



HAL
open science

Lasers solides émettant à 2,3 μm à base de cristaux dopés au thulium : Comprendre la spectroscopie pour améliorer l'efficacité

Hippolyte Dupont

► **To cite this version:**

Hippolyte Dupont. Lasers solides émettant à 2,3 μm à base de cristaux dopés au thulium : Comprendre la spectroscopie pour améliorer l'efficacité. Optique [physics.optics]. Université Paris-Saclay, 2024. Français. $\langle\text{NNT} : 2024\text{UPASP126}\rangle$. $\langle\text{tel-05122743}\rangle$

HAL Id: tel-05122743

<https://pastel.hal.science/tel-05122743v1>

Submitted on 20 Jun 2025

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

Lasers solides émettant à 2,3 μm à base de cristaux dopés au thulium : Comprendre la spectroscopie pour améliorer l'efficacité

2.3 μm thulium doped solid state lasers: understanding spectroscopy to increase the laser efficiency

Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay

École doctorale n°572 : ondes et matière (EDOM)

Spécialité de doctorat : Physique

Graduate School : Physique. Référent : Institut d'Optique

Thèse préparée au Laboratoire Charles Fabry, Université Paris Saclay, Institut d'Optique, CNRS, sous la direction de **Frédéric Druon**, directeur de recherche.

Thèse soutenue à Paris-Saclay, le 14 novembre 2024, par

Hippolyte DUPONT

Composition du Jury

Membres du jury avec voix délibérative

Sébastien FORGET

Professeur des universités
LPL, Université Paris Sorbonne
Nord. Rapporteur

Bernard DUSSARDIER

Directeur de recherche
INPHYNI, CNRS Rapporteur

Myriam RAYBAUT

Directrice de recherche
ONERA Présidente

Christelle KIELECK

Chargée de recherche
Fraunhofer Institute of Optronics Examinatrice

Fabien BRETENAKER

Directeur de recherche
LUMIN, CNRS Examineur

Titre : Laser solide thulium émettant à 2,3 μm : Comprendre la spectroscopie pour améliorer l'efficacité

Mots clés : Laser, thulium, moyen-infrarouge, cristaux, spectroscopie.

Résumé : Cette thèse porte sur l'étude de la transition ${}^3\text{H}_4$ vers ${}^3\text{H}_5$ du thulium pour une émission autour de 2,3 μm dans les lasers solides, avec des applications potentielles pour la détection de molécules. Les précédentes efficacités et puissances reportées dans la littérature étant relativement faibles, diverses méthodes de pompage ont été explorées pour améliorer les rendements de ces sources en se basant une étude approfondie de la spectroscopie du thulium, tant d'un point de vue théorique qu'expérimental. Nous avons dans un premier temps tenté d'optimiser le pompage classique à 0,8 μm depuis l'état fondamental. De même, l'intérêt d'utiliser des lasers en cascade à 2,3 μm et à 1,9 μm a été étudié. Dans certaines conditions, il a ainsi été possible de doubler l'efficacité de l'émission laser à 2,3 μm . De nouvelles matrices cristallines utiles pour les lasers femtoseconde telles que le CALGO ont aussi été testées.

Dans un second temps, nous avons cherché à optimiser un nouveau pompage à avalanche à 1 μm récemment démontré pour l'émission laser à 2,3 μm . Malgré un schéma de pompage à première vue très peu efficace, un gain d'un ordre de grandeur en terme d'efficacité et de puissance émise a pu être démontré à l'aide d'un pompage intracavité utilisant un laser à néodyme émettant à 1 μm . Tant et si bien les puissances émises que les efficacités dépassent aujourd'hui ce qui a été démontré avec un pompage direct à 0,8 μm pour les cristaux que nous avons utilisée. Pour accompagner cette montée en puissance, une étude des effets thermiques liée à cette émission à 2,3 μm a été réalisée. Des lasers déclenchés "Q-switch" à 2,3 μm ont également été étudiés. Un régime chaotique potentiellement systémique a été observé et étudié. Divers processus de stabilisation ont été proposés.

Title : 2.3 μm thulium doped solid state lasers: understanding spectroscopy to increase the laser efficiency

Keywords : Laser, thulium, mid infrared, crystal, spectroscopy.

Abstract : This thesis focuses on the study of the ${}^3\text{H}_4$ to ${}^3\text{H}_5$ transition of thulium for emission around 2.3 μm in solid-state lasers, with potential applications for molecules detection. As the previous efficiencies and powers reported in the literature are relatively low, various pumping methods have been explored to improve the slope efficiency of these sources, based on an in-depth study of thulium spectroscopy, both from a theoretical and experimental point of view. We began by optimizing conventional pumping at 0.8 μm from the ground state. The benefits of using cascade lasers at 2.3 μm and 1.9 μm were investigated. Under certain conditions, it was possible to double the efficiency of laser emission at 2.3 μm . New crystal host useful for femtosecond lasers, such as CALGO, have also been tested.

Secondly, we sought to optimise a new 1 μm upconversion pumping recently demonstrated for laser emission at 2.3 μm . Despite this pumping scheme that at first sight appears to be very inefficient, an order of magnitude gain in terms of efficiency and output power has been demonstrated, putting thulium doped crystal inside a 1- μm neodymium-crystal-based cavity. Both the power emitted and the efficiency now exceed what was ever been demonstrated with a 0.8 μm pumping for the crystals we used. To accompany this power scalling, a study of the thermal effects associated with this emission at 2.3 μm has been carried out. Q-switched lasers at 2.3 μm were also used. Potentially systemic chaos was observed and studied. Various stabilisation processes were proposed.

TABLE DES MATIERES

Table des matières	4
Table des notations	8
Contributions	10
Remerciements	11
Introduction générale	14
1 Etat de l'art : autour du moyen infrarouge	18
1.1 Etat de l'art des sources dans le moyen infrarouge.....	18
1.1.1 Des applications diverses	18
1.1.2 Les lasers à cascade quantique	20
1.1.3 Les <i>supercontinua</i>	21
1.1.4 Les OPO/OPA	22
1.1.5 Les sources à différence de fréquences (DFG)	23
1.1.6 Les lasers solides.....	23
1.1.7 Les lasers à fibre.....	26
1.1.8 Lasers à gaz.....	27
1.1.9 Corps noirs	28
1.2 Etat de l'art des sources cohérentes à 2,3 microns	28
1.2.1 Les spécificités des applications autour de 2,3 μm	28
1.2.2 Quelques exemples de sources développées à 2,3 μm	29
1.2.3 La voix prometteuse des lasers solides à base de thulium	30
1.3 Etat de l'art des sources thulium de 1,9 à 2,3 microns	31
1.3.1 Un ion connu pour l'émission à 1,9 μm	31
1.3.2 Les lasers à fibre dopée thulium.....	31
1.3.3 Les lasers solides en régime continu	32
1.3.4 Les lasers solides en régime impulsionnel et déclenché	33
1.4 Références industrielles	34
1.5 Bibliographie	35
2 Comprendre la spectroscopie du thulium pour améliorer l'efficacité des laser à 2,3 μm	44
2.1 Présentation générale des niveaux.....	44
2.2 La question des échanges d'énergie à plusieurs ions.....	45
2.3 Exemple d'application : le laser classique à 1,9 μm	46
2.4 Equations des niveaux	46
2.5 Proposition de résolution.....	48
2.5.1 De l'esprit des simulations numériques.....	52
2.5.2 Paramètres des simulations.....	53
2.6 Simulation du pompage direct	55
2.6.1 L'intérêt du pompage direct	55
2.6.2 Mise en évidence de l'effet de goulot d'étranglement dans le niveau métastable.....	55
2.6.3 Compensation de la saturation d'absorption par l'ETU	56
2.6.4 La recherche d'une intensité de pompe optimum	56
2.6.5 De l'intérêt d'ajouter un laser « en cascade » à 1,9 μm	57
2.6.6 Cas des lasers à couplages vibroniques efficaces.....	59
2.7 Simulation du pompage à avalanche	61
2.7.1 Le principe du pompage à avalanche	61
2.7.2 L'intérêt du pompage à avalanche	61

2.7.3	Un pompage non linéaire	61
2.7.4	Une absorption globalement limitée.....	63
2.7.5	Des pistes (difficiles) pour l'amélioration de l'absorption	64
2.7.6	Un pompage fortement dépendant de la concentration en thulium.....	65
2.7.7	Un pompage fortement dépendant de la matrice cristalline	66
2.8	Conclusion du chapitre	67
2.9	Bibliographie	68
3	Le pompage direct et son amélioration par l'ajout d'un laser en cascade à 1.9 µm	70
3.1	Le Tm:YLF : un cristal efficace pour l'émission a 2.3 microns.....	70
3.1.1	Pompage direct avec une source de forte brillance.....	71
3.1.2	Pourquoi des lasers en cascade à 2,3 µm puis à 1,9 µm ?	73
3.1.3	Mise en place expérimentale du laser en cascade	75
3.1.4	Etude expérimentale de l'intérêt de la cascade laser en fonction du dopage.....	76
3.1.5	Un modèle semi-empirique pour comprendre l'influence de la cascade laser.....	78
3.1.6	Conclusion partielle : l'intérêt de la cascade laser en fonction du dopage..	83
3.1.7	Discussion sur l'intérêt de la cascade laser en pompage par diode	83
3.1.8	Etude expérimentale de la cascade en pompage diode.....	84
3.1.9	Performance optimale à 2,3 µm en pompage diode	86
3.1.10	Conclusion sur l'optimisation de l'émission à 2,3 µm dans le Tm:YLF	87
3.2	Les problématiques du Tm:YAG	88
3.2.1	Problématique de l'émission laser en cascade vibronique	88
3.2.2	Les instabilités temporelles.....	89
3.2.3	Conclusion sur le Tm:YAG	91
3.3	Nouveaux matériaux à large spectre d'émission	92
3.3.1	Tm: CALGO.....	92
3.3.2	Tm:TANGSTATE	96
3.4	Conclusion.....	99
3.5	Bibliographie	100
4	Pompage à avalanche de cristaux dopées thulium : vers des lasers de hautes puissances.....	104
4.1	Pompage à avalanche à l'aide d'une source laser accordable à base d'ytterbium.....	105
4.1.1	Schéma expérimental.....	105
4.1.2	Un modèle simple pour une absorption limitée	106
4.1.3	Des performances limitées avec du Tm:YLF	108
4.1.4	Le double pompage	108
4.1.5	Comprendre le fonctionnement du pompage à avalanche à l'aide d'une cascade.....	110
4.2	Pompage a avalanche en intracavité : une voie prometteuse pour atteindre des lasers de forte puissance à 2.3 µm	112
4.2.1	Les raisons du pompage en intracavité	112
4.2.2	Le Néodyme : un ion adaptée pour pomper le Tm:YLF dans la même cavité	112
4.2.3	Pompage intracavité haute puissance et haute efficacité.....	113
4.2.4	Les cavités couplées : une alternative au pompage en intracavité compatible avec les lasers néodyme commerciaux.....	126
4.3	Conclusion sur le pompage à avalanche.....	130
4.4	Bibliographie	131
5	Bèves considérations thermiques : une limite pour la montée	

	en puissance	134
5.1	Considérations théoriques : une charge thermique amplifiée par l'émission laser à 2,3 micron	136
5.2	Mise en évidence de l'influence du laser à 2,3 micron sur l'élévation de la température dans le cristal	137
5.3	Réduire la charge thermique due au laser à 2,3 micron pour la montée en puissance	140
5.4	comparaison des pompages	142
5.5	Influence du dopage sur l'échauffement des cristaux	143
5.6	Conclusion	145
5.7	Bibliographie	146
6	Régime impulsional : la route vers le chaos	148
6.1	Etat de l'art des régimes chaotiques dans les lasers	149
6.1.1	L'influence du spectre sur les régimes chaotiques	149
6.1.2	Un chaos spectroscopique ?	150
6.2	Un chaos possiblement systémique : description de la dynamique pour différentes configurations	152
6.2.1	Le pompage Ti:Saphir et les intermittences de type I	152
6.2.2	Le pompage diode : vers des trains d'impulsions bi-stables à forte énergie	160
6.2.3	Chaos en pompage à avalanche : identification de quelques paramètres signifiants	167
6.3	Conclusion	175
6.4	Bibliographie	176
	Conclusion générale	180
	Meilleures performances	183
	Cavité simple vs. Cavité plus étendue	183
	Pompage direct	184
	Comparaison pompage direct avec et sans cascade	185
	Pompage à avalanche	186
	Bibliographie	187
	Annexe A : Procédure d'alignement des cavités	188
	Alignement par auto-collimation	188
	Alignement par optimisation du laser a 2,3 μm	189
	Alignement par auto-collimation en profitant du fort gain a 1,9 μM	189
	Alignement utilisant un laser intermédiaire	190
	Annexes B : Données spectroscopiques et thermiques	191
	Notation et unités spécifiquement utilisées dans le tableau :	191
	Références pour les données du tableau	193
	Annexes C : Publications	195
	Conferences	195
	Articles	196

TABLE DES NOTATIONS

Numérotation des niveaux du thulium :

1 : niveau 3H_6

2 : niveau 3F_4

3 : niveau 3H_5

4 : niveau 3H_4

α : coefficient de dilatation thermique ($10^{-6}K^{-1}$)

A : absorption de la pompe par le cristal en simple passage (%)

A_{nc} : absorption de la pompe par le cristal en simple passage en absence de cascade laser sur la transition 3F_4 vers 3H_6 (%)

A_c : absorption de la pompe par le cristal en simple passage en présence d'une cascade laser sur la transition 3F_4 vers 3H_6 (%)

β_{XY} : facteur de branchement, proportion de fluorescence du niveau X vers le niveau Y (%)

C, c_i : dopage en ion dans une matrice en pourcentage de substitution (%)

C_{ETU} : coefficient d'upconversion indépendant du dopage à partir du niveau 3F_4 (m^6s^{-1})

C_{CR} : coefficient de relaxation croisée indépendant du dopage vers le niveau 3F_4 (m^6s^{-1})

c : vitesse de la lumière ($3 \times 10^8 m. s^{-1}$)

F : fréquence des pulses en régime impulsionnel (Hz)

f : distance focale de la lentille mentionnée (m)

ϕ_λ : intensité photonique pour la longueur d'onde λ ($Photon. s^{-1}m^{-2}$)

η_i : pente de la caractéristique puissance de sortie en fonction de la puissance de pompe incidente (%)

η : pente de la caractéristique puissance de sortie en fonction de la puissance de pompe absorbée (%)

η_c : pente de la caractéristique puissance à 2,3 μm de sortie en fonction de la puissance de pompe absorbée et en présence d'une cascade sur la transition 3F_4 vers 3H_6 (%)

η_{nc} : pente de la caractéristique puissance de sortie à 2,3 μm en fonction de la puissance de pompe absorbée et en absence d'une cascade sur la transition 3F_4 vers 3H_6 (%)

η_{780nm} : défaut quantique dans le cas d'un pompage direct (%)
 η_{opt} : efficacité d'extraction de la cavité laser (%)
 η_{th} : charge thermique, pourcentage de la puissance absorbée transformée en chaleur. (%)
 h : constante de Planck : ($6,62 \cdot 10^{-34} \text{ m}^2\text{kg/s}$)
 κ : Conductivité thermique ($W \cdot m^{-1}K^{-1}$)
 K_{ETU} : coefficient d'upconversion à partir du niveau 3F_4 (m^3s^{-1})
 K_{CR} : coefficient de relaxation croisée vers le niveau 3F_4 (m^3s^{-1})
 k_B, k : constante de Boltzmann ($1,38 \cdot 10^{-23} \text{ m}^2\text{kgs}^{-2}\text{K}^{-1}$)
 λ : longueur d'onde (m)
 l : longueur du cristal utilisé (m)
 N : dopage en ion thulium dans le milieu hôte (m^{-3})
 N_X : population du niveau X (m^{-3})
 n_X : population du niveau X (sans unité)
 n_{2c} : population du niveau 3F_4 en présence d'une cascade sur la transition 3F_4 vers 3H_6 (%)
 n_{2nc} : population du niveau 3F_4 en absence d'une cascade sur la transition 3F_4 vers 3H_6 (%)
 P_λ : puissance à la longueur d'onde λ (W)
 P_c : puissance à $2,3 \mu\text{m}$ en présence d'une cascade à sur la transition 3H_6 vers 3F_4 (W)
 P_{nc} : puissance à $2,3 \mu\text{m}$ en absence d'une cascade à sur la transition 3H_6 vers 3F_4 (W)
 R : rayon de courbure du miroir utilisé (m)
 $\sigma_{XY}(\lambda)$: section efficace pour la transition X vers Y (m^2)
 T_X : temps de vie du niveau X (s)
 ν : fréquence des oscillations (Hz)
 v : vitesse du son dans un cristal ($m \cdot s^{-1}$)
 V : volume d'une maille dans un cristal (m^3)
 ω : waist, rayon du faisceau au foyer (m)
 z_r : longueur de Rayleigh (m)
 Z : nombre d'atomes par mail dans un cristal

CONTRIBUTIONS

Un certain nombre de personnes a contribué de façon importante aux travaux décrits dans cette thèse sans être toujours cités directement. En particulier, Frédéric Druon a contribué de façon majeure à l'ensemble des travaux présentés dans ce manuscrit par son encadrement quotidien et ses conseils. De même, Lauren Guillemot a grandement contribué au début de mon doctorat à m'expliquer la spectroscopie assez particulière du thulium. Ces explications et nos discussions ont été capitales pour saisir encore plus finement les subtilités de cette spectroscopie atypique.

Un nombre important des expériences ont également été réalisées en partenariat avec les différents laboratoires partenaires du projet. Des tentatives de mesures de pompage à avalanche de Tm:CALGO ont notamment été réalisées au CORIA avec Ammar Hideur et Aleksey Tyazhev. De même, une part des mesures réalisées sur le Tm:CALGO ont été faites au CIMAP avec Patrice Camy et Pavel Loiko qui ont également contribué à la compréhension de la spectroscopie du thulium.

Deux stages de M2 ont été réalisés en lien avec mon sujet de thèse. Timothée Lenfant a testé différents cristaux de Nd:ASL. Ces résultats ne sont pas présentés, mais ont été utiles pour choisir un cristal pertinent de Nd:ASL au chapitre 4. Matthieu Glasset a réalisé avec moi les mesures finales pour la partie du pompage à avalanche utilisant du Nd:YVO₄.

REMERCIEMENTS

Un jour brumeux de novembre sur le plateau de Saclay : des ouvriers creusent un énième trou qu'ils reboucheront quelques jours plus tard. Au passage, la fibre optique qui nous reliait à internet a été légèrement sectionnée. Ce ne sera donc pas le jour pour lire des articles scientifiques. Dommage... Impossible de fuir sur Google Scholar. Je dois donc me résoudre à écrire les remerciements. Disons-le clairement : je n'ai pas d'idée. En plus, j'ai une carrure de littéraire. On m'attend au tournant pour trouver une idée originale. J'ai la pression. Il va falloir réfléchir et trouver une idée. Il n'y a pas de bruit. Je suis seul dans le bureau, face à mon ordinateur.

C'est alors que, rompant le silence ambiant, j'entends le petit clapotis du clavier de Marc, lançant une modélisation dont il a le secret. Cela me laisse pensif. Je me dis que je devrais penser à le remercier, lui aussi. Je me rappelle toutes les questions que j'ai pu lui poser sur un sujet qui n'était pas vraiment le sien. C'est vraiment quelqu'un de bien. Mais il s'arrête de taper sur son clavier. Le silence revient. Cela ne m'aide pas pour autant à trouver une idée. Un autre bruit vient distraire mon esprit en fuite. C'est la bouilloire de Frédéric qui s'allume. Il doit sûrement prendre un thé. Sans doute un thé vert, étant donné le temps d'infusion.

Il ne me reste plus que quelques jours de thèse, et je me dis qu'il me manquera sans doute beaucoup, surtout les moments où je débarquais dans son bureau avec une nouvelle idée de mesures ou d'expérience. Je ne sais combien de fois je faisais ça par jour, mais j'adorais toujours ces discussions à la volée qui ont marqué mes trois années de doctorat. Je lui suis, pour le coup, très reconnaissant de m'avoir convaincu de faire une thèse sur une transition aussi singulière que le thulium à 2,3 μm . Le monde des cristaux est un beau monde.

Je me perds dans mes pensées, puis je pars alors prendre un café, espérant y trouver de l'inspiration. Là, Gaëlle enchaîne son cinquième café de l'après-midi et se lance dans un grand monologue sur son dernier TD sur les aberrations sphériques du cinquième ordre. Grâce à elle, je n'ai pas trop perdu mon niveau en aberrations optiques ces dernières années ! Face à elle, Michele écoute sur son canapé et se demande déjà quand il lui demandera comment s'est passé son weekend. Il ne faut pas non plus que j'oublie de le remercier pour la pléiade d'optique que j'ai pu lui emprunter durant ces années. Ces digressions me laisse néanmoins le temps de réfléchir encore un peu, mais rien ne vient. Pierre arrive entre-temps et fait lamentablement tomber sa tasse de thé. Je le juge, mais en même temps, cela me fait tellement rire, avec l'habitude. Gautier arrive, qui lance un « Bas voilà ! », suivi de Marie-Céline (et sa longueur d'onde de qualité). Raphaël arrive peu après et soupire joyeusement en voyant toute cette eau au sol. Voilà toute la joyeuse équipe des doctorants réunie autour d'un thé. Je suis encore le seul à prendre un café.

Ce n'est qu'au bout de cette pause que je me suis enfin motivé à vider mon bureau, n'ayant toujours pas trouvé d'idée pour les remerciements. J'ai jeté, une à une, certaines de mes notes qui m'avaient aidé à avancer cette thèse. Sans ménagement, mais avec un certain pincement au cœur, je dois l'avouer. Sous un tas de feuilles, je tombe sur la thèse de Lauren, que je compte garder, et me rappelle les nombreux mails que nous avons échangés sur le thulium, à quel point elle m'avait aidé au début, lorsque je n'étais qu'un stagiaire. Je me dis que j'aurais sans doute fait bien moins de choses sans elle et sans toute l'équipe de Caen : Patrice et Pavel. Leur aide m'a été précieuse, et je n'oublierai pas non plus les belles conférences que nous avons passées ensemble.

J'ai rangé mon armoire, perdu dans tous ces souvenirs, et peu à peu, le bureau est devenu propre. Bientôt la fin, et je m'en irai, à l'image des nombreux doctorants qui passèrent dans ce bureau avec moi, et avec lesquels j'ai de très bons souvenirs : Nour et Lisa. Je n'ai pas oublié votre joie et votre bonne humeur. J'ai placé dans mon sac le plateau d'échecs qui avait un temps occupé mes débuts de soirées avec Joris. Merci à toi également – même si tu nous as trahis pour un autre laboratoire ! Je n'oublie pas non plus Alyona et ses quelques passages toujours géniaux parmi nous.

Enfin, le temps passant, je n'ai toujours pas écrit mes remerciements. Je devrais quand même m'y mettre. Mais, surgissant du fond du couloir, j'entends Patrick, qui accourt à très vive allure. Une ou deux questions d'HCERES, et puis il repart, tel une flèche. Merci, Patrick, tu m'as bien aidé pour l'administratif et sur des questions de physique aussi. Tu n'aurais pas une idée de remerciements, par hasard ? Je pense commencer simplement et remercier Matthieu d'avoir repris ce projet. Il va avoir besoin de courage avec ce joyeux chaos que je laisse derrière moi.

INTRODUCTION GENERALE

Un intérêt constant a été porté au développement de sources dans le moyen infrarouge ces dernières décennies à travers le monde. Diverses pistes et technologies ont été développées et sont détaillées plus précisément dans le premier chapitre sur l'état de l'art. Les applications de ces sources vont de la détection de molécules dans l'air ou les liquides, à la chirurgie en passant par des applications liées à la défense. Ces utilisations sont également détaillées au premier chapitre.

Le projet ANR « Splendid2 » et cette thèse s'inscrivent dans ce contexte global de développement de sources nouvelles dans le moyen infrarouge. Il vise à réaliser des sources laser à 2,3 μm utilisant la transition ${}^3\text{H}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_5$ des ions thulium, avec des applications en spectroscopie pour la détection de polluants ou la mesure de glycémie. Ces points seront également développés dans le Chapitre 1.

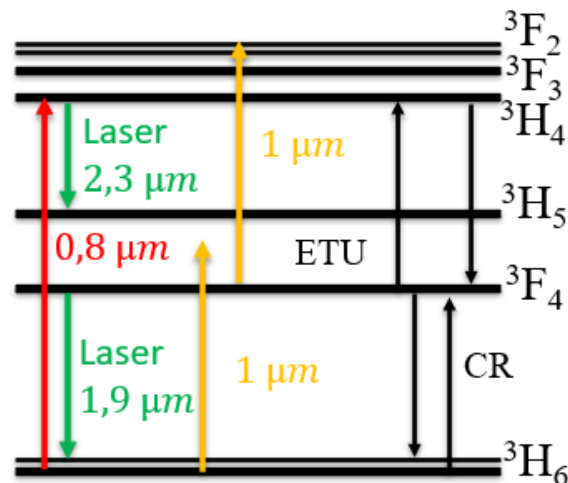


Fig. 1 : Spectroscopie de l'ion Tm^{3+} . CR : relaxation croisée (*cross relaxation*), ETU : Upconversion (*Energy transfert upconversion*).

Le projet est reparti entre quatre laboratoires de recherche avec chacun leurs cœurs de métier. En particulier, des lasers à fibres émettant à 2,3 μm ont été développés au CORIA (Université de Rouen Normandie, INSA) en collaboration avec l'entreprise le Verre Floré. Des cristaux ont également été utilisés pour réaliser des lasers solides en espace libre. Dans ce domaine, l'Institut de Recherche de Chimie Paris possède une expertise dans la croissance et l'étude de cristaux à base d'oxyde et est à l'origine de cristaux tels que le CALGO qui sont utilisés pour la réalisation de laser femtoseconde. De même, le CIMAP (Université de Caen, ENSICAEN) possède une expertise dans la croissance et l'étude de cristaux fluorures. Ces derniers cristaux se sont avérés particulièrement utiles pour la réalisation de sources laser solides efficaces, compte tenu de leur fort gain à 2,3 μm . Le LCF (Institut d'Optique, Université Paris-Saclay) réalise lui historiquement des architectures laser à base de nouveaux cristaux. Ainsi

plusieurs projets ont été développés avec Chimie Paris ou le CIMAP sur ces sujets depuis des décennies. Une attention particulière avait notamment été portée par le passé sur le développement de source femtoseconde à 1 μm utilisant des cristaux dopés ytterbium. L'attention porte désormais sur des sources à base de thulium pour réaliser des sources dans le MIR.

Durant les expériences présentées dans cette thèse, plusieurs cristaux « exotiques » issus de collaborations ont été testés tels le Tm:CALGO ou le Tm:KLuW mais également le Nd:ASL qui a été utilisé pour du pompage à 1 μm . La disponibilité industrielle d'un certain nombre de cristaux dopés thulium plus communément utilisés pour l'émission laser 1,9 μm , nous a également permis d'avoir accès facilement à des Tm:YLF et à des Tm:YAG commerciaux.

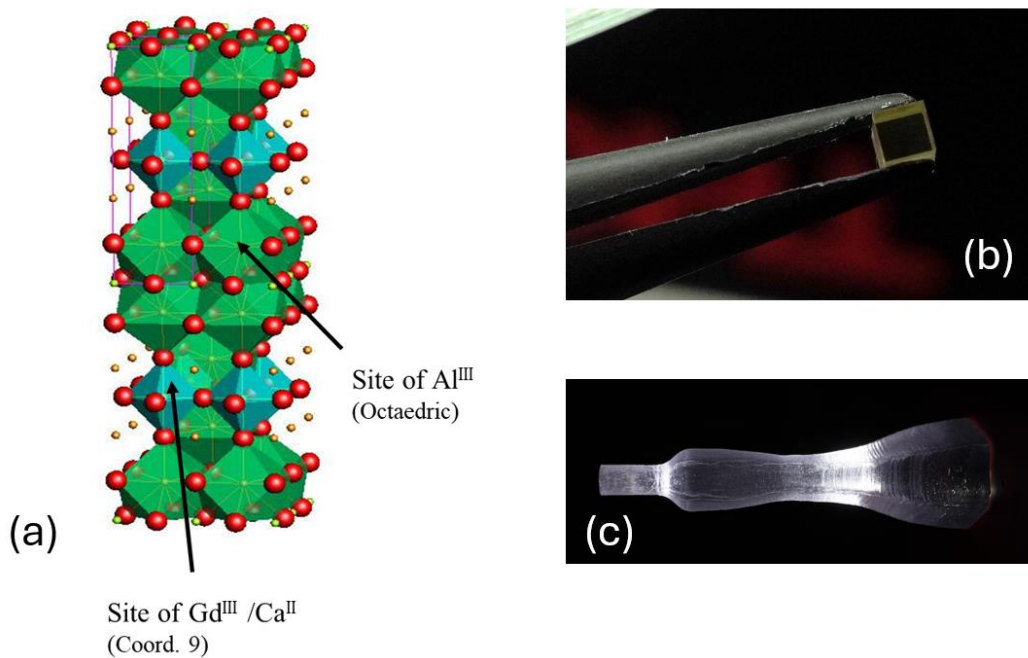


Fig. 2 : Exemple de cristaux utilisés dans cette thèse. (a) Maille cristalline d'un cristal de CALGO (voir Chapitre 3) (b) Photographie d'un cristal de Tm:YLF commercial, utilisé dans l'ensemble de cette thèse. (c) Photographie d'une boule de Nd:ASL issue de Chimie Paris. Ce cristal a été utilisé dans le chapitre 4.

Fort de ce contexte global, cette thèse prend la suite de celle réalisée au CIMAP par Lauren Guillemot qui s'était intéressée aux propriétés spectroscopiques de cristaux dopés au thulium notamment pour l'émission laser à 2,3 μm . Un grand nombre de mesures de sections efficaces, de temps de vie et de coefficients d'échange d'énergies entre ions thulium ont ainsi été mesurés. Ces données se sont révélées cruciales pour ma thèse afin de comprendre la spectroscopie très particulière du thulium. Un pompage à 1 μm avait également été démontré pour la première fois au CIMAP pour l'émission laser à 2,3 μm dans le Tm:YLF servant de base aux travaux développés au chapitre 4.

Partant de là, il m'a été possible de réfléchir sur la manière d'optimiser au mieux l'émission laser à 2,3 μm dans le thulium avec des architectures laser adaptées. Les mesures spectroscopiques m'ont permis de réaliser des simulations numériques permettant de comprendre finement certaines subtilités des lasers à 2,3 μm . Celles-ci n'avaient rien d'intuitif compte tenu de la complexité de la spectroscopie de cet ion. Ces réflexions détaillées au chapitre 2, m'ont permis de réfléchir sur la manière d'optimiser les performances des lasers à 2,3 μm en se basant sur sa spectroscopie particulière. Les puissances émises et les gains laser étaient en effet assez faibles et il y avait un réel défi à augmenter significativement l'efficacité de ces lasers si nous voulions développer à l'avenir des sources laser plus complexes : Q-switch ou femtoseconde, intéressantes pour les applications visées. Un certain nombre de ces idées ont été testées et sont développées dans les chapitres 3 et 4.

Le chapitre 3 porte ainsi sur l'étude et l'optimisation du pompage à 0,8 μm pour obtenir des sources efficaces à 2,3 μm . Plusieurs cristaux ont été testés à l'aide d'un pompage utilisant un Ti:Saphir accordable en longueur d'onde, puis des pompages utilisant des diodes laser de puissances ont été développés. Elles ont l'avantage d'être plus compactes et moins coûteuses qu'un Ti:Saphir. L'intérêt d'ajouter un laser en cascade à 1,9 μm a également été étudié dans ce chapitre dans l'optique d'augmenter les performances.

Le chapitre 4 porte davantage sur l'optimisation du récent pompage à 1 μm qui était au début de la thèse assez peu performant. Les résultats publiés ne s'étendaient en effet pas au-delà de la preuve de concept. De nouvelles stratégies basées sur les calculs réalisés au chapitre 2 m'ont permis d'augmenter significativement les performances de ce pompage. Un double pompage à 0,8 μm et à 1 μm a ainsi été développé et testé dans ce chapitre. Dans un second temps, un pompage efficace haute puissance et haute intensité a été développé à base de technologie néodyme. Cette nouvelle architecture de pompage nous a alors permis d'être notablement plus efficace que le pompage historique à 0,8 μm dans le Tm:YLF.

