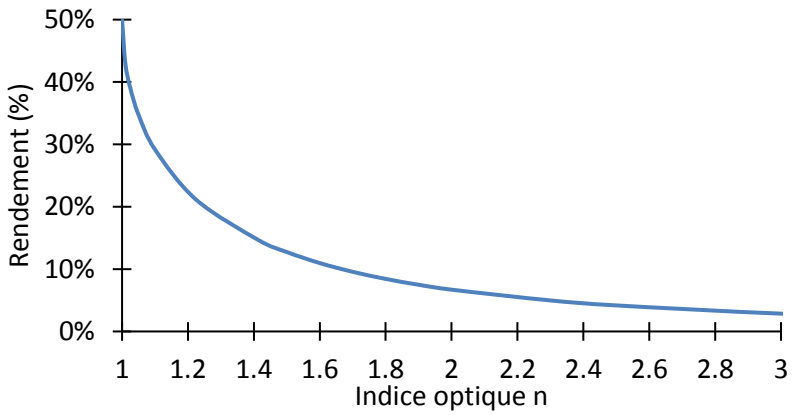


Figure A2-2 : Évolution du rendement optique de la face P1 en fonction de l'indice du concentrateur.

Étant donné que l'on s'intéresse à la face P1, le rendement maximum théorique est 50% (la moitié de la lumière part dans la direction de P1 et l'autre moitié dans celle de P2). Maintenant, si l'on prend un cas pratique tel qu'un concentrateur en Ce:YAG (dont l'indice est 1.83 à la longueur d'onde d'émission centrale et un $\eta_{PLQY} \approx 1$), long de 100 mm et épais d'1 mm, nous obtenons un rendement de 8,1% et un facteur de concentration de 8,1.

Comment récupérer les rayons piégés ?
Cette question est primordiale, car pour le cas du Ce:YAG par exemple, ces rayons piégés peuvent représenter jusqu'à 50% de la totalité des rayons (et donc de l'énergie !).
Idée pour récupérer ces rayons : privilégier une face de sortie en adaptant l'indice à l'interface avec cette face (la face P1 dans notre cas).

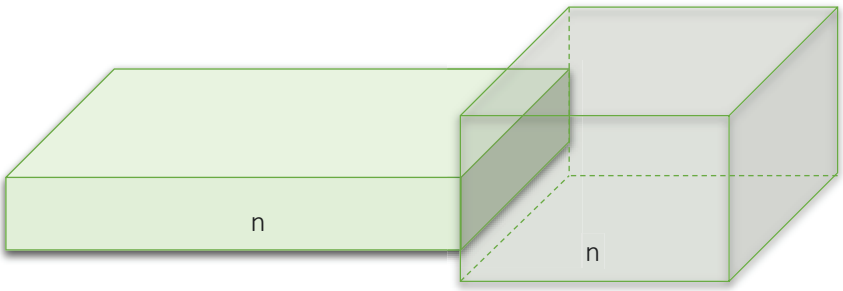


Figure A2- 11 : Juxtaposition d'un matériau d'indice identique à celui du concentrateur (par exemple un cristal laser).

La question est : si on considère un rayon piégé, quelle est la probabilité qu'il rencontre la face P1, face en contact avec une adaptation d'indice ? Le fait est qu'il existe des rayons qu'on ne pourra jamais récupérer. Par exemple, les rayons qui se propagent dans un plan parallèle à la face P1. Face à cette difficulté d'estimer précisément la quantité de rayons récupérables, nous pouvons toujours donner un majorant en imaginant que l'on arrive à récupérer tous les rayons. On obtient ainsi un gain x en facteur de concentration définit comme :

$$x = \frac{rayons\ qui\ sortent\ par\ P1 + rayons\ piégés}{rayons\ qui\ sortent\ par\ P1} \qquad \textit{Eq. A2-12}$$

$$x = \frac{\eta + X_{piégé}}{\eta} = 1 + \frac{X_{piégé}}{\eta} = 1 + \frac{3\sqrt{1 - 1/n^2} - 2}{\frac{1}{2}\left(1 - \sqrt{1 - 1/n^2}\right)} = \cdots = \frac{5\sqrt{n^2 - 1} - 3n}{n - \sqrt{n^2 - 1}} \qquad \textit{Eq. A2-13}$$

Voici l'évolution du gain en fonction de l'indice du concentrateur (pour une adaptation d'indice identique à celle du concentrateur).

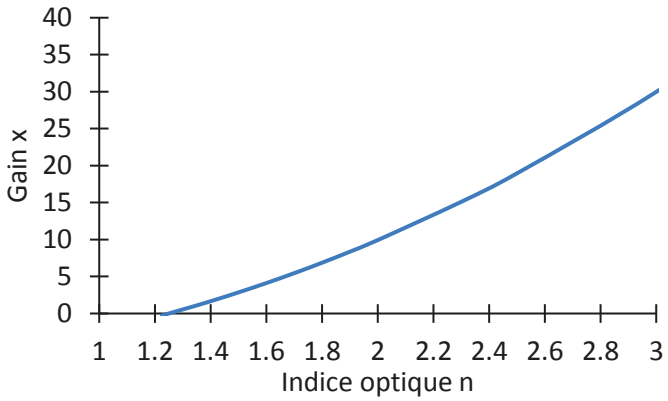


Figure A2-3 : Évolution du gain x apporté par l'adaptation d'indice sur la face P1 en fonction de l'indice du concentrateur.

Ainsi, dans le cas du Ce:YAG, si on respecte l'indice optique entre le concentrateur et le matériau laser, on peut espérer améliorer nos performances jusqu'à un facteur 7,3.

Annexe 3 – Influence d'une désexcitation non-radiative sur l'inversion de population dans le Nd:YVO_4

Cette annexe expose le calcul de l'inversion de population dans un cristal de Nd:YVO_4 (milieu associé à un système 4 niveaux) en présence d'une (ou d'un ensemble de) désexcitation(s) non-radiative(s) du niveau excité vers des niveaux autres que celui de la transition laser.

En faisant des recherches dans la bibliographie, nous n'avons pas trouvé de données claires sur les différents processus de transition d'énergie (upconversion, absorption à deux photons, désexcitation radiatives ou non vers des niveaux intermédiaires…) ayant lieu dans le Nd:YVO_4 lorsqu'il est pompé autour de 540 nm et 590 nm (sur le niveau $^4G_{7/2}$, voir Figure A3- 1). Dans tous les cas, ces transitions pourraient être à l'origine d'une inversion de population au niveau de la transition laser plus faible qu'attendue (expliquant des seuils d'énergie plus élevés). Afin de simplifier cette analyse, nous avons considéré un terme de désexcitation global (dont la probabilité de désexcitation serait γ'). Ce terme regrouperait donc toutes les transitions (radiatives ou non) ramenant les ions dans leur état fondamental (niveau 0 dans la Figure A3- 1) sans passer par la transition laser. Explicitons cette hypothèse à l'aide d'un schéma (Figure A3- 1) et de quelques calculs.

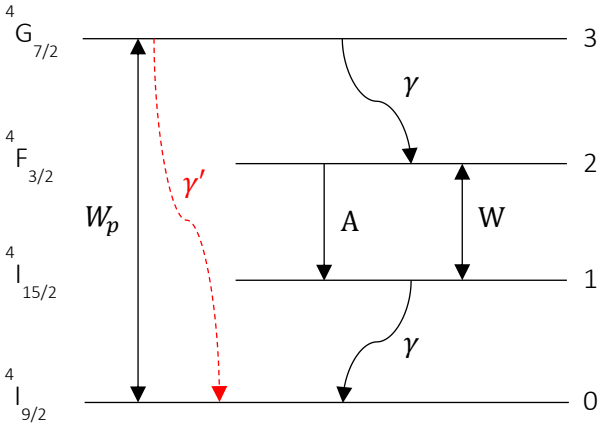


Figure A3- 1 : Diagramme des niveaux d'énergie du Nd:YVO_4. γ est la probabilité par seconde de désexcitation non-radiative des transitions $3 \to 2$ et $1 \to 0$ ($1/\gamma \approx$ typiquement quelques ns), γ' est la probabilité par seconde de désexcitation non-radiative de la transition $3 \to 0$, A est la probabilité par seconde d'émission spontanée à la longueur d'onde λ, W_p est la probabilité par seconde d'absorption et d'émission stimulée à la longueur d'onde λ_p et W est la probabilité par seconde d'absorption et d'émission stimulée à la longueur d'onde λ.

Dans la Figure A3- 1, les probabilités W_p et W sont respectivement égales aux produits $\sigma_p E_p$ et σE, où σ_p et σ sont les sections efficaces des transitions de pompe et laser. Enfin, E_p et E sont les éclairements photoniques des faisceaux de pompe et signal. Si nous faisons le bilan d'évolution des populations, nous obtenons les équations différentielles suivantes :

$$\frac{dn_0}{dt} = \gamma n_1 + W_p(n_3 - n_0) + \gamma' n_3$$
$$\frac{dn_1}{dt} = An_2 - \gamma n_1 + W(n_2 - n_1)$$
$$\frac{dn_2}{dt} = \gamma n_3 - An_2 - W(n_2 - n_1) \qquad \textit{Eq. V-1}$$
$$\frac{dn_3}{dt} = -\gamma n_3 - W_p(n_3 - n_0) - \gamma' n_3$$

Avec n_0, n_1, n_2, n_3 les populations des niveaux 0, 1, 2 et 3 par cm^3. De ces équations, nous pouvons en déduire les égalités suivantes à l'état stationnaire :

$$\frac{n_3}{n_1} = 1 \;;\; \frac{n_2}{n_1} = \frac{\gamma + W}{A + W} \;;\; \frac{n_0}{n_1} = \frac{\gamma + W_p + \gamma'}{W_p} \; et \; n = n_0 + n_1 + n_2 + n_3 \qquad \textit{Eq. V-2}$$

Avec n la quantité totale d'ion Nd^{3+} par cm^3. Avant de calculer le gain, nous devons exprimer l'inversion de population Δn :

$$\Delta n = n_2 - n_1 = \left(\frac{n_2}{n_1} - 1\right) n_1 \qquad \textit{Eq. V-3}$$

Ainsi, en l'absence de désexcitation directe $^4G_{7/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ (c'est-à-dire lorsque $\gamma' = 0$), l'inversion de population s'écrit :

$$\Delta n = n \frac{W_p}{W_p + W + A} \qquad \textit{Eq. V-4}$$

Dans le cas d'un pompage à 590 nm, l'inversion de population devient :

$$\Delta n' = n \frac{W_p}{W_p + W + A + \frac{\gamma'}{\gamma}(A + W)} \qquad \textit{Eq. V-5}$$

Ainsi, à cause de ce terme supplémentaire au dénominateur, l'inversion de population effective est plus faible que ce que l'on pensait, expliquant que notre première courbe théorique (en vert sur la Figure IV-8) prévoyait des seuils plus faibles d'un facteur 7. En utilisant l'Eq. V-5, nous pouvons déterminer une condition sur le rapport γ'/γ pour que ce facteur soit vérifié :

$$\Delta n' \leq \frac{\Delta n}{7} \quad \Leftrightarrow \quad \frac{\gamma'}{\gamma} \geq 6 \, \frac{W_p + W + A}{W + A} \qquad \textit{Eq. V-6}$$

Or, dans le cas d'un gain petit signal, nous cherchons à comparer $\Delta n_0'$ avec Δn_0 (avec $W \approx 0$). De plus, pour les premiers coupleurs avec de faibles transmissions (inférieures ou égales à 3%), l'éclairement de pompe est suffisamment faible pour que $W_p \ll A$ soit vérifié. Ceci signifie que la condition donnée par l'Eq. V-6 se résume à :

$$\gamma' \geq 6\gamma \qquad \textit{Eq. V-7}$$

Bien que cette condition ne donne pas de valeur précise de γ' (pour cela, il faudrait connaitre précisément γ), nous pouvons tout de même en déduire un ordre de grandeur. En effet, la désexcitation non-radiative de la transition $3 \rightarrow 2$ est de l'ordre de quelques ns (soit $\gamma \approx 10^9$). Certaines études (Zverev, Kolodnyi, and Onishchenko 1971) permettent de penser que la valeur de γ' puisse être de cet ordre de grandeur.

C’est à partir de cette condition que la courbe théorique en violet sur la Figure IV-8 a été tracée. De plus, le Nd:YVO_4 étant particulièrement sensible à l’élévation de la température (Délen, Balembois, and Georges 2011), nous avons supposé une élévation linéaire de la température avec l’énergie de pompe (jusqu’à un peu plus de 100 °C). Ainsi, la saturation que l’on observe pour les plus grandes valeurs de transmission peut être expliquée par un échauffement thermique entrainé par des énergies de pompe bien plus importantes (d’autant plus que pour cette démonstration de principe, le cristal n’était pas refroidit).

En conclusion, il semblerait que dans le pompage par Ce:YAG (c’est-à-dire en exploitant la raie d’absorption principale à 590 nm), il y ait des paramètres réduisant la population n_2 (et donc l’inversion de population). Notre piste d’explication est basée sur un terme qui englobe probablement plusieurs choses et qui ne peut vraisemblablement pas expliquer à lui seul l’écart constaté. Cependant, cette démarche permet de quantifier le manque à gagner.

ANNEXE 4 – LISTE DES PUBLICATIONS DE L'AUTEUR

Articles dans des revues internationales avec comité de lecture

Barbet, A., Balembois, F., Paul, A., Blanchot, J.-P., Viotti, A.-L., Sabater, J., Druon, F., Georges, P. (2014). Revisiting of LED pumped bulk laser: first demonstration of Nd:YVO_4 LED pumped laser. *Optics Letters*, 39(23), 6731.

Barbet, A., Paul, A., Gallinelli, T., Balembois, F., Blanchot, J.-P., Forget, S., Chénais, S., Druon, F., Georges, P. (2016). Light-emitting diode pumped luminescent concentrators: a new opportunity for low-cost solid-state lasers, *Optica*, 3(5), 465.

Brevets

« Module d'émission lumineuse à concentration et dispositif laser utilisant un tel module », déposé le 18/12/2015.