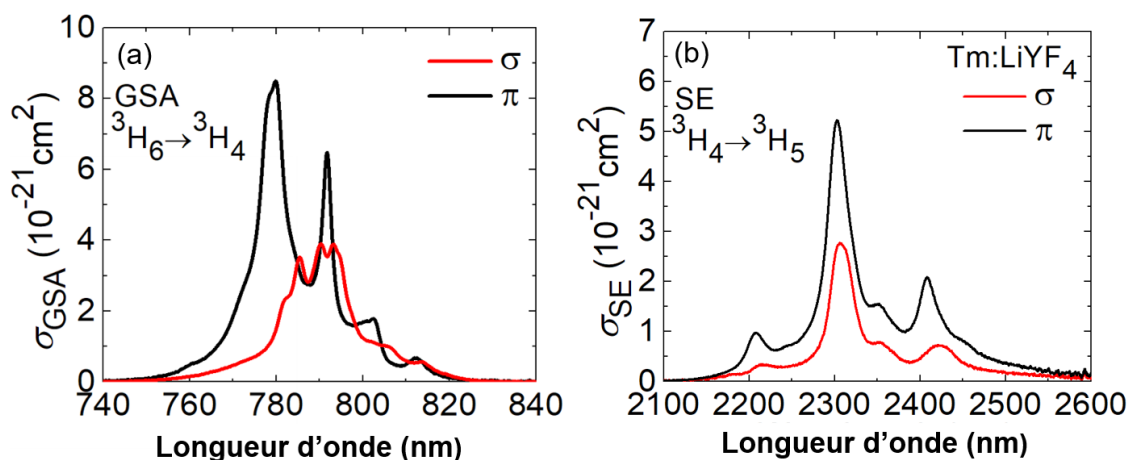


Fig. 3 : Sections efficace du Tm:YLF mesurées lors de la thèse de Lauren Guillemot (a) absorption

et (b) émission [Guillemot 2021].

Le chapitre 5 porte sur le comportement thermique des lasers solides à 2,3 μm en pompage à 0,8 μm et à 1 μm . Il a pu être montré que l'échauffement était grandement dû à l'émission laser à 2,3 μm . Des techniques spécifiques pour limiter cet échauffement ont été développées. Celles-ci ont été particulièrement utiles pour la montée en puissance de ces sources.

La dernière partie de cette thèse (chapitre 6) porte sur l'étude du régime déclenché dit « *Q-switch* » qui s'avère être intéressant pour toutes sortes d'applications, telles que la détection LIDAR par exemple. Le chapitre porte sur l'étude de la stabilité des trains d'impulsions à 2,3 μm . Un régime chaotique potentiellement systémique a été observé et décrit. Quelques briques pour la compréhension de ces régimes temporels atypiques ont également été posées. De même, des méthodes de stabilisation du train d'impulsions ont également été expérimentées avec succès.

Enfin, nous concluons ce manuscrit en comparant les performances obtenues à l'aide des différentes architectures de pompage. Un tableau viendra résumer de façon synthétique les principaux résultats de la thèse. L'augmentation de l'efficacité des lasers à 2,3 μm ouvre désormais la voie pour de nouveaux lasers impulsions efficaces à cette longueur d'onde.

1 ETAT DE L'ART : AUTOUR DU MOYEN INFRAROUGE

Ce chapitre aborde l'état de l'art des sources infrarouges. Il proposera une brève synthèse du cadre technologique global des sources et applications de 2 à 10 μm , avant de se concentrer sur les sources et applications à 2,3 μm qui est l'émission sur laquelle porte cette thèse. Le choix technologique d'utiliser des sources solides à base de thulium sera expliqué et contextualisé dans son cadre technologique. La dernière partie se concentrera ainsi plus spécifiquement sur l'état de l'art des sources thulium à 2,3 μm .

1.1 ETAT DE L'ART DES SOURCES DANS LE MOYEN INFRAROUGE

1.1.1 Des applications diverses

Les sources dans le moyen infrarouge de 2 μm à 10 μm trouvent des applications dans le domaine de la détection de molécules au sens large. En effet, cette gamme de longueurs d'onde correspond aux énergies nécessaires pour exciter les transitions vibrationnelles des molécules. Il est alors possible d'identifier une molécule à partir de son spectre d'absorption Fig. 1(a).

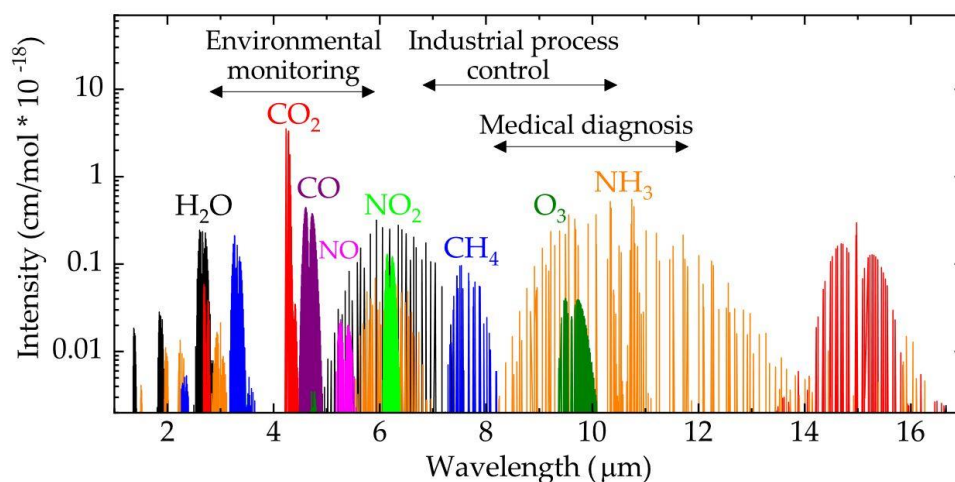


Fig. 1 : Spectre d'absorption de différentes molécules d'intérêt dans le moyen infrarouge [Popa 2019]

La détection de molécules dans l'atmosphère particulièrement constitue l'une des grandes applications des sources dans le moyen infrarouge [Popa 2019]. *De Young and al.* rapportent un LIDAR DIAL permettant la détection de l'eau dans les premières couches de l'atmosphère [De Young 2010]. Il repose sur un laser à fibre à base de thulium émettant à 1,9 μm . L'idée de la mesure est la suivante : Une impulsion au pic d'absorption de l'eau est envoyée dans l'atmosphère. Une seconde est envoyée à une autre longueur d'onde proche mais dans un creux de l'absorption de l'eau. La différence entre ce qui nous revient pour les deux longueurs d'onde correspond à l'absorption de l'eau et permet d'en déterminer le taux dans l'atmosphère. Cette mesure est utile pour affiner les modèles météorologiques. Des systèmes analogues ont été développés pour détecter les gaz à effet de serre comme le CO_2 en utilisant

des fibres dopées holmium à 2,1 μm [Koch 2004] ou des OPO/OPA [Romanovskii 2019] [Cadiou 2017].

Outre leur application pour la détection de molécules, les sources infrarouges trouvent également des applications en médecine. Elles sont notamment utiles pour la réalisation de tests sanguins tels que les tests de glycémie, de lactate, d'albumine, de phosphate ou d'urée [Brandstetter 2012].

En chirurgie, le développement de source à 6 μm autour du pic d'absorption des amides I, II et III est prometteuse dans le cadre d'ablation moins invasive de tissu biologique [Serebryakov 2010]. Les lasers erbium émettant à 2,8 μm sont quant à eux particulièrement utilisés en dentisterie pour leur capacité à accéder aux pics d'absorption de l'eau et de l'hydroxyapatite présente dans l'email et la dentine [Skorczakowski 2010]. Les lasers Erbium à 2.8 μm et les fibres thulium à 2 μm sont aussi utilisées en chirurgie pour l'urologie [Szlauer 2009].

Enfin, les dernières applications médicales que l'on peut citer de ces lasers Erbium à 3 μm et des lasers à CO_2 à 10 μm concernent le domaine de la dermatologie et de l'esthétique. Ces lasers sont alors utilisés pour des traitements thermiques locaux. La forte énergie qu'ils peuvent produire et leur bonne adéquation avec les bandes d'absorption de l'eau du collagène et de l'hydroxyapatites en font les candidats idéaux pour la chirurgie ablatif, dentaire ou en dermatologie (Fig. 2).

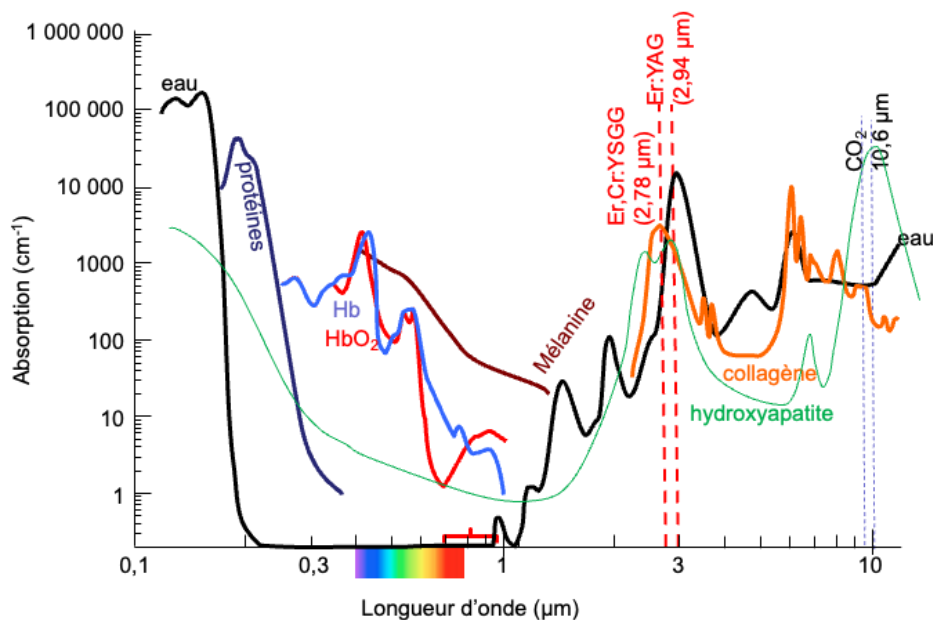


Fig. 2 : Absorption de diverses molécules présentes dans l'organisme en fonction de la longueur d'onde et longueur d'onde d'émission de l'Er:YAG, de l'Er:YSGG et du CO_2 . [Druon 2024]

En défense, les sources infrarouges peuvent être utilisées pour détourner un missile d'un avion. Dans la mesure où les missiles utilisent souvent le rayonnement infrarouge

thermique émis par les moteurs pour verrouiller leur cible, envoyer un rayonnement infrarouge puissant permet d'éblouir les capteurs du missile et de lui faire perdre de vue sa cible et sa trajectoire [Bekman 2004].

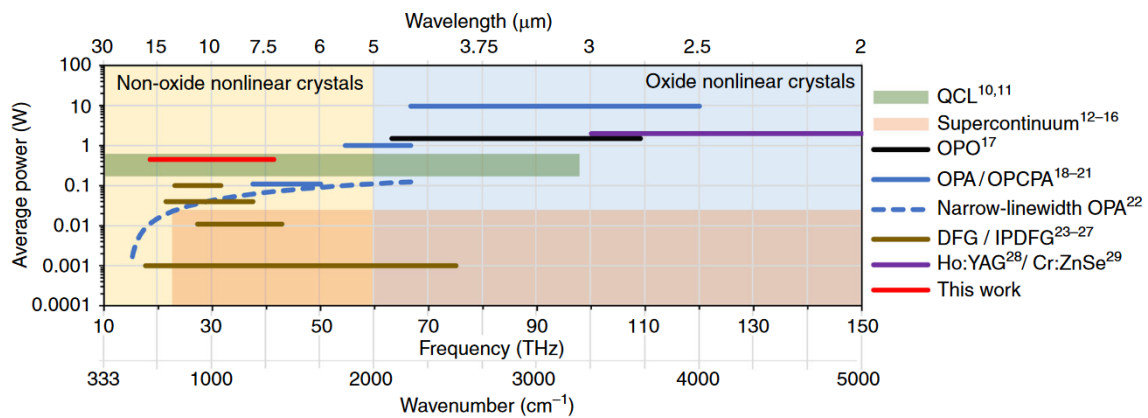


Fig. 3 : État de l'art en 2018 des différentes technologies utilisées pour l'émission dans le moyen infrarouge [Gaida 2018]

Diverses sources ont ainsi été développées dans le moyen infrarouge pour répondre à une diversité d'applications. Une partie des technologies utilisées pour produire ces sources est présentée en Fig. «3. Elles y sont classées suivant les longueurs d'onde et des puissances moyennes qu'elles permettent d'atteindre afin de visualiser l'intérêt de chacune de ces technologies. Nous nous attarderons plus en détail dans les prochaines parties sur l'intérêt et la physique sous-jacente à chacune de ces sources.

1.1.2 Les lasers à cascade quantique

Nous nous intéresserons dans cette première sous-partie aux lasers à cascade quantique qui permettent d'accéder à une large bande de longueurs d'onde allant de 3 μm environ jusqu'à quelques dizaines de microns [Gaida 2018]. Contrairement aux diodes laser plus communes qui reposent sur une transition entre le niveau de conduction et un niveau de valence dans des semi-conducteurs, les lasers à cascade quantique utilisent les transitions à l'intérieur de puits quantiques successifs [Gmachl 2001]. Un électron dans la bande de conduction passe par une première transition et émet un photon lorsqu'il se désexcite entre les deux sous-niveaux du puits quantique. Par effet tunnel, il passe ensuite dans un second puits quantique où il émet un autre photon à la même longueur d'onde et ainsi de suite. Un schéma explicatif est présenté Fig. 4 (a). L'avantage de cette technologie est qu'il est possible d'adapter la taille du puits quantique pour accéder à quelques longueurs d'onde. Ces sources couvrent ainsi une large part du spectre infrarouge et commencent à être commercialement disponibles. [Réf. Indus. QCL] Elles possèdent les mêmes avantages que les diodes laser classiques notamment en termes de compacité et d'efficacité. Néanmoins la puissance moyenne des diodes monomodes reste inférieure à la centaine de mW dans le meilleur des cas et les QCL nécessitent souvent d'être fortement refroidis pour fonctionner Fig. 4(b). Elles sont idéales pour les applications embarquées nécessitant une faible puissance moyenne ou des impulsions de faibles énergies.

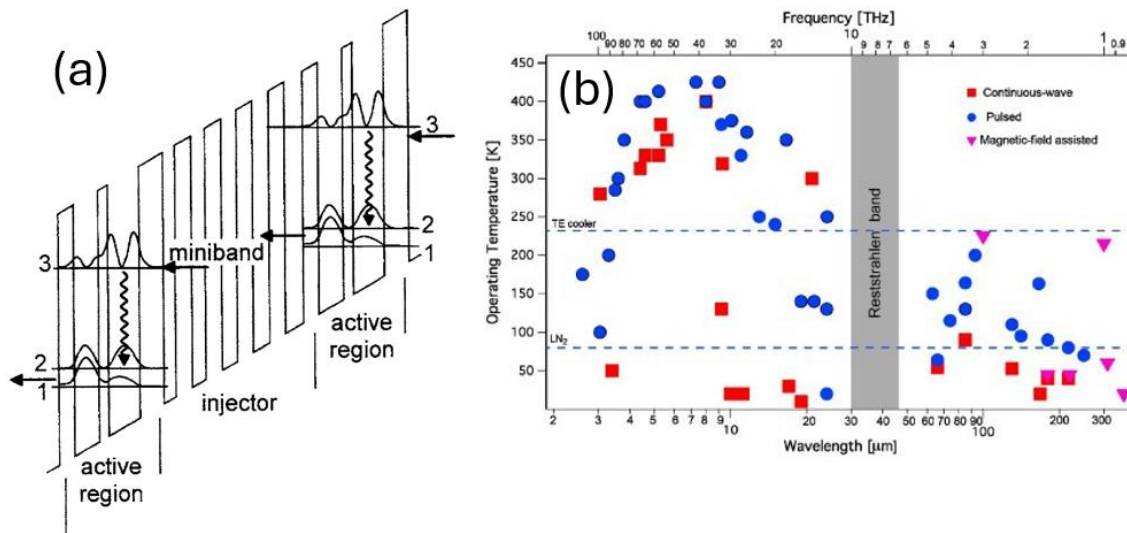


Fig. 4 : (a) Schéma d'un laser à cascade quantique [Gmachl 2001] (b) Longueur d'onde accessible avec les lasers à cascade quantique en fonction et leurs température de fonctionnement. Source : Edmund Optics.

1.1.3 Les *supercontinua*

Un autre moyen d'atteindre assez facilement le moyen infrarouge est d'utiliser des sources à supercontinuum. Une source femtoseconde ou picoseconde peut être envoyée dans un milieu non-linéaire sous la forme d'un soliton. Il s'agit usuellement d'une fibre ou de verre massif Fig. 5 (a). Par effet Kerr, le spectre de la source commence à s'élargir par automodulation de phase. La diffusion Raman vient compléter cet élargissement notamment par effet d'autodécalage Raman solitonique. Une fois assez large, un mélange à quatre ondes permet d'élargir encore le spectre. Il en résulte un spectre large et continu pouvant aller jusqu'à la centaine de micron [Cheng 2016]. Celui-ci est néanmoins très structuré Fig. 5 (b) [Sylvestre 2021]. Étant donné les faibles puissances moyennes des supercontinua [Gaida 2018] et leur large spectre, la densité de puissance aux longueurs d'onde voulues peut néanmoins être limitée. Ses sources sont facilement disponibles dans le commerce [Ref. Indus. Supercontinuum]. Elles sont idéales pour les applications nécessitant un très large spectre mais leur puissance moyenne reste inférieure à la centaine de mW. Ces sources ne sont pas adaptées pour travailler à une longueur d'onde précise.

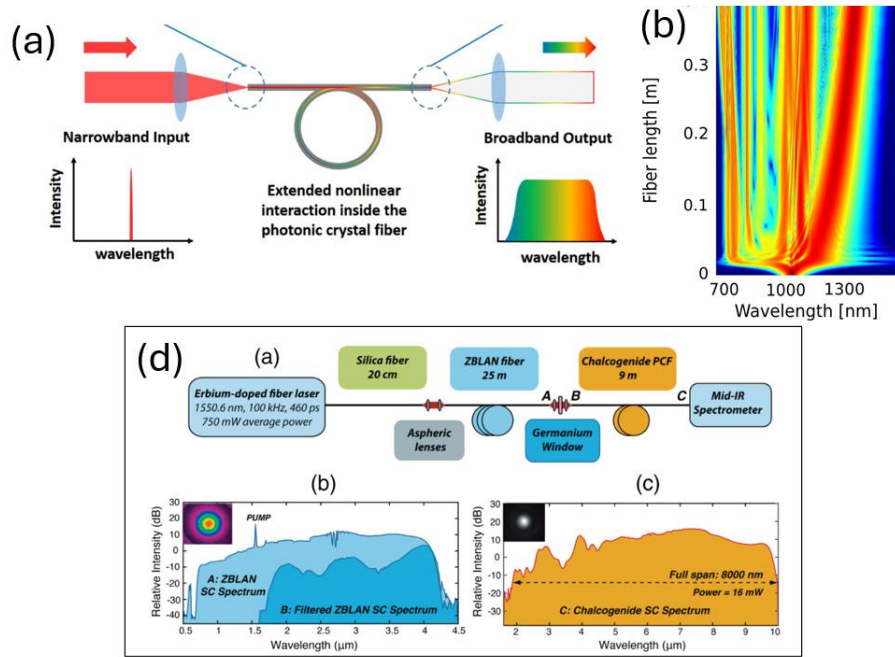


Fig. 5 : (a) Schéma de principe d'un supercontinuum [Shen 2018] (b) Spectre simulé d'un supercontinuum en fonction du chemin parcouru dans la fibre [Sylvestre 2021 a]. (c) Schéma de principe d'un supercontinuum à plusieurs étages [Sylvestre 2021 b]

1.1.4 Les OPO/OPA

Un moyen d'atteindre dans le moyen infrarouge des longueurs d'onde d'intérêt avec des spectres plus fins et de plus fortes puissances moyennes est d'utiliser des OPO ou des OPA. Cette technique repose sur la susceptibilité d'ordre deux de matériaux non-linéaires. Lorsqu'on focalise une impulsion laser intense dans ces cristaux qu'on appelle la pompe, un photon est alors divisé en deux photons infrarouges qu'on appelle le signal et le complémentaire (idler en anglais). La conservation de l'énergie du photon de pompe impose $\omega_{pompe} = \omega_{idler} + \omega_{signal}$ et la conservation de l'accord de phase impose $k_{pompe} = k_{idler} + k_{signal}$. Pour les OPO, le signal et l'idler sont générés dans une cavité résonnante de la même manière que pour un laser (Fig. 6). Pour les OPA, une pompe et le signal sont focalisés dans le cristal dans le but d'amplifier le signal. Ces sources ont l'avantage de pouvoir être facilement réalisables à partir d'une pompe commerciale comme un laser (énergétique) à 1 μm à base de néodyme ou ytterbium [Yang 2015] [Godard 2007]. Ces technologies sont aujourd'hui disponibles commercialement [Ref. indus. OPO/OPA] et possèdent divers avantages : une large variété de longueurs d'onde peut être précisément accessibles de cette manière-là. Ces sources sont facilement et largement accordables et permettent d'obtenir des énergies conséquentes notamment comparées aux technologies diode. Leur puissance crête est aussi notablement plus élevée que celle des QCL ou des supercontinua et se trouve autour du Watt. Les OPO/OPA possèdent néanmoins plus d'étages de conversion et nécessitent plus d'alignement que des sources plus simples comme les diodes ou les lasers solides seuls.

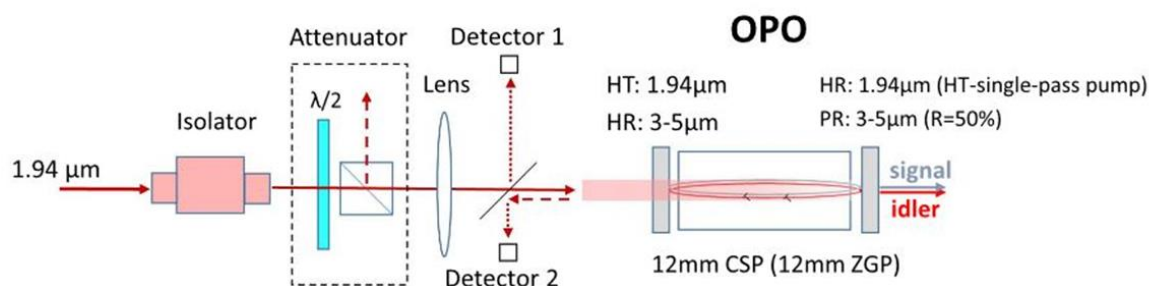


Fig. 6 : Schéma de principe d'un OPO pompé par un laser thulium [Cole 2018]

Des OPO/OPA avec des sources de pompe plus hautes en longueur d'onde sont régulièrement développés. En effet, la plupart des cristaux non-linéaires utilisés pour les OPO/OPA dans le MIR (notamment pour le MIR lointain) ne sont pas totalement transparents aux pompes à 1 µm. De même, pomper plus proche de la longueur d'onde souhaitée pour le signal permet d'avoir de meilleures efficacités de conversion [Bournet 2024]. Il y a donc un intérêt à développer des pompes plus hautes en longueur d'onde pour l'optique non-linéaire. [Cole 2018] and [Leindecker 2011] utilisent ainsi des pompes respectivement à 2 µm et 1.5 µm pour leurs OPOs.

1.1.5 Les sources à différence de fréquences (DFG)

Des sources femtoseconde à large spectre peuvent également être utilisées pour générer de l'infrarouge par différence de fréquences entre plusieurs composantes spectrales à l'intérieur même de l'impulsion [Bournet 2024] [Gaida 2018]. La DFG étant en fait un OPA où le but principal n'est pas d'amplifier le signal mais plutôt de générer l'idler, cette technique montre *de facto* les mêmes avantages et inconvénients que les OPO/OPA.

1.1.6 Les lasers solides

Des lasers se basant sur des transitions électroniques dans les métaux (fer, chrome) ou les terres rares (thulium, erbium, holmium, dysprosium, terbium, ...) permettent également d'atteindre « directement » des longueurs d'onde entre 1,9 µm et 5 µm. Dans le cas des lasers solides, ses ions sont introduits dans une matrice cristalline hôte. Des diodes de puissance dans le moyen infrarouge ou des lampes flash sont utilisées comme sources primaires d'énergie pour exciter ces ions. Ces derniers se désexcitent ensuite à la longueur d'onde souhaitée par émission stimulée dans une cavité en produisant un laser.

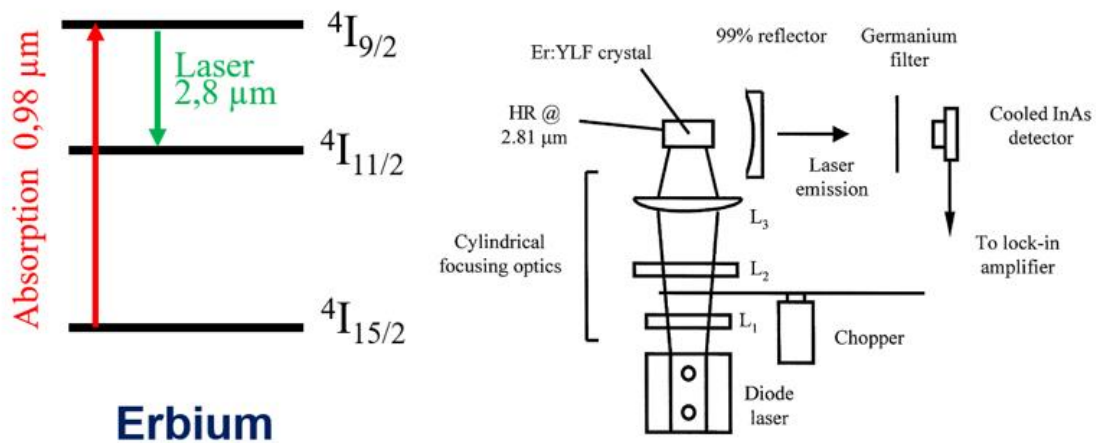


Fig. 7 : Schéma de principe d'un laser solide à 2.8 μm à base d'Erbium [Tikerpae 1999]

Les lasers erbium émettant à 2,8 μm sont assez courants dans le moyen infrarouge du fait de leur utilisation en dentisterie [Skorczakowski 2010] [Bertrand 2005] et sont en 2024 commercialisés à cette fin [Ref. Indus. Er]. Pour en comprendre le fonctionnement général, [Tikerpae 1999] rapporte le cas classique d'ion erbium dans une matrice de YLF pompé avec une diode à 0,98 μm (Fig. 5). Le cristal est placé dans une cavité plan-concave composée de deux miroirs et lase à 2,9 μm. Un autre laser important dans cette gamme de longueur d'onde se base sur des ions holmium dans une matrice de YAG avec une émission autour de 2,1 μm. Ces lasers sont particulièrement utilisés en urologie [Traxer 2008] et sont également commercialisés à cette fin [Ref. indus. Ho]. Ces lasers ont l'avantage de pouvoir émettre des puissances moyennes de l'ordre de la dizaine ou la centaine de watt et d'avoir peu d'étages de conversion en longueur d'onde comparés aux OPO/OPA. En régime déclenché, une cadence de l'ordre du kHz ou des énergies de l'ordre de la centaine de mJ sont atteintes. [Ref. Indus. Ho] [Ref. indus. Er]. Ces sources sont particulièrement utiles pour des applications nécessitant de fortes puissances moyennes et des impulsions avec des énergies au-delà de la dizaine de μJ.

En plus de l'erbium, divers éléments à l'état ionique qu'ils soient métalliques (Fer, chrome) ou terres rares (holmium, thulium, dysprosium, terbium, ...) peuvent être utilisés pour émettre entre 2 et 5 μm. Quelques sections efficaces d'émission typiques de ces ions métalliques ont été insérées dans la figure 8 en compagnie de leurs niveaux d'énergie.

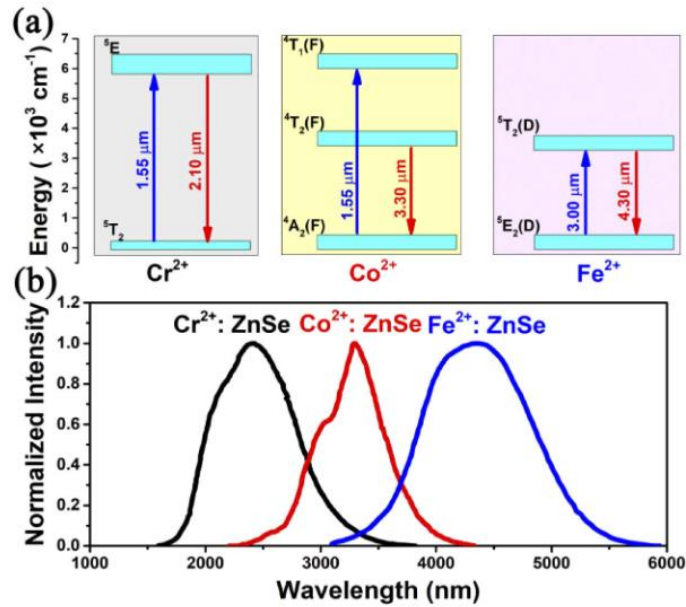


Fig. 8 : (a) Sections efficace d'émission de quelques ions métalliques dans des matrices en ZnSe et leurs niveaux d'énergie respectifs [Stuart 2020]. Les ions métalliques ont un spectre généralement plus large que les terres rares dont le spectre dans les verres peut être observé Fig. 10(b).

Un des problèmes des lasers solides dans le moyen infrarouge tient néanmoins dans la difficulté à trouver des cristaux hôtes adéquats. Les cristaux de types oxydes tel que le YAG ou les vanadates ont des énergies de phonon élevées qui viennent approcher les énergies de photons à ces longueurs d'onde ($\lambda = 2 \mu\text{m} \sim 5000 \text{ cm}^{-1}$). Dans ces conditions, les transitions dans l'infrarouge moyen peuvent se relaxer de manière non-radiative en émettant plusieurs phonons [Layne 1977] [Riseberg 1968]. Plus le nombre de phonons nécessaires pour atteindre l'énergie de la transition est faible, plus la relaxation non-radiative est probable sur cette transition. Le temps de vie du niveau en sera réduit et le gain laser aussi par voie de conséquence. Plus le gain est faible dans un cristal, plus il est difficile d'obtenir l'effet laser dans une cavité. Dans le moyen infrarouge, les matériaux à forte énergie de phonons ont ainsi tendance à avoir moins de gain que ceux qui en ont une plus faible. Les oxydes rentrent dans cette catégorie. Par opposition, les cristaux de types fluorures, ont de plus faibles énergies de phonon et les niveaux excités qui se remplissent donc plus facilement. Potentiellement, ils ont ainsi intrinsèquement plus de gain. Ces cristaux ont néanmoins une conductivité thermique, en général, plus faible que les oxydes et leur comportement thermique est globalement moins bon, Fig. 9. Cela limite notablement leur performance comme sources émettant de fortes puissances moyennes. Il est ainsi très souvent nécessaire de faire un compromis au niveau du cristal utilisé en tenant compte de ses différents paramètres selon l'application visée lors de la conception du laser MIR. Nous nous intéresserons à ce point dans le chapitre 3 pour notre cas d'étude.

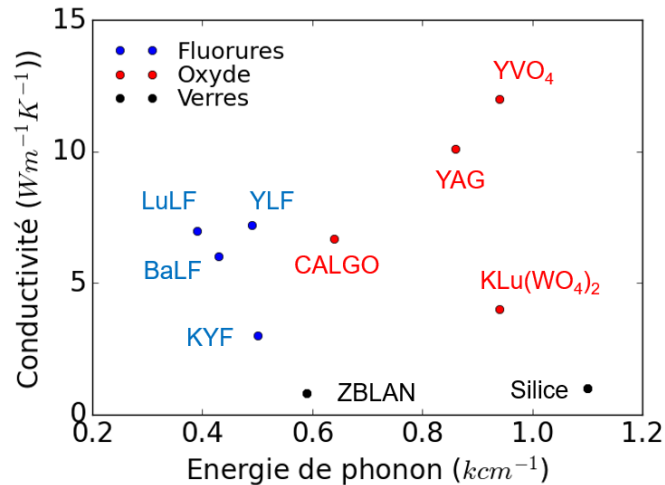


Fig. 9 : Conductivité thermique vs. énergie de phonon pour des cristaux et verres d'usage courant [Kränkel] [Guillemot 2021] [Sato 2006] [Aggarwal 2005] [Lima 1999]

1.1.7 Les lasers à fibre

Les lasers à fibre se basent également sur des transitions électroniques d'ions terres rares. L'hôte est cette fois un verre qui a été étiré sur plusieurs mètres. Une diode de puissance apporte l'énergie pour faire passer les ions de l'état fondamental vers un état excité. Les ions se désexcitent ensuite par émission stimulée à la longueur d'onde d'intérêt en émettant un photon. La fibre se situe dans une cavité fermée, ce qui permet de créer un laser.