Congrès internationaux présentés par l'auteur

Barbet, A., Paul, A., Blanchot, J.-P., Viotti, A.-L., Balembois, F., Druon, F., Georges, P. "LED pumped QCW Nd^{3+}:YVO_4 laser", *Europhoton 2014* (Neuchâtel), paper WeP-T1-P-17. **Poster**

Barbet, A., Grardel, H., Paul, A., Blanchot, J.-P., Balembois, F., Druon, F., Georges, P. "LED side-pumped Nd^{3+}:YVO_4 laser at room temperature", *Photonics West 2015* (San Francisco), paper 9342-35. **Oral**

Barbet, A., Grardel, H., Paul, A., Blanchot, J.-P., Balembois, F., Druon, F., Georges, P. (2015). "LED side-pumped Nd^{3+}:YVO_4 laser at room temperature", Photonics West 2015, Solid State Lasers XXIV: Technology and Devices. Proceedings of SPIE (p. 934210). **Proceedings**

Barbet, A., Paul, A., Gallinelli, T., Balembois, F., Blanchot, J.-P., Forget, S., Chénais, S., Druon, F., Georges, P. « Nd:YVO_4 laser LED-pumped with a luminescent concentrator », *Europhoton 2016* (Vienne), paper SSL-4.2. **Oral**

Autres Congrès (nationaux ou non présentés par l'auteur)

Barbet, A., Paul, A., Blanchot, J.-P., Balembois, F., Druon, F., Georges, P. « Laser Nd^{3+}:YVO_4 pompé par LED en régime QCW », *Optique Bretagne 2015* (Rennes), papier P61 (Session JNCO). **Poster**

Gallinelli, T., **Barbet, A.,** Paul, A., Blanchard, C., Forget, S., Balembois, F., Blanchot, J.-P., Druon, F., Georges, P., Chénais, S. "Design strategies for planar integration of LED-pumped organic lasers based on luminescent concentration", 2016 MRS Spring Meeting (Phoenix, Arizona) Session EP1.3.03. **Oral**

Gallinelli, T., **Barbet, A.,** Paul, A., Blanchard, C., Balembois, F., Blanchot, J.-P., Druon, F., Georges, P., Chénais, S., Forget, S. « Augmenter la brillance des LED avec des concentrateurs luminescents », *Optique Bordeaux 2016*, papier P244. **Poster**

Barbet, A., Paul, A., Gallinelli, T., Balembois, F., Blanchot, J.-P., Forget, S., Chénais, S., Druon, F., Georges, P. "A new scheme for pumping solid-state lasers based on LED-pumped luminescent concentrators", ASSL 2016 (Boston), paper JTu2A.15. **Poster**

Communications diverses en dehors d'un contexte scientifique

Article de vulgarisation intitulé « Pompage laser : les LED contre-attaquent », publié à l'INP du CNRS : http://www.cnrs.fr/inp/spip.php?article3379

Cet article a été, entre autres, repris par les sites :

- De la SFP : https://www.sfpnet.fr/pompage-laser-les-leds-contre-attaquent
- De Science Niooz : http://science.niooz.fr/pompage-laser-les-led-contre-attaquent-2468847.shtml
- De Technoscience : http://www.techno-science.net/?onglet=news&news=13609
- Du CNRS Magazine SPRING 2015, n°37, p.10 (version anglaise) : http://www.cnrs.fr/fr/pdf/cim/37/index.html#/10/

Une vidéo « time-lapse » sur la réalisation d'un laser (pompé par LED dans notre cas) a été réalisée : https://www.facebook.com/institutoptique/posts/926879514017624

J'ai également participé pendant ma thèse au concours « Ma Thèse en 180 secondes » afin de communiquer sur mes travaux sur le pompage par LED : https://www.youtube.com/watch?v=7K1xaqH-yH8

Revisiting of LED pumped bulk laser: first demonstration of Nd:YVO_4 LED pumped laser

Adrien Barbet,[1,*] François Balembois,[1] Amandine Paul,[2] Jean-Philippe Blanchot,[2] Anne-Lise Viotti,[2] Jacques Sabater,[2] Frédéric Druon,[1] and Patrick Georges[1]

[1]*Laboratoire Charles Fabry, UMR 8501, Institut d'Optique, CNRS, Université Paris-Sud, 2 Avenue Augustin Fresnel, 91127 Palaiseau Cedex, France*

[2]*Effilux, 7 Avenue de l'Atlantique, 91940 Les Ulis, France*

**Corresponding author: adrien.barbet@institutoptique.fr*

We describe here what is, to the best of our knowledge, the first LED pumped Nd:YVO_4 laser. Near-IR LED arrays with a wavelength centered close to 850 nm were used to pump transversely the crystal. By pulsing LEDs, with a duration of the order of the laser transition lifetime, we obtained sufficient pump intensities to reach the laser threshold. At a frequency of 250 Hz, we obtained an output energy of 40 μJ at 1064 nm for an input pump energy of 7.4 mJ, which corresponds to an optical efficiency of 0.5%. Experimental results of small signal gain are compared with theoretical analysis. © 2014 Optical Society of America

OCIS Codes: (140.3530) Lasers, neodymium, (140.3580) Lasers, solid-state, (140.3460) Lasers, (140.3410) Laser resonators, (230.3670) Light-emitting diodes

http://dx.doi.org/10.1364/OL.39.006731

After the first demonstration of the flashlamp pumped ruby laser by Maiman [1], LED pumping was demonstrated for the first time in 1964 in Dy:CaF2 crystal [2]. In the 1970s, different works on neodymium lasers (such as Nd:YAG or Nd-pentaphosphate) were published with LED as the pump source [3–8]. Laser effect was also demonstrated with an LED pumped Yb:YAG crystal [9]. LED pumped solid-state lasers were generally cooled below room temperature to increase the emission cross section of the gain media, LEDs' efficiency, and hence the laser efficiency.

At the beginning of the 1980s, LED pumping was progressively forsaken with the emergence of laser diodes. Thanks to their high efficiency and brightness, they rapidly became the favorite way to pump solid-state lasers. However, driven by the lighting market, LED performance have been recently improved by order of magnitudes. Starting from intensity of 0.1 to 10 W/cm^2 at cryogenic temperatures in the 70s, it now reaches up to 100 W/cm^2 (in continuous wave at 1 A) at room temperature with efficiencies greater than 200 lm/W [10]. In parallel, LED prices experienced a dramatic drop because of a massive production. Moreover, contrary to laser diodes, LEDs are less sensitive to electrostatic discharges and have a lifetime 3 to 4 times higher than laser diodes.

Those improvements have triggered a new interest and LED pumping has started to be revisited since 2008. Turnbull and co-workers [11,12] took the opportunities offered by high performance visible blue LED to pump polymer lasers. By pulsing LEDs during few tens of ns, they succeeded to inject up to 160 A, leading to a LED optical intensity of 255 W/cm^2 at 450 nm and demonstrated a laser effect at 568 nm from a polymer distributed feedback laser. Htein *et al.* [13,14] used a white LED to exploit all absorption bands of erbium and neodymium doped fibers in the visible range. They obtained 12 dB (at 1550 nm) and 6 dB (at 1400 nm) of amplification gain. Liu *et al.* [15] demonstrated a laser effect from a semiconductor monolithically pumped by a LED which operates in a thermoelectrophotonic regime.

Surprisingly, LED pumping of bulk crystals as in the pioneer ages has not been revisited yet. Recently, a Korean team studied theoretically the pumping of five gain media (Nd:YAG, Nd:glass, Nd/Cr:YAG, Ti:sapphire and solid dye) by two types of LEDs, white and blue [16], but gave no experimental demonstration of laser effect.

Furthermore, it is worth noting that many results were reported on LED pumped Nd:YAG lasers but nothing with Nd:YVO_4 crystals (probably partly because a YVO_4 matrix appeared after the vanishing of LED pumping). Compared to Nd:YAG, the product of the emission cross section by the lifetime is still two times higher and can, therefore, produce a much higher optical gain. Consequently, Nd:YVO_4 lasers combined with new intensities of today's LEDs should result in promising performance. In this Letter, we investigate both experimentally and theoretically an Nd:YVO_4 laser transversely pumped by pulsed near IR-LED.

As pump source, we used near-IR LEDs centered at 850 nm from Light Avenue. A dice of 1 mm by 1 mm emits an intensity of 25 W/cm^2 at a continuous drive current of 1 A. Basic calculations based on small signal gain (see below for theory) show that this value is currently too low to reach the laser threshold. Therefore, we operated the LEDs in pulsed regime. The current driven by PCO-6131 (Directed Energy, Inc) injected into the LEDs had a square shape, with a pulse duration of 100 μs (in accordance to the Nd:YVO_4 lifetime). By increasing the current, each chip emits a peak output intensity of 200 W/cm^2 at 40 A, eight times higher than in the CW operation. Beyond this current, the one mil (≈ 25 μm) gold wires between the dices and the electrical track evaporated. In pulsed operation, we measured the emission spectrum (Fig. 1) and found that the spectral width increases from 35 nm to 60 nm between 10 and 40 A. This effect can be explained by the temperature increase of the LEDs at high current values.

An LED array consists in a line of 18 1 mm x 1 mm chips. We used two arrays of LED, on two opposite sides of the laser crystal. Each chip is separated by 0.3

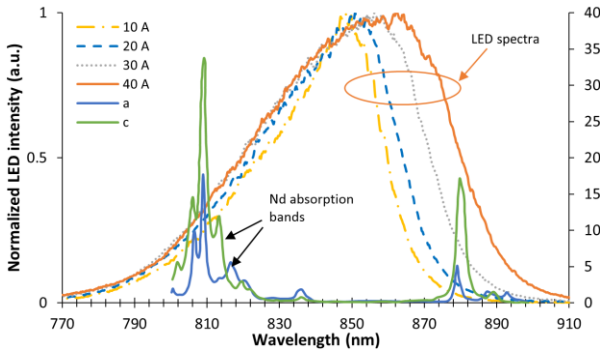


Fig. 1. Spectral deformation with respect to the injected current and Nd:YVO_4 absorption bands for 1 at. % doping concentration [23].

mm from each other (illustrated in the inset of the Fig. 2). Each LED array is placed on a water cooled copper mount to reduce the LED heating. We studied the energy contained in a 100 µs pulse at 40 A as a function of the repetition rate of the LEDs. Figure 2 illustrates this measurement for all the LEDs. We observed that, at this current, the energy was stable (around 7.4 mJ) for frequencies below 250 Hz and began to drop slightly for higher frequencies to finally stop to emit above 400 Hz. At this frequency and this current, the gold wires melt. This is why all our measurements have been done far below this value (namely 250 Hz).

As the emission diagram of LED is lambertian, it is very difficult to collect all the emitted flux with optics. It is nearly impossible to focus the LED beam with a higher intensity (in W/cm²) than the intensity at the surface of the dice itself. Therefore, we chose to design a pumping configuration without optics, the LED beam being close coupled in the laser crystal. To increase the number of LED, we use a transverse pumping configuration to distribute the LED all along the crystal faces in a setup described on Fig. 3.

The laser crystal is an a-cut 20 mm long Nd:YVO_4 crystal with a doping concentration of 1 at.% and a 2 mm x 2 mm square section. The orientation of the crystal has been picked to maximize the absorption, that is to say that the pumping is done along the (a,c) axes. The doping concentration has been chosen to be as high as possible while avoiding concentration quenching [17,18]. Two transverse faces are polished for the pumping. However, the transverse faces are not AR coated. The two other faces are used to cool the crystal. As the large emission cross section of Nd:YVO_4

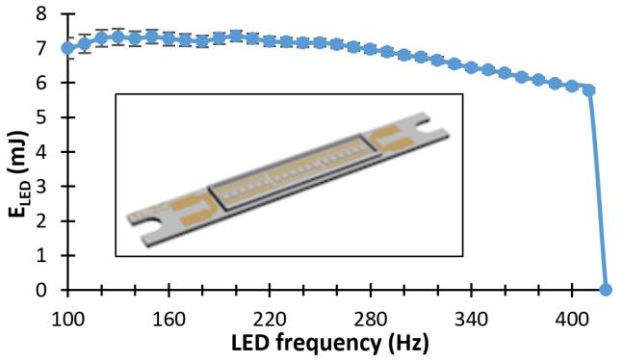


Fig. 2. Evolution of the pump energy emitted by the two LED arrays as a function of the repetition rate. Inset: illustration of the LED array.

is very sensitive to temperature changes [19,20], the crystal is held by two water cooled copper mounts to extract the heat induced by the pumping. Both crystal laser facets are AR coated with a reflectivity below 0.1% at 1064 nm. We designed a plano-concave cavity with an HR coated end mirror having a radius of curvature of 500 mm and a plane output coupler. The cavity length can be adjusted from 200 to 500 mm to optimize the output energy.

First, we measured the performance of our system for different transmissions of the output coupler (Fig. 4). Our best results have been obtained with a 1% transmission output coupler. In this configuration, we found a pump energy threshold of 1.84 mJ and obtained nearly 40 µJ of laser energy for an input energy of 7.4 mJ at a repetition rate of 250 Hz. This corresponds to an optical efficiency between the laser energy and the total energy emitted by the LEDs of 0.5%. Additionally, we studied the spatial profile of our laser by imaging the beam waist with a 75 mm focal length lens in a 2f-2f configuration. We measured an M^2 factor of 19, corresponding to the large pump volume related to the transverse pumping configuration. We have also monitored the laser pulse shape (Fig. 4). For a pump pulse duration of 100 µs, the laser pulse is about 65 µs long at 40 A. We clearly observe the transient buildup of the laser with the spiking behavior at the beginning of the pulse. Then, the laser converges to a continuous value in the second half of the pulse, corresponding to the quasi-continuous regime.

Subsequently, to explore the maximal gain available, we progressively increased the transmission of the output coupler and noted the corresponding pump energies required to reach the laser threshold. Figure 5 illustrates the small-signal gain G_0 as a function of the pump energy at the laser threshold. We obtained a single pass small signal gain G_0 up to 1.042. The solid and dash curves represent the theoretical evolutions from our simulations presented in the following paragraph.

To calculate the small signal gain available with this LED pumped system, we used the gain coefficient (cm^{-1}) described by Eq. (1), taking into account that LEDs are non-monochromatic sources:

$$g = \frac{n_t \sigma_{el} \tau}{hc} \int_{\lambda_{p1}}^{\lambda_{p2}} \sigma_{ap}(\lambda_p) \lambda_p \frac{dI_p}{d\lambda_p} d\lambda_p \qquad (1)$$

where n_t is the total population density of Nd^{3+} ions in the YVO_4, σ_{ap} is the absorption cross section at the pump wavelength, σ_{el} is the emission cross section at the laser wavelength, I_p is the pump intensity (in W/cm²), λ_p is the pump wavelength, h is the Planck constant, c is the speed of light in vacuum, and τ is the

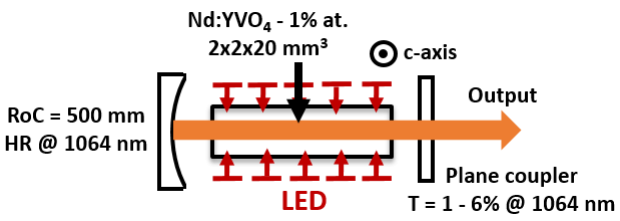


Fig. 3. Experimental setup.

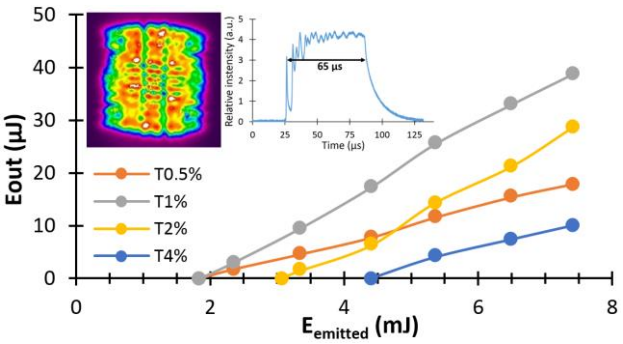


Fig. 4. Evolution of the output energy as a function of the input pump energy. Inset: spatial and temporal profiles of the laser beam at a pump energy of 7.4 mJ.

lifetime of the laser transition. Finally, as the pump pulse duration (100 µs) is the same order as the lifetime of Nd in YVO_4 (90 µs), the real gain is not the steady-state gain. To take the transient buildup into account, we defined a gain coefficient g' at the end of the pump pulse to be

$$g' = g\left(1 - e^{-\frac{\Delta t}{\tau}}\right) \quad (2)$$

where Δt is the pump pulse duration. Considering L as the crystal length, we can now calculate the small-signal gain G_0 (in single pass):

$$G_0 = e^{g'L} \quad (3)$$

Crystal losses α were assumed to be negligible. Thus, we deduce from the relations (1) and (3) that we need to know I_p at any point in the crystal to have access to G_0. Thereby, we have used a ray tracing software (LightTools) which allowed us to simulate our system numerically [21]. After entering all the parameters, we have access to the pump intensity at any points in the crystal and are able to determine the repartition of laser gain inside the crystal.

These simulations allow us to highlight the effects of the LED's spectrum on the gain. Indeed, on the Fig. 5, the dashed line represents the theoretical evolution of the small signal gain when we consider a 35 nm wide spectrum (corresponding to 10 A driving current) regardless of the injected current, while the solid line is the result when we take into account the broadening of the spectrum versus the driving current. Thus, we deduce from our simulations that the LED spectral

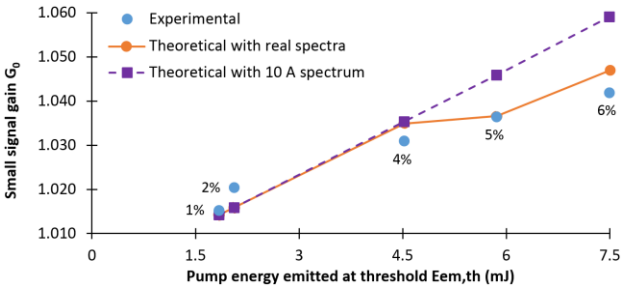


Fig. 5. Theoretical and experimental small-signal gain as a function of the pump energy $E_{em,th}$ needed to reach the laser threshold for, different output couplers.

broadening is a critical parameter, strongly limiting the small signal gain and hence the laser performance.

Since the simulation was validated by experimental data in Fig. 5, it became a tool to investigate the influence of other key parameters coming from the pump geometry, namely the distance between the LED and the crystal (parameter *X* described in Fig. 6) and the misalignment between the two LED arrays, called *Y*.

First, Fig. 7 shows that the small signal gain is very sensitive to the distance *X* between the LED arrays and the crystal; since the incident pump intensity (W/cm²) depends on the square of the distance to the crystal, a small increase of the LED-crystal distance can lead to an important decrease of the gain inside the crystal. In our setup, the working distance cannot be less than 700 µm due to the protective glass and the bond line (see Fig. 6); this reduces the gain by a factor of 0.5 compared to the maximum value (reached when the LEDs and the crystal are very close).

Gain evolution with a misalignment *Y* between the LEDs is less sensitive. However, one has to control this parameter carefully since a misalignment of 1 mm (namely half of the crystal size) between each LED array and the crystal can reduce the gain by 20%. This curve has been done with *X* set to 700 µm (the real distance between the crystal and LEDs), allowing us to place our experimental point on this curve. This gives an estimation of the LED misalignment in our setup: close to 1.5 mm. This high value can be explained by the setup itself having no controlled adjustment to move the LED arrays precisely.

Our simulation can also estimate the absorbed energy. Indeed, only 78% of the LED energy reaches the crystal because of the distance between the latter and the LEDs. Then, another 10% are lost because of the non-AR coated pumped crystal faces. Moreover, as anticipated in Fig. 1, the absorption is relatively weak. It is partially compensated by the optical path inside the crystal by non-perpendicular rays or rays being trapped by total internal reflection. Taking in account all the rays coming from the LEDs, we estimated using LightTools that 30% of the pump energy is absorbed. Hence, from the 7.4 mJ emitted by the LED, only 1.5 mJ is really absorbed. This leads to an optical efficiency of 2.6% related to the absorbed energy.

To increase the output energy and efficiency, there are several possible axes of improvement. As presented in Fig. 7, a chip on board LED with shorter working

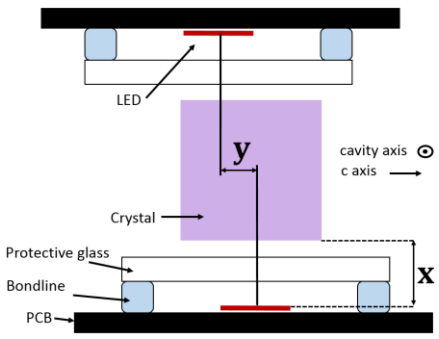


Fig. 6. Transversal view of the pumping scheme with the crystal at the center and the LED arrays on two opposite sides. X & Y are two key spatial parameters.

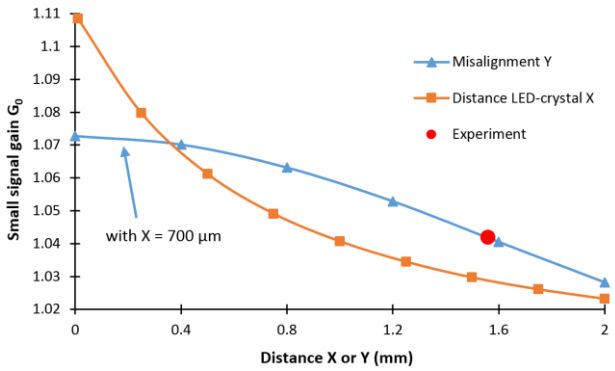


Fig. 7. Evolution of the theoretical small signal gain G_0 as a function of the misalignment between the two LEDs (Y) and the distance between LEDs and the crystal (X). This calculations are used to estimate the misalignment Y in our experiment.

distance would allow a better pump coupling into the crystal. Also, LEDs with same intensity but with a spectrum centered near the 808 nm absorption band instead of 850 nm could widely improve the results.

Energy scaling may also be considered by using double stack LEDs emitting 1.6 times more than single LEDs for the same emitting area [22]. In addition, it could be possible to use 2 lines of 18 LEDs to have a pump area as large as the transverse dimension of the crystal. It may be also possible to use dices with bigger gold wires, which would allow to operate the LED at higher currents and higher repetition rates.

In conclusion, we have demonstrated that it is possible to create a laser effect, at a room temperature, from a Nd:YVO_4 laser transversely pumped by LED near 850 nm. To the best of our knowledge, this gain medium was never LED pumped before this work and represents the first LED pumped Nd:YVO_4 laser. We obtained 40 µJ at a frequency of 250 Hz. The corresponding optical efficiency is about 0.5% (2.6% related to the absorbed energy). LED lighting is a very active and growing market, constantly improving the LED performance. This first demonstration with Nd:YVO_4 shows that it will be worth to consider LED pumping of bulk crystals in the future, particularly in the visible range where LED are highly optimized.

The authors acknowledge the Agence Nationale de la Recherche (EDELVEIS project), the Labex PALM and the Conseil Régional d'Ile de France for the funding of this research.

References

1. T. Maiman, Nature, **187**, 494 (1960).
2. S. A. Ochs and J. I. Pankove, in Proceedings of the IEEE, p. 713 (1964).
3. R. B. Allen and S. J. Scalise, Appl. Phys. Lett., **14**, 188 (1969).
4. F. W. Ostermayer, Appl. Phys. Lett., **18**, 93 (1971).
5. G. I. Farmer and Y. C. Kiang, J. Appl. Phys., **45**, 1356 (1974).
6. M. Saruwatari, T. Kimura, T. Yamada, and J. Nakano, Appl. Phys. Lett., **27**, 682 (1975).
7. J. Stone, C. a. Burrus, a. G. Dentai, and B. I. Miller, Appl. Phys. Lett., **29**, 37 (1976).
8. V. Bilak and I. Goldobin, Sov. J. Quantum Electron., **11**, 1471 (1981).
9. A. R. Reinberg, L. A. Riseberg, R. M. Brownn R. W. Wacker, W. C. Holton, Appl. Phys. Lett., **19**, 11 (1971).
10. Led. Magazine, *"Lab record: red LED breaks through the 200 lm/W barrier"* (2011).
11. Y. Yang, G. a. Turnbull, and I. D. W. Samuel, Appl. Phys. Lett., **92**, 163306 (2008).
12. J. Herrnsdorf, Y. Wang, J. J. D. McKendry, Z. Gong, D. Massoubre, B. Guilhabert, G. Tsiminis, G. a. Turnbull, I. D. W. Samuel, N. Laurand, E. Gu, and M. D. Dawson, Laser Photon. Rev., **7**, 1065 (2013).
13. L. Htein, W. Fan, P. R. Watekar, and W.-T. Han, Opt. Lett., **37**, 4853 (2012).
14. L. Htein, W. Fan, P. Wateker, and W. Han, IEEE Photonics Technol. Lett., **25**, 1081 (2013).
15. X. Liu, G. Zhao, Y. Zhang, and D. G. Deppe, Appl. Phys. Lett., **102**, 081116 (2013).
16. K. Lee, S. Bae, J. S. Gwag, J. H. Kwon, and J. Yi, J. Korean Phys. Soc., **59**, 3239 (2011).
17. Z. Huang, Y. Huang, Y. Chen, and Z. Luo, JOSA B, **22**, 2564 (2005).
18. A. Sennaroglu, Opt. quantum Electron., **32**, 1307 (2000).
19. X. Délen, F. Balembois, and P. Georges, J. Opt. Soc. Am. B, **28**, 972 (2011).
20. Y. Sato and T. Taira, Opt. Mater. Express, **2**, 1076 (2012).
21. S. O. Solutions, "LightTools."
22. OSRAM Opto Semiconductors, "LED SFH 4715S."
23. L. Mcdonagh, R. Wallenstein, R. Knappe, and A. Nebel, *Opt. Lett.*, **31**, 3297 (2006).

Light-emitting diode pumped luminescent concentrators: a new opportunity for low-cost solid-state lasers

ADRIEN BARBET,[1] AMANDINE PAUL,[2] THOMAS GALLINELLI,[3] FRANÇOIS BALEMBOIS,[1,*] JEAN-PHILIPPE BLANCHOT,[2] SÉBASTIEN FORGET,[3] SÉBASTIEN CHÉNAIS,[3] FRÉDÉRIC DRUON,[1] AND PATRICK GEORGES[1]

1 Laboratoire Charles Fabry, Institut d'Optique Graduate School, CNRS, Université Paris-Saclay, 91127 Palaiseau Cedex, France
2 Effilux, 7 Avenue de l'Atlantique, 91940 Les Ulis, France
3 Laboratoire de Physique des Lasers, UMR 7538, Sorbonne Paris Cité, CNRS, Université Paris 13, F-93430, Villetaneuse, France
**Corresponding author: francois.balembois@institutoptique.fr*
Received XX Month XXXX; revised XX Month, XXXX; accepted XX Month XXXX; posted XX Month XXXX (Doc. ID XXXXX); published XX Month XXXX

High-power light-emitting diodes (LEDs) today are twice as powerful as four years ago while meantime their price have been divided by 4 making them promising sources for laser pumping. However, their irradiance still falls short by one order of magnitude of what is needed to efficiently pump solid-state lasers. We demonstrate that an LED-pumped Ce:YAG luminescent concentrator (LC) can increase the irradiance of blue LEDs by a factor of 10, with an optical efficiency of 25%, making them much more suitable to pump solid-state lasers. In our demonstration, we used 100 Hz pulsed LEDs emitting 190 W/cm² at 430 nm to illuminate a Ce:YAG LC, leading to an output irradiance of 1830 W/cm². The LC is used to pump a Nd:YVO4 laser producing 360 µJ at 1064 nm, corresponding to an optical efficiency of 2.2% with respect to the LC. LED-pumped luminescent concentrators pave the way for high-power, low-cost, solid-state lasers. © 2016 Optical Society of America

OCIS codes: *(140.3530) Lasers, neodymium; (140.3580) Lasers solid-state; (220.1770) Concentrators; (230.3670) Light-emitting diodes.*

http://dx.doi.org/10.1364/optica.99.099999

Solid-state lasers are typically devices that convert low-brightness pump light (e.g., from flashlamps or laser diodes) into a high-brightness laser beam. Controlling how efficiently the pump light is transferred to the gain medium is an essential part of laser design governing efficiency, threshold and power scalability, and generally consists in maximizing the pump irradiance starting from a source with a given brightness.

The classical way to do so is to use geometrical concentration, based either on imaging or non-imaging optics [1]. Since the brightness is conserved in virtue of the brightness theorem [2], increasing irradiance goes along with altering the pump light directionality. Consequently, no irradiance enhancement is possible at all whenever the pump source is a Lambertian emitter, which is the case for light-emitting diodes (LEDs).

LEDs show however great promise for pumping solid-state lasers at low costs. While the first demonstration of LED pumping of laser materials goes back to 1964 [3], it has recently experienced a renewed interest driven by the spectacular development of LEDs for the lighting market. Thus, various LED pumped laser media have been reported as follows: polymers [4], fibers [5], semiconductors [6] and more recently Nd doped matrices [7,8].

Even though LED performance has been remarkably improved since the 1970s [9], the power densities of LEDs (typically 100 W/cm²) are still several orders of magnitude lower than those attained with laser diodes. Because geometrical concentration cannot be used, the design of low-cost, efficient and power-scalable LED-pumped laser systems requires novel design strategies.

The brightness conservation rule can be broken as far as the wavelength is changed, a principle at work in luminescent concentration. In this Letter, we use a luminescent concentrator (LC) to increase the irradiance of LEDs and make them suitable for efficient, low-cost and power-scalable solid-state lasers.

LCs have been thoroughly studied for decades for harvesting solar energy in the context of photovoltaic energy production. A typical LC is a slab of a transparent material embedding fluorescent luminophores such as dyes, luminescent ions or quantum dots. Those luminophores absorb the incident light through the large "pumped" areas and then emit lower-frequency light which is for a large part guided by total internal reflections (TIR) up to the small end surfaces, leading to an increase of the output irradiance directly related to the ratio between the large and small surface areas.

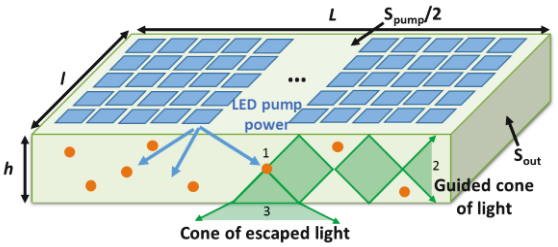


Fig. 1. Schematic representation of a light concentrator pumped by LEDs. (1) Pump light is absorbed by a luminophore. (2) Light is reemitted and guided toward the edges of the LC by TIR. (3) A part of the reemitted light escapes the LC and is lost.

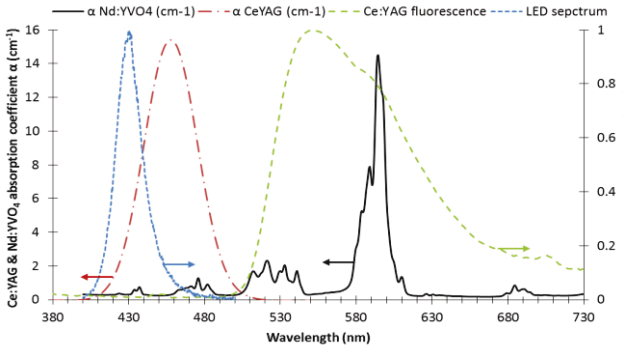


Fig. 2. Ce:YAG (red) and Nd:YVO_4 absorption coefficient (average of c and a axes, black) and emission spectra of Ce:YAG (green) and LED in pulsed regime (100 µs, 4 A, 10 Hz, room temperature, blue).

LCs have been widely used to collect sunlight and concentrate it onto solar cells [10], but also for greenhouse applications [11] or for indoor illumination [12]. However, in the context of laser pumping the requirement for an efficient LC are quite different, as the input source is more monochromatic, and the output device (the laser) has narrow absorption bands and is sensitive to the irradiance at the output of the LC. To our best knowledge, LCs have been used only once for laser pumping, when G. Turnbull and co-workers illuminated an organic LC made of fluorescent dyes embedded in a polymer thin film with an optical parametric oscillator (to emulate LEDs), and then used it to pump a distributed feedback polymer laser [13].

In this Letter, we propose for the first time the experimental demonstration of a solid-state laser pumped by a luminescent concentrator illuminated by LEDs. As a proof of principle, we used Nd:YVO_4 as laser medium and a robust crystalline LC made of Ce^{3+} ions in a YAG matrix.

The basic scheme of our luminescent concentrator is described in Fig. 1. It consists in an optically polished YAG slab (with dimensions L x l x h) doped by Ce^{3+} ions. LEDs are close-coupled to the large faces of the slab (S_{pump} = 2L x l). The light re-emitted by the luminophores and guided by TIR is collected through the edge face S_{out} (S_{out} = l x h). C performance are generally described with the concentrator factor C defined as the ratio of the output to the input power densities (in W/cm²). With the given parameters, it can be written as the product of the geometrical concentration factor G (which equals S_{pump}/S_{out}) by the optical efficiency $\eta_{o/o}$:

$$C = \frac{I_{out}}{I_{pump}} = \frac{P_{out}}{P_{pump}} \frac{S_{pump}}{S_{out}} = \eta_{o/o} G \qquad (1)$$

where P_{pump} the incident pump power passing through the pumped faces ($I_{pump} = P_{pump}/S_{pump}$) and P_{out} is the output power through S_{out} ($I_{out} = P_{out}/S_{out}$).