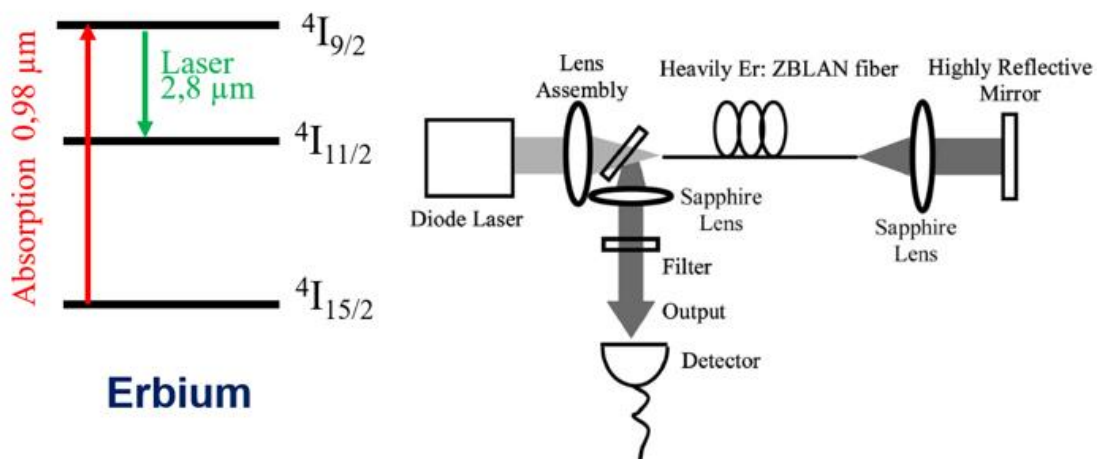


Fig. 9 : Schéma de principe d'un laser à fibre à 2.8 μm à base d'Erbium [Zhu 2007]

[Zhu] rapporte un laser à fibre se basant sur la même transition que celle vue précédemment dans les lasers à solide. Le verre utilisé ici est du ZBLAN. Sa transmission est plus élevée que la silice dans le moyen infrarouge lui permettant de couvrir une bande spectrale allant de $0,3 \mu m$ à $7 \mu m$, contre seulement $0,3 \mu m - 2,1 \mu m$ pour la

silice. Une grande partie des lasers dans le moyen infrarouge utilise donc ce verre. Les lasers à fibre ont plusieurs avantages. Le pompage direct par diodes (dans des fibres double-gaines) les rend très efficaces et il est possible d'atteindre de fortes puissances moyennes autour de la dizaine de Watt. Avec de la silice autour de 2 μm , il est même possible d'atteindre plusieurs centaines de Watt avec des sources à base de thulium [Sincore 2018]. En régime impulsionnel, il est néanmoins difficile d'avoir beaucoup d'énergie par impulsion du fait d'effets non-linéaires exacerbés dans les fibres qui constituent un guide d'onde où la lumière est très confinée. Un état de l'art présentant l'ensemble des transitions ioniques testées dans les fibres ZBLAN a été réalisé à travers la Figure 10 en 2010. Il permet de se rendre compte de la diversité des longueurs d'onde accessibles selon l'ion que nous utilisons. Quelques lasers à fibres sont en outre commercialisés [Ref. indus. Fibre]. Ces sources sont particulièrement prisées et utilisées pour des applications nécessitant des sources robustes et de fortes puissances moyennes.

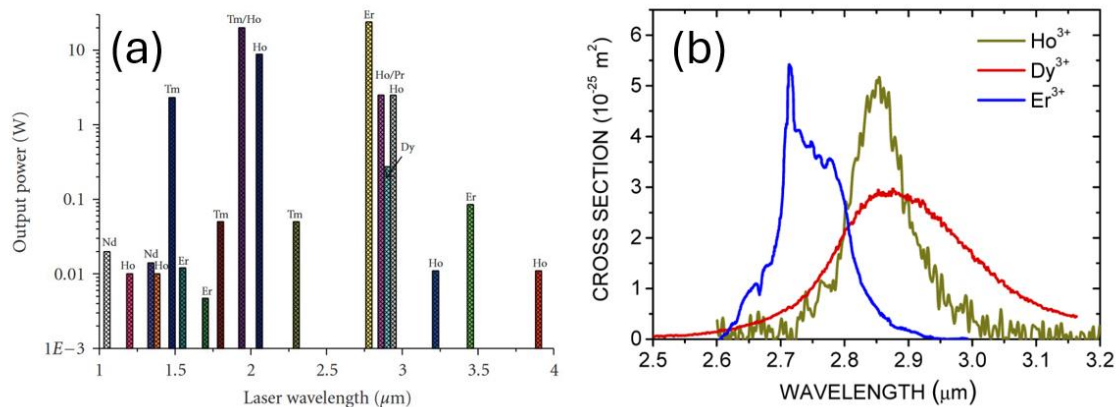


Fig. 10 : (a) État de l'art des lasers à fibre ZBLAN en 2010 pour différentes transitions ioniques. [Zhu 2010] (b) Sections efficaces typiques de quelques ions terres rares dans le ZBLAN [Stuart 2020].

1.1.8 Lasers à gaz

Il est également possible d'avoir des lasers dans le moyen infrarouge en plaçant des gaz dans une cavité. Le pompage peut se faire à l'aide d'une décharge électrique comme pour les lasers CO₂ à 10 μm [Rigden 1966] ou les lasers CO autour de 5 μm [Andreev 2013]. Ces lasers peuvent également être pompés optiquement [Chang 1973]. Ils permettent d'avoir accès à des sources de très fortes puissances moyennes allant jusqu'à la dizaine de kW, utiles pour la découpe thermique ou le polissage thermique de pièces optiques ou mécaniques ou pour la génération d'UV à 13 nm par conversion dans des gouttes d'étain pour des applications de micro-électronique. [Ref. Indus. CO₂] (Fig. 11).

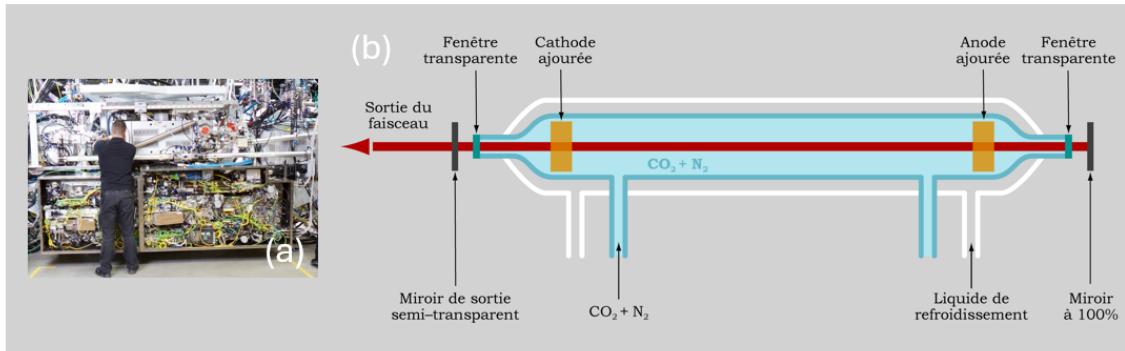


Fig. 11 : (a) Photographie d'un laser CO₂ industriel de 20kW pour la microélectronique [Source : [Trumpf](#)] (b) Schéma d'un laser à CO₂, Source : Roland Brierre, Wikipedia.

1.1.9 Corps noirs

Les sources à base de corps noirs contrôlés en température permettent également d'atteindre des longueurs d'onde comprises entre 1 et 20 μm [Stewart 1957] [Planck 1901]. La puissance est limitée et l'émission n'est pas cohérente dans ce cas.

1.2 ETAT DE L'ART DES SOURCES COHERENTES A 2,3 MICRONS

1.2.1 Les spécificités des applications autour de 2,3 μm

Nous nous concentrerons principalement dans cette thèse sur les sources cohérentes émettant autour de 2,3 μm et sur leurs applications. Un certain nombre de molécules d'intérêt comme le CO [Borsdorff 2016], le méthane [Brown 1982], le CO₂ [Vasilchenko 2016], l'eau et l'eau lourde [Popa 2019] (Fig. 12) possèdent des spectres d'absorptions assez caractéristique autour de 2,3 μm . Cette longueur d'onde est donc attractive pour des applications autour de la détection de molécules. En particulier, les sources émettant à ces longueurs d'onde ont une application pour l'étude de la combustion [Chao 2009] [Wang 2000] [Webber 2000]. Elles permettent ainsi de détecter la présence de gaz toxiques comme le monoxyde de carbone dans les installations. De même, cette longueur d'onde se trouve dans la bande K de l'atmosphère dans laquelle l'absorption de l'atmosphère est relativement faible. Ces sources peuvent ainsi être utilisées pour la réalisation de LIDARs atmosphériques à grande portée pour la détection d'eau ou de polluants dans l'atmosphère [Taylor 2019] [McAleavey 1997]. Des molécules plus complexes comme le glucose, possèdent également un spectre d'absorption intéressant à cette longueur d'onde. Ses sources peuvent ainsi également être utilisées pour la mesure de glycémie sanguine [Olesberg 2005]. Dans un autre domaine, les sources à 2,3 μm peuvent également être utilisées pour pomper optiquement des lasers à gaz à base de monoxyde de carbone pour une émission autour de 5 μm [Wang 2024] (*preprint*).

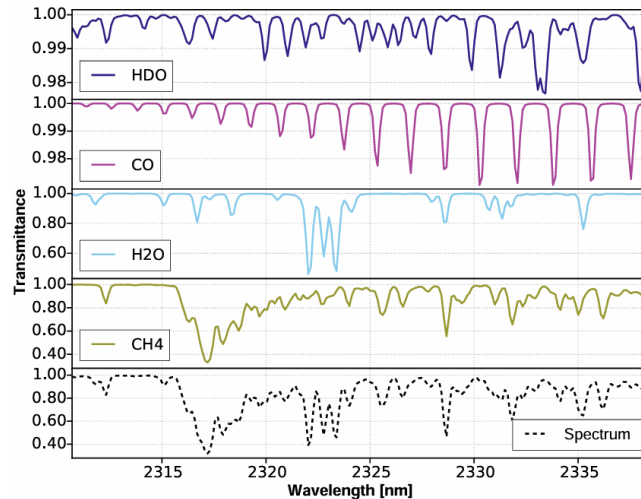


Fig. 12 : Spectre d'absorption de plusieurs molécules d'intérêt autour de 2,3 μm. [Popa 2019]

1.2.2 Quelques exemples de sources développées à 2,3 μm

Diverses sources à 2,3 μm existent dans la littérature. Un moyen simple d'atteindre cette longueur d'onde est d'utiliser des OPO ou des OPA [Baudisch 2018]. La plupart de ces sources sont disponibles commercialement [Ref. indus. OPO/OPA]. Il s'agit néanmoins de sources complexes à plusieurs étages de conversion. Toutes les applications ne nécessitent pas des sources aussi sophistiquées. Pour cette raison, diverses sources à semi-conducteur ont été développées [Yarekha 2000] [Salhi 2004]. Leurs compacités et leurs rendements en font des candidats idéaux pour certaines applications embarquées. Leur puissance est néanmoins limitée sous le W et il est difficile d'atteindre de fortes énergies en régime impulsif.

Entre les semiconducteurs et les OPO/OPA, les lasers solides sortent leur épingle du jeu car ils permettent d'atteindre de fortes puissances moyennes, de fortes énergies et des cadences de l'ordre du kHz tout en restant plus simples que les OPO/OPA. Dans cette gamme de longueur d'onde, les cristaux dopés au Cr^{2+} tels que le Cr:ZnS ou le Cr:ZnSe sont couramment utilisés. Le large spectre de cet ion métallique est particulièrement utile pour la génération d'impulsions femtoseconde en sortie d'oscillateur [Moskalev 2017] [Sorokin 2005] ou pour la réalisation de sources largement accordables [Sorokina 2001]. Ces cristaux sont aussi utilisés en métrologie pour la génération de peignes de fréquences [Barh 2021]. Une puissance moyenne de 140 W a été rapportée en régime continu [Moskalev 2016]. Malgré toutes ces qualités, les cristaux de Cr:ZnSe sont onéreux et difficiles à faire croître. L'entreprise IPG possède en 2024 le quasi-monopole de cette croissance. En outre, bien que la conductivité thermique du Cr:ZnSe soit bonne ($17 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$), le coefficient $\frac{dn}{dT}$ est particulièrement fort ($70 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$) [Schepler 2005] et crée de fortes lentilles thermiques qui viennent complexifier la réalisation de cavité avec ce cristal. De plus, il est nécessaire de pomper ce cristal avec des fibres dopées au thulium ou à l'erbium, le nombre d'étages de conversion nécessaire pour laser avec ce cristal est donc comparable à celui des

OPO/OPA et l'avantage technologique par rapport aux OPO/OPA en terme de complexité n'est donc pas évident. Pour toutes ces raisons, le développement industriel des cristaux dopés au chrome est faible et limité à de la croissance cristalline.

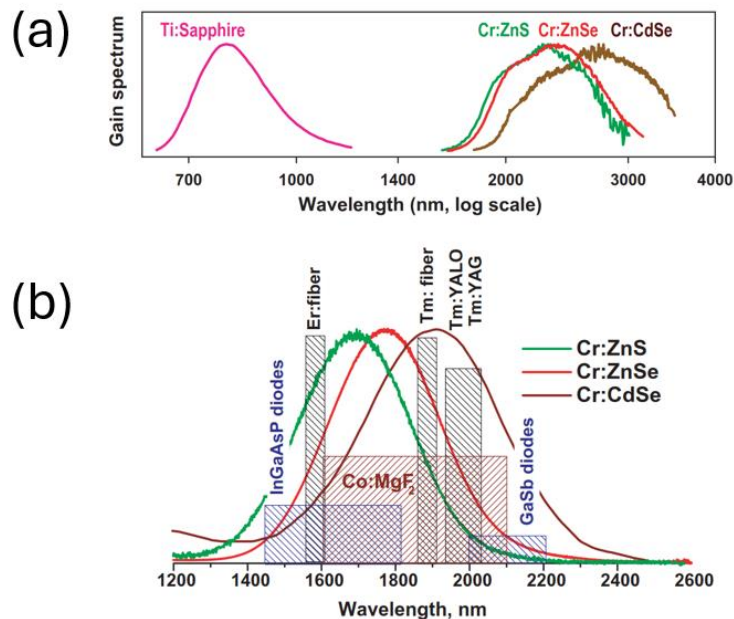


Fig. 13 : (a) Comparaison du spectre d'émission à 2.3 μm avec celui du Ti:Saphir. En effet, on surnomme souvent ces cristaux comme les Ti:saphir du MIR. (b) Spectre d'absorption du Cr:ZnS, Cr:ZnSe, Cr:CdSe comprenant un état de l'art des sources de pompage. [Sorokina 2004]

1.2.3 La voix prometteuse des lasers solides à base de thulium

Pour pallier ces problèmes liés aux matrices cristallines où il est nécessaire d'utiliser le Cr^{+2} , nous nous sommes tournés vers l'émission à 2,3 μm du thulium trivalent [Caird 1975]. La croissance cristalline des matrices contenant du thulium tel que le YAG ou le YLF est bien mieux maîtrisée que celle du Cr:ZnSe. Il excite une large variété de fabricants. Les lentilles thermiques attendues sont plus faibles que pour le ZnSe/ZnS et la résistance thermique du YAG est bonne [Schepler 2005]. La résistance du YLF est quant à elle plus faible mais reste tout à fait acceptable. D'un point de vue technologique, le thulium trivalent peut être directement pompé avec des diodes de puissance à 0,8 μm , limitant ainsi le nombre d'étages de conversion. Ces critères en font un ion potentiellement intéressant pour la réalisation de lasers efficaces ou/et émettant de fortes puissances à 2,3 μm . Bien que l'émission à 1,9 μm du thulium soit bien plus référencée dans la littérature, celle à 2,3 μm reste néanmoins intéressante et est en train d'émerger technologiquement. Nous nous sommes ainsi attachés dans cette thèse à démontrer le potentiel de cet ion pour les lasers à 2,3 μm . Des études théoriques et expérimentales ont ainsi été réalisées et seront détaillées dans les chapitres suivants. Mais commençons déjà par un aperçu de l'état de l'art des lasers thulium à 2,3 μm .

1.3 ETAT DE L'ART DES SOURCES THULIUM DE 1,9 A 2,3 MICRONS

1.3.1 Un ion connu pour l'émission à 1,9 μm

Les technologies à base de thulium ont connu un rapide développement technologique ces dernières années. Des lasers de fortes puissances moyennes dépassant la centaine de Watt à 1,9 μm ont pu être obtenus avec des cristaux de Tm:YLF [Li 2013]. De même, des lasers impulsionsnels contenant de fortes énergies ont été développés [Petros 2002]. Les lasers à fibre thulium sont davantage efficaces encore et permettent d'atteindre le kW en puissance moyenne [Gaida 2018] [McComb 2010]. Leur intérêt en chirurgie a été démontré [Fried 2005a] [Fried 2005b] et ces sources sont en 2024 développées industriellement à cette fin [Ref. Indus. Tm fibre]. Des régimes impulsionsnels à verrouillage de modes en phase ont également été développés avec succès [Solodyankin 2008]. Les technologies à base de thulium à 1,9 μm sont donc connues en 2024 et sont même rentrées dans une phase d'industrialisation. Les fibres et cristaux dopés au thulium sont donc très facilement disponibles, ce qui facilite grandement la recherche académique autour de la transition à 2,3 μm du thulium trivalent.

1.3.2 Les lasers à fibre dopée thulium

Contrairement au laser thulium à 1,9 μm , aucun laser à fibre de silice n'a été développé à 2,3 μm en raison de la faible transmission de ce matériau à cette longueur d'onde. L'ensemble des publications se basent ainsi sur des verres fluorés comme le ZBLAN dont la plage de transmission est étendue jusqu'à 7 μm . *McAleavey and al.* rapportent ainsi le premier laser thulium à 2,3 μm basé sur cette technologie [McAleavey 1997]. Dans ce cas, la fibre est pompée avec 10 mW à 0,8 μm à l'aide d'un Ti:Saphir et émet 0,4 mW à 2,3 μm . Plus récemment, un ensemble composé d'un oscillateur thulium fibré puis de deux amplificateurs thulium à fibre a permis d'obtenir 1,4 W à 2,3 μm . Les fibres sont ici pompées à l'aide de diode de puissance à 0,8 μm [Li 2023]. En se basant sur un pompage à 1 μm , *Tyazhev and al.* ont également démontré la possibilité d'avoir des oscillateurs fibrés efficaces émettant 1,2 W à 2,3 μm avec une pente de 37% [Tyazhev 2020]. Pomper à 1 μm au lieu de 0,8 constitue en soi une idée intéressante. Les différences entre ces deux pompages seront pleinement détaillées à la fois d'un point de vue théorique, spectroscopique et expérimental dans les chapitres 2, 3 et 4, les processus en jeu étant radicalement différents.

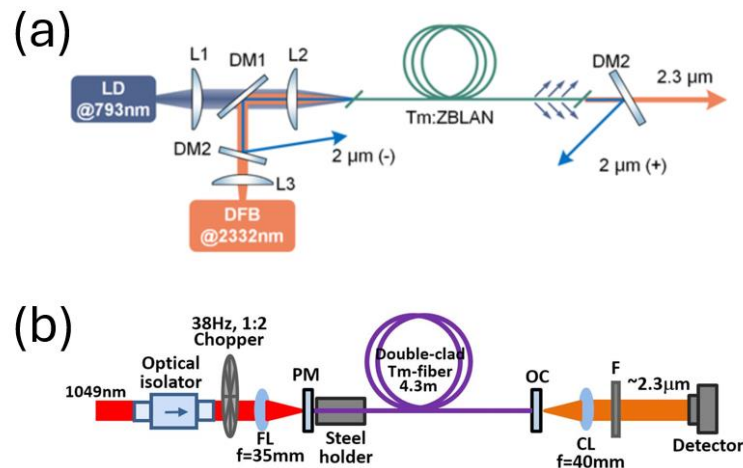


Fig. 14 : (a) Laser à fibre thulium pompé à 0,8 μm. DM : miroir dichroïque, LD : diode laser, OC : coupleur de sortie, F : filtre. [Li 2023] (b) Laser à fibre thulium pompé à 1 μm [Tyazhev 2020]

1.3.3 Les lasers solides en régime continu

Diverses sources à 2,3 μm à base de lasers solides ont également été développées par le passé. A l'aide de diodes de puissances à 0,8 μm, *Kifle and al.* ont obtenu des puissances de l'ordre du watt en continu avec du Tm:YLF, du Tm:YAP et du Tm:YAG [Kifle 2020]. Plus récemment, *Yu and al.* ont démontré la possibilité d'avoir accès des lasers continus de fortes puissances autour de 6 W à l'aide de vanadate dopé au thulium [Yu 2023a] [Yu 2023b]. Il s'agit aujourd'hui de la plus forte puissance obtenue à 2,3 μm. Une matrice fluorure prometteuse pour l'émission à 2,3 μm (le KYF) a également permis d'obtenir des pentes importantes de l'ordre de 47% [Guillemot 2020]. La conductivité thermique de ce cristal est néanmoins faible et ces résultats ont pour l'heure été obtenus avec du pompage de faible puissance moyenne (2,4 W à 0,8 μm). De même, l'intérêt du pompage à 1 μm a pour la première fois été démontré avec succès pour l'émission laser à 2,3 μm avec du Tm:YLF [Guillemot 2019]. Malgré des puissances à 2,3 μm pour l'instant assez faibles, de l'ordre de la centaine de mW, ce pompage est prometteur parce qu'il nous permet d'avoir accès aux sources ytterbium et néodyme comme source de pompe.

Partant de cet état de l'art sur les sources continues, nous avons cherché à améliorer l'efficacité des lasers continus pompés diode qui était assez limitée. Dans le meilleur des cas, cette efficacité était autour de 20 % par rapport à la puissance de pompe incidente. Cette question a été traitée d'un point de vue théorique au chapitre 2 et expérimental au chapitre 3. Concernant le pompage à 1 μm, nous avons cherché à augmenter l'efficacité encore assez faible de ce pompage pour tenter de réaliser des sources de fortes puissances moyennes. Cette question a été traitée au chapitre 2 d'un point de vue théorique et au chapitre 4 d'un point de vue expérimental.

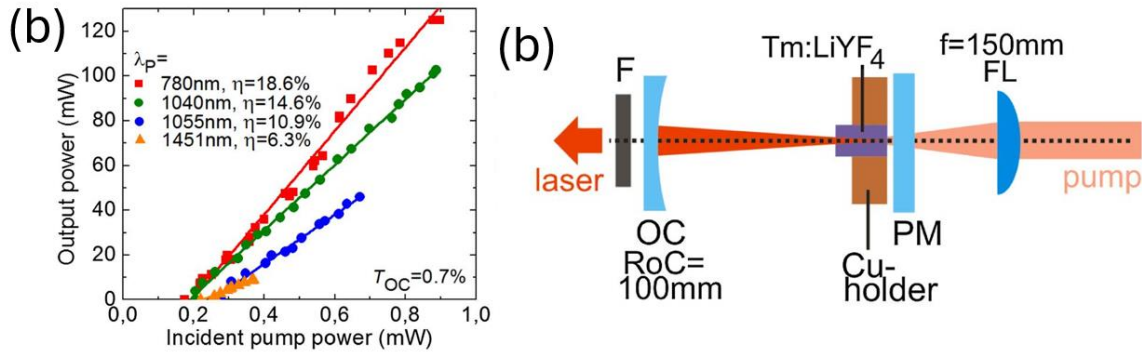


Fig. 15 : (a) Performance des lasers thulium pour différentes longueurs d'onde de pompe à 0,78 μm , 1,05 μm et 1,45 μm . Les sources de pompe sont des lasers monomodes ici. (b) schéma de l'expérience. PM : miroir de pompe, OC : coupleur de sortie. RoC rayon de courbure. [Guillemot 2019]

1.3.4 Les lasers solides en régime impulsionnel et déclenché

Outre le fait d'avoir des sources de fortes puissances moyennes, l'intérêt des lasers solides réside dans le fait de pouvoir réaliser des sources impulsionnelles de fortes énergies particulièrement utiles par la détection de molécules, en LIDAR particulièrement. Ces applications font partie de la raison d'être du développement des sources à 2,3 μm et pour cette raison, des sources impulsionnelles ont rapidement été développées en régime déclenché mais aussi en régime à verrouillage de mode. Concernant le régime déclenché (*Q-switch* en anglais), plusieurs absorbants saturables ont été testés. Ils permettent de couper la cavité laser jusqu'à ce qu'une certaine population soit atteinte dans le niveau du haut du laser. Lorsque le gain à 2,3 μm induit par cette population est suffisant pour laser à 2,3 μm , la puissance à 2,3 μm augmente dans la cavité et l'absorption de l'absorbant saturable diminue fortement : une impulsion de forte énergie est ainsi créée à partir de tous les ions stockés dans le niveau du haut. Une impulsion énergétique se forme (typiquement μJ dans notre cas). Une fois le matériau à gain vidangé, un nouveau cycle peut recommencer : le pompage permet de re-remplir le niveau du haut de la transition laser et l'absorbant saturé retourne à son état initial et absorbe à nouveau. A 2,3 μm , il est ainsi possible d'obtenir des impulsions d'une durée de l'ordre de la μs avec une cadence de l'ordre du kHz. Divers absorbants saturables ont été utilisés à 2,3 μm dans la littérature. L'absorption résiduelle à 2,3 μm du Cr:ZnSe a notamment été exploitée [Kifle 2021] [Huang 2019]. Il s'agit de l'absorbant saturable le plus couramment utilisé aujourd'hui. De manière plus exotique, des absorbants saturables dopés à base d'uranium ont également été utilisés [Diening 1998]. Les propriétés optiques de l' $\text{U}^{3+}:\text{CaF}_2$ sont similaires à celles du Cr:ZnSe mais les diverses réglementations et précautions à prendre avec cet ion en font un ion assez peu attractif pour des applications en optique. Il y a également la possibilité d'utiliser des plasmons de surface via des nanoparticules d'or comme absorbants saturables à 2,3 μm [Wu 2021].

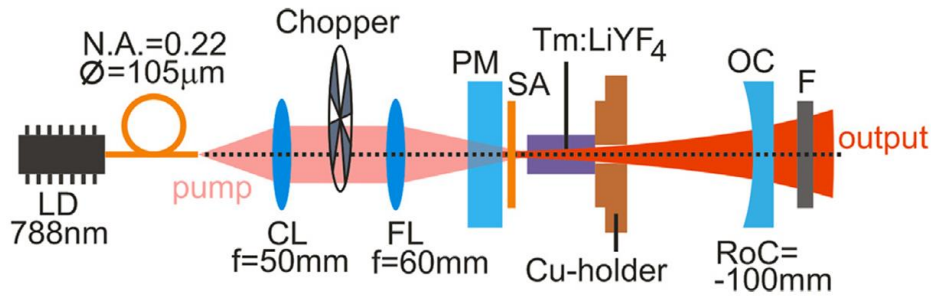


Fig. 16 : Schéma expérimental d'un laser déclenché passivement. SA : absorbant saturable. F : Filtre CL : lentille de collimation. FL : lentille de focalisation LD : Diode laser PM : miroir de pompe OC : coupleur de sortie [Kifle 2021]. Pour diminuer la charge thermique le signal de pompe est haché (par le chopper) afin de diminuer la puissance moyenne.

Le régime continu à verrouillage de modes en phase (*modelock* en anglais) permet d'obtenir des impulsions notablement plus courtes allant pour le $2,3 \mu\text{m}$ de quelques centaines de fs à quelques ps. Cette méthode consiste à faire osciller en phase un grand nombre de modes longitudinaux de la cavité laser. Plus le spectre de gain du thulium est large (ce qui dépend de la matrice hôte), plus le nombre de modes en phase pourra être important (pour une cavité donnée) et plus l'impulsion pourra être courte. Diverses méthodes ont été utilisées pour verrouiller les modes. Le verrouillage de mode par effet Kerr a permis d'obtenir des impulsions de 514 fs à une cadence de 41 MHz pour une puissance néanmoins limitée à 14 mW [Canbaz 2017]. En utilisant des semiconducteurs de type SESAM, des impulsions de 94 ps ont été obtenues [Soulard 2017] puis de 1,8 ps quelques années plus tard [Tyazhev 2024]. Des impulsions de 739 fs ont également été obtenues à l'aide de graphène [Muti 2020].

Dans cette thèse, les études réalisées afin d'obtenir des lasers plus efficaces à $2,3 \mu\text{m}$ ont été appliquées au régime impulsif déclenché dans chapitre 6. Une étude sur la stabilité de ces trains d'impulsion a également été réalisée. Des matrices intéressantes avec de larges spectres pour le verrouillage de modes ont également été testées au chapitre 3.

1.4 REFERENCES INDUSTRIELLES

- [Réf. Indus QCL] [Thorlabs](#), [Alpes lasers](#), [RPMC Lasers](#), [Sacher Lasertechnik](#).
- [Réf. Indus Supercontinuum] [Le verre fluoré](#), [Menlosystems](#), [Toptica](#), [NKT photonics](#).
- [Ref. indus. OPO/OPA] [Trumpf](#), [Lumibird](#), [Lightconversion](#), [Ekspla](#).
- [Ref. Indus. Er] [SCdistribution](#), [Kaelux](#).
- [Ref. Indus. Ho] [EMS urology](#), [IPG](#).
- [Ref. Indus. Fibre] [Lumirlasers](#), [Lumibird](#), [NKT](#), [IPG](#).
- [Red. Indus. CO₂] [Trumpf](#), [Coherent](#).
- [Ref. Indus. Tm fibre] [EMS urology](#), [Cook medical](#).

1.5 BIBLIOGRAPHIE

[Aggarwal 2005] R. L. Aggarwal, D. J. Ripin, J. R. Ochoa, and T. Y. Fan, "Thermo-optic properties of laser crystals in the 100-300 K temperature range: Y₃Al₅O₁₂ (YAG), YAIO₃ (YALO) and LiYF₄ (YLF)," in H. J. Hoffman and R. K. Shori, eds. (2005), p. 165.

[Andreev 2013] Y. M. Andreev, A. A. Ionin, I. O. Kinyaevsky, Y. M. Klimachev, A. Y. Kozlov, A. A. Kotkov, G. V. Lanskii, and A. V. Shaiduko, "Broadband carbon monoxide laser system operating in the wavelength range of 2.5 – 8.3 μm," *Quantum Electron.* 43(2), 139–143 (2013).

[Barh 2021] A. Barh, J. Heidrich, B. O. Alaydin, M. Gaulke, M. Golling, C. R. Phillips, and U. Keller, "Watt-level and sub-100-fs self-starting mode-locked 2.4-μm Cr:ZnS oscillator enabled by GaSb-SESAMs," *Opt. Express* 29(4), 5934 (2021).

[Baudisch 2018] M. Baudisch, M. Beutler, M. Gebhardt, C. Gaida, F. Stutzki, S. Hadrich, R. Herda, K. Zawilski, P. Schunemann, A. Zach, J. Limpert, and I. Rimke, "2.3-12 μm tunable, sub-10 optical cycle, ZnGeP₂-based OPA directly pumped by a Tm: fiber laser at 1.96 μm and 100 kHz," in *Laser Congress 2018 (ASSL)* (OSA, 2018), p. AW4A.3.

[Bekman 2004] H. H. P. T. Bekman, J. C. Van Den Heuvel, F. J. M. Van Putten, and R. Schleijsen, "Development of a mid-infrared laser for study of infrared countermeasures techniques," in D. H. Titterton, ed. (2004), p. 27.

[Bertrand 2005] M.-F. Bertrand and J.-P. Rocca, "Laser Er:YAG et odontologie restauratrice," *EMC - Stomatologie* 1(2), 104–115 (2005).

[Bournet 2024] Q. Bournet, M. Jonusas, F. Guichard, M. Natile, Y. Zaouter, M. Joffre, A. Bonvalet, F. Druon, M. Hanna, and P. Georges, "Maximizing the efficiency of intrapulse difference frequency generation by pulse shaping and recycling," *Appl. Phys. B* 130(2), 33 (2024).

[Borsdorff 2016] T. Borsdorff, P. Tol, J. E. Williams, J. de Laat, J. aan de Brugh, P. Nédélec, I. Aben, and J. Landgraf, "Carbon monoxide total columns from SCIAMACHY 2.3 μm atmospheric reflectance measurements: towards a full-mission data product (2003–2012)," *Atmospheric Measurement Techniques* 9(1), 227–248 (2016).

[Brandstetter 2012] M. Brandstetter and B. Lendl, "Tunable mid-infrared lasers in physical chemosensors towards the detection of physiologically relevant parameters in biofluids," *Sensors and Actuators B: Chemical* 170, 189–195 (2012).

[Brown 1982] L. R. Brown and L. S. Rothman, "Methane line parameters for the 23-μm region," *Appl. Opt.* 21(13), 2425 (1982)

[Caird 1975] J. Caird, L. DeShazer, and J. Nella, "Characteristics of room-temperature 2.3- μm laser emission from Tm^{3+} in YAG and YAlO_3 ," *IEEE J. Quantum Electron.* 11(11), 874-881 (1975).

[Cadiou 2017] E. Cadiou, D. Mammez, J.-B. Dherbecourt, G. Gorju, J. Pelon, J.-M. Melkonian, A. Godard, and M. Raybaut, "Atmospheric boundary layer CO_2 remote sensing with a direct detection LIDAR instrument based on a widely tunable optical parametric source," *Opt. Lett.* 42(20), 4044 (2017).