When LCs are illuminated by sunlight, they receive a uniform irradiance over the whole exposed area. However, in the case of LED pumping, the incident pump lighting is non-uniform and composed of multiple light spots. Therefore, to take this into account, we introduce a parameter η_{fill} to obtain a new definition for the concentration factor, C_{LED}:

$$C_{LED} = \eta_{o/o} \eta_{fill} G \qquad (2)$$

where η_{fill} is the filling factor of the pumped surface by LEDs and defined as:

$$\eta_{fill} = \#\ of\ LEDs \frac{S_{LED}}{S_{pump}} \qquad (3)$$

where S_{LED} is the emitting surface of one LED (1 mm² in our case).

Thus, the light concentration ratio C_{LED} can be defined as the ratio of the output irradiance (in W/cm²) to the irradiance of one LED. Equation (2) shows that in order to maximize C_{LED}, the pump surface has to be as large as possible. In the case of a slab, it means that both faces (top and bottom) should be used and filled by LEDs.

The filling factor plays also a key role: the LED packaging has to be optimized and the space between LEDs reduced to a value as low as possible. In case of a slab with double side pumping, the ratio S_{pump}/S_{out} can be simply expressed as $S_{pump}/S_{out} = 2L/h$. Hence, a high concentration ratio C_{LED} means also a high aspect ratio for the slab. Besides geometrical factors, the optical efficiency $\eta_{o/o}$ of the concentrator also needs to be maximized and can be expressed by:

$$\eta_{o/o} = \eta_{exc} \eta_{PLQY} \eta_{TIR} \eta_{extr} \qquad (4)$$

where η_{exc} is the fraction of the LED power collected by the surfaces S_{pump} and absorbed by the luminophores, η_{PLQY} is the photoluminescent quantum yield of the luminophore, η_{TIR} is the fraction of the re-emitted light guided by TIR to the edges of the LC, and η_{extr} is the extraction efficiency of the concentrator, that is the output power P_{out} divided by the power carried out by all the TIR guided rays. It is worth noting that η_{extr} is specific to our application since we use only a small part of the edges (S_{out}, see Fig. 1), as opposed to photovoltaic LC using solar cells glued on all the edge surfaces.

Our LC is a slab of Ce doped YAG, chosen in virtue of its high photoluminescence quantum yield η_{PLQY} (assumed to be greater than 90% according to [14]) and the relatively good overlap between its absorption band and the emission spectrum of the blue LEDs available in our lab (see Fig. 2). The Cerium emission band is in the yellow-red, matching absorption bands of many solid-state lasers like Nd:YAG, Nd:YVO_4, ruby, Ti:sapphire, or alexandrite.

Our slab dimensions are 100 mm x 9 mm x 1 mm (L x l x h, corresponding to a geometrical concentration factor G = 200). The thickness of the LC (1 mm) was chosen to optimize the LED absorption (and hence the η_{exc} ratio) for the doping concentration in Cerium ions of our sample (between 0.2% and 0.3%). For LEDs with the spectrum shown in Fig. 2, the pump absorption is about 80%.

We can observe in Fig. 2 that the overlap between Ce:YAG absorption and emission spectra is very small, meaning that the re-absorption losses are very low for the light emitted by Ce^{3+} ions. In addition, YAG is a well-known material whose growing process has been optimized for years: this guarantees low internal losses (measured at 1.62.10^{-2} cm^{-1} in our sample). Those properties help to maximizing η_{extr}.

Because of the Ce:YAG high refractive index (typically 1.83 in the visible), the escape cone has here a much smaller aperture than typical polymer or glass LCs, then maximizing η_{TIR} : 84% (for an emission centered at 550 nm) compared to 70-75% for polymers.

However, this advantage becomes a drawback when one need to extract the light on the edge surface. In order to lower this effect and increase η_{extr}, one solution is to frustrate the TIR on the output surface by bonding the LC directly on the laser crystal, the intermediate glue having a refractive index much higher than the air.

As the laser medium we chose a Nd:YVO_4 crystal presenting an absorption band matching the Ce:YAG emission in the yellow range (Fig. 2). Moreover, Nd:YVO_4 is a well-known crystal with low losses

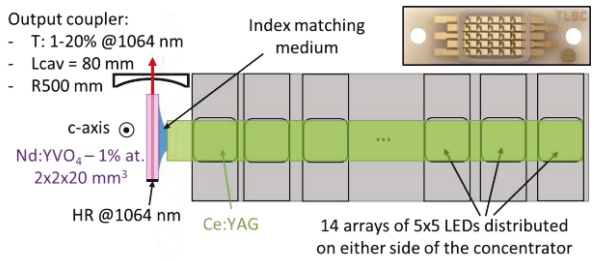


Fig. 3. Overall setup of the experiment. Inset: illustration of an LED array.

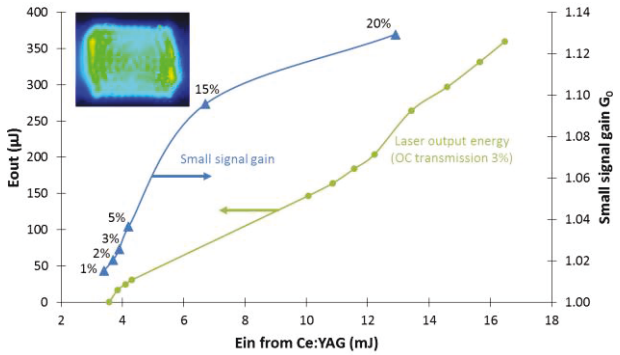


Fig. 4. Evolution of the output energy from a 3% transmission output coupler (with an optical adhesive between the Ce:YAG and the $Nd:YVO_4$) and the small-signal gain for different transmissions of output coupler, as a function of the output energy from the concentrator. Inset: spatial profile of the laser beam at a pump energy of 16.5 mJ.

and a high "emission cross section × lifetime" product leading to high gains and low thresholds for laser oscillators.

The $Nd:YVO_4$ laser crystal is an a-cut 20-mm-long crystal with a doping concentration of 1 at.% and a 2 mm x 2 mm square section. The crystal is oriented to maximize the absorption (pumping along a and c axes). The doping concentration is chosen as high as possible while avoiding concentration quenching [15]. A transverse face (20 mm x 2 mm) is polished for the pumping but not anti-reflection (AR) coated. One of the crystal laser facets is high reflective coated at 1064 nm, while the other facet is AR coated with a reflectivity below 0.1% at 1064 nm.

The LED arrays are custom-made to ensure a high LED density over a large area. An LED array consists of a matrix of 5x5 chips of 1 mm^2 each (Fig. 3). A total of 350 LEDs are used on either side of the concentrator and distributed in 14 arrays. The LEDs are close-coupled to the LC whose width (9 mm) is chosen to match the LED array dimensions. Each chip is separated from one another by a 0.3 mm gap in one direction and a 0.8 mm gap in the other way (illustrated in the inset of the Fig. 3). In our case, the filling factor η_{fill} is 19.4%.

In the continuous wave regime, each LED emits 1 W for a driving current of 1 A. To increase the emitted power, we operate the LEDs in the pulsed regime. We design and made a specific electronic driver delivering square current pulses with a duration of 100 µs (matching the $Nd:YVO_4$ lifetime). The output spectra do not show much variation between continuous and pulsed operations. We operate the LEDs at 3.75 A, far below the breakdown current at 5 A. At this current, each chip emits an output power of 1.9 W corresponding to an irradiance of 190 W/cm^2. Thus, the maximal pump power emitted by LEDs is 650 W and the corresponding energy is 65.2 mJ.

The overall setup is given in Fig. 3. We can distinguish three main parts in the setup: the pump source, the concentrator and the laser cavity. We design a plano-concave cavity with an output coupler having a radius of curvature of 500 mm. The cavity length can be adjusted from 50 to 500 mm to optimize the output energy.

Before testing laser operation, we investigate the concentrator performance. By using a power meter placed at the output edge (with an air gap between the LC and the power-meter), we measure an output peak power of 43 W corresponding to an efficiency $\eta_{o/o}$ of 6.6% and so, a light concentration ratio CLED of 2.6.

Then, the $Nd:YVO_4$ is bonded on the Ce:YAG concentrator by using an UV-curing adhesive (Vitralit VBB1-Gel). The refractive index of the glue is between 1.4 and 1.5 by the measurement of transmission at 633 nm through two YAG crystals, with or without glue. The power coupled in the $Nd:YVO_4$ cannot be measured directly, once it is glued to the Ce:YAG. Therefore, we use a ray-tracing software (LightTools ®) to estimate this value. Upon taking into account the Ce:YAG losses (measured at $1.62.10^{-2}$ cm^{-1}) and the refractive index of the glue, we calculate the performance are considerably improved: the output peak power coupled into the $Nd:YVO_4$ reach 165 W, that is to say a pump energy of 16.5 mJ, an optical efficiency $\eta_{o/o}$ of 25.2%, and a light concentration ratio C_{LED} of 10. Ray tracing simulation shows that the concentration ratio C_{LED} can be improved up to 18 ($\eta_{o/o}$ up to 46.3%), assuming that the glue has exactly the same refractive index as both the LC and the laser crystal and that all the propagation losses are negligible. The different configurations and important values are gathered in Table 1.

Table 1. Comparison of the LC's performance for various index matching media[a]

Configuration	P_{out} (W)	C_{LED}	$\eta_{o/o}$ (%)
Air	43	2.6	6.6
Adhesive	165	10	25.2
Ideal case	300	18	46.3

[a]Ideal case (no losses, identical refraction indices for LC, optical adhesive and gain medium)

For laser operation, the LEDs are driven at 100 Hz repetition rate to limit the thermal effects on the uncooled crystals. Hence the average pump power is only 6.5 W incident on Ce:YAG and 1.65 W onto the $Nd:YVO_4$ crystal.

Laser oscillation threshold is reached for a Ce:YAG pump energy of 4 mJ approximately. We measure the performance of our system for different transmissions of the output coupler (Fig. 4). Our best results are obtained with a 3% transmission output coupler. The output energy is then 360 µJ at 1064 nm for a Ce:YAG energy launched in the $Nd:YVO_4$ estimated to be 16.5 mJ. This corresponds to an optical efficiency of 2.2% and 0.6% related to the total energy emitted by the LED arrays.

Following the spectral overlap (between LED spectrum and the averaged absorption spectra for c and a axes) and the doping concentration of the vanadate, we calculate an absorption of 36%. As expected by the transverse pumping configuration and the low absorption, the laser profile is highly multimode, filling the crystal aperture (inset of the Fig. 4).

Subsequently, to explore the maximal gain available, we progressively increase the transmission of the output coupler and measure the pump energy required to reach laser threshold. From these measurements we deduce the single-pass small-signal-gain G_0 and plot it versus the pump energy (Fig. 5). This gain reaches up to 1.13. Above 5%, one can observe an inflection in the gain curve certainly related to thermal effects: since the $Nd:YVO_4$ is not cooled, the pumping induces an increase of the crystal temperature and consequently a decrease of the emission cross section [16].

Extending the pumping duration to 3 ms at 5 Hz repetition rate is also allowed by our electronic driver. In this configuration, we obtain 8.5 mJ of laser energy for an input energy estimated at 500 mJ from the concentrator and 2 J from the LED arrays. This result corresponds to an optical efficiency of 1.7% and 0.4% related to the total energy emitted by the LED arrays. We attribute these lower efficiencies, compared to short pulse pumping, to a higher thermal load in the gain medium.

Despite a pumping scheme slightly different, compared to the Nd:Ce:YAG laser demonstrated by Villars *et al.* [8] (which is the latest published result to our knowledge), we obtained a lower optical efficiency (0.6% compared to 6.2%). This is mainly due to a better energy transfer from Ce to Nd in the case of a co-doped crystal. In our case the energy transfer is achieved by emission and absorption processes and the spectral bands of Ce and Nd are not perfectly overlapped.

Consequently, several ways of improvements exist: the first one consists in using a concentrator doped with luminophores having a narrower emission spectrum, like quantum dots [17], with better matching of the narrow lines of Nd crystals. The second one consists in choosing laser crystals with larger absorption bands in the yellow

range: ruby, alexandrite or Ti:sapphire are good candidates for spectral matching with Ce:YAG.

Using a concentrator as an intermediate between LED and laser medium presents however many advantages. Our results show a laser threshold 15 to 40 times lower than in [8], resulting from the combination of the higher emission cross-section of Nd:YVO_4 over Nd:YAG at 1064 nm and the concentration effect that allowed a pump irradiance at the concentrator output as high as 1830 W/cm^2, typically one order of magnitude higher than the irradiance available in direct LED pumping [8].

We believe that the pump irradiance and the corresponding concentration ratio are far from maximum. $\eta_{o/o}$ can be improved by a better index matching between the concentrator and the laser medium or even by additive free bonding between the two crystals. The filling factor can be easily increased in our setup : we used only 14 arrays compared to a potential of 20 arrays according to the dimensions of our Ce:YAG. It can also be improved by more compact LED packaging flip-chip technology [18]. Moreover, the aspect ratio L/h can be increased by several methods: LEDs with an emission spectrum shifted towards 450 nm lead to a lower absorption length in Ce:YAG. Consequenly slabs with a lower thickness h could be used (500 µm is mechanically possible for a length L of 100 mm in a single crystal). To increase L, one could also bond Ce:YAG crystals together. Our calculations show that the concentration ratio increases by a factor 1.6 when two crystals of 100 mm are bonded (assuming losses as low as $1.62.10^{-2}$ cm^{-1}). Finally, we can also recycle the output light on the other edge of the concentrator with a mirror.

The other advantage of LED-pumped concentrators compared to direct LED pumping is power scaling. Indeed, the transverse surface of a laser crystal is limited to few tens of cm^2 (14 cm^2 in [8]) clamping the LED pump power to a few hundred of watts (322 W [8]). In our Ce:YAG concentrator, the pump surface is 18 cm^2 with an LED pump power of 650 W and despite the unoptimized conversion efficiency ($\eta_{o/o} = 25.2\%$) of the concentrator, the converted pump power launched in the laser medium reached already 165 W. Instead of covering the crystal surface by LEDs, it can be covered by the output edge of concentrators. As we obtain a concentration ratio C_{LED} of 10, it means that a laser crystal can be (at least) LED pumped with a power 10 times higher thanks to concentrators.

In conclusion, we demonstrated for the first time a high power LED pumped Ce:YAG concentrator. It emits 165 W peak power with an irradiance reaching 1830 W/cm^2 and an optical efficiency of 25.2 %. To the best of our knowledge, this paper reports also the first solid-state laser (Nd:YVO_4) pumped by an LED concentrator. Operating with pump pulses of 100 µs at 100 Hz, the laser produces an energy of 360 µJ at 1064 nm. The corresponding optical efficiency is about 2.2% with respect to the concentrator output (6% related to the absorbed energy) and 0.6% with respect to the LED pump energy.

As LED lighting is a very active and growing market, constantly improving the LED performance and reducing the cost per watt. LED-pumped concentrators open the way for high-power, low-cost, solid-state lasers tunable in the red-near-infrared such as Ti:sapphire.

Funding. Agence Nationale de la Recherche (ANR-12-BS09-0012-01); Labex PALM (ANR-10-LABX-0039); Conseil Général de l'Essonne.