[Canbaz 2017] F. Canbaz, I. Yorulmaz, and A. Sennaroglu, "Kerr-lens mode-locked 23- μm $\text{Tm}^{3+}:\text{YLF}$ laser as a source of femtosecond pulses in the mid-infrared," *Opt. Lett.* 42(19), 3964 (2017).

[Chang 1973] T. Y. Chang and O. R. Wood, "Optically pumped 33-atm CO_2 laser," *Applied Physics Letters* 23(7), 370–372 (1973).

[Chao 2009] X. Chao, J. B. Jeffries, and R. K. Hanson, "Absorption sensor for CO in combustion gases using 2.3 μm tunable diode lasers," *Meas. Sci. Technol.* 20(11), 115201 (2009).

[Cheng 2016] T. Cheng, K. Nagasaka, T. H. Tuan, X. Xue, M. Matsumoto, H. Tezuka, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Mid-infrared supercontinuum generation spanning 20 to 151 μm in a chalcogenide step-index fiber," *Opt. Lett.* 41(9), 2117 (2016).

[Cole 2018] B. Cole, L. Goldberg, S. Chinn, L. A. Pomeranz, K. T. Zawilski, P. G. Schunemann, and J. McCarthy, "Compact and efficient mid-IR OPO source pumped by a passively Q-switched $\text{Tm}:\text{YAP}$ laser," *Opt. Lett.* 43(5), 1099 (2018).

[De Young 2010] R. J. De Young and N. P. Barnes, "Profiling atmospheric water vapor using a fiber laser lidar system," *Appl. Opt.* 49(4), 562 (2010).

[Diening 1998] A. Diening, P. E.-A. Möbert, and G. Huber, "Diode-pumped continuous-wave, quasi-continuous-wave, and Q-switched laser operation of $\text{Yb}^{3+}, \text{Tm}^{3+}:\text{YLiF}_4$ at 1.5 and 2.3 μm ," *Journal of Applied Physics* 84(11), 5900–5904 (1998).

[Druon 2024] Cours, « Laser pour le médical ».

[Fried 2005a] N. M. Fried, "High-power laser vaporization of the canine prostate using a 110 W Thulium fiber laser at 1.91 μm ," *Lasers Surg. Med.* 36(1), 52–56 (2005).

[Fried 2005b] N. M. Fried, "Thulium fiber laser lithotripsy: An in vitro analysis of stone fragmentation using a modulated 110-watt Thulium fiber laser at 1.94 μm ," *Lasers Surg.*

Med. **37**(1), 53–58 (2005).

[Gaida 2018] C. Gaida, M. Gebhardt, T. Heuermann, F. Stutzki, C. Jauregui, and J. Limpert, "Ultrafast thulium fiber laser system emitting more than 1 kW of average power," *Opt. Lett.* **43**(23), 5853 (2018).

[Gmachl 2001] C. Gmachl, F. Capasso, D. L. Sivco, and A. Y. Cho, "Recent progress in quantum cascade lasers and applications," *Rep. Prog. Phys.* **64**(11), 1533–1601 (2001).

[Godard 2007] A. Godard, "Infrared (2–12 μm) solid-state laser sources: a review," *Comptes Rendus. Physique* **8**(10), 1100–1128 (2007).

[Guillemot 2019] L. Guillemot, P. Loiko, R. Soulard, A. Braud, J.-L. Doualan, A. Hideur, R. Moncorgé, and P. Camy, "Thulium laser at $\sim 23 \mu\text{m}$ based on upconversion pumping," *Opt. Lett.* **44**(16), 4071 (2019).

[Guillemot 2020] L. Guillemot, P. Loiko, R. Soulard, A. Braud, J.-L. Doualan, A. Hideur, and P. Camy, "Close look on cubic Tm:KY₃F₁₀ crystal for highly efficient lasing on the $3\text{H}4 \rightarrow 3\text{H}5$ transition," *Opt. Express* **28**(3), 3451 (2020).

[Huang 2019] H. Huang, S. Wang, H. Chen, O. L. Antipov, S. S. Balabanov, and D. Shen, "High power simultaneous dual-wavelength CW and passively-Q-switched laser operation of LD pumped Tm:YLF at 19 and 23 μm ," *Opt. Express* **27**(26), 38593 (2019).

[Kifle 2020] E. Kifle, P. Loiko, L. Guillemot, J.-L. Doualan, F. Starecki, A. Braud, T. Georges, J. Rouvillain, and P. Camy, "Watt-level diode-pumped thulium lasers around 2.3 μm ," *Appl. Opt.* **59**(25), 7530–7539 (2020).

[Kifle 2021] E. Kifle, P. Loiko, L. Guillemot, J.-L. Doualan, F. Starecki, A. Braud, A. Hideur, and P. Camy, "Design and modeling of a passively Q-switched diode-pumped Thulium laser at 2.3 μm ," *Optics Communications* **500**, 127219 (2021).

[Koch 2004] G. J. Koch, B. W. Barnes, M. Petros, J. Y. Beyon, F. Amzajerjian, J. Yu, R. E. Davis, S. Ismail, S. Vay, M. J. Kavaya, and U. N. Singh, "Coherent differential absorption lidar measurements of CO₂," *Appl. Opt.* **43**(26), 5092 (2004).

[Krankel 2022] cours

[Layne 1977] C. B. Layne, W. H. Lowdermilk, and M. J. Weber, "Multiphonon relaxation of rare-earth ions in oxide glasses," *Phys. Rev. B* **16**(1), 10–20 (1977).

[Leindecker 2011] N. Leindecker, A. Marandi, R. L. Byer, and K. L. Vodopyanov, "Broadband degenerate OPO for mid-infrared frequency comb generation," *Opt.*

Express 19(7), 6296 (2011).

[Li 2013] J. Li, S. H. Yang, A. Meissner, M. Hofer, and D. Hoffmann, "A 200 W INNOSLAB Tm:YLF laser," *Laser Phys. Lett.* 10(5), 055002 (2013).

[Li 2023] Xuanxi Li, Yamei Xu, Linyong Yang, Yulong Cui, Zhiyue Zhou, Meng Wang, and Zefeng Wang, "2.3- μm single-frequency Tm: ZBLAN fiber amplifier with output power of 1.41 W," *Opt. Express* 31, 40991-40999 (2023)

[Lima 1999] S. M. Lima, J. A. Sampaio, T. Catunda, R. Lebullenger, A. C. Hernandez, M. L. Baesso, A. C. Bento, and F. C. G. Gandra, "Time-resolved thermal lens measurements of thermo-optical properties of fluoride glasses," *Journal of Non-Crystalline Solids* 256–257, 337–342 (1999).

[Planck 1901] Max Planck, « On the Law of Distribution of Energy in the Normal Spectrum », *Annalen der Physik* vol. 4, p. 553 ff (1901)

[McComb 2010] T. S. McComb, R. A. Sims, C. C. C. Willis, P. Kadwani, V. Sudesh, L. Shah, and M. Richardson, "High-power widely tunable thulium fiber lasers," *Appl. Opt.* 49(32), 6236 (2010).

[McAleavey 1997] F. J. McAleavey, J. O'Gorman, J. F. Donegan, B. D. MacCraith, J. Hegarty and G. Maze, "Narrow linewidth, tunable Tm³⁺-doped fluoride fiber laser for optical-based hydrocarbon gas sensing," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* 3(4), 1103-1111 (1997).

[Moskalev 2016] Moskalev, S. Mirov, M. Mirov, S. Vasilyev, V. Smolski, A. Zakrevskiy, and V. Gapontsev, "140 W Cr:ZnSe laser system," *Opt. Express* 24(18), 21090 (2016).

[Moskalev 2017] I. Moskalev, S. Mirov, M. Mirov, S. Vasilyev, V. Smolski, A. Zakrevskiy, and V. Gapontsev, "Ultrafast middle-IR lasers and amplifiers based on polycrystalline Cr:ZnS and Cr:ZnSe," *Opt. Mater. Express* 7(7), 2636-2650 (2017).

[Muti 2020] A. Muti, F. Canbaz, M. Tonelli, J. Eun Bae, F. Rotermund, V. Petrov, and A. Sennaroglu, "Graphene mode-locked operation of Tm³⁺:YLiF₄ and Tm³⁺:KY₃F₁₀ lasers near 2.3 μm ," *Opt. Lett.* 45(3), 656 (2020).

[Olesberg 2005] J. T. Olesberg, M. A. Arnold, C. Mermelstein, J. Schmitz, and J. Wagner, "Tunable Laser Diode System for Noninvasive Blood Glucose Measurements," *Appl Spectrosc* 59(12), 1480–1484 (2005).

[Petros 2002] M. Petros, J. Yu, U. N. Singh, B. M. Walsh, N. P. Barnes, and J. C. Barnes, "300-mJ diode-pumped 1.9- μm Tm:YLF laser," in U. N. Singh, ed. (2002), p. 17.

[Popa 2019] D. Popa and F. Udrea, "Towards Integrated Mid-Infrared Gas Sensors," *Sensors* 19(9), 2076 (2019).

[Rigden 1966] J. Rigden and G. Moeller, "4B1 - Recent developments in CO₂ lasers," *IEEE J. Quantum Electron.* 2(9), 365–368 (1966).

[Riseberg 1968] L. A. Riseberg and H. W. Moos, "Multiphonon Orbit-Lattice Relaxation of Excited States of Rare-Earth Ions in Crystals," *Phys. Rev.* **174**(2), 429–438 (1968).

[Romanovskii 2019] O. A. Romanovskii, S. A. Sadovnikov, O. V. Kharchenko, and S. V. Yakovlev, "Development of Near/Mid IR differential absorption OPO lidar system for sensing of atmospheric gases," *Optics & Laser Technology* 116, 43–47 (2019).

[Salhi 2004] A. Salhi, Y. Rouillard, A. Pérona, P. Grech, M. Garcia, and C. Sirtori, "Low-threshold GaInAsSb/AlGaAsSb quantum well laser diodes emitting near 2.3 μm ," *Semicond. Sci. Technol.* 19(2), 260–262 (2004)

[Sato 2006] Y. Sato and T. Taira, "The studies of thermal conductivity in GdVO₄, YVO₄, and Y₃Al₅O₁₂ measured by quasi-one-dimensional flash method," *Opt. Express* 14(22), 10528 (2006).

[Schepler 2005] K. L. Schepler, R. D. Peterson, P. A. Berry, and J. B. McKay, "Thermal effects in Cr²⁺/ZnSe thin disk lasers," *IEEE J. Select. Topics Quantum Electron.* 11(3), 713–720 (2005).

[Shen 2018] Y. Shen, A. A. Voronin, A. M. Zheltikov, S. P. O'Connor, V. V. Yakovlev, A. V. Sokolov, and M. O. Scully, "Picosecond supercontinuum generation in large mode area photonic crystal fibers for coherent anti-Stokes Raman scattering microspectroscopy," *Sci Rep* **8**(1), 9526 (2018).

[Sincore 2018] A. Sincore, J. D. Bradford, J. Cook, L. Shah, and M. C. Richardson, "High Average Power Thulium-Doped Silica Fiber Lasers: Review of Systems and Concepts," *IEEE J. Select. Topics Quantum Electron.* 24(3), 1–8 (2018).

[Serebryakov 2010] V. A. Serebryakov, et al., "Medical applications of mid-IR lasers. Problems and prospects," *J. Opt. Technol.* 77, 6-17 (2010)

[Skorczakowski 2010] M. Skorczakowski, et al., « Mid-infrared Q-switched Er:YAG laser for medical applications " *Laser Phys. Lett.* 7, 498 (2010)

[Solodyankin 2008] M. A. Solodyankin, E. D. Obraztsova, A. S. Lobach, A. I. Chernov, A. V. Tausenev, V. I. Konov, and E. M. Dianov, "Mode-locked 193 μm thulium fiber laser

with a carbon nanotube absorber," *Opt. Lett.* 33(12), 1336 (2008).

[Sorokin 2005] E. Sorokin, S. Naumov, and I. T. Sorokina, "Ultrabroadband infrared solid-state lasers," *IEEE J. Select. Topics Quantum Electron.* 11(3), 690–712 (2005).

[Sorokina 2001] I. T. Sorokina, E. Sorokin, A. Di Lieto, M. Tonelli, R. H. Page, and K. I. Schaffers, "Efficient broadly tunable continuous-wave $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ laser," *J. Opt. Soc. Am. B* 18(7), 926 (2001).

[Sorokina 2004] I. T. Sorokina, "Cr²⁺-doped II–VI materials for lasers and nonlinear optics," *Optical Materials* 26(4), 395–412 (2004).

[Soulard 2017] R. Soulard, A. Tyazhev, J.-L. Doualan, A. Braud, A. Hideur, M. Laroche, B. Xu, and P. Camy, "2.3 μm $\text{Tm}^{3+}:\text{YLF}$ mode-locked laser," *Opt. Lett.*, OL 42(18), 3534–3536 (2017).

[Stewart 1957] J. E. Stewart and J. C. Richmond, "Infrared emission spectrum of silicon carbide heating elements," *J. RES. NATL. BUR. STAN.* 59(6), 405 (1957)

[Stuart 2020] Stuart D. Jackson and R. K. Jain, "Fiber-based sources of coherent MIR radiation: key advances and future prospects (invited)," *Opt. Express* 28, 30964–31019 (2020)

[Sylvestre 2021 a] T. Sylvestre, E. Genier, A. N. Ghosh, P. Bowen, G. Genty, J. Troles, A. Mussot, A. C. Peacock, M. Klimczak, A. M. Heidt, J. C. Travers, O. Bang, and J. M. Dudley, "Recent advances in supercontinuum generation in specialty optical fibers [Invited]," *J. Opt. Soc. Am. B* 38(12), F90 (2021).

[Sylvestre 2021 b] T. Sylvestre, E. Genier, A. N. Ghosh, P. Bowen, G. Genty, J. Troles, A. Mussot, A. C. Peacock, M. Klimczak, A. M. Heidt, J. C. Travers, O. Bang, and J. M. Dudley, "Recent advances in supercontinuum generation in specialty optical fibers [Invited]," *J. Opt. Soc. Am. B* 38, F90–F103 (2021)

[Szlauer 2009] R. Szlauer, R. Götschl, A. Razmaria, L. Paras, and N. T. Schmeller, "Endoscopic Vaporesction of the Prostate Using the Continuous-Wave 2- μm Thulium Laser: Outcome and Demonstration of the Surgical Technique," *European Urology* 55(2), 368–375 (2009).

[Tikerpae 1999] M. Tikerpae, S. D. Jackson, and T. A. King, "2.8 μm $\text{Er}:\text{YLF}$ laser transversely pumped with a CW diode laser bar," *Optics Communications* 167(1–6), 283–290 (1999).

[Tyazhev 2020] A. Tyazhev, F. Starecki, S. Cozic, P. Loiko, L. Guillemot, A. Braud, F.

Joulain, M. Tang, T. Godin, A. Hideur, and P. Camy, "Watt-level efficient 2.3 μm thulium fluoride fiber laser," *Opt. Lett.* 45(20), 5788 (2020).

[Tyazhev 2024] A. Tyazhev, J. E. Bae, M. Gaulke, P. Loiko, J. Heidrich, M. Golling, S. Idlahcen, L. Guillemot, T. Godin, P. Camy, U. Keller, and A. Hideur, "Upconversion-pumped femtosecond thulium laser at 2309 nm mode-locked by a GaSb-based SESAM," *Opt. Express* 32(9), 15093 (2024).

[Vasilchenko 2016] S. Vasilchenko, M. Konefal, D. Mondelain, S. Kassi, P. Čermák, S. A. Tashkun, V. I. Perevalov, and A. Campargue, "The CO₂ absorption spectrum in the 2.3 μm transparency window by high sensitivity CRDS: (I) Rovibrational lines," *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 184, 233–240 (2016).

[Taylor 2019] G. G. Taylor, D. Morozov, N. R. Gemmell, K. Erotokritou, S. Miki, H. Terai, and R. H. Hadfield, "Photon counting LIDAR at 2.3 μm wavelength with superconducting nanowires," *Opt. Express* 27(26), 38147–38158 (2019).

[Traxer 2008] O. Traxer, E. Lechevallier, and C. Saussine, "Urétéroscope souple-laser Holmium-YAG: le matériel," *Progrès en Urologie* 18(12), 917–928 (2008).

[Wang 2000] J. Wang, M. Maiorov, D. S. Baer, D. Z. Garbuzov, J. C. Connolly, and R. K. Hanson, "In situ combustion measurements of CO with diode-laser absorption near 23 μm ," *Appl. Opt.* 39(30), 5579 (2000).

[Wang 2024] Z. Wang, X. Li, L. Yang, Z. Zhou, Z. Li, H. Li, W. Pei, W. Huang, J. Shi, L. Lei, and M. Wang, "4.8- μm CO-filled hollow-core silica fibre laser," (2024).

[Webber 2000] M. E. Webber, J. Wang, S. T. Sanders, D. S. Baer, and R. K. Hanson, "In situ combustion measurements of CO, CO₂, H₂O and temperature using diode laser absorption sensors," *Proceedings of the Combustion Institute* 28(1), 407–413 (2000).

[Wu 2021] F. Wu, S. Wang, H. Chen, and H. Huang, "2.3 μm nanosecond passive Q-switching of an LD-pumped Tm:YLF laser using gold nanorods as a saturable absorber," *Front Inform Technol Electron Eng* 22(3), 312–317 (2021).

[Yang 2015] F. Yang, J.-Y. Yao, H.-Y. Xu, F.-F. Zhang, N.-X. Zhai, Z.-H. Lin, N. Zong, Q.-J. Peng, J.-Y. Zhang, D.-F. Cui, Y.-C. Wu, C.-T. Chen, and Z.-Y. Xu, "Midinfrared Optical Parametric Amplifier With 6.4–11 μm Range Based on BaGa₄Se₇," *IEEE Photon. Technol. Lett.* 27(10), 1100–1103 (2015).

[Yarekha 2000] D. A. Yarekha, G. Glastre, A. Perona, Y. Rouillard, F. Genty, E. M. Skouri, G. Boissier, P. Grech, A. Joullié, C. Alibert, and A. N. Baranov, "High temperature GaInSbAs/GaAlSbAs quantum well singlemode continuous wave lasers emitting near

2.3 μm ," *Electronics Letters* 36(6), 537–539 (2000).

[Yu 2023a] X. Yu, K. Eremeev, Z. Pan, P. Loiko, H. Chu, H. Pan, S. Zhao, A. Braud, P. Camy, and D. Li, "Six-watt diode-pumped Tm:GdVO₄ laser at 2.29 μm ," *Opt. Lett.*, OL 48(24), 6404–6407 (2023).

[Yu 2023b] X. Yu, Z. Pan, H. Chu, H. Pan, S. Zhao, and D. Li, "Diode-pumped efficient high-power cascade Tm:GdVO₄ laser simultaneously operating at ~ 2 μm and ~ 2.3 μm ," *Opt. Express* 31(16), 26368 (2023).

[Zhu 2007] X. Zhu and R. Jain, "10-W-level diode-pumped compact 278 μm ZBLAN fiber laser," *Opt. Lett.* 32(1), 26 (2007).

[Zhu 2010] X. Zhu and N. Peyghambarian, "High-Power ZBLAN Glass Fiber Lasers: Review and Prospect," *Advances in OptoElectronics* 2010, e501956 (2010).

2 COMPRENDRE LA SPECTROSCOPIE DU THULIUM POUR AMELIORER L'EFFICACITE DES LASER A 2,3 μM

2.1 PRESENTATION GENERALE DES NIVEAUX

La famille des lanthanides ou terres rares dont fait partie le thulium offre une large variété d'ions utiles pour réaliser des lasers. Ces éléments ont chacun une configuration électronique complète $[\text{Xe}]6s^25d^1$ (ou $5d^0$) et une couche 4f partiellement remplie. Dans notre cas, le thulium a 13 électrons dans cette orbitale atomique sur les 14 que celle-ci peut contenir au maximum. Dans l'ensemble de cette thèse, le thulium est utilisé sous la forme d'un ion trivalent. Dans ce cas, les couches 6s et 5d disparaissent et la configuration dans l'état fondamental devient $[\text{Xe}]4f^{12}$. Lorsqu'on lui apporte de l'énergie sous la forme d'un photon, l'ion peut l'absorber et faire passer un électron vers des orbitales de plus hautes énergies. Les structures électroniques excitées deviennent alors : $4f^{11}5d$, $4f^{11}6s$, $4f^{11}6p$... Sous l'influence d'un champ cristallin, la spectroscopie correspondant à ces orbitales peut être calculée à partir du modèle de Judd-Ofelt qui donne la spectroscopie du thulium [Judd 1962] [Ofelt 1962]. Dans ce cas, les niveaux d'énergie ont tendance à s'éclater par effet Stark sous l'influence du champ électrique des ions environnants le thulium.

La spectroscopie de l'ion thulium trivalent offre alors une large variété de niveaux que nous allons exploiter pour réaliser des lasers. Pour la majorité des sujets traités dans cette thèse, nous nous intéresserons principalement aux niveaux d'énergie inférieurs au niveau 3F_2 . Deux transitions laser attireront principalement notre attention : (a) celle entre le niveau 3H_4 et le niveau 3H_5 émettant autour de 2,3 μm [Caird 1975] et sur lequel porte principalement l'étude développée dans ce manuscrit (b) et celle entre le niveau 3F_4 et 3H_6 émettant autour de 1,9 μm [Ivanov 1975] qui rentrera en considération dans certains de nos propos.

En termes de pompage, l'absorption autour de 0,8 μm à partir du niveau 3H_6 vers le niveau 3H_4 permet de directement peupler le niveau du haut de notre laser à 2,3 μm . Il sera davantage traité dans la partie : *Simulation du pompage direct*. Une double absorption autour de 1 μm permet également de peupler ce niveau. Elle sera traitée dans la partie : *Simulation du pompage à avalanche*.

Un tableau contenant un résumé détaillé des données spectroscopiques est également présent en annexe. Elles sont pour la plupart issues de la thèse de doctorat de Lauren Guillemot [Guillemot 2021]. *Nota Bene* : l'ensemble des notations et leurs unités sont issues de la table des notations situées en préambule.

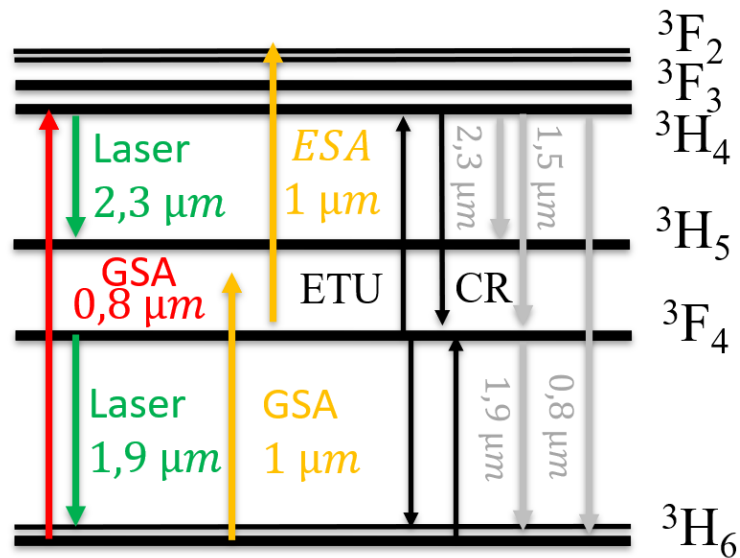


Fig. 1 : Spectroscopie de l'ion Tm³⁺. CR : relaxation croisée (*cross relaxation*), ETU : Upconversion (*Energy transfert upconversion*), GSA : absorption par l'état fondamental (*ground state absorption*), ESA : absorption par un état excité (*excited state absorption*). En gris : les fluorescences et leurs longueurs d'onde.

Concernant les temps de vie caractéristiques à température ambiante, les niveaux ³F₂ et ³F₃ sont couplés thermiquement avec le niveau ³H₄. Ils se relaxent donc quasi-instantanément dans ce dernier. Le temps de vie du ³H₄ est de l'ordre de la ms dans les fluorures et un peu moins dans les oxydes. De même, le niveau ³H₅ s'équilibre thermiquement avec le niveau ³F₄ et se relaxe dans ce dernier aussi quasi-instantanément. Ce couplage nous assure ainsi une inversion de population automatique pour notre émission laser à 2,3 μm. Le niveau ³F₄ est métastable et sa durée de vie est autour d'une dizaine de ms. Beaucoup d'ions se retrouvent ainsi piégés dans ce niveau. Ce point crucial de la spectroscopie du thulium sera abondamment détaillé dans l'ensemble de la thèse.

2.2 LA QUESTION DES ECHANGES D'ENERGIE A PLUSIEURS IONS

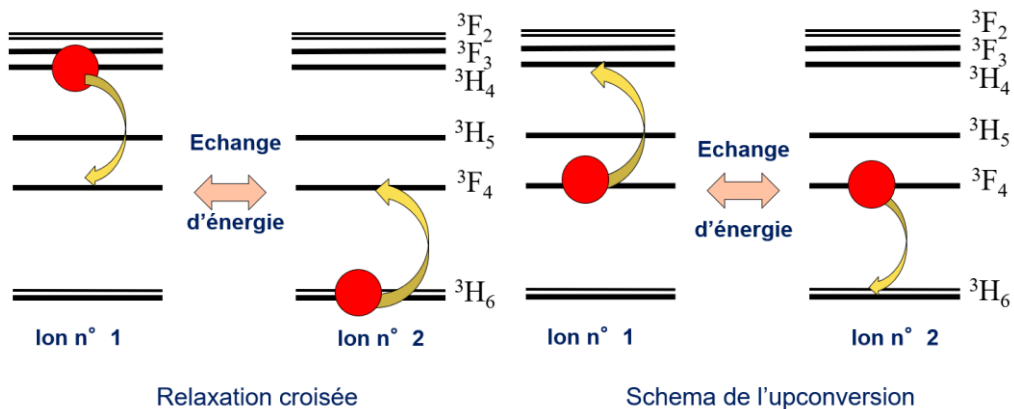


Fig. 2 : Echanges d'énergie dans le thulium. (a) la relaxation croisée et (b) l'upconversion.

Les échanges d'énergie à deux ions sont des points importants de la spectroscopie du thulium trivalent. Parmi ces échanges, la relaxation croisée est un échange particulièrement efficace. Deux ions, l'un dans l'état fondamental 3H_6 , l'autre dans l'état 3H_4 échangent de l'énergie pour peupler le niveau métastable 3F_4 . Le taux de relaxation croisée est alors proportionnel au produit de la population des deux niveaux d'origine N_x (ions. m^{-3}). Le flux d'ions arrivant dans le niveau 3F_4 peut en conséquence s'écrire :

$$\left[\frac{dN_{^3F_4}}{dt}\right]_{CR} = 2K_{CR}N_{^3H_6}N_{^3H_4}$$

Plus deux ions sont proches, plus la probabilité qu'ils échangent de l'énergie est grande. K_{CR} est donc fortement lié à la concentration N en ions thulium dans le milieu. La relation suivante $K_{CR} = C_{CR}N$ (avec C_{CR} indépendant du dopage) donne une bonne approximation de K_{CR} [Loiko 2016].

Un autre échange d'énergie entre ions courant est l'upconversion. Il s'agit du phénomène exactement opposé. Deux ions du niveau 3F_4 échangent de l'énergie, l'un allant vers le niveau 3H_4 , l'autre vers le niveau 3H_6 .

$$\left[\frac{dN_{^3F_4}}{dt}\right]_{ETU} = -2K_{ETU}N_{^3F_4}^2 = -2C_{ETU}NN_{^3F_4}^2$$

Le coefficient C_{ETU} est généralement deux ordres de grandeur plus faible que le coefficient de relaxation croisée C_{CR} [Loiko 2019]. Néanmoins, le niveau 3F_4 étant métastable, il est ainsi facilement rempli. Le flux d'upconversion n'est alors pas forcément négligeable. A l'inverse, le niveau 3H_4 pouvant être vidé par l'effet laser à 2,3 μm , le flux de relaxation croisée n'est pas forcément prédominant. Finalement, les deux flux peuvent avoir le même ordre de grandeur dans certaines configurations.

2.3 EXEMPLE D'APPLICATION : LE LASER CLASSIQUE A 1,9 μm

Ces échanges d'énergie inter-ions ont une importance particulière dans le cas du pompage classique à 0,8 μm des lasers à 1,9 μm utilisant les ions thulium et est souvent utile et utilisé. Pour un photon absorbé, un ion arrive dans le niveau 3H_4 . Par relaxation croisée, deux ions peuvent se retrouver ensuite dans le niveau 3F_4 qui est le niveau du haut du laser à 1,9 μm . En théorie, pour un photon absorbé, il est ainsi possible d'avoir jusqu'à deux photons émis à 1,9 μm . Ainsi, le phénomène de relaxation croisée est à l'origine de la très grande efficacité de ces lasers, malgré un défaut quantique a priori assez défavorable.

2.4 EQUATIONS DES NIVEAUX

L'ensemble de ses échanges d'énergie peuvent être mis en équation de la manière suivante en reprenant les notations de la Fig. 3 issues de la table des notations. Diverses hypothèses simplificatrices raisonnables ont néanmoins été réalisées dès le départ :

En première approximation, la population des niveaux très excités (1G_4 et 1D_2) a été négligée. Dans tous les cas étudiés dans cette thèse en régime continu, ces niveaux

sont remplis par des processus d'upconversion ou d'absorption par l'état excité depuis le niveau 3H_4 [Hebert 1992] [Walsh 1998] [Wyss 1999]. Dans notre cas, le laser à 2,3 μm vide le niveau 3H_4 ($n_{^3H_4} \sim \text{quelques pourcents}$), rendant marginaux les processus d'upconversion ou d'absorption depuis ce niveau. Leur quantification est néanmoins difficile dans la mesure où les sections efficaces ou les coefficients d'ETU depuis ce niveau sont peu connus. Néanmoins, nous avons mesuré au chapitre 4 que les populations des niveaux 1G_4 et 1D_2 étaient très faibles, de l'ordre du $\%$. Pour de très fortes intensités de pompe ou de fortes populations du niveau 3H_4 , il faudra néanmoins faire attention aux populations de ces niveaux.

Les transitions laser concurrentes 3H_4 vers 3F_4 à 1,5 μm et 3H_4 vers 3H_6 à 0,8 μm n'ont pas été prises en compte dans ces modélisations. Nous expliquons cela pour deux raisons. D'une part, ces transitions ne peuvent être que délétères pour l'émission à 2,3 μm étant donné qu'elles partent toutes les trois du niveau 3H_4 et qu'elles sont donc en compétition pour le gain laser. Il n'y a donc pas d'intérêt à rajouter un laser à 1,5 μm ou à 800 nm pour améliorer l'émission laser à 2,3 μm . D'autre part, le gain laser de ces transitions est assez faible. Ces lasers parasites peuvent donc être très facilement évités expérimentalement en choisissant correctement les réflections des miroirs qu'on utilise dans nos cavités.

On supposera que $n_3 \approx 0$ dans la mesure où ce niveau se relaxe très rapidement ($\sim ns$) par relaxation multi-phonons dans le niveau 2 dans les fluorures et les oxydes [Pinto 1994]. En outre, à ma connaissance, aucune fluorescence ou absorption n'a été rapportée expérimentalement dans la littérature depuis le niveau 3 dans les fluorures ou les oxydes. Dans les équations de taux, toutes les transitions arrivant sur le niveau 3 seront donc comptées dans le niveau 2. De même, pour les niveaux 3F_2 et 3F_3 , la différence d'énergie entre ces niveaux et le niveau 3H_4 est trop faible comparée à l'énergie de phonon des fluorures et des oxydes (cf. Chapitre 1). Ces niveaux sont donc thermiquement couplés avec le niveau 3H_4 . Tous les ions arrivant dans ces états, seront donc comptés dans le niveau 3H_4 .