REFERENCES

1. R. J. Beach, *Appl. Opt.*, **35**, 2005, (1996).
2. M. Born and E. Wolf, *Principles of optics*, 7th ed. 1999.
3. S. A. Ochs and J. I. Pankove, *Proc. of the IEEE*, p.713, (1964).
4. Y. Yang, G. a. Turnbull, and I. D. W. Samuel, *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 163306, (2008).
5. L. Htein, W. Fan, and W.-T. Han, *J. Lumin.*, **146**, 87, (2014).
6. X. Liu, G. Zhao, Y. Zhang, and D. G. Deppe, *Appl. Phys. Lett.*, **102**, 81116, (2013).
7. A. Barbet, F. Balembois, A. Paul, J.-P. Blanchot, A.-L. Viotti, J. Sabater, F. Druon, and P. Georges, *Opt. Lett.*, **39**, 6731, (2014).
8. B. Villars, E. S. Hill, and C. G. Durfee, *Opt. Lett.*, **40**, 3049, (2015).
9. P. Hummel, *Opt. Photonik*, **6**, 16, (2011).
10. M. J. Currie, J. K. Mapel, T. D. Heidel, S. Goffri, and M. a Baldo, *Science*, **321**, 226, (2008).
11. M. Hammam, M. K. El-Mansy, S. M. El-Bashir, and M. G. El-Shaarawy, *Desalination*, **248**, 244, (2009).
12. C. Wang, H. Abdul-Rahman, and S. P. Rao, *Energy Build.*, **42**, 717, (2010).
13. Y. Yang, I. D. W. Samuel, and G. a. Turnbull, *Adv. Mater.*, **21**, 3205, (2009).
14. P. Gorrotxategi, M. Consonni, and A. Gasse, *J. Solid State Light.*, **2**, 1, (2015).
15. Z. Huang, Y. Huang, Y. Chen, and Z. Luo, *JOSA B*, **22**, 2564, (2005).
16. X. Délen, F. Balembois, and P. Georges, *J. Opt. Soc. Am. B*, **28**, 972, (2011).
17. F. Meinardi, A. Colombo, K. a. Velizhanin, R. Simonutti, M. Lorenzon, L. Beverina, R. Viswanatha, V. I. Klimov, and S. Brovelli, *Nat. Photonics*, **8**, 392, (2014).
18. J. Herrnsdorf, Y. Wang, J. J. D. McKendry, Z. Gong, D. Massoubre, B. Guilhabert, G. Tsiminis, G. a. Turnbull, I. D. W. Samuel, N. Laurand, E. Gu, and M. D. Dawson, *Laser Photon. Rev.*, **7**, 1065, (2013).

ANNEXE 5 – CARACTÉRISTIQUES PHYSIQUES DES PRINCIPAUX CRISTAUX LASER

Cette annexe rassemble les caractéristiques physiques les plus utiles pour les simulations, des principaux cristaux laser communément utilisés et pouvant se pomper dans le visible.

Alexandrite (Cr^{3+}:$BeAl_2O_4$)

L'alexandrite est un cristal laser biaxe qui possède deux bandes d'absorption, autour de 410 nm et 590 nm. Concernant l'émission, il se comporte comme un système 3 niveaux avec deux raies situées à 678 nm et à 680 nm et comme 4 niveaux pour la bande d'émission comprise entre 700-820 nm. La section efficace d'émission pour les raies 3 niveaux est de 3.10^{-19} cm² et d'environ 5.10^{-21} cm² à 752 nm (Kuper & Brown 2006). Contrairement à beaucoup de cristaux, sa section efficace d'émission augmente avec la température, pour atteindre jusqu'à 2.10^{-20} cm² à 450 K. Le temps de vie à 300 K est de 260 µs. La densité d'ions Cr^{3+} pour un dopage de 0,1% est de $3{,}51.10^{19}$ cm^{-3} (Koechner 2006).

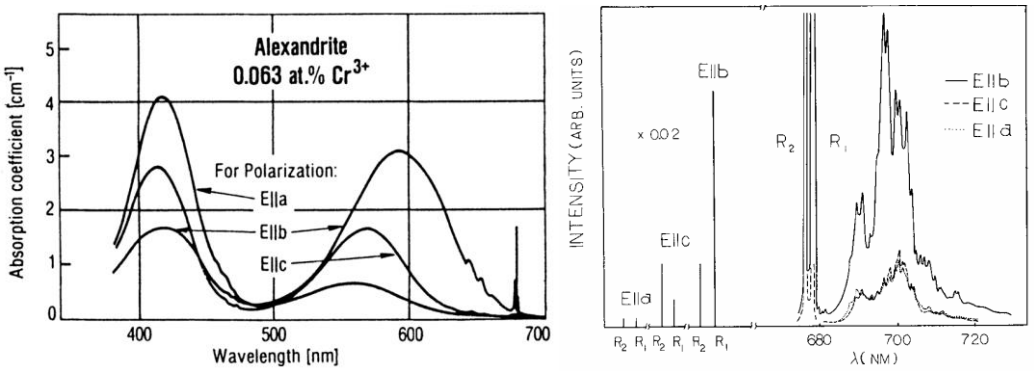


Figure A5 - 1 : (à gauche) absorption et (à droite) émission à 77 K de l'alexandrite (Bukin & Matrosov 1981; Koechner 2006).

Section efficace d'absorption à 590 nm	$1{,}4.10^{-19}$ cm²
Section efficace de réabsorption à 680 nm	$8{,}2.10^{-20}$ cm²
Section efficace d'émission à 680 nm	3.10^{-19} cm²
Section efficace d'émission à 752 nm	5.10^{-21} cm²
Temps de vie	260 µs
Densité d'ions chrome (0,1 at.%)	$3{,}51.10^{19}$ cm^{-3}
Indices optiques à 755 nm	E || a = 1,737 E || b = 1,742 E || c = 1,735

Tableau A5- 1 : Tableau récapitulatif des propriétés de l'alexandrite.

Cr:LiSAF (Cr^{3+}:$LiSrAlF_6$)

Le Cr:LiSAF est un cristal laser uniaxe qui possède deux bandes principales d'absorption, autour de 440 nm et 650 nm. Concernant l'émission, il se comporte comme un système 4 niveaux avec une large bande comprise entre 700-1100 nm. La section efficace d'émission est de $4{,}8.10^{-20}$ cm² à 850 nm (Payne et al. 1994; Chang et al. 2002). Le temps de vie à 300 K est de 67 µs. La densité d'ions Cr^{3+} pour un dopage de 1,7% est de $1{,}4.10^{20}$ cm^{-3} (Payne et al. 1994).

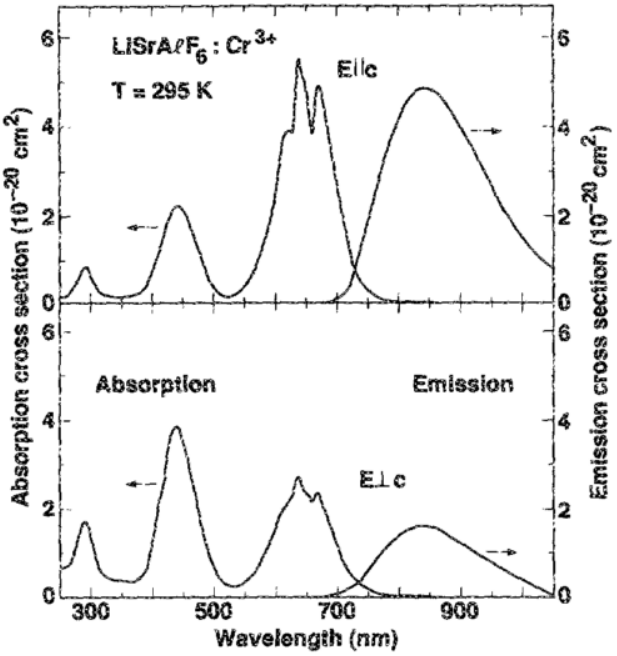


Figure A5 - 2 : Sections efficaces d'absorption et d'émission du Cr:LiSAF (Payne et al. 1989).

Section efficace d'absorption à 650 nm	$5{,}5.10^{-20}$ cm²
Section efficace d'émission à 850 nm	$4{,}8.10^{-20}$ cm²
Temps de vie	67 µs
Densité d'ions chrome (1,7 at.%)	$1{,}4.10^{20}$ cm^{-3}
Indices optiques à 850 nm	n_o = 1.387 n_e = 1.394

Tableau A5- 2 : Tableau récapitulatif des propriétés du Cr:LiSAF (Payne et al. 1989; Payne et al. 1994; Peterson et al. 1999; Chang et al. 2002).

Nd:YAG (Nd^{3+}:$Y_3Al_5O_{12}$)

Le Nd:YAG est un cristal laser isotrope qui possède de nombreuses raies d'absorption qui vont du visible au proche infrarouge, dont les principales sont situées à 530 nm, 590 nm, 750 nm, 808 nm et 885 nm. Concernant l'émission, il se comporte comme un système 4 niveaux avec des raies situées à 946 nm, 1064 nm, 1319 nm et 1338 nm. La section efficace d'émission est de $2{,}8.10^{-19}$ cm² à 1064 nm. Le temps de vie à 300 K est de 230 µs. La densité d'ions Nd^{3+} pour un dopage de 1% est de $1{,}38.10^{20}$ cm^{-3} (Koechner 2006).

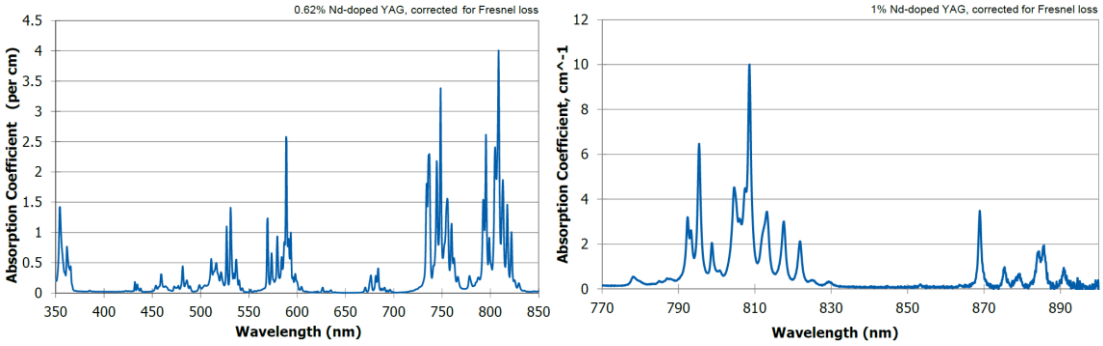


Figure A5 - 3 : Spectre d'absorption du Nd:YAG (source : Northrop Grumman).

Section efficace d'absorption à 590 nm	$3{,}9.10^{-20}$ cm²
Section efficace d'absorption à 808 nm	$6{,}2.10^{-20}$ cm²
Section efficace d'émission à 1064 nm	$2{,}8.10^{-19}$ cm²
Temps de vie	230 µs
Densité d'ions néodyme (1,0 at.%)	$1{,}38.10^{20}$ cm^{-3}
Indice optique à 1064 nm	n = 1.815

Tableau A5- 3 : Tableau récapitulatif des propriétés du Nd:YAG (Koechner 2006).

Nd:YLF (Nd^{3+}:$LiYF_4$)

Le Nd:YLF est un cristal laser uniaxe qui possède trois raies principales d'absorption situées autour de 792 nm, 797 nm et 863 nm dont les sections efficaces sont respectivement $1{,}3.10^{-19}$ cm², $7{,}5.10^{-20}$ cm² et $5{,}0.10^{-19}$ cm² (Neto 2012). Concernant l'émission, il se comporte comme un système 3 niveaux pour la raie située à 863 nm et comme un 4 niveaux pour les raies à 1047 nm, 1053 nm et 1313 nm. Les sections efficaces d'émission à 1047 nm et 1053 nm sont respectivement de $2{,}2.10^{-19}$ cm² et $1{,}4.10^{-19}$ cm². Le temps de vie à 300 K est de 485 µs. La densité d'ions Nd^{3+} pour un dopage de 1 at.% est de $1{,}4.10^{20}$ cm^{-3}.

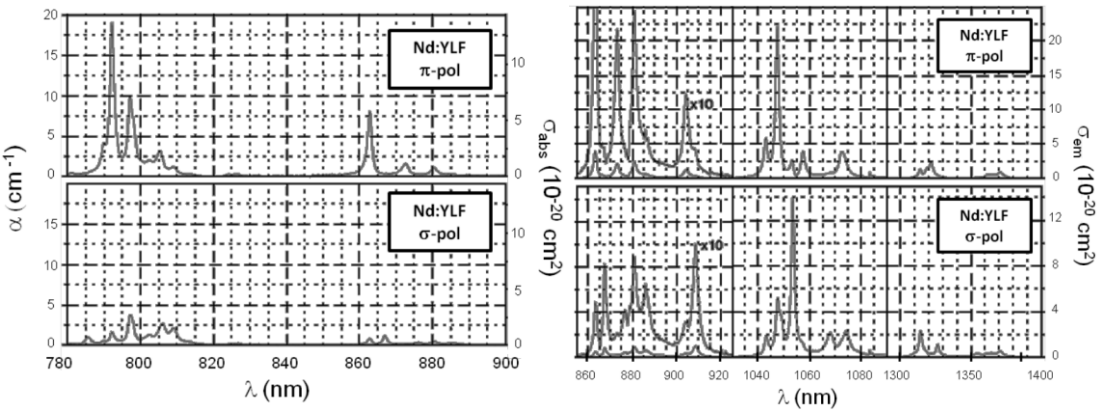


Figure A5 - 4 : Sections efficaces d'absorption et d'émission du Nd:YLF (Neto 2012).

Section efficace d'absorption à 792 nm	$1{,}3.10^{-19}$ cm² (axe c, π)
Section efficace d'émission à 1047 nm	$2{,}2.10^{-19}$ cm² (axe c, π)
Section efficace d'émission à 1053 nm	$1{,}4.10^{-19}$ cm² (axe a, σ)
Temps de vie	485 µs
Densité d'ions praséodyme (1,0 at.%)	$1{,}4.10^{20}$ cm^{-3}
Indice optique à 1053 nm	n_o = 1,448 n_e = 1,470

Tableau A5- 4 : Tableau récapitulatif des propriétés du Nd:YLF (Neto 2012).

Nd:YVO_4

Le Nd:YVO_4 est un cristal laser uniaxe qui possède de nombreuses raies d'absorption qui vont du visible au proche infrarouge, dont les principales sont situées à 530 nm, 590 nm, 750 nm, 808 nm et 885 nm. Concernant l'émission, il se comporte comme un système 4 niveaux avec des raies situées à 914 nm, 1064 nm et 1342 nm. La section efficace d'émission est de 12.10^{-19} cm² à 1064 nm. Le temps de vie à 300 K est de 90 µs. La densité d'ions Nd^{3+} pour un dopage de 1% est de $1{,}26.10^{20}$ cm^{-3} (Koechner 2006).

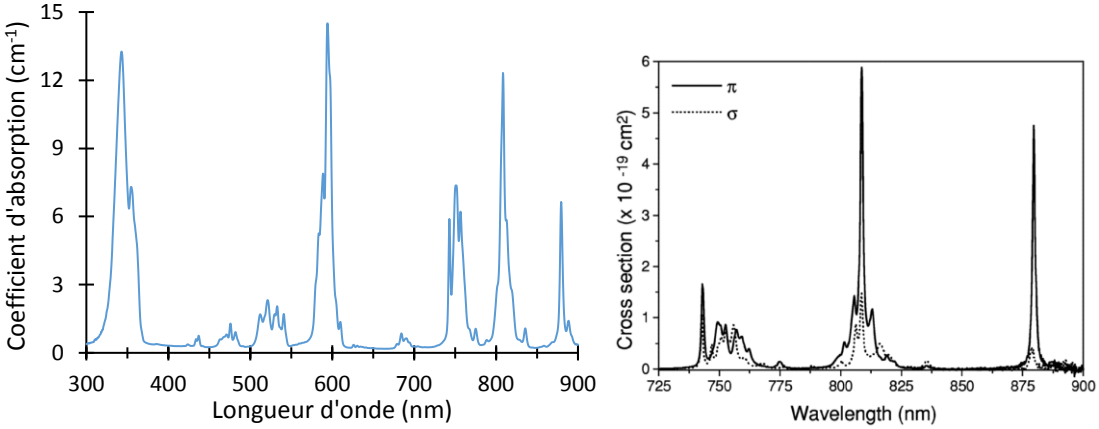


Figure A5 - 5 : Spectre d'absorption du Nd:YVO_4 (à gauche, moyenne des axes a et c pour un cristal dopé 1%, et détails autour de 808 nm issus de Peterson & Jenssen 2002 à droite).