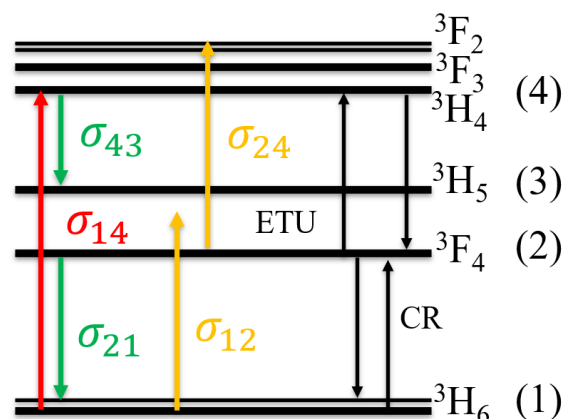


Fig. 3 : Spectroscopie de l'ion thulium trivalent. CR : relaxation croisée (*cross relaxation*), ETU : Upconversion (*Energy transfert upconversion*), $\sigma_{XY}(\lambda)$: section efficace pour la transition X vers Y

(m^{-2})

On assumera ici de travailler avec des populations de niveaux normalisées tel que $n_x = \frac{N_x}{N}$. Φ_λ correspond au flux de photons à une longueur d'onde λ en ($photons \cdot s^{-1} \cdot m^{-2}$). β_{XY} est le facteur de branchement, i.e. la proportion de fluorescence qui va du niveau X vers le niveau Y (%). Les équations de taux qui nous intéressent s'écrivent alors :

$$(1) \frac{dn_4}{dt} = \sigma_{14}n_1\Phi_{0,8\mu m} + \sigma_{24}n_2\Phi_{1\mu m} - \sigma_{43}n_4\Phi_{2,3\mu m} + C_{ETU}N^2n_2^2 - C_{CR}N^2n_4n_1 - \frac{n_4}{T_4}$$

$$(2) \frac{dn_2}{dt} = \sigma_{13}n_1\Phi_{1\mu m} - \sigma_{24}n_2\Phi_{1\mu m} + \sigma_{43}n_4\Phi_{2,3\mu m} - \frac{n_2}{T_2} + \beta_{4(3+2)}\frac{n_4}{T_4} - 2C_{ETU}N^2n_2^2 \\ + 2C_{RC}N^2n_4n_1 + \sigma_{12}n_1\Phi_{1,9\mu m} - \sigma_{21}n_2\Phi_{1,9\mu m}$$

$$(3) n_1 + n_2 + n_4 = 1$$

Le flux de pompe est ici imposé. Les flux laser peuvent être imposés dans le cas d'un amplificateur ouvert ou calculés si on se trouve dans une cavité (via les pertes de cette dernière).

2.5 PROPOSITION DE RESOLUTION

Il est à noter qu'étant donné la présence de termes quadratiques dus aux échanges d'énergie, une résolution littérale (si elle existe) demanderait un formalisme mathématique poussé qui n'est pas l'objet de cette thèse.

Une alternative mathématique simple pour résoudre ce type d'équation serait de passer par une résolution numérique utilisant la méthode d'Euler ou de Runge Kunta. Néanmoins, la grande différence des dynamiques en jeu entre les échanges d'énergie qui sont plutôt des effets lents et l'absorption à $0,8 \mu m$ qui a une dynamique plus rapide, pousse à avoir une large fenêtre temporelle (quelque 10 ms) pour observer les effets lents tout en ayant un pas d'intégration assez fin pour suivre les effets rapides (inférieurs à la ns). Cette méthode est donc particulièrement chronophage. De même, une résolution temporelle n'est pas forcément souhaitée dans notre cas.

Pour cette raison, une autre méthode originale a été développée consistant à trouver le point stationnaire d'une fonction telle que : $[n_1, n_2, n_3] = f([n_1, n_2, n_3])$. Cette fonction f est choisie pour estimer facilement des valeurs de populations quelles que soient les valeurs de population en entrée. Cette fonction est appliquée plusieurs fois pour affiner les valeurs de nos populations et converger vers une valeur $[n_1, n_2, n_3]_\infty$. Il n'y a ensuite qu'à vérifier que les valeurs stationnaires résolvent bien le système d'équations (1) + (2) + (3). Cette fonction va être explicitée dans la suite du paragraphe. Pour obtenir f , (1) et (2) sont additionnés à l'état stationnaire :

$$0 = \sigma_{14}n_1\Phi_{0,8\mu m} + (\beta_{4(3+2)} - 1)\frac{n_4}{T_4} - C_{ETU}N^2n_2^2 + C_{RC}N^2n_4n_1 + \sigma_{13}n_1\Phi_{1\mu m} - \frac{n_2}{T_2} \\ + \sigma_{12}n_1\Phi_{1,9\mu m} - \sigma_{21}n_2\Phi_{1,9\mu m}$$

On obtient en introduisant (3) et en notant $\alpha = \sigma_{14}\Phi_{0.8\mu m} + C_{CR}n_4N^2 + \sigma_{13}\Phi_{1\mu m} + \sigma_{12}\Phi_{1.9\mu m}$:

$$0 = n_2^2(-N^2C_{ETU}) + n_2\left(-\alpha - \frac{1}{T_2} - \sigma_{21}\Phi_{1.9\mu m}\right) + (1 - n_4)\alpha + (\beta_{4(3+2)} - 1)\frac{n_4}{T_4}$$

L'ordre de grandeur de α est d'environ $10^3 s^{-1}$. On obtient un système d'équations permettant de résoudre n_2 dont le discriminant est :

$$\Delta = \left(\alpha + \frac{1}{T_2} + \sigma_{21}\Phi_{1.9\mu m}\right)^2 \left(1 + \frac{4N^2C_{ETU}\left[\alpha - n_4\left(\alpha + \frac{1 - \beta_{4(3+2)}}{T_4}\right)\right]}{\left(\alpha + \frac{1}{T_2} + \sigma_{21}\Phi_{1.9\mu m}\right)^2}\right)$$

Afin de calculer facilement la valeur de n_2 à partir de la racine de Δ , il est nécessaire de linéariser la racine carrée du discriminant. On fait l'approximation linéaire suivante $\sqrt{1+X} \sim 1 + l_1X$. La valeur de X variant selon le pompage et le cristal utilisé, la valeur l_1 peut être adaptée selon les cas pour coller au mieux à la racine carrée dans la zone d'intérêt. Néanmoins, dans tous les cas étudiés ici, $X = \frac{4N^2C_{ETU}\left[\alpha - n_4\left(\alpha + \frac{1 - \beta_{4(3+2)}}{T_4}\right)\right]}{\left(\alpha + \frac{1}{T_2} + \sigma_{21}\Phi_{1.9\mu m}\right)^2} \in [0; 1,5]$ (Fig. 4 (b)) et $l_1 = \frac{2}{5}$ donne une approximation correcte de la racine carrée sur cette plage de valeur (Fig. 4 (a)). Cette valeur est utilisée par défaut dans les simulations avant d'être ajustée pour résoudre au mieux le système d'équation.

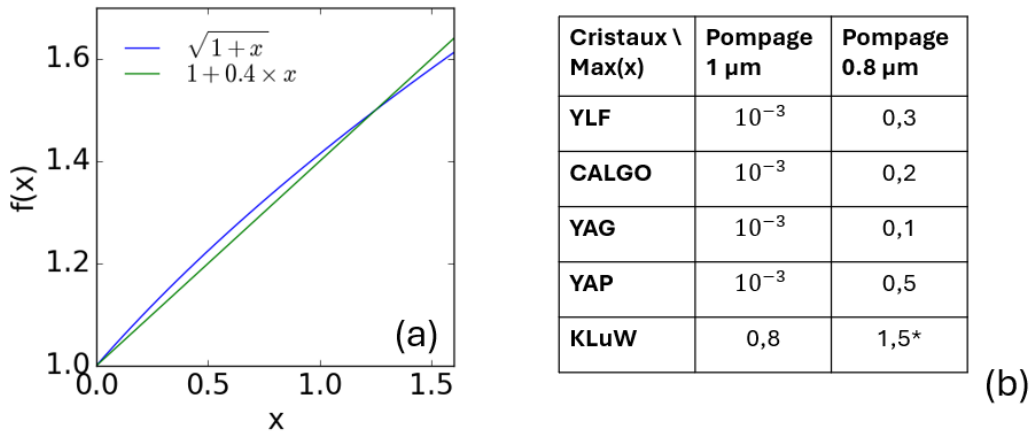


Fig. 4 : (a) Comparaison entre la fonction $\sqrt{1+x}$ et son approximation linéaire. (b) Valeur maximale de x pour des intensités comprise entre 0 et $4 \times 10^{29} photon.m^{-2}s^{-1}$. (* Pour le KLuW, l'intensité maximale a été réduite d'un facteur 20 pour ne pas dépasser $x=1,5$. Nous devons le prendre en compte lorsqu'on simule les populations de ce cristal.).

On trouve une seule valeur physiquement possible :

$$(4) n_2 = l_1 \frac{\alpha - n_4\left(\alpha + \frac{1 - \beta_{4(3+2)}}{T_4}\right)}{\alpha + \frac{1}{T_2} + \sigma_{21}\Phi_{1.9\mu m}}$$

Notons que ce résultat intermédiaire nous apporte déjà un certain nombre

d'informations. En condition laser à 2,3 μm , il nous permet déjà de résoudre la population des niveaux dans la mesure où la population n_4 est imposée par les conditions $\text{pertes} \times \text{gain} = 1$ dans la cavité. De plus, même si les pertes ne sont pas connues, la valeur de n_4 est relativement faible de l'ordre du pourcent. Prendre une valeur arbitrairement nulle pour n_4 nous donne déjà un ordre de grandeur grossier pour n_2 . Une seconde considération plus physique qu'il est intéressant de noter est que l'ajout d'un laser à 1,9 μm revient simplement à faire le changement de variable :

$$T'_2 = \frac{T_2}{1 + \frac{\Phi_{1,9 \mu\text{m}}}{\Phi_{1,9 \mu\text{m},\text{sat}}}}$$

Avec $\Phi_{1,9 \mu\text{m},\text{sat}} = \frac{1}{T_2 \sigma_{21}}$. Cela signifie que l'ajout qu'un laser à 1,9 μm est équivalent à réduire le temps de vie effectif du niveau métastable 3F_4 et permet donc de limiter l'accumulation d'ions dans ce niveau. L'intérêt de rajouter ce laser à 1,9 μm sera traité numériquement et plus précisément dans la partie : *De l'intérêt d'ajouter un laser en cascade à 1,9 μm .*

On va maintenant chercher à calculer la valeur de n_4 dans le cas où celle-ci n'est pas directement connue par les conditions d'oscillation laser à 2,3 μm ou quand il n'y a pas de laser à 2,3 μm . Ceci permet d'estimer les performances en amplification laser et avoir accès au gain petit signal. A partir de l'équation (1), en identifiant l'inversion de population Δn à n_4 , on a :

$$\begin{aligned} \frac{d\Delta n}{dt} = 0 &= \frac{1}{T_4} \left(\Delta n_0 - \Delta n - \frac{\Phi_{2,3 \mu\text{m}}}{\Phi_{2,3 \mu\text{m},\text{sat}}} \Delta n \right) \\ \Phi_{2,3 \mu\text{m},\text{sat}} &= \frac{1}{T_4 \sigma_{43}} \\ \Delta n_0 &= T_4 (\sigma_{14} n_1 \Phi_{0,8 \mu\text{m}} + \sigma_{24} n_2 \Phi_{1 \mu\text{m}} + N^2 C_{ETU} n_2^2 - N^2 C_{CR} n_1 n_2) \end{aligned}$$

Pour résoudre cette équation, on fait l'hypothèse que le gain n'est pas saturé : $\frac{\Phi_{2,3 \mu\text{m}}}{\Phi_{2,3 \mu\text{m},\text{sat}}} \ll 1$. Cette condition nous imposera d'avoir de faibles puissances à 2,3 μm dans nos simulations. Lorsque cette condition est vérifiée, on a $\Delta n = n_4 = \Delta n_0$. En injectant l'équation (4), cette dernière relation permet d'obtenir une équation du second degré en n_4 . En utilisant à nouveau une linéarisation de la racine carrée du discriminant pour l'équation en n_4 , on trouve l'équation (5). Le paramètre de linéarisation $\sqrt{1+X} = 1 + l_2 X$ a ici été utilisé. La valeur optimale de l_2 est de 0,4 dans nos calculs.

$$n_4 = l_2 \frac{num}{deno}$$

$$num = T_4 \sigma_{14} \Phi_{0,8 \mu m} \left(1 - l_1 \frac{\alpha}{\alpha + \frac{1}{T_2}} \right) + l_1 T_4 \sigma_{24} \Phi_{1 \mu m} \frac{\alpha}{\alpha + \frac{1}{T_2}} + T_4 N^2 C_{ETU} \left(l_1 \frac{\alpha}{\alpha + \frac{1}{T_2}} \right)^2$$

$$deno = 1 + \frac{\Phi_{2,3 \mu m}}{\Phi_{2,3 \mu m, sat}} - \beta_{4(3+2)} + T_4 N^2 C_{CR} \left(1 - l_1 \frac{\alpha}{\alpha + \frac{1}{T_2}} \right)$$

$$+ T_4 \sigma_{14} \Phi_{0,8 \mu m} \left(1 - l_1 \frac{\alpha + \frac{1 - \beta_{4(3+2)}}{T_4}}{\alpha + \frac{1}{T_2}} \right) + l_1 T_4 \sigma_{24} \Phi_{1 \mu m} \frac{\alpha + \frac{1}{T_4}}{\alpha + \frac{1}{T_2}}$$

$$+ 2 T_4 N^2 C_{ETU} \frac{\alpha \left(\alpha + \frac{1}{T_4} \right)}{l_1^2 \left(\alpha + \frac{1}{T_2} \right)^2}$$

L'équation (5) associée à l'équation (4) pour calculer n_2 et à l'équation (3) pour calculer n_1 correspond à la fonction f tel que $[n_1, n_2, n_3] = f([n_1, n_2, n_3])$. La convergence de la fonction f a été contrôlée pour plusieurs configurations. Par exemple, dans les graphiques d'illustration Fig. 5, les populations ont été calculées pour différentes intensités de pompe à 0,8 μm sans laser à 2,3 μm Fig. 5(a,b,c) et avec laser à 2,3 μm Fig. 5(d,e,f). On observe sur Fig. 5 (b) que la fonction f converge effectivement vers un résultat en quelques itérations. Cette convergence rapide a été observée pour toutes les conditions testées dans ce chapitre. La seule condition pour que cela soit le cas consiste à ne pas laisser la valeur $\Phi_{1,9 \mu m}$ libre lors de l'itération. Ayant vérifié qu'appliquer la fonction f plusieurs fois permet de rapidement converger vers une valeur limite $[n_1, n_2, n_3]_{\infty}$, il ne reste plus qu'à vérifier que $[n_1, n_2, n_3]_{\infty}$ vérifie bien le système d'équations (1) + (2).

Pour ce faire, le résultat $[n_1, n_2, n_3]_{\infty}$ a été réinjecté dans les équations de départ (1) et (2). Le pourcentage d'erreur a été calculé Fig. 5 (c,f). Il correspond aux résultats des deux équations (théoriquement nuls) divisés par la somme des valeurs absolues des termes des équations. Pour des valeurs initiales $l_1 = l_2 = 0,8$, l'erreur est inférieure à 20 %. En adaptant légèrement ces valeurs pour linéariser au mieux les deux racines carrées, il est facilement possible de faire passer l'erreur sous la barre des 10%. Les valeurs utilisées sont les suivantes : $l_1 = 1, l_2 = 0,8$. L'erreur est néanmoins significativement plus élevée que dans le cas d'une résolution se basant que la méthode d'Euler ou de Runge Kunta. Cela est dû aux nombreuses approximations qui ont été faites, portant notamment sur la linéarisation des racines carrées et sur la non-saturation du gain.

Mais la précision obtenue est tout à fait suffisante pour donner des ordres de grandeur des populations et mettre en évidence l'ensemble des effets physiques intéressants dans la spectroscopie du thulium.

Le seul avantage de cette méthode réside donc principalement dans la rapidité en temps de calcul nécessaire pour obtenir une solution. Un gain de temps d'au moins six ordres de grandeur en nombre d'opérations a ainsi été obtenu par rapport à la méthode d'Euler qui a été développée précédemment. Ce gain de nombre d'opérations nous a ainsi permis de réaliser de multiples modélisations pour de nombreux cas en des temps raisonnables. Elles permettent de prendre notamment en compte d'autres dimensions avec par exemple des considérations spatiales des faisceaux de pompes comme l'absorption lors de la propagation ou la divergence de la pompe...

En conclusion, nous avons développé un modèle approché représentant assez bien la physique mise en jeu. Dans les prochaines grandes parties, nous allons l'utiliser afin de tenter de comprendre la physique qui se cache derrière ces résultats mathématiques.

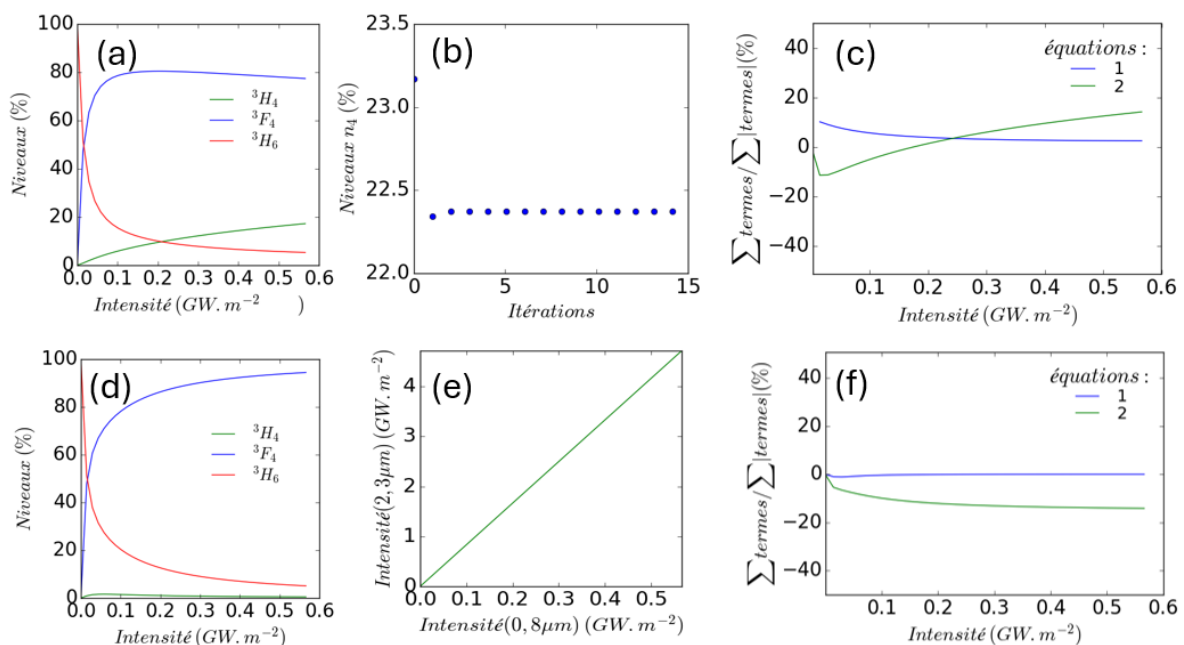


Fig. 5 : Tests de validation du modèle simplifié réalisés pour un Tm:YLF 3% at. (a,b,c) correspondent à un cas d'amplification sans cavité, (d,e,f) correspondent à un cas de modélisation de cavité laser. (a) modélisation de la population locale du niveau du haut laser 3H_4 , du niveau métastable 3F_4 et du fondamental 3H_6 en fonction de l'intensité de la pompe en absence de laser à $2,3 \mu m$. (b) Valeur de la population en fonction du nombre de fois qu'est appliquée l'équation (5) pour une intensité de $0.6 GW \cdot m^{-2} s^{-1}$ en absence de laser à $2,3 \mu m$. (c) Pourcentage d'erreur sur les équations (1) et (2) pour les populations calculées à la figure (a). (d) Modélisation de la population locale du niveau du haut laser 3H_4 , du niveau métastable 3F_4 et du fondamental 3H_6 en fonction de l'intensité de la pompe avec un laser à $2,3 \mu m$. L'intensité laser à $2,3 \mu m$ a été tracée en (e). (f) Pourcentage d'erreur sur les équations (1) et (2) des populations calculées à la figure (d) en fonction de l'intensité de la pompe.

2.5.1 De l'esprit des simulations numériques

De nombreux paramètres sont ajustables en vue d'optimiser les systèmes à base de thulium : cristal (nature, longueur, dopage), diode (puissance, brillance), puissance laser

intracavité à 2,3 μm et 1,9 μm . La relaxation croisée et l'upconversion peuvent également être modifiés en changeant le dopage. Le nombre de modélisations réalisables est donc quasiment infini. Des choix ont dû être faits quant aux simulations qui ont été présentées. Nous avons adopté le point de vue suivant :

Les simulations présentées se placent souvent dans un cadre très précis, imposé par les expériences de la littérature ou qui ont été réalisées durant cette thèse et qui seront développées d'un point de vue expérimental par la suite. Ainsi, certaines valeurs peuvent paraître arbitraires mais sont en réalité liées à des réalités expérimentales et technologiques. Elles permettent d'illustrer différents problèmes et effets auxquels nous avons été confrontés. Par exemple, les puissances de pompe et les qualités de faisceaux de pompe utilisés sont imposées dans nos simulations pour correspondre à des sources crédibles d'un point de vue technologique en 2024. Les pompes définies dans la partie 2.7 tendent ainsi à approcher les faisceaux des diodes de puissance. De même, les pompes de la partie 2.8 tendent à approcher les pompes qu'il est possible d'avoir avec des fibres ytterbium et les lasers solides à base de néodyme. Lorsque les puissances à 2,3 μm ou à 1,9 μm sont imposées, elles correspondent à des valeurs typiques qui ont été obtenues expérimentalement. L'ensemble des simulations sont donc très fortement inspirées par des situations expérimentales et vise ainsi à les expliquer graphiquement. Les simulations n'ont donc pas été faites dans un but prédictif ici mais pour comprendre et illustrer des difficultés classiques liées aux schémas de pompage les plus courants pour l'émission laser à 2,3 μm . Il est néanmoins possible d'utiliser ses codes à des fins prédictives mais ce n'est pas le point de vue qui a été utilisé ici.

De même, le lecteur se rendra compte que la spectroscopie du thulium est assez complexe. Le pari a ainsi été fait de ne faire varier qu'un seul paramètre expérimental par courbes pour noter l'effet qu'a cet unique paramètre. Nous ne ferons pas varier ici les paramètres auxquels nous n'avons pas accès expérimentalement. Faire varier le coefficient d'upconversion ou des temps de vie n'a pas vraiment de sens par exemple.

2.5.2 Paramètres des simulations

Dans ce chapitre et sauf mention contraire, les simulations seront faites sur un Tm :YLF 3% at. de longueur 1 cm. Ce choix a été fait compte tenu des bonnes performances de ce cristal dans la littérature [Guillemot 2021] et de la possibilité d'avoir accès à l'ensemble des paramètres spectroscopiques [Guillemot 2021]. Les paramètres laser tels que les puissances, les intensités, les tailles de waist, leur divergence et leur profile seront définies au cas par cas. Pour les faisceaux de pompe très divergents, les waists seront situés à 3 mm après la première face du cristal.

σ_{14}	$0,85 \times 10^{-24} \text{ m}^{-2}$
σ_{43}	$0,57 \times 10^{-24} \text{ m}^{-2}$
$\sigma_{13}(1 \mu\text{m})$	$0,001 \times 10^{-24} \text{ m}^{-2}$

$\sigma_{24}(1 \mu m)$	$0,35 \times 10^{-24} m^{-2}$
$\sigma_{12}(1,9 \mu m)$	$0,03 \times 10^{-24} m^{-2}$
$\sigma_{21}(1,9 \mu m)$	$0,42 \times 10^{-24} m^{-2}$
N	$4,83 \times 10^{26} m^{-3}$
C_{CR}	$2,5 \times 10^{-38} cm^6 s^{-1}$
C_{ETU}	$0,05 \times 10^{-38} cm^6 s^{-1}$
T_4	$2,3 \times 10^{-3} s$
T_2	$10 \times 10^{-3} s$

Table 1 : Valeurs des paramètres spectroscopiques utilisés dans les simulations du chapitre 2 pour le Tm:YLF 3% at.

2.6 SIMULATION DU POMPAGE DIRECT

2.6.1 L'intérêt du pompage direct

La présente partie traite du cas classique du pompage direct avec une absorption depuis l'état fondamental vers l'état 3H_4 . L'avantage principal de cette absorption tient dans la disponibilité commerciale des diodes de forte puissance [Kifle 2020], ce qui rend ce pompage facile à mettre en œuvre et peu coûteux. En laboratoire, il y a également la possibilité d'utiliser des lasers Ti:Saphir accordables comme source de pompe. Ceux-ci permettent d'explorer facilement toute la bande d'absorption. Nous nous attarderons davantage sur les considérations expérimentales dans le chapitre 3. Les paramètres des faisceaux de pompe que nous utiliserons dans la suite sont ceux de diodes de puissance typiques.

2.6.2 Mise en évidence de l'effet de goulot d'étranglement dans le niveau métastable

Bien qu'il soit largement utilisé, le pompage direct n'est pas sans difficulté. Le niveau 3F_4 étant métastable, les ions ont tendance à y être piégés. Ainsi, le niveau fondamental se dépeuple et l'absorption diminue fortement. La simulation Fig. 6 (a,b) permet de se rendre compte de ce phénomène. La population de chaque niveau en un point du cristal a été calculée en fonction de l'intensité de pompe locale. Aucune autre condition particulière n'est imposée sur la pompe. Le calcul a été fait sans laser à 2,3 μm Fig. 6 (a) et en présence d'un effet laser à 2,3 μm Fig. 6(b). Dans ce dernier cas, l'intensité à 2,3 μm est présentée en Fig. 6(c). Dans les deux cas, on observe que la population de l'état fondamental 3H_6 diminue fortement jusqu'à converger vers $\sim 10\%$ lorsque l'intensité augmente. L'absorption à forte intensité depuis ce niveau diminue ainsi fortement. La population piégée dans le niveau 3F_4 croît jusqu'à atteindre environ 80%. Ce goulot d'étranglement important dans le niveau métastable est donc observé avec et sans effet laser à 2,3 μm .

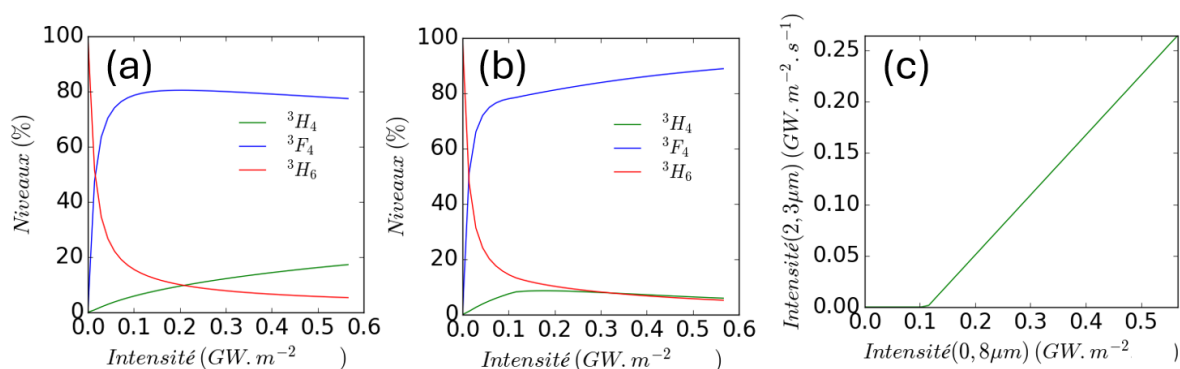


Fig. 6 : Pour un Tm:YLF 3% at., modélisation de la population locale du niveau du haut laser 3H_4 , du niveau métastable 3F_4 et du fondamental 3H_6 en fonction de l'intensité de la pompe (a) sans laser à 2,3 μm et (b) avec laser à 2,3 μm . (c) L'intensité laser à 2,3 μm en entrée dans la figure (b) a été tracé. L'intensité maximum correspond à une puissance de 20 W sur 50 μm .

2.6.3 Compensation de la saturation d'absorption par l'ETU

L'effet de goulot d'étranglement tend à fortement peupler le niveau 3F_4 conduisant à une saturation de l'absorption depuis le niveau fondamental. Néanmoins, en augmentant la population de ce niveau, le flux d'upconversion depuis ce niveau augmente significativement car il dépend du carré de cette population. Ce flux d'upconversion contribue à peupler le niveau 3H_4 , ce qui est favorable à l'émission laser à $2,3 \mu\text{m}$. Cet effet positif contrebalance les problèmes liés au goulot d'étranglement dans le niveau 3F_4 . Dans la mesure où il dépend de façon non linéaire du dopage, il peut même devenir particulièrement important pour des dopages au-delà de 2%.

2.6.4 La recherche d'une intensité de pompe optimum

Une telle saturation de l'absorption pose cependant la question de la focalisation optimale de la pompe dans le cadre d'un pompage longitudinal. D'un côté, focaliser la pompe trop fort augmentera l'intensité au point focal et accentuera l'effet du goulot d'étranglement du niveau 3F_4 . Cela réduira aussi fortement la distance de Rayleigh dans le cristal sur laquelle l'intensité de pompe est suffisante pour avoir du gain. D'un autre côté, focaliser trop peu réduira l'intensité de pompe qui risque de devenir trop faible pour remplir assez le niveau 3H_4 . Le seuil laser risque de ne pas être atteint. La simulation précédente étendue à plusieurs conditions de pompage permet de trouver un optimum entre ces deux cas extrêmes. Elle permet également de prendre en compte l'effet positif de l'upconversion. Dans le cas d'un pompage diode sur un cristal de Tm:YLF 3% de 1 cm de long, le gain a été calculé pour différentes focalisations d'une pompe de 40 W divergente avec un $M^2 = 80$, Fig. 7. Un optimum a été trouvé pour le gain petit signal. Il correspond à une focalisation sur un waist de $120 \mu\text{m}$. Afin de montrer l'influence du laser à $2,3 \mu\text{m}$, le gain peut être également calculé en présence d'un faisceau laser de 10 W à $2,3 \mu\text{m}$ (focalisé sur $40 \mu\text{m}$ dans le cristal). Le waist optimal est alors un peu plus haut. Cet exemple est intéressant car cette focalisation et cette puissance intracavité à $2,3 \mu\text{m}$ correspondant bien aux l'ordres de grandeur qu'il est possible d'obtenir dans un système utilisant une diode de puissance multimode dans la littérature [Kifle 2020]. Avec cette simulation, il est possible de montrer que les technologies actuelles à base de diodes laser permettent de focaliser avec un waist qui maximise le gain à $2,3 \mu\text{m}$. Même si ce dernier reste relativement faible, la simulation montre aussi qu'il est néanmoins possible ainsi d'atteindre le seuil avec des faisceaux de pompe de faible qualité spatiale tel que les diodes laser.

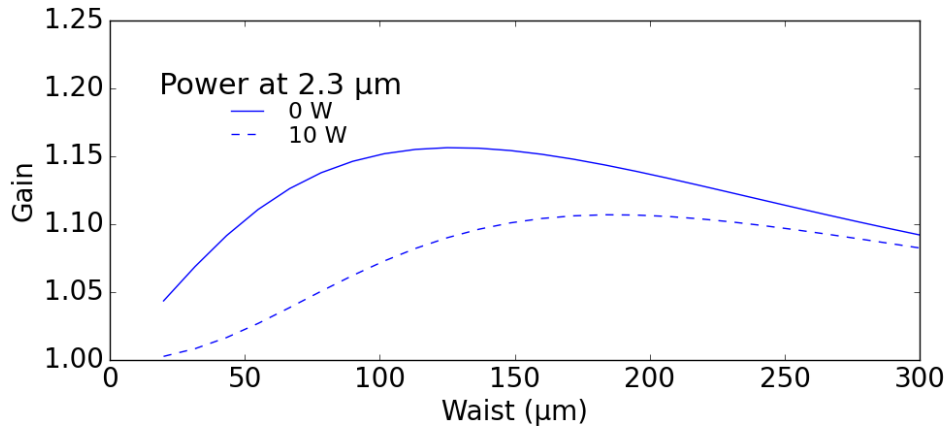


Fig. 7 : Pour un Tm:YLF 3% at., gain en fonction de la focalisation d'une pompe de 40 W avec un $M^2=80$. Le laser à 2,3 μm correspond à 10 W dans le cristal focalisé sur 40 μm avec un $M^2=1$.

2.6.5 De l'intérêt d'ajouter un laser « en cascade » à 1,9 μm

Des pistes d'amélioration existent pour tenter d'améliorer l'efficacité du pompage direct. Elles consistent généralement purger le niveau 3F_4 vers le niveau fondamental afin de ré-augmenter l'absorption. Il est possible, par exemple, de le faire en ajoutant un co-dopant dans la matrice [Braud 1998]. Ici, nous allons étudier l'intérêt de le faire optiquement en permettant une co-émission laser à 1,9 μm sur la transition 3F_4 vers 3H_6 . Dans la Fig. 8(a), les populations locales des niveaux ont été calculées en fonction de l'intensité de pompe à 0,8 μm sans laser à 1,9 μm (trait pointillé) et avec un laser à 1,9 μm (trait plein). Les intensités laser ont été imposées comme décrites à la Fig. 8(b). On choisit des valeurs typiques de la littérature pour ce type de laser avec, au maximum, une puissance de 5 W sur un waist de 45 μm et un $M^2=1$.

L'influence du laser à 1,9 μm est importante même à faible intensité de pompe. Dans le cas d'une cascade, la population du niveau fondamental 3H_6 est ainsi considérablement augmentée par rapport au cas où il n'y a pas de laser à 1,9 μm Fig. 8(a) passant de 20% à 60%. Ceci permet de rétablir une plus forte absorption depuis ce niveau (Fig. 8(c)) et donc une plus grande efficacité de pompage à 0,8 μm .

Le gain en terme d'absorption est néanmoins dépendant de la longueur du cristal Fig. 8(c). Dans ce graphique, l'absorption cumulée sur un cristal de 1 cm a été calculée avec et sans laser à 1,9 μm . La pompe est de 40 W sur un waist de 150 μm avec un $M^2=80$. Les lasers à 2,3 μm et à 1,9 μm ont une puissance de 5 W sur un waist de 45 μm et un $M^2=1$. Pour les cristaux classiquement utilisés dans la littérature, de tailles comprises entre 3 et 8 mm, le gain en termes d'absorption est assez intéressant. Pour les cristaux plus longs néanmoins, l'amélioration de l'absorption relative devient minime car l'absorption est déjà forte. Pour les cristaux courts, l'amélioration est forte mais reste globalement faible.

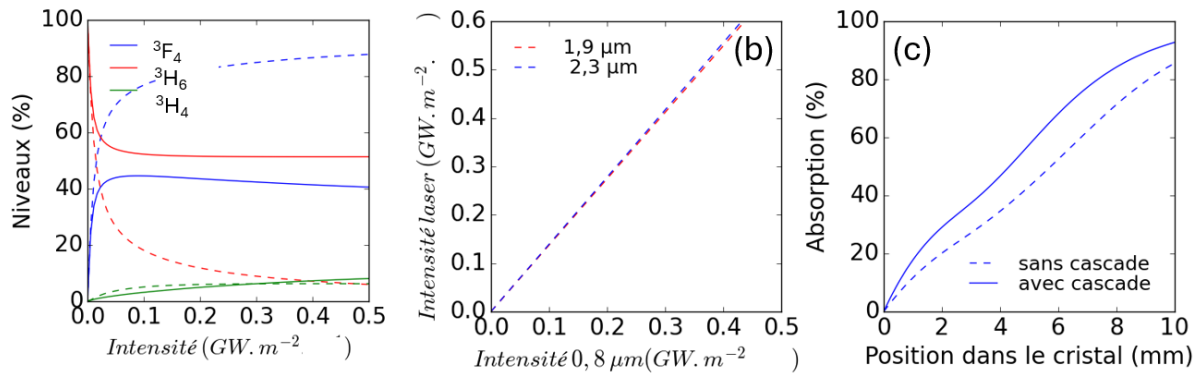


Fig. 8 : Pour un Tm:YLF 3% at., population locale des niveaux avec (trait plein) et sans laser à 1,9 μm (trait pointillé) en fonction de l'intensité locale de pompe. Les intensités laser à 1,9 μm et 2,3 μm correspondantes ont été tracé en (b). (c) Absorption intégrée à partir de la position 0 dans un cristal de longueur totale 1 cm en fonction de la position dans le cristal avec une pompe divergente de 40 W sur 150 μm , $M^2=80$. La simulation est faite avec et sans laser à 1,9 μm limité par diffraction focalisé sur 45 μm . La pompe se propage vers la position croissante. Avec cascade signifie qu'il y a le laser « en cascade » à 1,9 μm .

Le gain en termes d'absorption doit néanmoins être mis dans un contexte plus global. Il est important de réfléchir de manière holistique quand on considère l'option du co-laser notamment pour bien estimer le rapport gain vs. complexité.

En effet, en vidant le niveau 3F_4 , on réduit aussi le flux d'upconversion qui est favorable à la population du niveau 3H_4 , il n'est donc pas évident de dire si le gain en termes d'absorption est supérieur aux pertes dues à la réduction du flux d'upconversion... De plus, le flux d'upconversion est fort à fort dopage et faible pour les faibles dopages. Réduire le flux d'upconversion est donc moins dommageable pour la population du niveau 3H_4 à faible dopage qu'à fort dopage. Le dopage rentre donc en plus dans l'équation...

Afin de montrer que l'effet bénéfique ou négatif de la cascade laser dépend d'une multitude de paramètres, la population du niveau 3H_4 a été calculée le long de cristaux dans les mêmes conditions que la Fig. 8(c)- mais pour différents dopages Fig. 9. Fig. 9 la population n'est néanmoins plus intégrée sur la longueur. Le bénéfice de la cascade laser à 1,9 μm en termes de population du niveau 3H_4 apparaît clairement pour les faibles dopages Fig. 9 (a,b) où le niveau 3H_4 est davantage peuplés avec une cascade que sans. A l'inverse, pour les plus forts dopages, l'ajout d'une cascade laser s'avère souvent négatif, en effet les courbes de population s'inversent Fig. 9 (c,d). Par ailleurs, on peut aussi noter que le laser en cascade n'est pas forcément bénéfique sur toute la longueur du cristal.

Le domaine d'intérêt du laser en cascade en fonction du dopage sera étudié avec davantage de subtilité à travers un modèle semi-empirique dans le chapitre 3. Nous étudierons alors à ce moment-là en détail dans quel cas il est intéressant d'introduire un laser en cascade et dans quel cas il est préférable de l'éviter. Nonobstant, nous avons désiré montrer ici que le laser en cascade n'est pas toujours bénéfique. Son intérêt dépend notamment du dopage utilisé mais également d'autres paramètres que nous expliciterons au chapitre 3.

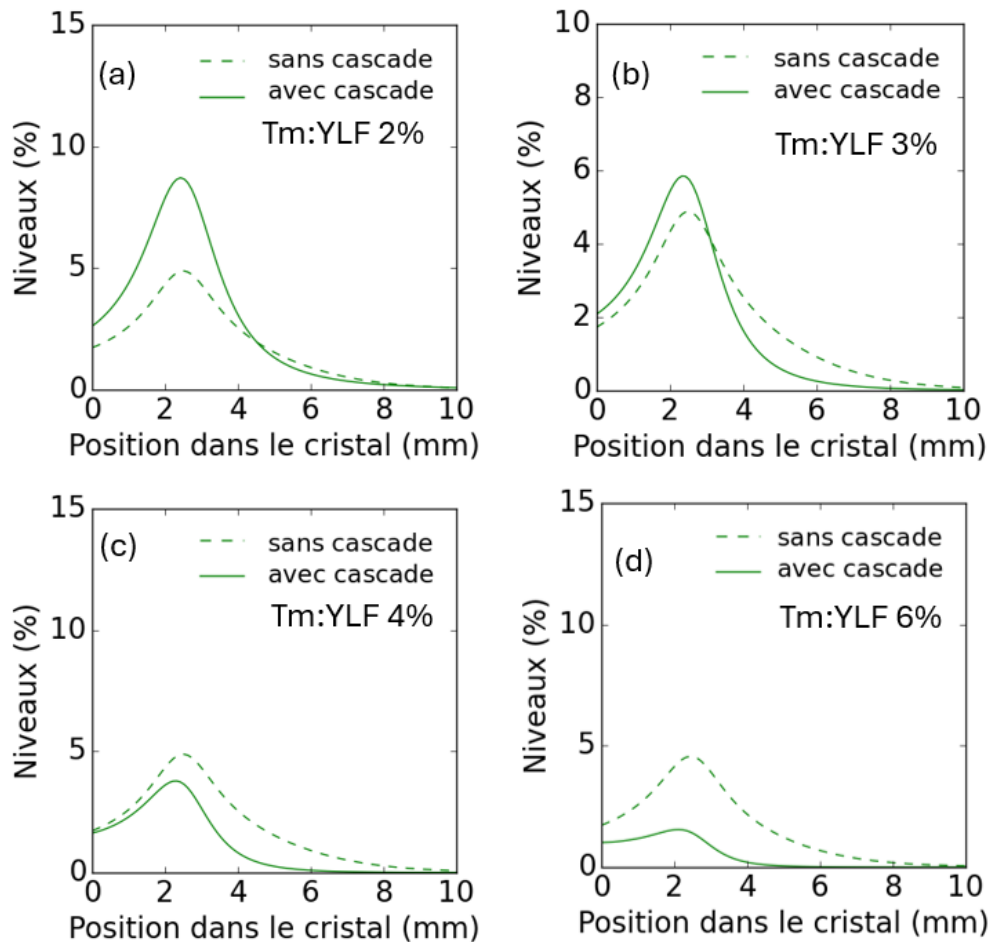


Fig. 9 : Population du niveau 3H_4 avec et sans co-laser à $1,9 \mu\text{m}$ dans le cas d'un pompage diode avec une puissance de pompe de 40 W sur un waist de $150 \mu\text{m}$ et 2 W à $2,3 \mu\text{m}$ et à $1,9 \mu\text{m}$ (si co-laser) (a) pour des cristaux de Tm:YLF avec différents dopages 2% et (b) 3% (c) 4% (d) 6%. Avec cascade signifie qu'il y a le laser « en cascade » à $1,9 \mu\text{m}$.

2.6.6 Cas des lasers à couplages vibroniques efficaces

L'étude des laser thulium autour de $2,3 \mu\text{m}$ a également permis de mettre en évidence l'existence de laser en cascade extrêmement efficace sur des gammes spectrales où les différents niveaux se recouvrent par couplages vibroniques [Loiko 2021]. Dans ce cas de figure, un laser est obtenu sur une transition électronique du niveau 3H_4 vers le niveau 3H_5 . Le gain de cette transition vient se coupler vibroniquement avec celui de la transition 3F_4 vers 3H_6 au niveau de la queue de phonons de cette transition Fig. 10(b). Bien que la section efficace en queue de phonon soit très faible, le fort remplissage du niveau 3F_4 permet d'obtenir des gains non-négligeables par rapport à celui de la transition 3H_4 vers 3H_5 . Dans ce cas de figure, le « parcours » d'un ion peut être le suivant. Un photon est absorbé à $0,8 \mu\text{m}$ en excitant un ion vers le niveau 3H_4 . Un photon peut être émis par une émission stimulée (autours de $2,1 \mu\text{m}$ typiquement) vers le niveau 3H_5 . Un second photon à la même longueur d'onde peut ensuite être émis

sur la transition 3F_4 vers 3H_6 en compagnie d'un ou plusieurs phonons car la section efficace (σ_{21}) n'est pas nulle à cette longueur d'onde. Les deux transitions « consécutives » apportent donc un gain laser sur cette plage de longueur d'onde commune. Le rendement quantique d'un tel processus est important [Loiko 2021] mais ce phénomène a tendance à décaler la longueur d'onde laser vers le pic d'émission de la transition du bas à $1,9 \mu\text{m}$. Il est alors courant d'observer des lasers à $2,1 - 2,2 \mu\text{m}$ alors même que les sections efficaces des deux transitions sont très faibles dans cette zone. Ce phénomène permet également d'avoir des lasers avec une grande accordabilité [Zhou 2024]. Cet effet est particulièrement présent dans les matrices cristallines à forte énergie de phonon comme le YAG, les tungstates ou les vanadates. Pour observer ce phénomène, il faut néanmoins créer des pertes importantes pour l'émission laser sur la bande $1,7 - 2,1 \mu\text{m}$.

En somme, dans certain cas, le laser vibronique n'est pas vraiment une option car les cascades vibroniques sont très difficiles à éviter dans la mesure où elles se situent proche de la transition à $2,3 \mu\text{m}$. Il faudra donc obligatoirement optimiser la cavité et le cristal en sachant qu'on en aura forcément une.

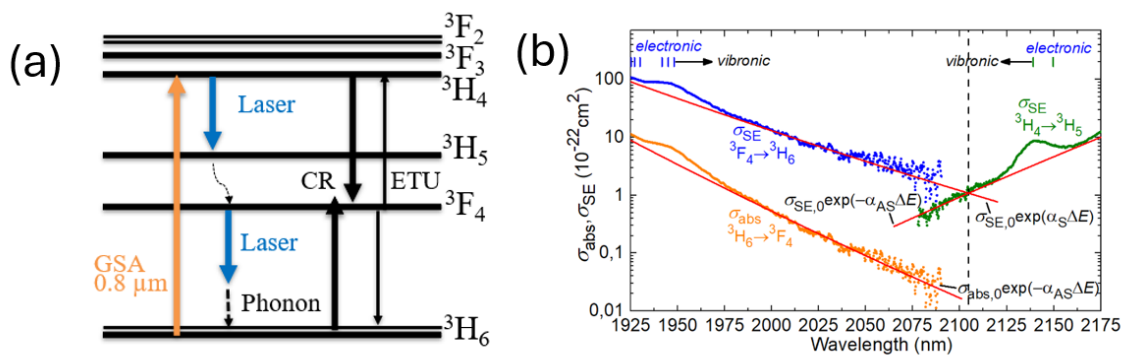


Fig. 10 : (a) Schéma d'un laser en cascade vibronique dans le thulium. (b) Exemple du recouvrement des sections efficaces des deux transitions dans le Tm :YAG. [Guillemot 2021]

2.7 SIMULATION DU POMPAGE A AVALANCHE

Cette partie porte sur le second type de pompage : le pompage à avalanche. Les considérations expérimentales relatives à ce chapitre seront traitées dans le chapitre 4.

2.7.1 Le principe du pompage à avalanche

Contrairement au pompage direct, le principe du pompage à avalanche pour l'émission à 2,3 μm n'a été démontré que très récemment [Guillemot 2019]. A faible intensité de pompe, celle-ci repose sur une absorption non résonnante depuis l'état fondamental $^3\text{H}_6$ vers l'état $^3\text{H}_5$. Cette absorption se fait aux alentours de 1 μm . Après une relaxation vers l'état $^3\text{F}_4$, la seconde étape est une forte absorption à la même longueur d'onde depuis l'état excité $^3\text{F}_4$ vers le niveau $^3\text{H}_4$. L'émission laser se produit ensuite sur la transition $^3\text{H}_4$ vers $^3\text{H}_5$. A forte intensité de pompe, le niveau $^3\text{F}_4$ est néanmoins principalement peuplé par une forte relaxation croisée. Ce dernier processus permet d'enclencher l'*avalanche de photons*, rendant le pompage à avalanche pertinent malgré une très faible absorption depuis le niveau fondamental.

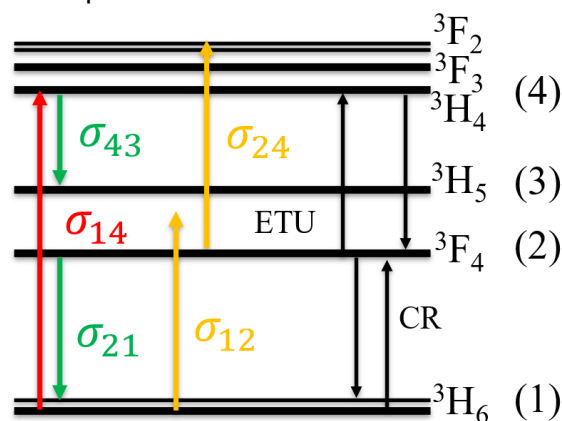


Fig. 11 : Spectroscopie de l'ion thulium trivalent. CR : relaxation croisée (*cross relaxation*), ETU : Upconversion (*Energy transfert upconversion*), $\sigma_{XY}(\lambda)$: section efficace pour la transition X vers Y (m^{-2})

2.7.2 L'intérêt du pompage à avalanche

L'intérêt de ce pompage réside principalement dans les technologies de pompage qu'il est possible de déployer. Les fibres de puissance à base d'ytterbium ou les lasers solides à base de néodyme nous offre en effet une large variété de pompe d'une très grande maturité technologique, très efficaces et qui offrent de nombreux avantages dans leur utilisation. Dans la suite des modélisations, les faisceaux de pompe décrits seront typiques de ceux des sources ytterbium ou néodyme.

De même, le rendement quantique semble pouvoir être amélioré en pompant à 1 μm au lieu de 0,8 μm . Cependant, cette affirmation est toutefois à nuancer par le fait que deux cycles absorption-émission extrêmes peuvent être considérés : soit l'absorption de deux photons de pompe pour un photon laser, soit l'absorption du niveau excité $^3\text{F}_4$ d'un seul photon de pompe pour un photon laser.

2.7.3 Un pompage non linéaire

Les enjeux expérimentaux du pompage à avalanche sont bien différents de ceux du

pompage direct. Pour bien s'en rendre compte, des simulations analogues à celles effectuées par le pompage direct (Fig. 5) ont été réalisées pour le pompage à avalanche Fig. 12. Dans la Fig. 12 (a) et Fig. 5 (a), la population locale de chaque niveau en un point donné du cristal a été estimée en fonction de l'intensité de pompe. Pour obtenir une population similaire sur le niveau 3H_4 , une intensité d'un ordre de grandeur plus grande a été nécessaire à $1 \mu\text{m}$ comparé au pompage à $0,8 \mu\text{m}$. Cependant, l'avantage du pompage à avalanche repose sur l'utilisation de sources (basées sur des matériaux néodyme ou ytterbium) qui sont de base bien plus brillantes ($M^2=1$) que les diodes de puissance. Les intensités sont donc plus hautes mais néanmoins adaptées aux technologies de pompages visées.

Nota Bene : Le pourcentage d'erreur de notre modèle a également été vérifié pour s'assurer de la validité du résultat dans les conditions du pompage à avalanche. L'erreur reste inférieure à 6% quelle que soit l'intensité de pompe (fig. 12 (b)).

Le gain en fonction de la focalisation d'une pompe limitée par diffraction de 10 W a également été calculé Fig. 12 (c) avec et sans laser à $2,3 \mu\text{m}$. Le laser à $2,3 \mu\text{m}$ est focalisé sur $40 \mu\text{m}$ avec un $M^2=1$. L'optimum en termes de waist pour le pompage à avalanche se situe autour de $30 \mu\text{m}$ en gain faible signal. Il est légèrement plus bas en présence de laser à $2,3 \mu\text{m}$. Cet optimum intervient pour un waist bien plus faible que pour le pompage direct, la focalisation intéressante étant plutôt, on le rappelle, autour de $120 \mu\text{m}$ dans ce dernier cas (fig. 7). Ceci reste donc cohérent avec le fait qu'il est nécessaire d'avoir de fortes intensités pour que le pompage à avalanche soit efficace et que l'utilisation de sources de pompe brillantes s'impose.

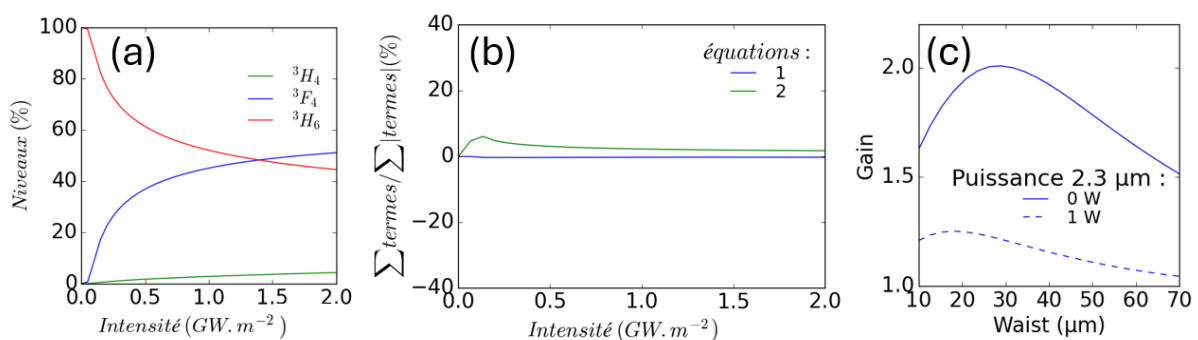


Fig. 12 : (a) Modélisation de la population locale du niveau du haut laser 3H_4 , du niveau métastable 3F_4 et du fondamental 3H_6 en fonction de l'intensité de la pompe avec la puissance laser à $2,3 \mu\text{m}$ libre sur un waist de $50 \mu\text{m}$. (b) Pourcentage d'erreur sur les équations (1) et (2) des populations calculées pour la figure (a) en fonction de l'intensité de la pompe. $l_1 = 0,8$, $l_2 = 1$. (c) Gain en fonction de focalisation d'une pompe à $1 \mu\text{m}$ limitée par diffraction en fonction de son waist (le laser à $2,3 \mu\text{m}$ est choisi à 0 ou 1 W avec un waist de $40 \mu\text{m}$).

Tous ces calculs permettent de se rendre compte à quel point le pompage à avalanche se comporte comme un pompage à absorption non-linéaire, contrairement au pompage direct (sans saturation). Dans le pompage à avalanche, l'intensité de la pompe est un paramètre crucial pour s'assurer d'une bonne absorption. Encore une

fois, c'est la raison pour laquelle nous nous sommes tournés vers des pompes de très forte intensité d'un point de vue expérimental dans le chapitre 4.

2.7.4 Une absorption globalement limitée

Les courbes d'absorption en fonction de la puissance incidente permettent également de se rendre compte facilement du comportement non-linéaire de l'absorption. Elles ont été tracées pour une pompe à 1 μm allant jusqu'à 40 W sur un waist de 40 μm avec un $M^2=1$. Le cristal de Tm:YLF fait toujours 1 cm. A faible puissance de pompe, l'absorption tend vers des valeurs négligeables (autour de 0,1 %, Fig. 13 (b)) correspondant à la valeur de l'absorption non résonnante depuis le niveau fondamental. Il est donc nécessaire d'apporter davantage de puissance pour commencer à enclencher l'avalanche de photons, et rendre l'absorption plus importante. A plus forte puissance (au niveau du W), l'absorption sature et rediminue légèrement ensuite (Fig. 13 (a)). Cette saturation s'explique par la présence de relaxation croisée dans notre modèle.

La principale difficulté du pompage à avalanche apparait ainsi clairement : absorption de la pompe reste toujours faible. Avec un Tm:YLF 3% at., elle est autour de 20% par exemple pour de fortes puissances de pompe et dépasse à peine les 30 %. Cette relative faible absorption s'explique dans la mesure où pour remplir le niveau 3F_4 grâce à la relaxation croisée, il est nécessaire de garder le niveau 3H_6 relativement rempli (la relaxation croisée dépendant linéairement de la population de ce niveau.) Le niveau 3F_4 et le niveau 3H_6 sont alors peuplés dans des proportions similaires, comme le montre la figure 12. L'impossibilité de remplir fortement le niveau 3F_4 limite donc en partie l'absorption. En plus de ce modèle complet, nous avons développé au chapitre 5 une règle simplifiée pratique permettant d'estimer facilement cette absorption.

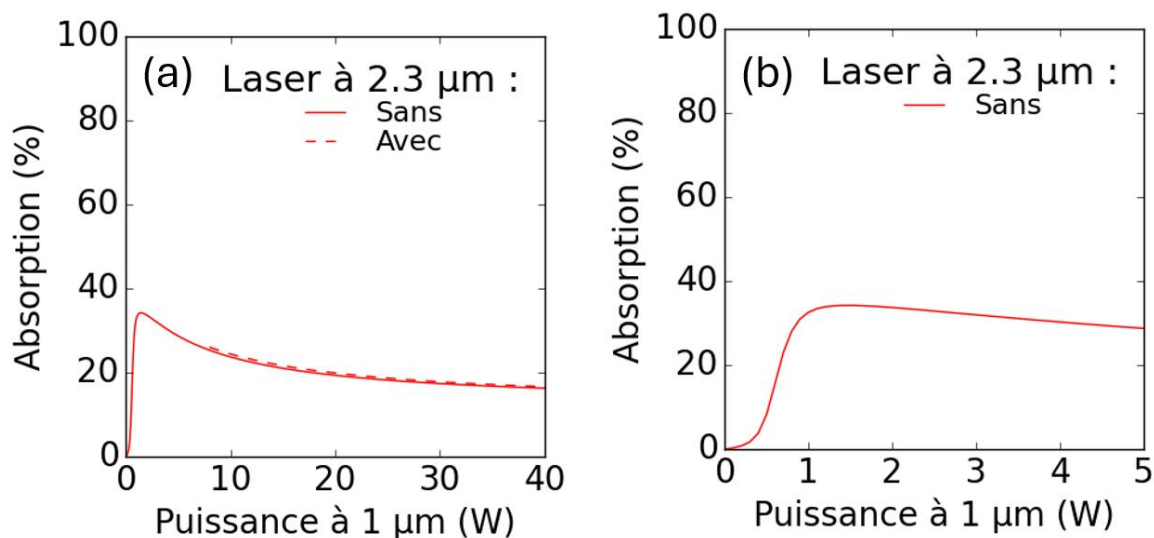


Fig. 13 : Pour un Tm:YLF 3%, absorption de la pompe à 1 μm avec et sans laser à 2,3 μm (0.5W) avec une puissance de pompe de maximum 40W sur un waist de 40 μm et une longueur de gain effectif de 1 cm (b) Zoom pour des puissances allant jusqu'à 5W.

2.7.5 Des pistes (difficiles) pour l'amélioration de l'absorption

Nous pourrions tenter d'augmenter l'absorption de ce schéma de pompage mais cela n'est pas forcément évident. Premièrement, augmenter la longueur du cristal ne permet pas forcément d'augmenter l'absorption. En effet, pour être efficace, la pompe à $1\ \mu\text{m}$ doit être fortement focalisée dans le cristal. L'intensité avant et après le waist est significativement plus faible qu'au waist du fait de la divergence du faisceau de pompe. L'absorption n'étant pas linéaire en fonction de l'intensité, il n'y a d'absorption réellement efficace dans le cristal que là où la pompe est suffisamment intense. Là où la pompe est peu intense, l'absorption tend vite vers zéro. Il est donc inutile d'augmenter la longueur du cristal si l'intensité de la pompe n'est pas suffisante sur toute la longueur du cristal. Ce phénomène est illustré Fig. 14 (a). Dans ce graphique, une pompe limitée par diffraction de 2W à $1\ \mu\text{m}$ a été focalisée à $3\ \text{mm}$ du bord du cristal sur un waist de $50\ \mu\text{m}$. La répartition dans le cristal de la population du niveau $^3\text{F}_4$ a été tracée. Sur les 3 derniers millimètres du cristal, la population du niveau $^3\text{F}_4$ est très faible et il n'y a quasiment pas d'absorption dans cette zone. Ces derniers millimètres sont donc totalement inutiles pour l'émission laser à $2,3\ \mu\text{m}$. A titre de comparaison avec le pompage direct, une simulation a été réalisée avec un faisceau identique mais à $0,8\ \mu\text{m}$. Dans ce cas, le niveau $^3\text{F}_4$ est peuplé sur l'ensemble du cristal. Néanmoins, avoir des cristaux plus longs est intéressant pour les sources de plus forte puissance. Dans ce cas, il est plus facile d'avoir une intensité suffisante sur l'ensemble du cristal et donc d'absorber la pompe sur tout le cristal Fig. 14 (b). Pour montrer ce phénomène, le graphique précédent a été tracé avec une puissance passant de $2\ \text{W}$ à $5\ \text{W}$ à $1\ \mu\text{m}$. On observe une population non nulle du niveau $^3\text{F}_4$ sur l'ensemble du cristal, la pompe à $1\ \mu\text{m}$ est absorbée et globalement utile sur l'ensemble de la longueur. En conclusion, il est possible de dire qu'en absence de source de pompe puissante, un cristal long est inutile pour augmenter l'absorption. De plus, il faut bien comprendre que même si l'absorption augmente avec la puissance, la puissance transmise (perdue) est quant à elle toujours très importante.

Une seconde idée permettant d'augmenter l'absorption serait d'augmenter le dopage. Néanmoins, le dopage joue un second rôle crucial dans le pompage à avalanche comme nous le verrons dans la prochaine partie. Ce paramètre est donc plus ou moins contraint.

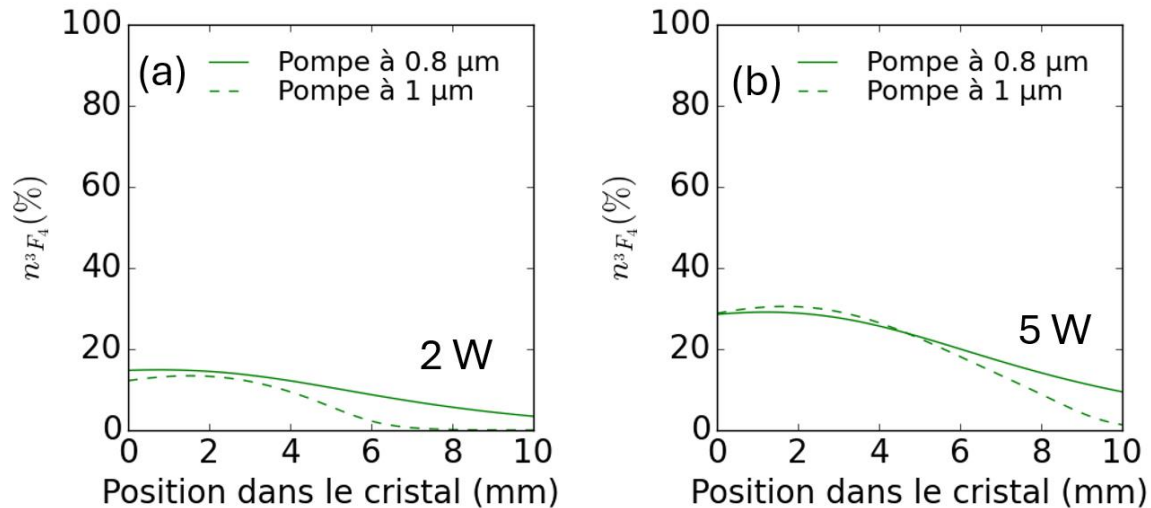


Fig. 14 : Pour un Tm:YLF 3% de 1 cm, (a) Population dans le niveau 3F_4 pour un pompage à 0,8 μm ou à 1 μm sur un même waist (40 μm) et une même puissance de (a) 2W (b) 5W.

2.7.6 Un pompage fortement dépendant de la concentration en thulium

La relaxation croisée joue un rôle déterminant dans l'avalanche de photon. Grâce à elle, le niveau 3F_4 peut être peuplé. Cet effet positif permet de rendre l'absorption à 1 μm suffisamment forte pour qu'on puisse envisager de pomper un cristal à cette longueur d'onde. D'un autre côté, la relaxation croisée a tendance à vider le niveau 3F_4 , une partie des ions servant à remplir le niveau 3F_4 viennent en effet de ce niveau. Ce second effet est défavorable à l'inversion de population à 2,3 μm .

Le flux de relaxation croisée étant fortement dépendant du dopage, il est possible d'optimiser la concentration en ion thulium pour remplir suffisamment le niveau 3F_4 par relaxation croisée sans pour autant totalement vider le niveau 3F_4 . Pour avoir une idée des dopages adéquats, le gain a été calculé en fonction du dopage (Fig. 15) pour une pompe limitée par diffraction de 2 W focalisée sur 40 μm . Différentes puissances de 2,3 μm ont été imposées sur un waist de 40 μm également limité par diffraction. Dans ce cas, un dopage optimal pour l'émission laser à 2,3 μm se situe globalement entre 2% at. et 4% at.

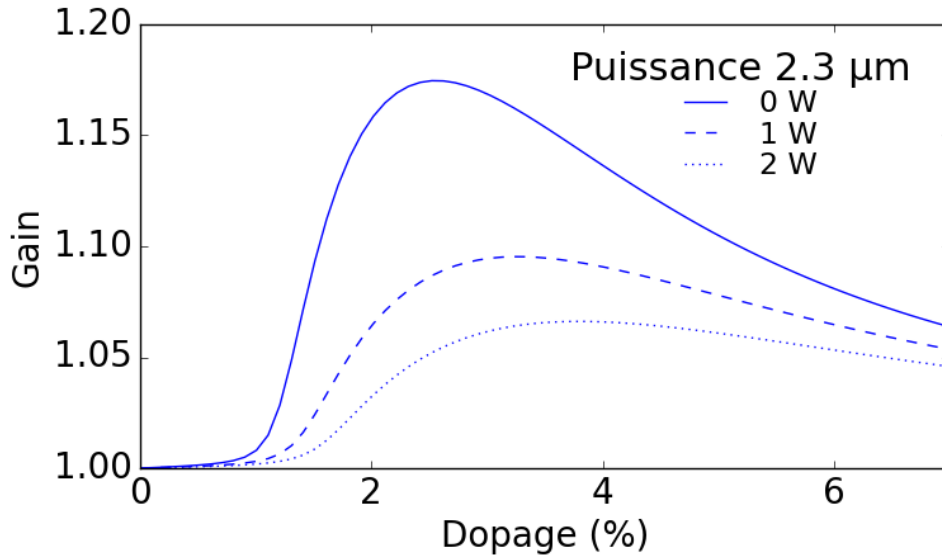


Fig. 15 : (a) Pour un Tm:YLF, gain pour un cristal de 1 cm et une pompe de 2W à 1 μm sur 40 μm . Effet de l'ajout d'une puissance à 2,3 μm focalisé sur 40 μm sur le gain.