Section efficace d'absorption à 590 nm (calculée à partir de celle à 808 nm)	$4\text{-}7.10^{-19}$ cm²
Section efficace d'absorption à 808 nm	3.10^{-19} cm² (axe c, π)[1] 6.10^{-19} cm² (axe c, π)[2] $1{,}4.10^{-19}$ cm² (axe a, σ)
Section efficace d'émission à 1064 nm	12.10^{-19} cm² (axe c, π)
Temps de vie	90 µs
Densité d'ions néodyme (1,0 at.%)	$1{,}26.10^{20}$ cm^{-3}
Indice optique à 1064 nm	n_o = 1,959 n_e = 2.166

Tableau A5- 5 : Tableau récapitulatif des propriétés du Nd:YVO_4 [1](Peterson & Jenssen 2002; Sato & Taira 2004), [2](Koechner 2006; Mcdonagh et al. 2006).

Rubis (Cr^{3+}:Al_2O_3)

Le rubis est un cristal laser uniaxe qui possède deux bandes d'absorption, autour de 400 nm et 550 nm. Concernant l'émission, il se comporte comme un système 3 niveaux avec deux raies situées à 692,8 nm et 694,3 nm. La section efficace d'émission est de $2{,}45.10^{-20}$ cm² (Koechner 2006). Le temps de vie à 300 K est de 2,8 ms (Chen et al. 2012). La densité d'ions Cr^{3+} pour un dopage de 0,022% est de $1{,}04.10^{19}$ cm^{-3}.

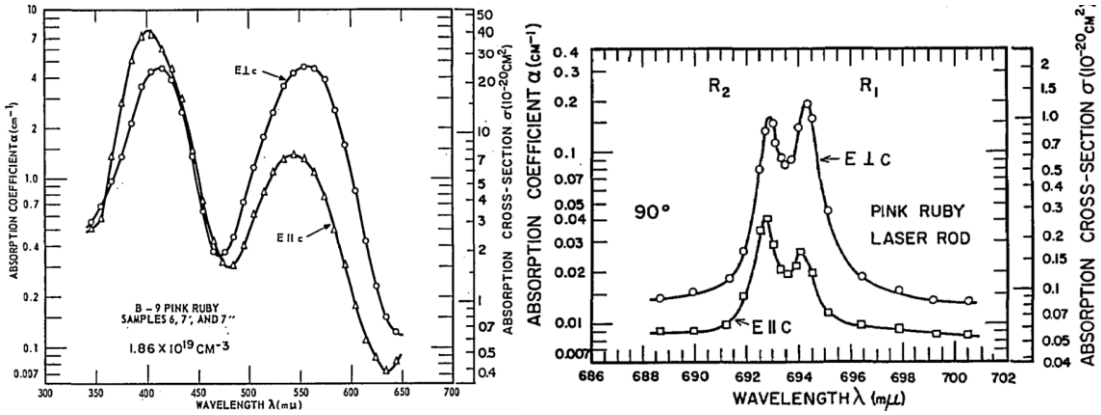


Figure A5 - 6 : Spectre d'absorption du rubis (Cronemeyer 1966).

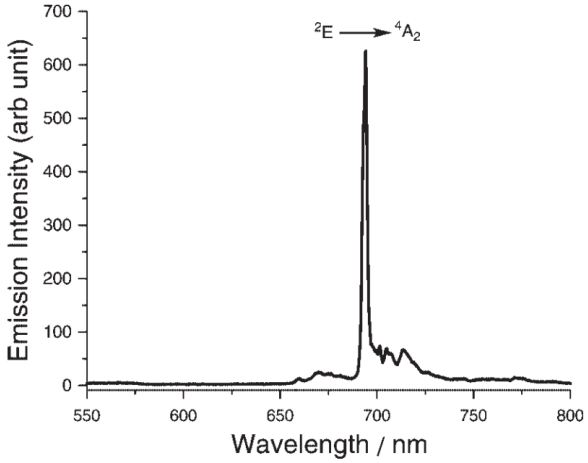


Figure A5 - 7 : Spectre d'émission du rubis (Esposti & Bizzocchi 2007).

Section efficace d'absorption à 400 nm	$4{,}0.10^{-19}$ cm² (E || a)
Section efficace d'absorption à 550 nm	$2{,}5.10^{-19}$ cm² (E || a)
Section efficace de réabsorption à 694 nm	$1{,}3.10^{-20}$ cm² (E || a)
Section efficace d'émission à 694 nm	$2{,}45.10^{-20}$ cm²
Temps de vie	2,8 ms
Densité d'ions chrome (0,022 at.%)	$1{,}04.10^{19}$ cm^{-3}
Indices optiques à 694 nm	n_o = 1,763 n_e = 1,755

Tableau A5- 6 : Tableau récapitulatif des propriétés du rubis (Cronemeyer 1966; Koechner 2006; Chen et al. 2012).

Ti:saphir (Ti^{3+}:Al_2O_3)

Le Ti:saphir est un cristal laser uniaxe qui possède une large bande d'absorption, centrée à 490 nm. Concernant l'émission, il se comporte comme un système 4 niveaux avec une très large bande centrée à 800 nm. La section efficace d'émission est de $2{,}8.10^{-19}$ cm² selon l'axe c (Moulton 1986). Le temps de vie à 300 K est de 3,2 µs. La densité d'ions Ti^{3+} pour un dopage de 0,05 at.% est de $2{,}45.10^{19}$ cm^{-3} (Deshazer & Kangas 1987).

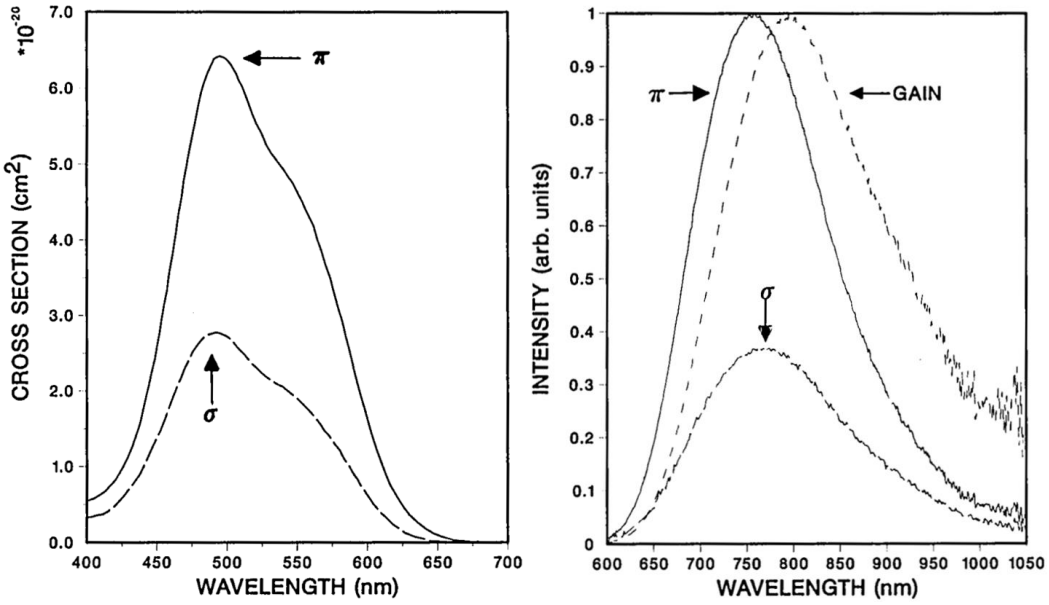


Figure A5 - 8 : Spectres d'absorption et d'émission du Ti:saphir (Moulton 1986).

Section efficace d'absorption à 490 nm	$2{,}8.10^{-19}$ cm² (E || a) $6{,}5.10^{-20}$ cm² (E || c)
Section efficace d'émission à 800 nm	$1{,}0.10^{-19}$ cm² (E || a) $2{,}8.10^{-19}$ cm² (E || c)
Temps de vie	3,2 µs
Densité d'ions chrome (0,05 at.%)	$2{,}45.10^{19}$ cm^{-3}
Indices optiques à 800 nm	n_o = 1,760 n_e = 1,752

Tableau A5- 7 : Tableau récapitulatif des propriétés du Ti:saphir (Moulton 1986; Deshazer & Kangas 1987; Koechner 2006).

BIBLIOGRAPHIE ANNEXE 5

Bukin, G. & Matrosov, V., 1981. Growth of alexandrite crystals and investigation of their properties. *Journal of Crystal Growth*, 52, pp.537–541.

Chang, C.-K., Chang, J. & Kuo, Y.-K., 2002. Optical Performance of Cr:YSO Q-switched Cr:LiCAF and Cr:LiSAF Lasers. In D. Fan, K. A. Truesdell, & K. Yasui, eds. *Optical Performance of Cr:YSO Q-switched Cr:LiCAF and Cr:LiSAF Lasers*. pp. 498–509.

Chen, C.-H. et al., 2012. Saturation of radiation trapping and lifetime measurements in three-level laser crystals. *Optics express*, 20(23), pp.25613–23.

Cronemeyer, D., 1966. Optical absorption characteristics of pink ruby. *JOSA*, 56(12), p.1703.

Deshazer, L. & Kangas, K.W., 1987. Tunable titanium doped sapphire fiber laser. In *Infrared Optical Materials and Fibers V*. pp. 118–122.

Esposti, C. & Bizzocchi, L., 2007. Absorption and emission spectroscopy of a lasing material: Ruby. *Journal of chemical education*, 84(8), pp.2–4.

Koechner, W., 2006. *Solid-state laser engineering*.

Kuper, J.W. & Brown, D.C., 2006. High Efficiency CW Green pumped Alexandrite Lasers. In H. J. Hoffman & R. K. Shori, eds. *SPIE LASE*. p. 61000T–61000T–8.

Mcdonagh, L. et al., 2006. High-efficiency 60 W TEM_{00} Nd:YVO4 oscillator pumped at 888 nm. *Optics Letters*, 31(22), pp.3297–3299.

Moulton, P.F., 1986. Spectroscopic and laser characteristics of Ti:Al203. *J. Opt. Soc. Am. B*, 3(1), pp.125–133.

Neto, J.J., 2012. *Low gain Nd:YLF Lasers operating in the quasi-three level transition and in raman lasers*.

Payne, S. a et al., 1994. Properties of Cr:LiSrAlF(6) crystals for laser operation. *Applied optics*, 33(24), pp.5526–36.

Payne, S. a. et al., 1989. Laser performance of LiSrAlF6:Cr3+. *Journal of Applied Physics*, 66(3), p.1051.

Peterson, R.D. & Jenssen, H.P., 2002. Investigation of the spectroscopic properties of Nd:YVO4. *Advanced Solid-State Lasers*, 68, pp.294–298.

Peterson, R.D., Pham, A.T. & Jenssen, H.P., 1999. Thermo-Optical Comparison of LiSAF, LiCAF, and LiSGaF. In *ASSL 1999*. pp. 1–5.

Qu, B. et al., 2015. InGaN-LD-Pumped Continuous-Wave Deep Red Laser at 670 nm in Pr3+:LiYF4 Crystal. *IEEE Photonics Technology Letters*, 27(4), pp.333–335.

Richter, A. et al., 2007. Power scaling of semiconductor laser pumped Praseodymium-lasers. *Optics express*, 15(8), pp.5172–8.

Sato, Y. & Taira, T., 2004. Saturation Factors of Pump Absorption in Solid-State Lasers. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 40(3), pp.270–280.

Xu, B. et al., 2013. Highly efficient InGaN-LD-pumped bulk Pr:YLF orange laser at 607nm. *Optics Communications*, 305, pp.96–99.

ANNEXE 6 – PISTES D'AMÉLIORATION DES CONCENTRATEURS LUMINESCENTS

Les concentrateurs luminescents ont un fort potentiel, les résultats de cette thèse le mettent en avant. Cependant, leurs performances peuvent bien évidemment être améliorées. Pour cela, plusieurs pistes sont envisageables. L'une d'elles serait la réduction de l'épaisseur du concentrateur. En effet, dans le cadre d'un pompage laser, la taille des modes fondamentaux atteint rarement la dimension du mm. Par conséquent, nous pourrions nous contenter d'une épaisseur de 500 µm par exemple, nous faisant gagner un facteur 2 sur le facteur de concentration géométrique. De plus, la qualité cristalline des matrices de YAG offre la possibilité de propager des rayons lumineux sur plusieurs dizaines de cm. Ainsi, il devrait être possible d'utiliser des cristaux plus longs que 100 mm.

Les concentrateurs massifs ne sont pas nécessairement limités aux scintillateurs. En effet, les matériaux laser peuvent également faire office de concentrateur. De très nombreux lasers à solide sont réalisés à partir d'une matrice cristalline, garantissant de faibles pertes. Par exemple, le Ti:saphir, avec sa bande d'émission centrée à 800 nm, pourrait être un (très ?) bon candidat pour pomper des matériaux dopés à l'ion néodyme. Aussi, nous pourrions imaginer pomper un Cr:LiSAF avec un concentrateur fait en rubis (émission à 694 nm). Des travaux récents (Meinardi et al. 2014) pourraient laisser penser que des boites quantiques immergées dans des matrices en polymère tel que le PMMA puissent constituer des concentrateurs avec suffisamment peu de pertes. De tels objets seraient fortement intéressants car il est possible de choisir la longueur d'onde d'émission en jouant sur la taille (du cœur et de la coquille) des boites quantiques. Ce degré de liberté rend leur utilisation bien plus souple qu'avec des cristaux dont les propriétés d'émission sont figées par la spectroscopie du matériau.

Par ailleurs, il existe également des pistes d'amélioration concernant l'extraction des rayons piégés dans les concentrateurs. La première cherchera à frustrer la RTI sur la face de sortie S_{sortie}. Cela peut se faire de différentes manières : un dépoli (50% de réflexion, 50% de transmission) permet déjà de gagner quasiment un facteur 3 par rapport à une face polie, émettant dans l'air. Il est aussi envisageable de biseauter la face de sortie (à l'aide d'un polissage optique) pour faire en sorte que les rayons incidents sur S_{sortie} ne soient pas en RTI. Cette solution permet d'extraire une majorité de rayon par la face de sortie, la minorité étant extraite par la face du dessous (voir schéma en Figure A6 - 1 (a)). Nous pouvons aussi coller des éléments afin d'extraire la lumière comme l'a fait très récemment une équipe hollandaise (Roelandt et al. 2015; de Boer et al. 2016) en collant un CPC en sortie d'un concentrateur en Ce:YAG, voir Figure A6 - 1 (b). Le CPC permet de diminuer l'angle de sortie des rayons pour les rendre quasiment collimatés (il s'agit du fonctionnement inverse de ce qui a été présenté au début du Chapitre III, partie III.1.2.b). La contrepartie de cette solution est que la surface émettrice devient plus grande (le principe de conservation de l'étendue géométrique est respecté). Un dernier élément permettant de « vidanger » un concentrateur est l'utilisation de lentilles boules. En effet, ces dernières, étant en verre, permettent d'adapter l'indice de sortie, donc de récupérer certains rayons piégés. Les rayons sortants ne sont pour autant pas piégés dans cette nouvelle optique puisque leur angle d'incidence est forcément normal à la surface de la lentille, voir Figure A6 - 1 (c) (Parel et al. 2015).