2.7.7 Un pompage fortement dépendant de la matrice cristalline

Les précédentes simulations ont été réalisées avec du Tm:YLF qui est un cristal prometteur pour le pompage à avalanche. Il est néanmoins à noter que le pompage à avalanche est fortement dépendant de la matrice cristalline utilisée. Le temps de vie du niveau 3F_4 et donc la possibilité de remplir ce niveau dépende en effet de la matrice. De même, le taux de relaxation croisée et la possibilité d'enclencher l'avalanche de photons en dépende également. Pour connaître les cristaux intéressants, une simulation calculant la population du niveau 3H_4 (*i.e.* l'inversion de population) a été réalisée pour différentes puissances de pompe à 1 μm et différentes matrices cristallines. Dans ce cas, le faisceau est focalisé sur un waist de 50 μm avec un $M^2=1$. La longueur d'onde autour de 1 μm est adaptée pour se caler sur le maximum d'absorption des cristaux considérés. La longueur du cristal reste de 1 cm. Le dopage en nombre d'ions par unité de volume est identique à celui du Tm :YLF 3%. Les autres paramètres spectroscopiques sont regroupés dans le tableau en annexe. Dans cette simulation, on observe que les matériaux à faible énergie de phonon comme les fluorures (en nuance de bleu Fig. 16) sont globalement les plus efficaces et permettent d'atteindre le seuil pour des puissances de pompe inférieures au watt. Cela s'explique par le fait que leur temps de vie sont globalement assez long. Par opposition, les oxides au temps de vie plus courts sont globalement plus durs à pomper mais atteindre le seuil reste possible. Le CALGO et le YAP semble néanmoins peu adapté au pompage à avalanche.

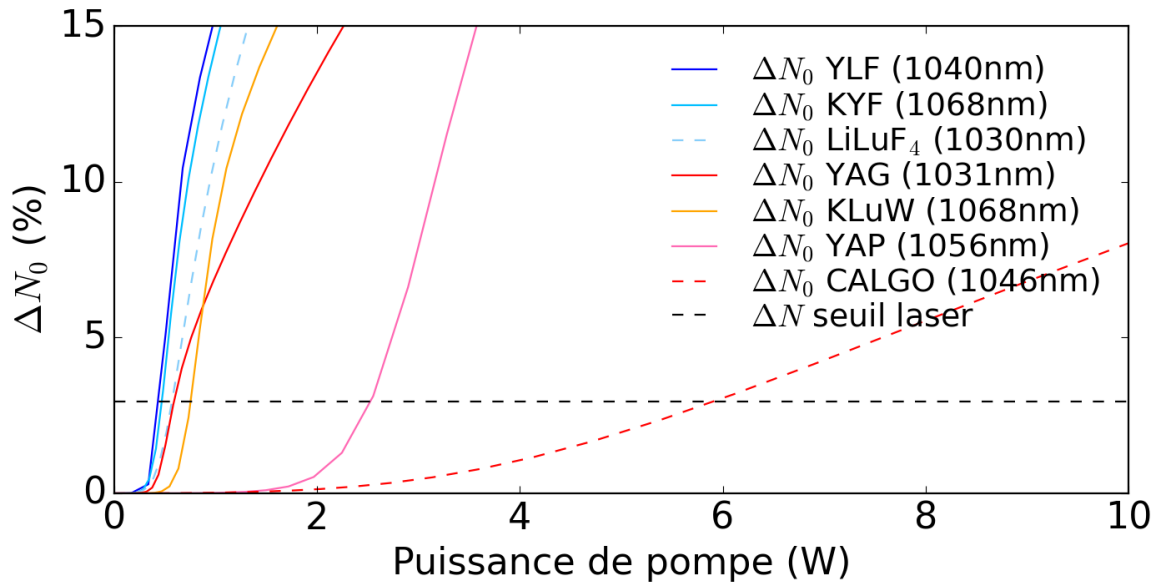


Fig. 16 : (a) Pour différents cristaux pompés à leur pic de section efficace d'absorption par l'état excité (ESA), on présente la population du niveau $^3\text{H}_4$ en fonction de la puissance de pompe (avec un waist de $50\ \mu\text{m}$). L'inversion de population nécessaire pour atteindre le seuil avec 5% de perte (coupleur compris) est matérialisé par le trait pointillé noir.

2.8 CONCLUSION DU CHAPITRE

Cette partie simulation permet de mettre en évidence les intérêts et les difficultés de deux types de pompage pour l'émission laser à $2,3\ \mu\text{m}$. Il en ressort plusieurs questions que nous creuserons d'un point de vue expérimental.

Concernant le pompage direct, nous explorerons plus en détail quel est vraiment l'intérêt de la cascade laser à $1,9\ \mu\text{m}$ pour l'émission laser à $2,3\ \mu\text{m}$. Nous nous intéresserons aux cascades laser vibroniques et à ce que ce schéma d'émission laser implique expérimentalement. De nouvelles matrices prometteuses, notamment à spectres larges et favorables pour l'émission impulsionnelle à verrouillage de modes, seront également explorées en pompage direct.

Concernant le pompage à avalanche, des sources de pompe efficaces de fortes puissances et de fortes intensités seront développées, permettant de contrecarrer une partie importante des problèmes listés dans la partie simulation. Cette technologie a permis d'établir une série de nouveaux records de puissance moyenne à $2,3\ \mu\text{m}$.

2.9 BIBLIOGRAPHIE

[Braud 1998] A. Braud, S. Girard, J. L. Doualan, and R. Moncorge, "Spectroscopy and fluorescence dynamics of Tm^{3+} , Tb^{3+} and ($\text{Tm}^{3+}\text{Eu}^{3+}$ doped LiYF_4 single crystals for 1.5- μm laser operation," IEEE J. Quantum Electron. **34**(11), 2246–2255 (1998).

[Caird 1975] J. Caird, L. DeShazer, and J. Nella, "Characteristics of room-temperature 2.3- μm laser emission from Tm^{3+} in YAG and YAlO_3 ," IEEE J. Quantum Electron. **11**(11), 874-881 (1975).

[Guillemot 2019] L. Guillemot, P. Loiko, R. Soulard, A. Braud, J.-L. Doualan, A. Hideur, R. Moncorgé, and P. Camy, « Thulium laser at $\sim 2.3 \mu\text{m}$ based on upconversion pumping, » Opt. Lett. **44**(16), 4071-4074 (2019).

[Guillemot 2021] Lauren Guillemot. Etude de la transition $^3\text{H}_4 \rightarrow ^3\text{H}_5$ de l'ion Tm^{3+} pour une émission laser moyen infrarouge (entre 2 et 3 μm). Physique [physics]. Normandie Université, 2021. Français.

[Hebert 1992] T. Hebert, R. Wannemacher, R. M. Macfarlane, and W. Lenth, "Blue continuously pumped upconversion lasing in $\text{Tm}:\text{YLiF}_4$," Applied Physics Letters **60**(21), 2592–2594 (1992).

[Ivanov 1975] A. O. Ivanov, I. V. Mochalov, A. M. Tkachuk, V. A. Fedorov, and P. P. Feofilov, "Spectral characteristics of the thulium ion and cascade generation of stimulated radiation in a $\text{YAlO}_3:\text{Tm}^{3+}:\text{Cr}^{3+}$ crystal," Sov. J. Quantum Electron. **5**(1), 117–118 (1975).

[Judd 1962] B. R. Judd, "Optical Absorption Intensities of Rare-Earth Ions," Phys. Rev. **127**(3), 750–761 (1962).

[Kifle 2020] E. Kifle, P. Loiko, L. Guillemot, J.-L. Doualan, F. Starecki, A. Braud, T. Georges, J. Rouvillain, and P. Camy, "Watt-level diode-pumped thulium lasers around 2.3 μm ," Appl. Opt. **59**(25), 7530-7539 (2020).

[Pinto 1994] J. F. Pinto, G. H. Rosenblatt, and L. Esterowitz, " $\text{Tm}^{3+}:\text{YLF}$ laser continuously tunable between 220 and 246 μm ," Opt. Lett. **19**(12), 883 (1994).

[Loiko 2016] P. Loiko and M. Pollnau, "Stochastic Model of Energy-Transfer Processes Among Rare-Earth Ions. Example of $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Tm}^{3+}$," J. Phys. Chem. C **120**(46), 26480–26489 (2016).

[Loiko 2019] P. Loiko, P. Camy, R. Soulard, L. Guillemot, G. Brasse, J.-L. Doualan, A. Braud, A. Tyazhev, A. Hideur, and F. Druon, "Efficient $\text{Tm}:\text{LiYF}_4$ Lasers at 2.3 μm : Effect of

Energy-Transfer Upconversion," *IEEE J. Quantum Electron.* **55**(6), 1–12 (2019).

[Loiko 2021] P. Loiko, E. Kifle, L. Guillemot, J.-L. Doualan, F. Starecki, A. Braud, M. Aguiló, F. Díaz, V. Petrov, X. Mateos, and P. Camy, "Highly efficient 2.3 μm thulium lasers based on a high-phonon-energy crystal: evidence of vibronic-assisted emissions," *J. Opt. Soc. Am. B* **38**(2), 482 (2021).

[Ofelt 1962] G. S. Ofelt, "Intensities of Crystal Spectra of Rare-Earth Ions," *The Journal of Chemical Physics* **37**(3), 511–520 (1962).

[Wyss 1999] Chr. P. Wyss, M. Kehrlí, Th. Huber, P. J. Morris, W. Lüthy, H. P. Weber, A. I. Zagumennyi, Yu. D. Zavartsev, P. A. Studenikin, I. A. Shcherbakov, and A. F. Zerrouk, "Excitation of the thulium 1G₄ level in various crystal hosts," *Journal of Luminescence* **82**(2), 137–144 (1999).

[Zhou 2024] Xue Zhou, Jiajia Mao, Ping Hu, Jiatong Li, Jingkun Zhang, Hongkun Nie, Tao Li, Tianli Feng, Baitao Zhang, Jingliang He, and Kejian Yang, "4.1 W continuous-wave and broadly wavelength tunable Tm-doped laser in 2.1-2.4 μm spectral region based on vibronic and electronic transitions," *Opt. Express* **32**, 17028-17037 (2024)

3 LE POMPAGE DIRECT ET SON AMELIORATION PAR L'AJOUT D'UN LASER EN CASCADE A 1.9 μM

Le présent chapitre traitera des considérations expérimentales autour du pompage direct du niveau $^3\text{H}_6$ vers le niveau $^3\text{H}_4$ avec émission laser à 2,3 μm sur la transition $^3\text{H}_6$ vers $^3\text{H}_5$. L'intérêt d'ajouter un laser en cascade sur la transition $^3\text{F}_4$ vers $^3\text{H}_6$ sera discuté. Différentes matrices cristallines seront utilisées afin de déterminer leurs potentiels. En particulier, des cavités en régime continu ont été réalisées pour tester des matrices avec un fort potentiel pour l'émission laser à verrouillage de modes pour générer des lasers à impulsions ultrabrèves.

3.1 LE Tm:YLF : UN CRISTAL EFFICACE POUR L'EMISSION A 2.3 MICRONS

Les cristaux d' LiYF_4 ou YLF utilisés comme matrices hôtes pour les ions thulium ont depuis longtemps et de nombreuses fois été utilisés pour réaliser des lasers à 2,3 μm avec un pompage direct à 0,8 μm [Stoneman 1989] [Canbaz 2017] [Yorulmaz 2018] [Loiko 2019] [Wang 2019] [Huang 2019] [Guillemot 2021]. Néanmoins bien qu'il fasse partie des cristaux permettant d'avoir les lasers à 2,3 μm les plus efficaces, les pentes caractéristiques (puissance laser par rapport à la puissance de pompe) et efficacités restent relativement faibles et oscillent typiquement entre 5% et 25%. Les différences entre les pentes dans la littérature dépendent principalement de la qualité spatiale de la pompe et de la cavité laser utilisée.

Dans cette partie, un pompage à 0,8 μm utilisant un Ti:Saphir accordable a été réalisé pour montrer l'intérêt de ce cristal dans un cas simple. L'intérêt de ce pompage (dont la source est plutôt complexe) réside dans le fait que la source a une bonne qualité spatiale et est spectralement fine. Ces résultats sont aussi facilement comparables avec la littérature où le pompage Ti:Saphir est assez courant. Partant de ce point de fonctionnement standardisé, l'intérêt d'ajouter un laser en cascade à 1,9 μm pour augmenter l'efficacité du laser à 2,3 μm peut être plus facilement étudié et discuté d'un point de vue expérimental et à travers un modèle semi-empirique. Ces considérations ont été étendues ensuite au pompage par diode de puissance à 0,8 μm où la brillance de la pompe (liée aux contraintes technologiques et à l'état de l'art des diodes laser) sera prise en compte. En effet, le pompage direct par diode est, d'un point de vue efficacité et compacité, le système à étudier et à optimiser. Enfin, le comportement thermique de ces cristaux en pompage direct par diode sera discuté au chapitre 5 afin de déceler quelques limitations.

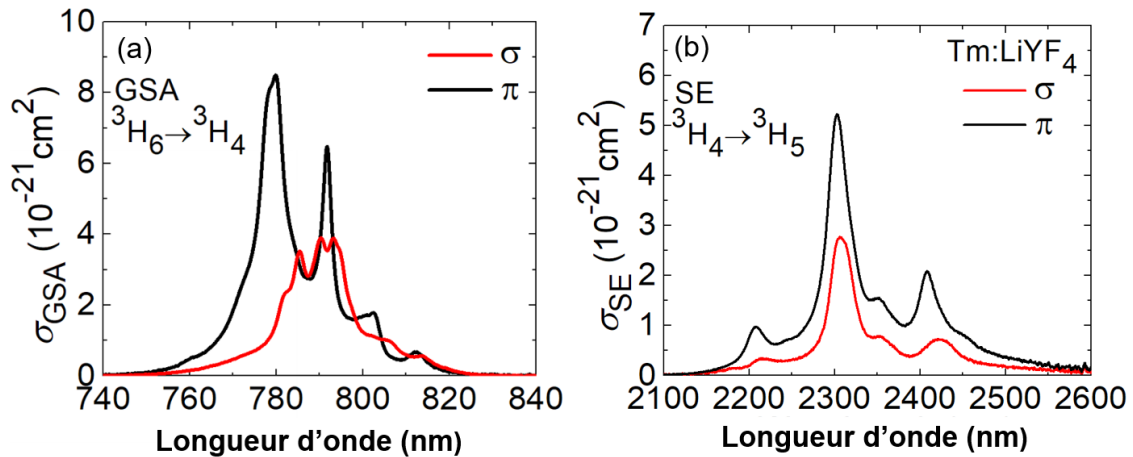


Fig. 1 : Sections efficace (a) d'absorption et (b) d'émission du Tm:YLF [Guillemot 2021].

Les sections efficaces d'émission et d'absorption du Tm:YLF ont été mesurées au CIMAP par Lauren Guillemot et sont rappelées Fig. 1. Le YLF étant un cristal anisotrope, les propriétés d'absorption et d'émission dépendent des polarisations du champ électrique vis-à-vis de l'orientation σ et π du cristal. Ses principaux paramètres spectroscopiques et cristallins sont résumés dans le tableau en annexe.

3.1.1 Pompage direct avec une source de forte brillance

Cette sous-partie traite du pompage à 780 nm d'un cristal de Tm:YLF à l'aide d'une source brillante à 0,8 μm . L'émission laser dans une cavité simple a été obtenu.

Dans notre cas, un laser Ti:Saphir (Spectra Physics, modèle 3900J) délivrant jusqu'à 3,0 W à 780 nm (FWHM : 0,1 nm, $M^2 \approx 1$, Fig. 3 (a)) avec une polarisation linéaire a été utilisé. Cette source est accordable sur la plage 750 nm – 1000 nm grâce à un filtre de Liot et permet d'atteindre toutes les bandes d'absorption (rouge-IR) d'un cristal de Tm:YLF. Le cristal de Tm:YLF utilisé est de longueur 8,14 mm et de dopage 3,5 at.%. Les faces sont parallèles, polies et traitées antireflet. Le cristal est collé à un support en cuivre et il est refroidi passivement. Il est placé dans une cavité laser hémisphérique de 99 mm de long (Fig. 2), composée d'un miroir de pompe plat avec une transmission élevée (HT) aux longueurs d'onde de la pompe ($T = 95\%$ et 0,78 μm) et une réflexion élevée (HR, $R > 99,9\%$) à 2,3 μm . Le second miroir est un coupleur de sortie plan-concave (rayon de courbure : 100 mm) avec une transmission à 2,3 μm de 2%. Le miroir de pompe est traité haute transmission à 1,9 μm pour supprimer le laser sur la transition ${}^3F_4 \rightarrow {}^3H_6$. Le faisceau de pompe est focalisé dans le cristal laser à l'aide d'une lentille dont la focale optimale est de 150 mm. Dans cette configuration, le diamètre du waist de la pompe est $2w = 61 \pm 5 \mu\text{m}$. Le pompage se fait en double passage à cause de la réflectivité partielle du miroir plan-concave à 780 nm ($R = 64\%$). La pompe résiduelle est filtrée à l'aide d'un filtre passe-bande (Thorlabs, FB2250-50) avant d'arriver sur le détecteur.

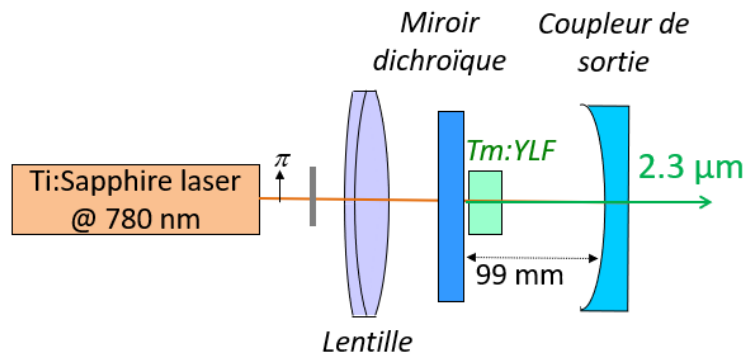


Fig. 2 : Schéma expérimental d'un Tm:YLF pompé à l'aide d'un Ti:Saphir dans une cavité plan-concave simple.

L'absorption de la pompe dans le cristal de Tm:YLF a été mesurée lorsque la polarisation de la pompe est orientée selon π où l'absorption est la plus forte Fig. 1 (a). Deux pics d'absorption ont été mesurés l'un à 780 nm, l'autre à 791 nm. Lorsque la puissance de pompe augmente, l'absorption est néanmoins rapidement saturée pour atteindre 40 %. Cette faible absorption peut s'expliquer par la présence du niveau métastable 3F_4 qui crée un goulot d'étranglement entre la transition laser et le niveau fondamental (cf. Chap. 2, part. 2).

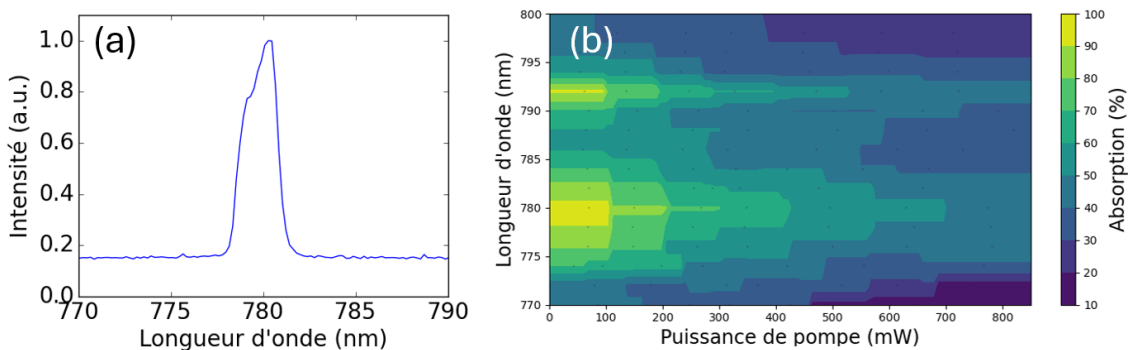


Fig. 3 : (a) Spectre associé à la longueur d'onde de la pompe utilisée au point de fonctionnement optimum. (b) Absorption de la pompe en fonction de la longueur d'onde et de la puissance de pompe.

Malgré une relativement faible absorption à 780 nm, une puissance de 486 mW a pu être obtenue à 2,3 μm pour une puissance de pompe de 3 W selon la polarisation π . La pente est alors de 20 % par rapport à la puissance incidente.

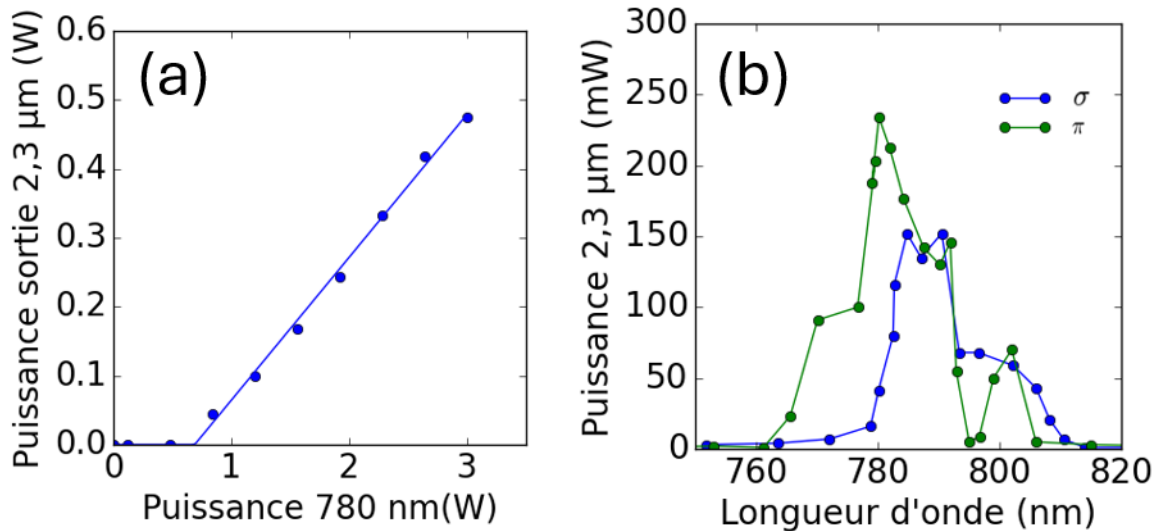


Fig. 3bis : (a) Puissance de sortie à 2,3 μm lorsque la pompe à 780 nm adresse la polarisation σ du Tm:YLF (b) Puissance de sortie à 2,3 μm pour 2 W de pompe quand la polarisation π ou la polarisation σ est choisie et pour différentes longueurs d'onde.

L'intérêt d'utiliser un Ti:Saphir est de pouvoir étudier l'effet de la longueur d'onde de la pompe et de sa polarisation sur les performances laser à 2,3 μm. La polarisation linéaire de la pompe peut en effet être tournée à l'aide d'une lame $\lambda/2$ placée en amont de la lentille, et la longueur d'onde peut être ajustée à l'aide du filtre de Liot placé à l'intérieur de la cavité Ti:Saphir. La puissance à 2,3 μm a été tracée pour une puissance de pompe constante de 2 W pour les deux polarisations σ et π . La puissance de sortie à 2,3 μm lorsque la pompe est selon la polarisation π est clairement inférieure, la section efficace d'absorption à cette longueur d'onde étant plus faible. Pour la polarisation σ , la longueur d'onde de pompe optimale est à 780 nm.

Ses mesures nous donnent un ordre de grandeur des résultats qu'il est possible d'obtenir avec le Tm:YLF. Nous chercherons dans une prochaine partie à les optimiser.

3.1.2 Pourquoi des lasers en cascade à 2,3 μm puis à 1,9 μm ?

Les lasers à base de thulium émettant à 2,3 μm (sur la transition ${}^3H_4 \rightarrow {}^3H_5$) souffrent d'une forte compétition avec la transition à gain élevé ${}^3F_4 \rightarrow {}^3H_6$, conduisant à une émission autour de 1,9 μm. Diverses stratégies ont été développées pour éviter le co-laser sur cette transition non-désirée. La plus courante consiste à rendre défavorable l'émission laser à 1,9 μm en utilisant des miroirs dichroïques. Des miroirs avec des pertes élevées dans le domaine spectral de la transition ${}^3F_4 \rightarrow {}^3H_6$ sont utilisés, typiquement entre 1,7 et 2,1 μm [Kifle 2020] [Guillemot 2020] [Guillemot 2019]. Cependant, cette stratégie n'est pas toujours efficace. Ainsi, dans certains cas, ces pertes ne sont pas suffisantes pour éviter la formation d'un laser sur la transition ${}^3F_4 \rightarrow {}^3H_6$. C'est notamment le cas des lasers à fibre où les réflexions de Fresnel sur les faces d'entrée et de sortie de la fibre sont suffisantes pour obtenir un effet laser autour de

1,9 μm [Denker 2020] [Carter 1991] [Jia 2017]. Le même problème peut être observé pour les lasers utilisant des guides d'ondes [Soulard 2018]. De même, dans les cristaux à forte énergie de phonon (Tm:YAG ou le Tm:KLu(WO₄)₂), l'émission laser assistée par phonon peut être observée, la longueur d'onde d'émission des lasers fonctionnant sur la transition laser ${}^3F_4 \rightarrow {}^3H_6$ peut être alors fortement décalée vers 2,1 - 2,2 μm [Guillemot 2020b] [Loiko 2021]. La longueur d'onde de cette émission étant très proche de celle de la transition purement électronique ${}^3H_4 \rightarrow {}^3H_5$, il est alors technologiquement difficile de produire des miroirs dichroïques corrects qui introduisent des pertes élevées dans la gamme 1,7 - 2,2 μm tout en ayant de très faibles pertes à 2,3 μm .

Une stratégie alternative consiste à prendre le contre-pied de cette technique en réalisant volontairement un co-laser à 2,3 μm et 1,9 μm fonctionnant en cascade. Des publications utilisant des cristaux de YLF dopés au Tm³⁺ soulignent l'avantage potentiels de cette stratégie [Huang 2019]. L'intérêt du laser en cascade a également été traité d'un point de vue théorique au chapitre 2. Elles montrent dans différentes configurations comment l'ajout de la transition à 1,9 μm permet une augmentation significative de l'émission laser à 2,3 μm . Dans ce cas, l'amélioration de l'efficacité du laser s'explique principalement par le recyclage des ions thulium stockés dans le niveau intermédiaire métastable 3F_4 , qui sont forcés à descendre au niveau de l'état fondamental. Ces deux lasers en cascade évitent ainsi l'effet de goulot d'étranglement dans le niveau électronique médian métastable, typique des lasers à thulium et défavorable à la transition laser à 2,3 μm .

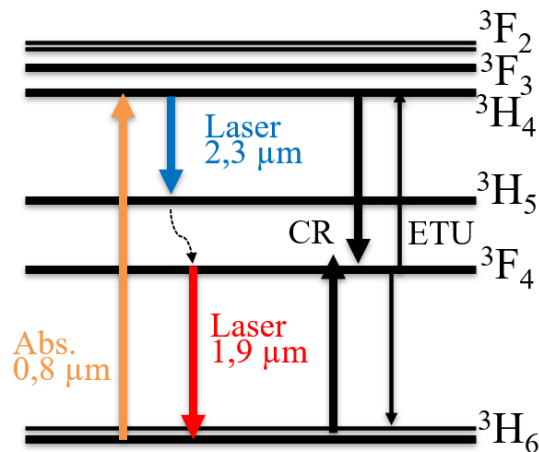


Fig. 4 : Niveaux d'énergie du thulium. Abs : absorption. CR : relaxation croisée. ETU : Upconversion (*energy transfert upconversion*).

Dans cette partie, l'influence du dopage les performances à 2,3 μm en présence d'un laser en cascade a été étudiée pour le cas du Tm:YLF. Plusieurs questions sont abordées. Dans quelle gamme de dopage le laser en cascade est-il bénéfique pour l'émission

laser de 2,3 μm ? Dans quelle gamme est-il nuisible et doit-il être évité ? Existe-t-il un niveau de dopage optimal crédible ? Quelle amélioration en termes d'efficacité laser peut-on attendre ? Pour répondre à ces questions, un modèle semi-empirique analytique simple a été redéveloppé et nous l'avons confronté aux données expérimentales obtenues avec différents cristaux de Tm:YLF.

3.1.3 Mise en place expérimentale du laser en cascade

Pour étudier l'émission laser en cascade, une cavité laser double partiellement superposée permettant un fonctionnement simultané du laser à 1,9 μm et 2,3 μm a été réalisée et est décrite Fig. 5. Un cristal de Tm:YLF est pompé par un laser Ti:Saphir émettant jusqu'à 3 W autour de 780 nm. Une lentille de focalisation d'une longueur focale optimisée à 100 mm est utilisée pour focaliser la pompe dans le cristal. Le diamètre de la tâche focale est de 43 μm dans le cristal. Pour séparer l'émission sur la transition ${}^3\text{H}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_5$ à 2,3 μm de celle sur la transition ${}^3\text{F}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_6$ à 1,9 μm , deux cavités en V imbriquées et de tailles identiques ont été construites. Elles partagent le miroir de pompe, le cristal laser et un miroir plan-concave de rayon de courbure 200 mm. Les deux cavités sont ensuite séparées à l'aide d'un miroir dichroïque avec une réflexion élevée autour de 2,3 μm (HR, R > 99,95 % à 2,15 -2,4 μm) et une transmission élevée autour de 1,9 μm (HT, T > 99,5 % à 1,7-2,1 μm). Un miroir supplémentaire présentant les mêmes caractéristiques est utilisé comme filtre pour éviter toute transition laser (parasite) à 2,3 μm dans le bras servant pour le laser à 1,9 μm uniquement. Les deux cavités sont fermées par deux coupleurs de sortie indépendants. Le miroir de pompe est traité haute réflexion sur la gamme 2,2-2,4 μm et a une transmission de 5% à 1,9 μm . La distance entre le miroir plan concave et les deux coupleurs de sortie est de 350 mm. Le coupleur de sortie à 1,9 μm est de 2% sur 1,70 – 1,95 μm et le coupleur à 2,3 μm est de 3 % sur la gamme 2,1 - 2,4 μm .

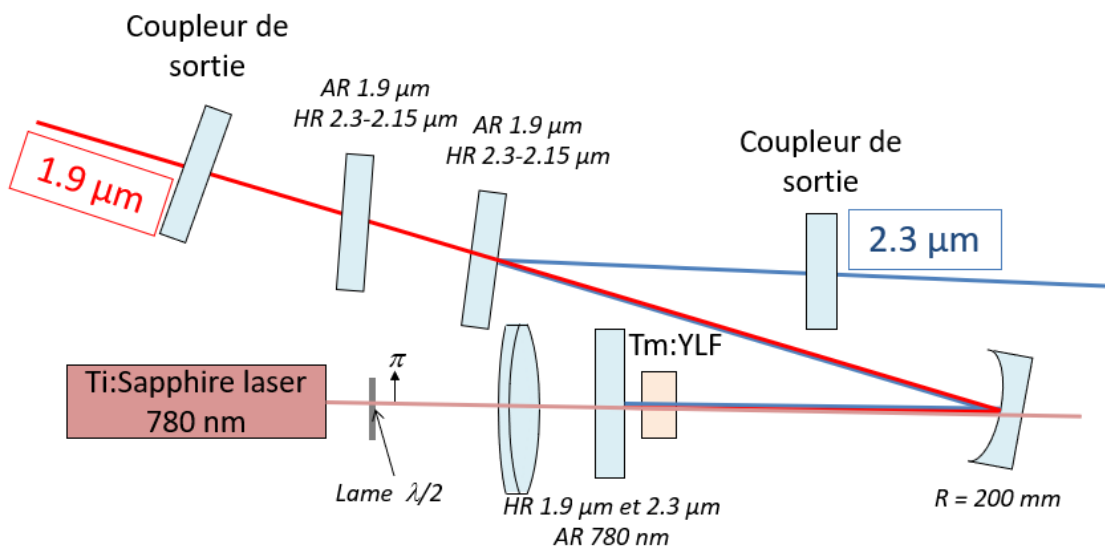


Fig. 5 : Montage expérimental réalisé pour l'étude des lasers en cascade à 2,3 μm et à 1,9 μm .

3.1.4 Etude expérimentale de l'intérêt de la cascade laser en fonction du dopage

Trois cristaux de Tm:YLF différents ont été placés dans la double cavité décrite à la Fig. 5. Pour observer l'influence de l'émission laser à 1,9 μm sur celle à 2,3 μm , leurs courbes caractéristiques ont été mesurées avec et sans effet laser à 1,9 μm Fig. 6. L'émission du laser à 1,9 μm est supprimée ou non par l'utilisation d'un trou obturateur dans la cavité à 1,9 μm . L'alignement des cavités n'est pas modifié dans ce cas. Les résultats expérimentaux présentés montrent différents cas dans lesquels la présence du laser en cascade à 1,9 μm est favorable ou défavorable pour le laser à 2,3 μm , selon les niveaux de dopage.