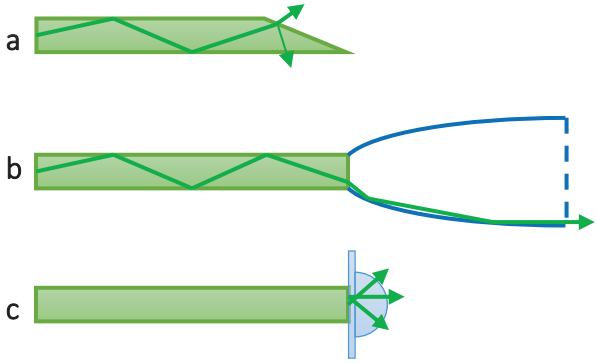


Figure A6 - 1 : (a) concentrateur biseauté, (b) concentrateur collé à un CPC, (c) concentrateur collé à une lentille boule.

La seconde école cherchera plus à diriger les rayons dans une direction privilégiée. Pour cela, une solution proposée dans la littérature (Peters et al. 2009) consiste à mettre une structure photonique de part et d'autre du concentrateur pour guider la lumière préférentiellement dans une direction (voir Figure A6 - 2). En faisant cela, les auteurs ont réussi à augmenter le flux en sortie de la face considérée de 20%. Enfin, une autre dernière solution consisterait à utiliser l'émission stimulée dans un concentrateur afin de rendre le flux de sortie plus directif et légèrement plus resséré spectralement (Morgan & Dufour 2012; Kaysir et al. 2016).

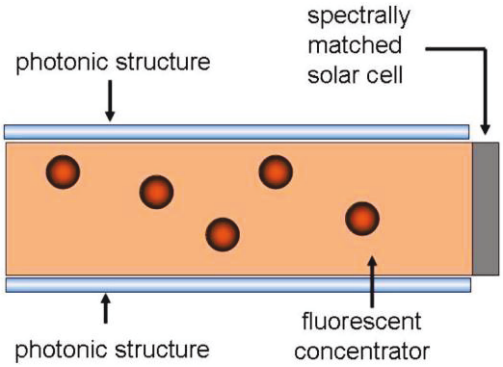


Figure A6 - 2 : Structure photonique proposée par (Peters et al. 2009) amenant la lumière vers la cellule photovoltaïque.

Références bibliographiques :

de Boer, D.K.G., Bruls, D. & Jagt, H., 2016. High-brightness source based on luminescent concentration. *Optics Express*, 24(14), p.A1069.

Kaysir, R. et al., 2016. Luminescent solar concentrators utilizing stimulated emission. *Optics express*, 24(6), p.A497.

Meinardi, F. et al., 2014. Large-area luminescent solar concentrators based on "Stokes-shift-engineered" nanocrystals in a mass-polymerized PMMA matrix. *Nature Photonics*, 8(5), pp.392–399.

Morgan, J.P. & Dufour, P., 2012. Pulse stimulated emission luminescent photovoltaic solar concentrator.

Parel, T.S. et al., 2015. Modelling and experimental analysis of the angular distribution of the emitted light from the edge of luminescent solar concentrators. *Optical Materials*, 42, pp.532–537.

Peters, M. et al., 2009. The effect of photonic structures on the light guiding efficiency of fluorescent concentrators. *Journal of Applied Physics*, 105(1), pp.1–11.

Roelandt, S. et al., 2015. Incoupling and outcoupling of light from a luminescent rod using a compound parabolic concentrator. *Optical Engineering*, 54(5), p.55101.

TABLE DES FIGURES

Figure I-1 : Première observation de l'électroluminescence (Round 1907). 14
Figure I-1 : Nombre de travaux (publications, livres, brevets…) sur le pompage par LED depuis l'invention du laser. 18
Figure I-2 : Évolution de l'efficacité et du coût des LEDs au fil des années. 20
Figure I-3 : Schéma du laser Nd:YAG pompé par LED de (Allen & Scalise 1969). 22
Figure I-4 : Montage expérimental utilisé pour étudier le laser fibré pompé par LED. 23
Figure I-5 : Schéma de pompage utilisé par (Farmer & Kiang 1974) utilisant un réflecteur d'indice N_3. 23
Figure I-6 : Schéma du réflecteur utilisé pour coupler la lumière en sortie de la LED dans un barreau laser. 24
Figure I-7 : Schéma d'un laser à polymère pompé par LED (Yang et al. 2008). 25
Figure I-8 : Illustration schématique de la LED (GaAs) intégrée au semi-conducteur laser (X. Liu et al. 2013). 26
Figure I-9 : (en haut) Montage utilisé pour les mesures de gain (TSL = tunable semiconductor laser, OSA = optical spectrum analyzer, EDF = erbium doped fiber) ; (en bas) spectres d'émission d'une LED blanche et d'absorption d'une fibre dopée erbium et erbium/aluminium (Htein et al. 2012; Htein et al. 2014a). 27
Figure I-10 : Puissances spectrales avant et après amplification dans la fibre (Htein et al. 2012). 27
Figure I-11 : à gauche : description de l'architecture de pompage, à droite : photo de la tête de pompage optique réalisée pour un barreau de Nd:YAG (Lee, Bae, et al. 2011). 28
Figure I-12 : Schéma du système laser et résultats (Villars et al. 2015). 28
Figure I-13 : Schéma de la cavité en Z réalisée par (Huang et al. 2016). 29
Figure I-14 : Première LED réalisée (Holonyak & Bevacqua 1962) et photographie de Nick Holonyak Jr. 30
Figure I-15 : Évolution du spectre d'émission d'une LED avec la température (Zissis & Logivière 2011). 31
Figure I-16 : Évolution du marché des LEDs au fil des années (CAGR = Compound annual growth rate ou taux de croissance annuel moyen). 32
Figure I-17 : Évolution de l'efficacité des principales sources d'éclairage au fil des années. 32
Figure I-18 : (a) LED bleue fabriquée par Nakamura (Nakamura et al. 1994), (b) schéma d'une jonction à double hétéro-structure avec puits quantiques. 33
Figure I-19 : Éloignement des fonctions d'onde des électrons Ψe et des trous Ψh sous l'application d'un champ électrique, induisant une diminution de l'énergie de recombinaison Eg 34
Figure I-20 : Durée de vie d'une LED K2 Luxeon (B50 L70) en fonction du courant et de la température de jonction (Zissis & Logivière 2011), issue de la documentation Luxeon. 35
Figure I-21 : Loi de Haitz : en 10 ans, la puissance émise par une LED augmente d'un facteur 20 et son prix est divisé par 10 (Liu et al. 2009). 35
Figure I-22 : Substrats de saphir servant de base pour l'épitaxie (présentation Épistar). 36
Figure I-23 : État de l'art des rendements quantiques externes de LEDs visibles hautes puissances, à 25°C. (1) LEDs TFFC en InGaN, 350 mA ; (2) LED VTF en InGaN, 1000 mA ; (3) LEDs CC en InGaN avec des substrats structurés ; (4) Performances de LEDs de production en AlGaInP à 350 mA de chez Philips Lumileds Lighting Co.; V(λ) est la courbe de sensibilité de l'œil en vision photopique selon la CIE. Les pointillés servent à guider les yeux (Krames et al. 2007). 36
Figure I-24 : Configurations typiques de LEDs en InGaN-GaN. (a) Conventional chip (CC) avec un contact p semi-transparent, (b) Flip-chip (FC) avec un contact p réfléchissant, (c) Vertical-injection thin film (VTF) adhéré à un réflecteur en métal, (d) Thin-film flip-chip (TFFC). Les deux configurations « thin-film » permettent d'avoir accès à la surface en GaN et d'améliorer l'extraction de la lumière (en structurant la surface ou à l'aide de micro-optiques), (Krames et al. 2007). 37

Figure I-25 : Évolution des boitiers des LEDs : a) 1ère LED (Holonyak & Bevacqua 1962), b) LED à broches, c) LED CMS « Leadform », d) LED CMS « Leadless », e) LED CSP 39
Figure I-26 : Schéma d'une LED à broches (Craford et al. 2001). 39
Figure I-27 : (à gauche) Schéma d'une LED « Leadform » avec une puce (1), un support d'interconnexion et de dissipation thermique (2), un luminophore (3), un encapsulant (4), une lentille (5) et des pattes d'interconnexion externes (6) ; (à droite) illustration d'une LED « Leadform », source : Lumileds. 39
Figure I-28 : (à gauche) Schéma d'une LED « Leadless » avec une puce (1), une embase en céramique (2), des vias traversants (3) et des interconnexions de surface (4) ; (à droite) illustration d'une LED « Leadless », source : Épistar. 40
Figure I-29 : LEDs CSP type Luxeon de Lumileds. 40
Figure I-30 : Les différentes efficacités d'une LED, MYPP = Muli-Year Program Plan, IQE = Internal Quantum Efficiency, EQE = External Quantum Efficiency, stabilité de l'EQE : EQE à 100 A/cm² relative à 35 A/cm². 41
Figure I-31 : Efficacités quantiques internes théorique et expérimentale d'une LED (Zissis & Logivière 2011). 42
Figure I-32 : Puissances spectrales relatives des LEDs (normalisées par rapport à la LED UV, la plus puissante). En continu, l'état des puissances en 2013 et en pointillés, l'amélioration en 3 ans. 43
Figure I-33 : Puissances spectrales relatives des LEDs en régime impulsionnel (en trait plein) et en continu pour comparaison (en pointillés). Pour chaque courbe sont précisés le gain $Gimpulsionnel$ et le courant de claquage. La durée d'impulsion est fixée à 4 µs pour toutes les mesures. 44
Figure I-34 : Illustration du décalage spectral entre des LEDs en régime impulsionnel (trait plein) et continu (trait pointillé). 45
Figure II-1 : Schéma associé à la définition du gain laser. 54
Figure II-2 : Cristal de hauteur h, de largeur l et de longueur L dans un repère (x,y,z). 56
Figure II-3 : Comparaison des pompages longutudinal et transverse. 57
Figure II-4 : Indicatrice d'intensité (ou diagramme d'émission) d'une LED non-lentillée. 58
Figure II-5 : Focalisation de l'éclairement émis par une LED à l'aide d'un jeu de lentilles. E_{LED} = éclairement de la LED, E_p = éclairement de pompe incident sur le cristal laser, α = angle d'ouverture du système optique. 58
Figure II-6 : Simulation d'un cône concentrant la lumière de la LED (à gauche). Indicatrice de sortie de la petite face (à droite). 59
Figure II-7 : Objet éclairé par une source de luminance L. 59
Figure II-8 : Cristal laser entouré de 8 LEDs à équidistance. 60
Figure II-9 : Cristal laser entouré de 4 LEDs. 60
Figure II-10 : Exemple de modélisation sous LightTools d'un système pompage laser par LED. 61
Figure II-11 : Carte d'éclairement de pompe au sein du cristal – coupe transversale. 61
Figure II-12 : Graphique illustrant les propriétés d'absorption en fonction de celle d'émission pour différents critstaux laser. La couleur de chaque point correspond à la longueur d'onde de pompage. Les points dont la couleur est un damier orange et bleu correspond à des LEDs bleues recouvertes de phosphore ambré. 64
Figure II-13 : Orientation et dimensions du cristal de Nd:YVO4. 67
Figure II-14 : Transmission après une propagation de 2 mm dans un cristal de Nd:YVO_4 dopé 1,0 at.% (moyenne sur les axes a et c). Spectres d'émission de LEDs ambre, PC Amber et IR. 68
Figure II-15 : Architecture de la cavité laser. PD = photodiode. 69
Figure II-16 : Définition du rôle de chacune des faces du cristal. 69
Figure II-17 : À gauche : Vue de face, au centre : zoom sur la zone du cristal, à droite : vue d'ensemble de la tête de pompage optique. 70
Figure II-18 : Photo du dispositif de pompage réalisé et assemblé avec les alimentations des LEDs de chaque côté. 70
Figure II-19 : Alimentation PCO-6131 (Directed Energy, Inc) utilisées pour les LEDs ambre et IR. 71
Figure II-20 : À gauche et au milieu: LED disposées linéairement utilisées pour le pompage du Nd:YVO_4, à droite : le circuit électrique de ces LEDs, source : Chips4Light. 71

Figure II-21 : Éclairement émis par une LED ambre et gain $G_{impulsionnel}$ (pour des impulsions de 100 µs) en fonction du courant injecté. 72
Figure II-22 : À gauche : connectique des LEDs ambre avant cassure, à droite : connectique après cassure. 72
Figure II-23 : Spectres d'émission des LEDs ambre pour deux courants d'injection (0,2 A/mm² en continu et 3,2 A/mm² pendant 100 µs). Une superposition avec la raie d'absorption du Nd:YVO_4 sur la même plage spectrale est faite (moyenne des deux polarisations a et c pour un cristal dopé 1,0 at.%). 73
Figure II-24 : Profil temporel d'une impulsion de pompe émise par un panneau de LEDs ambre. 73
Figure II-25 : Déformation spectrale pour différents courants injectés et bandes d'absorption du Nd:YVO_4 pour un dopage de 1,0 at. % (Mcdonagh et al. 2006). 74
Figure II-26 : Étude en fréquence de l'énergie émise par les 2 panneaux de LEDs IR au courant maximal de 6,7 A/mm². Insert : photographie des LEDs IR après la cassure. 74
Figure II-27 : Illustration d'un panneau de LEDs Luxeon Z PC Amber avec la répartition en groupes de 6 puces. 75
Figure II-28 : Évolution de la puissance en sortie d'une LED Z PC Amber en fonction du courant injecté, pour des impulsions de 100 µs et 300 µs, à 10 Hz. 75
Figure II-29 : Spectre d'émission d'une LED Z PC Amber en continu à 700 mA. 76
Figure II-30 : Énergie laser en fonction de l'énergie de pompe émise par les deux panneaux de LEDs ambre. Durée de pompe : 100 µs, fréquence : 30 Hz, rayon de courbure du coupleur : 100 mm. Insert : photos des profils spatial et temporel du laser. 77
Figure II-31 : Énergie laser en fonction de l'énergie de pompe émise par les deux panneaux de LEDs IR. Durée de pompe : 100 µs, fréquence : 250 Hz, rayon de courbure du miroir HR : 500 mm. Insert : photos des profils spatial et temporel du laser. 77
Figure II-32 : Énergie laser en fonction de l'énergie de pompe émise par les deux panneaux de LEDs Z PC Amber. Durée de pompe : 100 µs, fréquence : 30 Hz, rayon de courbure du miroir HR : 500 mm. Insert : photos des profils spatial et temporel du laser. 78
Figure II-33 : Profils temporel et spatial du laser en configuration monomode. 79
Figure II-34 : Comparaison des énergies laser en fonction de l'énergie de pompe pour un pompage dans l'ambre, dans l'IR ou avec des LEDs Z PC Amber. Durée de pompe 100 µs. 79
Figure II-35 : Gain petit signal G_0 en fonction de l'énergie de pompe nécessaire pour atteindre le seuil laser, pour différentes transmissions de coupleur, pour chacun des pompages. 80
Figure II-36 : Gain petit signal G_0 théorique et expérimental en fonction de l'énergie de pompe en sortie des deux panneaux de LEDs IR nécessaire pour atteindre le seuil laser, pour différentes transmissions de coupleur. 81
Figure II-37 : Vue transverse du schéma de pompage avec le cristal au centre et les panneaux de LEDs de part et d'autre. X et Y sont les deux paramètres clés. 82
Figure II-38 : Évolution du gain petit signal théorique G_0 en fonction du désalignement entre les deux panneaux de LEDs IR (Y) et la distance entre les LEDs et le cristal (X). 82
Figure III-1: (a) lentille de Fresnel illuminant une cellule photovoltaïque, (b) concentrateur à deux miroirs paraboliques. 89
Figure III-2 : Paramètres importants d'un CPC. 90
Figure III-3 : Principe de fonctionnement d'un LSC. 1) les rayons du soleil sont absorbés par les luminophores qui réémettent un rayonnement lumineux, 2) la lumière réémise est guidée par réflexions totales internes (RTI) jusqu'aux bords du concentrateur, 3) une partie de la lumière, non comprise dans le cône de RTI, s'échappe du concentrateur et est perdue, 4) une partie de la lumière réémise est réabsorbée par un luminophore, 5) des défauts dans la matrice peuvent absorber ou diffuser la lumière incidente ou réémise. 90
Figure III-4 : (a) concentrateur massif uniformément dopé, (b) colorant sur lame bas indice $n_1 > n_2$, (c) colorant sur lame haut indice $n_1 < n_2$. 92
Figure III-5 : Schéma d'un laser pompé par un concentrateur luminescent avec entre autres, les modes guidés dans le concentrateur en trait plein et les modes de fuite en pointillés (Yang et al. 2009). 92

Figure III-6 : Schéma d'un concentrateur pompé par des LEDs, avec les faces pompée et de sortie. ... 94
Figure III-7 : Schéma de pompage d'un concentrateur parallélépipédique. ... 96
Figure III-8 : À gauche, le concentrateur prismatique ("wedged") proposé par Hughes et. al, à droite un concentrateur parallélépipédique, avec les faces de sortie en noir. ... 96
Figure III-9 : Schéma de pompage d'un concentrateur cylindrique. ... 97
Figure III-10 : Différences d'indices optiques à prendre en compte pour extraire le plus de lumière possible : $\Delta n_{21}=n_2-n_1$ et $\Delta n_{32}=n_3-n_2$. ... 98
Figure III-11 : Cônes de guidage et d'échappement d'un concentrateur luminescent parallélépipédique. ... 100
Figure III-12 : Évolution du produit ηexc x ηRTI en fonction de l'indice du concentrateur ($\eta_Q = 1$, $n_1 = 1$). ... 100
Figure III-13 : Efficacité optique $\eta o/o$ du concentrateur en fonction de son indice, pour différents indices optiques du milieu laser, en supposant un concentrateur sans perte avec $\eta Q = 1$. ... 101
Figure III-14 : Exemples de matériaux présentant un fort (DCM) et un faible (Rhodamine 640) déplacement de Stokes (ou « Stokes shift ») (Forget & Chénais 2013). ... 103
Figure III-15 : Évolution de la puissance (normalisée) en sortie d'un concentrateur parallélépipédique (100x2,5x1 mm^3), pour différents libres parcours moyens, en fonction des pertes passives de la matrice. ... 103
Figure III-16 : Comparaison des bandes d'absorption des matériaux concentrateur (en haut) et d'émission des LEDs (en bas). ... 106
Figure III-17 : Exemples de scintillateurs couvrant le spectre visible (source : Crytur). ... 106
Figure III-18 : Spectres d'absorption et d'émission du Ce:YAG. ... 109
Figure III-19 : Schéma expérimental pour mesurer l'absorption du Ce:YAG après 1 mm de propagation. ... 109
Figure III-20 : Spectres des LEDs mesurés avant et après une propagation de 1 mm dans un concentrateur en Ce:YAG. ... 110
Figure III-21 : Plan des 14 panneaux de LED utilisés pour le concentrateur de 9 mm. Les dimensions sont en mm. ... 111
Figure III-22 : (a) schéma et photo d'une LED Luxeon, (b) configuration de pompage Ce:YAG 2,5 mm, (c) configuration de pompage Ce:YAG 14 mm. ... 112
Figure III-23 : Disposition des LEDs autour des Ce:YAG pour les mesures d'efficacité. ... 113
Figure III-24 : Mesure de la puissance des panneaux de LEDs lorsqu'il n'était possible de le faire avec une sphère intégrante. ... 113
Figure III-25 : Différence dans le nombre de réflexions en fonction de la largeur du concentrateur. ... 115
Figure III-26 : Effet des coins sur le guidage des rayons. ... 116
Figure IV-1 : Spectres d'absorption du Nd:YVO_4 (moyenne des axes a et c) et de fluorescence du Ce:YAG. ... 122
Figure IV-2 : Schéma d'utilisation du concentrateur. ... 123
Figure IV-3 : Schéma complet de l'expérience. ... 123
Figure IV-4 : Photo d'un des deux blocs de LEDs. 12 modules de 25 LEDs sont disposés sur chaque bloc. Des connecteurs à eau permettent le refroidissement de l'ensemble. ... 124
Figure IV-5 : (À gauche) photo de l'électronique développée, avec 12 cartes « filles » clipsées sur la carte « mère ». Un second exemplaire permet de piloter les autres LEDs ; (à droite) photo de l'armoire électrique alimentant l'ensemble. ... 124
Figure IV-6 : Ensemble de la tête de pompage 2ème génération. ... 125
Figure IV-7 : Zoom sur le concentrateur en Ce:YAG de 9 mm collé au cristal de Nd:YVO_4, dans la tête de pompage. ... 125
Figure IV-8 : Évolution du gain petit signal en simple passe G_0 en fonction de l'énergie couplée dans le Nd:YVO_4, pompage avec le concentrateur de 9 mm. ... 126
Figure IV-9 : Évolution de l'énergie en sortie du laser en fonction de l'énergie couplée dans le Nd:YVO_4, pour différentes transmissions du coupleur de sortie. Pompage avec le concentrateur de 9 mm pendant 100 µs à 100 Hz, cavités plans-concaves, longueurs = 70 - 85 mm. ... 127

Figure IV-10 : Évolution de l'énergie de sortie à énergie de pompe maximale (10,8 mJ) en fonction de la transmission des coupleurs de sortie. 128
Figure IV-11 : Spectres d'émission du Ce:YAG et d'absorption du Ti:saphir (moyenne des axes a et c), du Nd:YAG, du Nd:YVO_4 (axe c) et de l'alexandrite (parallèle à l'axe b), avec les dopages associés. 129
Figure IV-12 : Géométrie du dernier dispositif de pompage conçu. 130
Figure IV-13 : Photos de la tête de pompage à l'arrêt (à gauche) et en fonctionnement (à droite). ... 132
Figure IV-14 : Photos d'un contrôleur et de l'armoire électrique, en cours de montage. 133
Figure IV-15 : Orientation cristalline du Nd:YVO_4 utilisé. 133
Figure IV-16 : Illustration du bloc de refroidissement du cristal. 134
Figure IV-17 : Types de cavités laser testées. 134
Figure IV-18 : Évolution de l'énergie en sortie du laser en fonction de l'énergie couplée dans le Nd:YVO_4, pour différentes transmissions du coupleur de sortie. Pompage avec les concentrateurs de 2,5 et 14 mm pendant 250 µs à 30 Hz, cavités plan-plan, longueur = 35 mm. 135
Figure IV-19 : Trois points laser en sortie de la cavité plan-plan. 135
Figure IV-20 : Évolution de l'énergie en sortie du laser en fonction de l'énergie couplée dans le Nd:YVO_4, pour différentes transmissions du coupleur de sortie. Pompage avec les concentrateurs de 2,5 et 14 mm pendant 250 µs à 30 Hz, cavités losange plan-concave, longueur = 150 mm. 136
Figure IV-21 : Schéma de la cavité laser en déclenchement passif à l'aide d'absorbants saturables... 137
Figure IV-22 : Énergie laser pour différentes transmissions des coupleurs de sortie (R = 500 mm), en régime relaxé. Pompage avec les concentrateurs de 2,5 et 14 mm pendant 250 µs à 10 Hz, cavité plan-concave, L_{cav} = 80 mm. 138
Figure IV-23 : Évolution de l'énergie en sortie du laser en régime relaxé en fonction de l'énergie couplée dans le Nd:YAG, pour une transmission du coupleur de sortie de 25%, R = 500 mm. Pompage avec les concentrateurs de 2,5 et 14 mm pendant 250 µs à 10 Hz, cavité plan-concave, L_{cav} = 80 mm. 138
Figure IV-24 : Énergie laser pour une émission multimode transverse pour différentes transmissions des coupleurs de sortie, en régime déclenché. Pompage avec les concentrateurs de 2,5 et 14 mm pendant 250 µs ou 70 µs à 10 Hz, cavité plan-concave (R = 500 mm), absorbant saturable T_0 = 85%, L_{cav} = 80 mm. 139
Figure IV-25 : Profil temporel typique des impulsions laser Q-switch pour des durées de pompe différentes. 139
Figure IV-26 : Énergie laser pour une émission monomode transverse pour différents coupleurs de sortie, en régime déclenché. Pompage avec les concentrateurs de 2,5 et 14 mm pendant 80 µs à 10 Hz, absorbant saturable T_0 = 85%, L_{cav} = 80 mm. 140
Figure IV-27 : Profils temporel et spatial de l'impulsion laser monomode, ayant une énergie de 263 µJ. Pompage avec les concentrateurs de 2,5 et 14 mm pendant 250 µs à 10 Hz, absorbant saturable T_0 = 80%, coupleur de sortie T = 10%, R = 500 mm, L_{cav} = 80 mm. 140
Figure IV-28 : Montage expérimental du laser Ti:saphir pompé par LED assisté d'un Verdi, PD = photodiode. 142
Figure IV-29 : Schéma des impulsions de pompe. 143
Figure IV-30 : Comparaison théorique et expérimentale du gain laser apporté par les LEDs en fonction de l'énergie de pompe en sortie des concentrateurs en Ce:YAG. 144
Figure IV-31 : Signal temporel de l'impulsion laser en sortie du laser Ti:saphir. 145
Figure IV-32 : Zoom sur le sommet du profil temporel de l'impulsion laser. 145
Figure V-1 : Regroupement des pistes d'amélioration en 3 parties : 1) concentrateurs, 2) milieu adaptateur d'indice et 3) matériau et cavité laser. 152

TABLE DES TABLEAUX

Tableau I-1 : Récapitulatif des ordres de grandeur des systèmes laser dans les années 70. 24
Tableau I-2 : Comparatif des grandeurs caractéristiques des systèmes laser des années 1970 et d'aujourd'hui. SC = semi-conducteur, cw = régime continu. 29
Tableau I-3 : Récapitulatif des longueurs d'onde existantes avec les puissances associées. *Puissances obtenues pour une puce de 1x1 mm² alimentée en continu par un courant de 1 A. 43
Tableau II-1 : Comparatif des produits $\sigma el.\tau$ et des largeurs des bandes d'absorption de différents matériaux laser se pompant dans le visible. FWHM = Full Width at Half Maximum (largeur à mi-hauteur). En bleu, des milieux avec un produit $\sigma el.\tau$ élevé, en orange une large bande d'absorption. 63
Tableau II-2 : Éclairements de pompe au milieu du cristal considéré issus de LightTools. Ces éclairements crêtes sont obtenus pour des durées d'impulsion de l'ordre du temps de vie du matériau correspondant. 64
Tableau III-1 : Paramètres physiques de quelques scintillateurs, classés par longueur d'onde d'émission croissante (sources : SAINT GOBAIN CRYSTAL; Crytur; Baccaro et al. 1995; Melcher 2000; SELLÈS 2006). 107
Tableau III-2 : Récapitulatif du recouvrement des bandes spectrales d'émission du matériau concentrateur et d'absorption du matériau laser. Accord spectral parfait, accord spectral partiel, désaccord spectral. 107
Tableau III-3 : Comparaison des différentes mesures de facteur de concentration, configuration avec $\eta fill = 1$ et sans perte. 110
Tableau III-4 : Récapitulatif des grandeurs d'intérêt dans l'air pour 3 largeurs de Ce:YAG. 115
Tableau IV-1 : Comparaison entre le pompage par LED direct et indirect, durée de pompe 250 µs. 128
Tableau IV-2 : Tableau récapitulatif des caractéristiques des LEDs pour chaque cristal envisagé par un pompage par concentrateur en Ce:YAG. 130
Tableau IV-3 : Récapitulatif des résultats de simulation avec un pompage analogue à celui de la Figure IV-12, pour les puissances par LED affichées dans le Tableau IV-2. 130
Tableau IV-4 : Comparatif entre les différents systèmes laser Nd:YVO_4 développés. 136
Tableau IV-5 : Gain laser apporté par les LEDs en pompant un cristal de Ti:Al_2O_3 avec des durées d'impulsion de 15 µs et 230 µs. 143
Tableau V-1 : Caractéristiques principales des dispositifs laser réalisés. 151
Tableau V-2 : Résumé des pistes d'amélioration suggérées. AS = Absorbant saturable. 152

université PARIS-SACLAY | ÉCOLE DOCTORALE Ondes et Matière (EDOM)

Titre : Pompage par LED de matériaux laser émettant dans le visible ou l'infrarouge proche.

Mots clés : Diode électroluminescente, laser, concentrateur, néodyme, pompage par LED.

Depuis le début des années 2000, les performances des diodes électroluminescentes (LED) ne cessent de s'améliorer alors que leur prix connait une diminution spectaculaire grâce à une production à grande échelle liée au marché de l'éclairage. Ainsi, les LED deviennent une source de lumière intéressante pour le pompage de lasers solides, intermédiaire entre les lampes flash et les diodes laser. C'est pourquoi, nous proposons dans cette thèse, de revisiter le pompage laser par LED, 40 ans après la première démonstration. Nous avons démontré le premier système laser Nd:YVO_4 pompé directement par LED. La brillance des LEDs limitant fortement les performances, nous nous sommes intéressé au concept de concentrateur luminescent (en Ce:YAG) pompé par LED. Nous avons ainsi développé une nouvelle source d'éclairage haute brillance, améliorant les performances des LEDs d'un facteur 20 pour aboutir à des éclairements de l'ordre de plusieurs kW/cm². Le pompage laser par cette nouvelle source de pompage a été validé pour la première fois sur les cristaux laser de Nd:YVO_4 (3 mJ obtenus avec un profil monomode et 6 mJ en multimode) ainsi que sur des cristaux de Nd:YAG. Dans ce dernier cas, un déclenchement passif à l'aide d'absorbants saturables a permis d'obtenir ainsi des performances encore jamais atteintes pour un laser pompé par LED. Ainsi, les concentrateurs pompés par LED ouvrent de nouvelles possibilités pour le pompage de matériaux laser nécessitant de forte brillance de pompage. Les premiers essais sur le saphir dopé au titane montrent qu'il est possible d'obtenir du gain sur ce matériau en pompage par LED.

Title : LED pumping of gain media emitting in the visbile or the NIR.

Keywords : Light-emitting diode (LED), laser, concentrator, neodymium, LED pumping.

Abstract : Since the early 2000s, the lighting market is constantly growing up, pulling the Light-Emitting Diodes (LED) performance forward and pushing their cost down. LED is becoming an interesting source of light for laser pumping, between flashlamp and laser diodes. Thus, 40 years after the first demonstration, we suggest to revisit laser LED pumping. In this work, we demonstrated for the first time a Nd:YVO_4 laser directly LED-pumped. LED radiance being limited, we took interest in LED-pumped luminescent concentrators. By developing Ce:YAG concentrator, we were able to overcome the LEDs irradiance by a factor of 20, leading to output irradiances of the order of multi-kW/cm². We validated the concept by pumping for the first time a Nd:YVO_4 crystal and a Nd:YAG crystal with luminescent concentrators. Output energies of several mJ were obtained. In addition, we succeeded to get a passively Q-switched regime for the Nd:YAG laser by using saturable absorbers leading to unpreceded performance for a LED-pumped laser. Finally, LED-pumped concentrators pave the way for new possibilities for high-radiance source pumped media. Our first tests on titanium doped sapphire show that a laser gain with a LED pumping is achievable.