Pour le Tm:YLF 6% at., sans le laser en cascade, la puissance de sortie s'élève 90 mW à 2,3 μm , mais elle tombe à zéro lorsque le laser à 1,9 μm fonctionne. Par conséquent, le schéma de laser en cascade est clairement défavorable à l'émission à 2,3 μm . En revanche, pour un niveau de dopage de 2,5 %, l'ajout de la cascade laser à 1,9 μm fait passer la puissance de sortie à 2,3 μm initialement égale à 90 mW sans cascade à 180 mW avec, ce qui représente un gain d'un facteur deux. Pour une concentration intermédiaire de 3 at.%, l'augmentation de la puissance à 2,3 μm est moins importante en présence de laser à 1,9 μm . Rajouter la cascade fait passer la puissance à 2,3 μm de 200 mW à 248 mW (variation de 24%). Bien que cette amélioration due à la cascade laser soit plus faible, la puissance à 2,3 μm est néanmoins plus élevée avec un dopage de 3% par rapport à un dopage de 2,5 %.

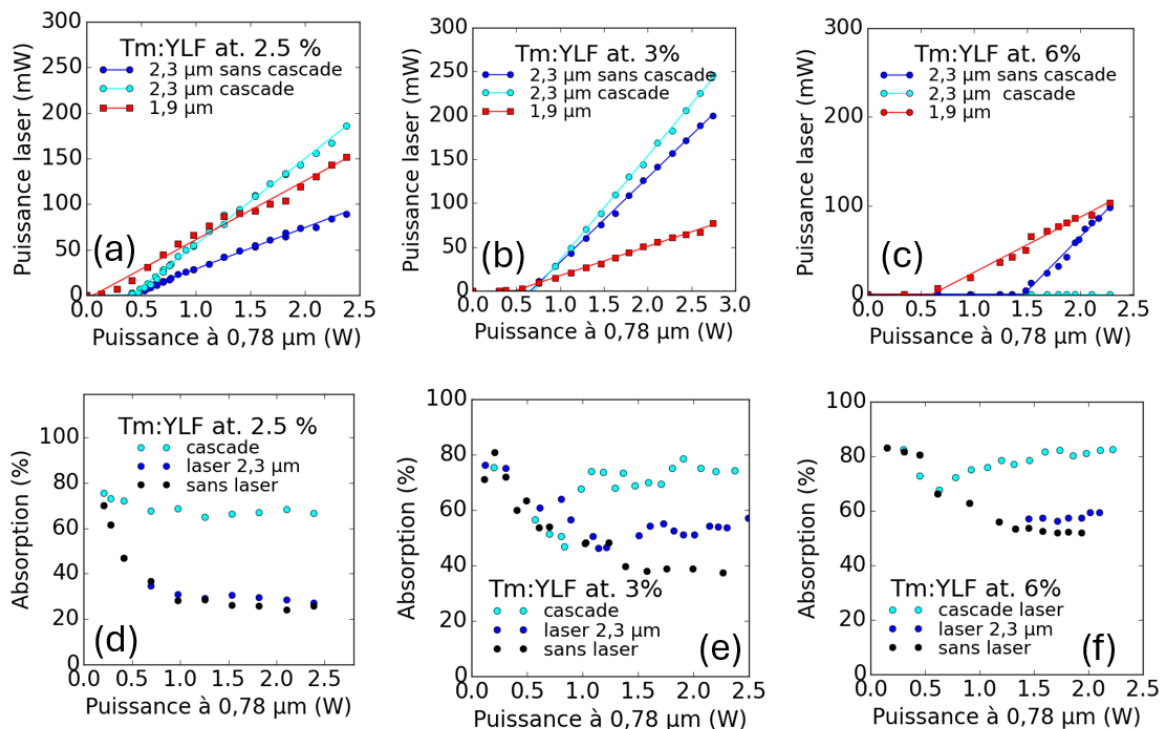


Fig. 6 : Lasers Tm:YLF en cascade : (a-c) puissance de sortie à 2,3 μm et 1,9 μm et (d-f) absorption totale de la pompe à 781 nm en %. Le niveau de dopage Tm³⁺ est de (a,d) 6 at.% pour une

longueur de 5 mm, (b,e) 3 at.% pour une longueur de 8 mm, et (c,f) 2.5 at.% pour une longueur de 8 mm.

Pour comprendre les phénomènes impliqués, l'absorption de la pompe à 781 nm est mesurée premièrement, lorsque le laser fonctionne sur le schéma de la cascade, et deuxièmement, lorsque seule l'émission laser à 2,3 μm est active et troisièmement, sans aucun laser.

Par rapport au cas où seule l'émission laser à 2,3 μm est possible, l'ajout du laser à 1,9 μm augmente l'absorption de la pompe de 45 %, 22 % et 19 % pour un dopage respectif de 2,5 at.%, 3 at.% et 6 at.%. L'émission laser à 2,3 μm entraîne également une augmentation de l'absorption de la pompe par rapport au cas sans laser, mais dans une moindre mesure. L'augmentation observée de l'absorption de la pompe en cas de fonctionnement du laser en cascade est la principale raison permettant d'expliquer l'augmentation de la puissance de sortie à 2,3 μm . Cependant, cette explication n'est pas suffisante car des augmentations similaires de l'absorption sont mesurées pour des niveaux de dopage de 3 at.% et 6 at.%, mais les effets sur l'émission laser à 2,3 μm sont radicalement différents. Les différences d'impact du laser à 1,9 μm sur celui à 2,3 μm peuvent néanmoins être expliquées par le fait que l'ajout de l'émission à 1,9 μm vide la population de niveaux 3F_4 . Le fait de vider ce niveau réduit également le flux d'upconversion qui aide à remplir le niveau 3H_4 . Réduire l'upconversion est défavorable à l'émission laser à 2,3 μm . Le flux d'upconversion étant dépendant du dopage au cube, l'effet négatif de sa suppression est très donc fortement visible pour les cristaux aux dopages élevés [Loiko 2019].

Nota Bene : l'influence du laser à 2,3 μm sur les performances du laser à 1,9 μm a rapidement été étudiée pour un cristal dopé à 3 %. Il a pu être observé qu'ajouter le laser à 2,3 μm tend à diminuer la puissance à 1,9 μm . Cela peut s'expliquer car, en ajoutant le laser à 2,3 μm , on tend à vider le niveau 3H_4 et à diminuer la relaxation croisée qui est favorable au laser à 1,9 μm .

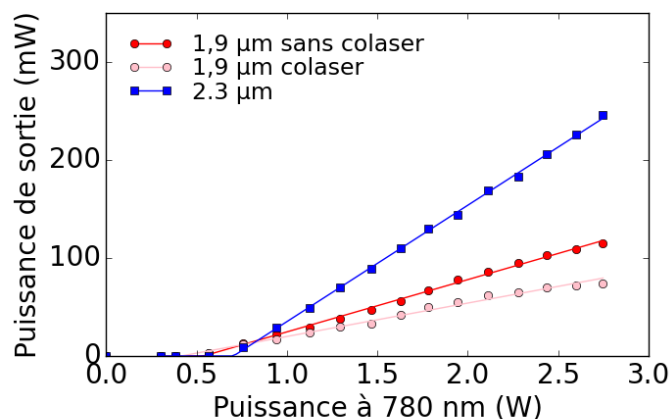


Fig. 7 : Puissance de sortie à 2,3 μm et à 1,9 μm en fonction de la puissance de pompe pour un Tm:YLF 3%.

3.1.5 Un modèle semi-empirique pour comprendre l'influence de la cascade laser

Pour comprendre davantage l'influence opposée de l'augmentation de l'absorption et de la réduction de l'upconversion, je propose ici un modèle analytique assez simple. Le but est de regarder la variation de la puissance à 2,3 μm due à l'augmentation de l'absorption et à la diminution de l'upconversion. Les notations ainsi que les valeurs utilisées sont résumées dans le tableau (Table 1) et dans la table des notations.

Dans ce modèle, la variation de la puissance du laser à 2,3 μm est supposée être due à deux raisons principales : premièrement, la variation de l'absorption de la pompe et deuxièmement, la variation du flux d'upconversion (ETU : *energie transfert upconversion*) qui remplit le niveau supérieur du laser ($^3\text{H}_4$). Ces deux variations sont supposées être indépendantes.

$$\Delta P_{2.3\mu\text{m}} = \Delta P_{2.3\mu\text{m,abs}} + \Delta P_{2.3\mu\text{m,ETU}}.$$

L'augmentation de la puissance de sortie due à l'absorption accrue de la pompe est quantifiée comme suit :

$$\Delta P_{2.3\mu\text{m,abs}} = P_p(\eta_c A_c - \eta_{nc} A_{nc}).$$

En supposant que le fonctionnement du laser en cascade induit principalement une variation de l'absorption de la pompe avec une faible perturbation sur l'efficacité de la pente du laser, η_c et η_{nc} , ces deux coefficients peuvent être considérés pour simplifier comme égaux. Donc :

$$(1) \quad \Delta P_{2.3\mu\text{m,abs}} = P_p \eta_c \Delta A$$

Cette hypothèse simplificatrice est précieuse du point de vue prédictif. Cette hypothèse suppose ainsi que le laser à 1,9 μm perturbe faiblement le laser à 2,3 μm . Elle n'est bien sûr pas valable lorsque le schéma du laser en cascade empêche les oscillations du laser à 2,3 μm où $\eta_c = 0$ (pour le Tm :YLF 6% notamment). Le modèle est donc nettement moins précis dans un tel cas. Néanmoins, dans le cas contraire, supposer η_c et η_{nc} égaux permet de prédire grossièrement (mais assez fidèlement d'un point de vue expérimental) l'influence du laser à 1,9 μm .

Le changement d'absorption $\Delta A = A_c - A_{nc}$ peut être directement déterminé à partir des mesures d'absorption décrites précédemment ou simplement calculé à partir de la loi de Beer-Lambert (nécessaire pour une prédiction). Pour un tel calcul, on suppose de manière simplifiée que tous les ions Tm³⁺ sont soit dans le niveau fondamental $^3\text{H}_6$, soit accumulés dans le niveau métastable $^3\text{F}_4$. Compte tenu de la longue durée de vie de ce niveau par rapport à la durée de vie du niveau $^3\text{H}_4$ éteint par le processus de relaxation croisée, cette hypothèse est en général valable. Comme, dans notre cas, le laser à 2,3 μm vide en plus le niveau $^3\text{H}_4$, cette hypothèse devient d'autant plus valable. En outre, le niveau $^3\text{H}_5$ est rapidement relaxé thermiquement dans le niveau $^3\text{F}_4$ inférieur et sa population est donc négligeable, de sorte que l'absorption peut être

calculée comme $A_x = 1 - e^{-\sigma_a l N (1 - n_{3F_4 x})}$ avec $x \in \{c, nc\}$ (avec c pour « cascade » et nc pour « pas de cascade » (*no cascade*)).

Table 1. Paramètre utilisés dans la simulation sur l'intérêt des lasers en cascade

Notation	Paramètres globaux	Value
η_{780nm}	Défaut quantique	33.9%
σ_a	Section efficace d'absorption à 780 nm	$0.64 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$
P_p	Puissance de pompe à 780 nm	0 - 2.5 W
V	Volume du gain utile déterminé avec le waist ω	$2.4 \times 10^{-10} \text{ m}^3$ $\omega = 20 \text{ }\mu\text{m}$ (FWHM) $M^2=1.1$
$P_{2.3\mu m}$	Puissance de sortie à 2.3 μm	Sortie du code (W)
N_{3H_4}	Population du niveau 3H_4 en régime continu imposé par les pertes de la cavité (4%)	$9 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$

	Paramètres des cristaux utilisés	No.°1	No.°2	No.°3
N	Concentration en ion thulium (10^{20} cm^{-3})	3.4	4.1	8.6
	Dopage (at.%)	2.5	3	6
l	Longueur du cristal (mm)	8	8	5
$n_{3F_4 c}$	Population normalisée 3F_4 en cascade	40%	58%	63%
$n_{3F_4 nc}$	Population normalisée 3F_4 sans cascade	85%	78%	67%
$N_{3F_4 x}$	Population du niveau 3F_4 avec $x \in \{c, nc\}$		$N n_{3F_4 x}$	
A_{nc}	Absorption de la pompe sans cascade	30%	52%	60%
A_c	Absorption de la pompe avec cascade	75%	70%	79%
K_{ETU}	Paramètre d'upconversion (ETU) ($10^{-20} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$)	2.4	6.6	38
η_c	Pente du laser à 2.3 μm vs. puissance de pompe absorbée dans le cas d'un laser en cascade	18%	15%	-
η_{nc}	Pente du laser à 2.3 μm vs. puissance de pompe absorbée en absence d'un laser en cascade	19%	18%	20%
η_{opt}	Efficacité d'extraction du laser à 2,3 μm avec la relation $\eta_c = \eta_{opt} \eta_{780nm}$	54%	51%	-

Pour la variation de puissance à 2,3 μm due à l'upconversion (ETU), une quantification peut être définie comme suit, sur la base des équations de taux :

$$\left[\frac{dN_{3H_4}}{dt} \right]_{ETU, x} = K_{ETU} N_{3F_4 x}^2 = K_{ETU} N^2 n_{3F_4 x}^2.$$

Le point important qu'il faut noter est que K_{ETU} dépend aussi du dopage (Fig. 8) Si nous supposons que les ions qui arrivent au niveau 3H_4 contribuent à l'émission à 2,3 μm avec la probabilité η_{opt} , la variation de puissance peut être évaluée avec l'équation suivante :

$$\Delta P_{2.3 \mu m, ETU} = \eta_{opt} h\nu V K_{ETU} N^2 \left(n_{3F_4 c}^2 - n_{3F_4 nc}^2 \right) \quad (2)$$

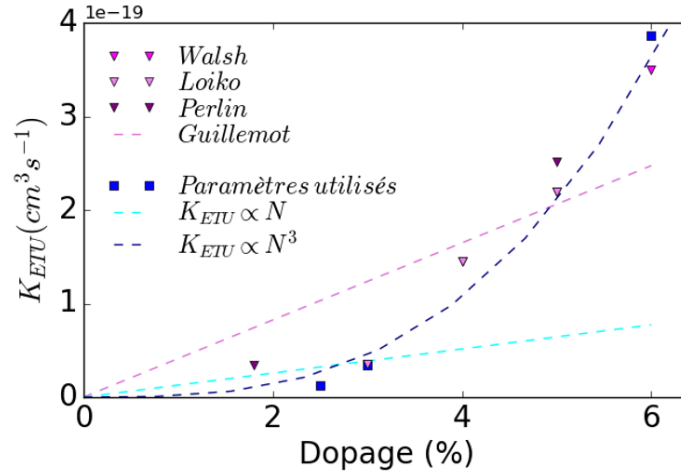


Fig. 8 : Paramètre d'upconversion K_{ETU} en fonction du niveau de dopage dans YLF. Triangles - données de la littérature [Loiko 2019] [Guillemot 2021] [Perlin 2001] [Walsh 2004], carrés - valeurs K_{ETU} utilisées dans le présent travail.

Pour déterminer le volume actif (V) dans le cristal, nous considérons la volume du faisceau de pompe où l'intensité est suffisamment intense pour qu'il y ait inversion de population. Arbitrairement, nous avons considéré que cela correspondait au minimum entre la longueur du cristal et la longueur de Rayleigh. La divergence du faisceau de pompe a également été pris en compte dans le calcul du volume.

Le paramètre K_{ETU} est une valeur clé, car comme on l'a vu, il dépend fortement du niveau de dopage. Comme il n'est pas facilement mesurable, il est souvent considéré dans la littérature comme variant linéairement avec le dopage. Les paramètres donnés dans la littérature [19,25,26,27] pour des cristaux de Tm:LiYF₄ sont présentés sur la figure 8. Pour estimer K_{ETU} plus généralement, nous mettons aussi sur cette figure les deux modèles d'ajustement utilisés dans notre modèle : ajustement linéaire « classique » et ajustement par interpolation, plus proche des quelques points expérimentaux de la littérature.

Notons que la variation de puissance dans cette équation dépend intrinsèquement de l'architecture de la cavité notamment à travers les paramètres η_c et η_{opt} dans les équations (1) et (2) (la pente de la caractéristique en présence de cascade et l'efficacité d'extraction à 2,3 μm , ceux-ci sont définis dans le tableau). Ces paramètres ne sont pas connus a priori et sont difficiles à estimer dans chaque cas. Pour limiter le nombre de paramètres libres dans le modèle et ne pas avoir à utiliser des paramètres η_c et η_{opt} hasardeux, nous nous intéressons à la variation de puissance normalisée. Il s'agit de la variation de puissance divisée par la puissance de sortie en présence du laser en cascade. Dans ce cas, les paramètres η_c et η_{opt} disparaissent :

$$\frac{\Delta P_{2.3 \mu\text{m}}}{P_{2.3 \mu\text{m}} c} = \frac{\Delta P_{2.3 \mu\text{m}}}{\eta_c P_p A_c} = \frac{\Delta A}{A_c} + \frac{h\nu}{P_p A_c \eta_{780\text{nm}}} V K_{ETU} N^2 \Delta(n_{3F_4}^2) \quad (3)$$

Enfin, la variation de puissance à 2,3 μm divisée par la puissance à 2,3 μm sans laser en cascade peut être obtenue par un changement de variable : $\frac{\Delta P_{2.3 \mu\text{m}}}{P_{2.3 \mu\text{m} nc}} = \frac{\Delta P_{2.3 \mu\text{m}}/P_{2.3 \mu\text{m} c}}{1 - \Delta P_{2.3 \mu\text{m}}/P_{2.3 \mu\text{m} c}}$. Il convient de noter que dans la mesure où $P_{2.3 \mu\text{m} c}$ peut tendre vers des valeurs nulles, la valeur $\Delta P_{2.3 \mu\text{m}}/P_{2.3 \mu\text{m} c}$ peut donc tendre vers de grandes valeurs négatives sans être limitée. De ce fait, le choix de diviser par $P_{2.3 \mu\text{m} nc}$ semble plus pertinent car intrinsèquement, $\Delta P_{2.3 \mu\text{m}}/P_{2.3 \mu\text{m} nc}$ a une borne inférieure limitée à -100%. C'est donc ce dernier paramètre que nous tracerons.

Le présent modèle est ensuite comparé aux mesures expérimentales effectuées avec les cristaux Tm:LiYF₄ pour vérifier qu'il pourrait être utile pour prédire les variations des efficacités des lasers thulium en cascade basées sur des cristaux avec différents niveaux de dopage.

Puisque le but de la présente étude est de fournir une estimation de la tendance dans le but d'avoir un modèle prédictif semi-empirique, nous traçons cette courbe en utilisant un seul paramètre variable, c'est-à-dire le dopage. Pour cette raison, nous décidons de prendre les valeurs moyennes pour les autres paramètres, en reconnaissant que ceux-ci peuvent varier dans une mesure limitée, en particulier $n_{3F_4 x}^2$. Les valeurs $n_{3F_4 x}^2$ sont estimées à l'aide des courbes d'absorption. Nous utilisons donc ensuite le set de valeurs suivant : $n_{3F_4 nc}^2 = 83\%$, $n_{3F_4 c}^2 = 50\%$ et $l = 8 \text{ mm}$. Compte tenu de ces valeurs généralisées et des différentes hypothèses, le modèle donne de bonnes indications sur les cas où l'émission laser en cascade est bénéfique. Cependant il tend à sous-estimer les effets négatifs pour les niveaux de dopage élevés. Quoiqu'il en soit, comme le montre la Fig. 9(a), le modèle permet d'obtenir une bonne estimation, en particulier pour les points intéressants à de faibles niveaux de dopage et une tendance physiquement cohérente pour un dopage plus élevé. En outre, à travers nos nombreuses simulations (non présentées ici) nous avons observé que la modification des paramètres $n_{3F_4 nc}^2$ et $n_{3F_4 c}^2$ a une très faible influence sur le croisement de la variation de puissance normalisée $\frac{\Delta P_{2.3 \mu\text{m}}}{P_{2.3 \mu\text{m} nc}}$ avec l'axe des abscisses, qui est le point de pivot pour savoir si un schéma de laser en cascade est bénéfique ou non.

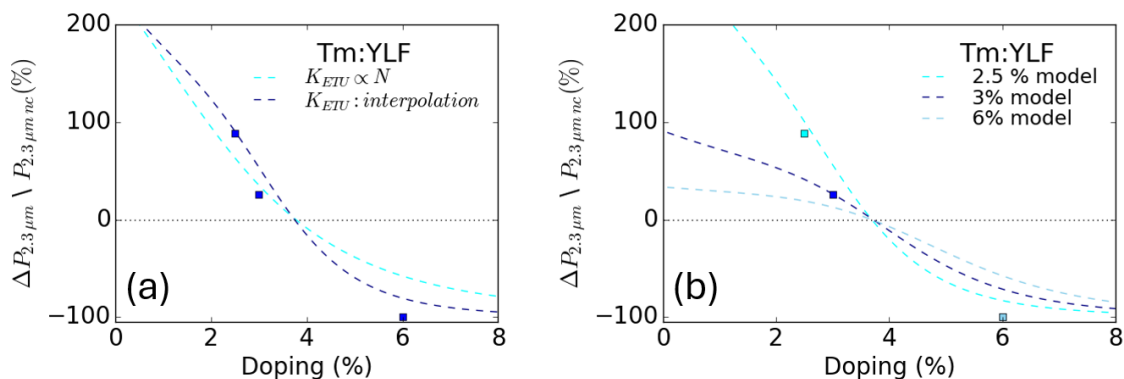


Fig. 9 : Variation de puissance à 2,3 μm normalisée par la puissance à 2,3 μm en absence de cascade versus le dopage en ion thulium (a) avec des paramètres standard moyens (b) lorsque les

paramètres propres à chaque cristal sont utilisés. Deux courbes sont présentées sur le graphe a, pour deux cas : soit K_{ETU} linéairement dépendant du dopage soit K_{ETU} suivant un fit cubique interpolant mieux les données de la littérature.

Malgré un modèle simple basé sur plusieurs hypothèses décrites ci-dessus, nous avons obtenu une équation semi-empirique reproduisant fidèlement la tendance observée expérimentalement. Pour répondre à la question de savoir si le modèle pourrait être plus précis en considérant les données mesurées pour chaque cristal en particulier et non les valeurs moyennes, nous représentons sur la Fig. 9 (b) les résultats de la simulation pour les cristaux de YLF dopés à 2,5 %, 3% et à 6 % en prenant en compte les paramètres propres à chaque cristal que nous avons mesuré. Ceux-ci sont résumés dans la Table 1. Comme prévu, l'accord devient alors plus précis. De plus, on peut observer que la limite où le laser en cascade est avantageux ne varie pas pour les différentes courbes.

Pour pouvoir tester ce modèle avec davantage de points expérimentaux, nous avons également tracé pour les deux cristaux de YLF dopés à 2,5 % et à 3 %, la variation de puissance normalisée pour différentes puissances de pompe, comme le montre la Fig. 10. Pour ces courbes, les variables $n_{3F_4nc}^2$, $n_{3F_4c}^2$ et K_{ETU} sont celles données dans la Table 1 pour chaque cristal. Dans notre modèle, ces paramètres sont supposés comme relativement constant en fonction de la puissance de pompe. Comme valeurs de K_{ETU} nous avons respectivement utilisé : $2,4 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$ et $6,6 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$. Ces valeurs sont ajoutées sous forme de carrés bleus à la Fig. 8.

On constate que pour le cristal dopé à 3 at.% Tm^{3+} , la valeur $\Delta P_{2.3 \mu\text{m}}/P_{2.3 \mu\text{m}c}$ atteint 19.5% alors que la différence d'absorption relative $\Delta A/A_c$ approche 25%. Et, pour le cristal dopé à 2,5 % de Tm^{3+} , la valeur mesurée de $\Delta P_{2.3 \mu\text{m}}/P_{2.3 \mu\text{m}c}$ atteint 49,2 % alors que la variation relative d'absorption est de 53 %. Ces résultats correspondent bien à ceux attendus par notre modèle, puisque $\Delta P_{2.3 \mu\text{m}}/P_{2.3 \mu\text{m}c}$ tend vers la différence d'absorption relative lorsque la puissance de la pompe devient suffisamment élevée. On peut aussi observer que, pour les puissances de pompe plus proches du seuil, le modèle devient moins précis. Cela peut s'expliquer par le fait que l'hypothèse $\eta_c \sim \eta_{nc}$ n'est plus valide dans ce cas et par le fait que les mesures deviennent moins précises aussi.

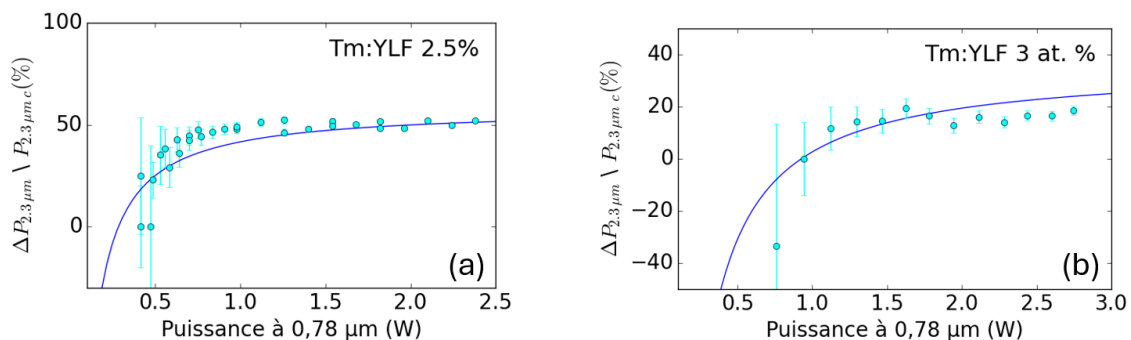


Fig. 10 : Variation de puissance à 2,3 μm normalisée par la puissance à 2,3 μm en présence de cascade par rapport à la puissance incidente (a) pour un Tm:YLF 2,5 % (b) pour un Tm:YLF 3% Les

barres d'erreur tendent à être plus importantes proche du seuil dans la mesure où les puissances mesurées s'approchent de l'incertitude du capteurs estimée à 1 mW.

3.1.6 Conclusion partielle : l'intérêt de la cascade laser en fonction du dopage

En conclusion, nous avons étudié l'effet positif du laser en cascade impliquant les transitions laser en cascade ${}^3\text{H}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_5$ et ${}^3\text{F}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_6$ dans le Tm:YLF et répondu à la question de savoir comment l'ajout d'une émission laser à 1,9 μm peut améliorer ou non la puissance de sortie à 2,3 μm . Nous avons vu que cette amélioration dépend fortement du dopage en thulium et peut être expliquée principalement par une augmentation significative de l'absorption de la pompe, contrebalancée par l'effet négatif de l'*upconversion*. Un modèle analytique permettant d'évaluer ce phénomène a été développé. Corroboré par des études expérimentales sur trois cristaux de YLF dopés à 2,5 at. %, 3 at. % et 6 at. %, ce modèle montre que, dans certaines configurations, l'ajout d'une cascade laser peut doubler la puissance de sortie à 2,3 μm . La technique du laser en cascade s'avère donc être un moyen alternatif de recyclage de la pompe pour améliorer l'efficacité des lasers à 2,3 μm à base de thulium. Elle présente l'avantage de pouvoir être mise en œuvre simplement en s'assurant que les miroirs utilisés présentent une réflectivité élevée à 2,3 μm et à 1,9 μm . Ces miroirs sont souvent, en outre, plus faciles et moins contraignants à produire que les miroirs dichroïques actuellement utilisés pour défavoriser le laser à 1,9 μm . Le modèle permet d'estimer la gamme de dopage pour lesquels le laser en cascade est avantageux pour augmenter l'efficacité du laser à 2,3 μm .

3.1.7 Discussion sur l'intérêt de la cascade laser en pompage par diode

L'utilisation de diodes laser couplées à des fibres pour le pompage de cristaux dopés au Tm^{3+} au lieu de lasers Ti:Saphir permet de concevoir des systèmes compacts et de plus forte puissance. La principale différence réside dans la puissance disponible et la qualité du faisceau (Intensité) de pompes. Par conséquent, il est intéressant d'adapter notre modèle et de retracer l'impact de ce changement qui affecte principalement le terme lié à l'*upconversion* à travers la puissance de la pompe disponible et le volume de la zone de gain tels que :

$$\left[\frac{\Delta P_{2.3 \mu\text{m}}}{P_{2.3 \mu\text{m} c}} \right]_{ETU} \propto \frac{V}{P_p} \sim \frac{l}{I_p} \quad (4)$$

Avec l la longueur du cristal et I_p l'intensité de la pompe en $\text{W} \cdot \text{m}^{-2}$. Les diodes laser commerciales couplées à une fibre offrent une puissance de sortie élevée au détriment d'une qualité spatial de faisceau inférieure (intensité de pompe plus faible). Par conséquent, le changement de la source de pompage pourrait affecter l'effet du laser en cascade de façon négative en réduisant l'intensité de pompe et en augmentant ainsi l'effet négatif du terme d'*upconversion* cf. (4).

3.1.8 Etude expérimentale de la cascade en pompage diode

D'un point de vue expérimental, de tels lasers en cascade ont déjà été démontrés dans la littérature pour des lasers Tm:YLF pompés par diode et émettant à $2,3 \mu\text{m}$ et $1,9 \mu\text{m}$ par [Huang 2019]. Dans ce travail, la puissance à $2,3 \mu\text{m}$ s'élevait à 650 mW (avec émission laser en cascade) et à seulement 350 mW (sans laser en cascade). La diode émettait jusqu'à 25 W de puissance de sortie focalisée dans un spot de $200 \mu\text{m}$.

Afin d'étudier l'intérêt de la cascade en pompage diode par nous-même, une cavité en Z pompée par une diode de puissance fibrée émettant jusqu'à 90 W à 790nm a également été construite. Elle émet à $2,3 \mu\text{m}$. Le diamètre de la fibre est de $106 \mu\text{m}$ et l'ouverture numérique de 0,22. La pompe est focalisée dans le cristal de Tm:YLF via un montage 2f-2f constitué de deux lentilles triplet de focale 72mm chacune. Les deux cavités imbriquées émettant à $2,3 \mu\text{m}$ et à $1,9 \mu\text{m}$ possèdent en commun le miroir de pompe, un Tm:YLF 2,5 % de 8 mm ainsi qu'un miroir plan-concave de rayon de courbure $R = 200 \text{ mm}$. Les deux cavités se séparent sur un miroir dichroïque HR ($R > 99,95$ pour $2,15 - 2,4 \mu\text{m}$) and AR ($T > 99,5$ pour $1,7 - 2,1 \mu\text{m}$). Les deux cavités sont fermées par deux coupleurs de sortie indépendants. Le miroir de pompe est traité HR for $1,8 - 2,4 \mu\text{m}$. La longueur entre le miroir de pompe et le miroir plan concave est de 120 mm. Elle est ajustée en fonction de la lentille thermique induite par le cristal. La longueur entre le coupleur à $2,3 \mu\text{m}$ et le miroir plan-concave est 105 mm. De même, la longueur entre les deux miroirs plan concave est 360 mm. Nous avons la possibilité d'utiliser un coupleur à 2,5% sur la plage $2,1 - 2,4 \mu\text{m}$.

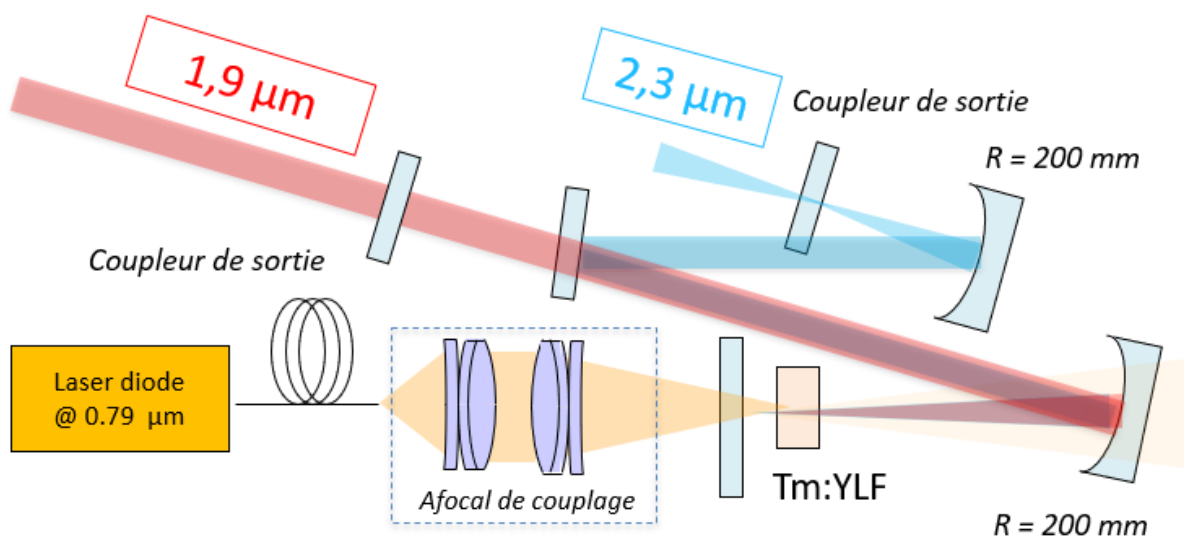


Fig. 11 : Schéma expérimental du pompage diode avec la possibilité d'avoir un laser en cascade à $1,9 \mu\text{m}$.

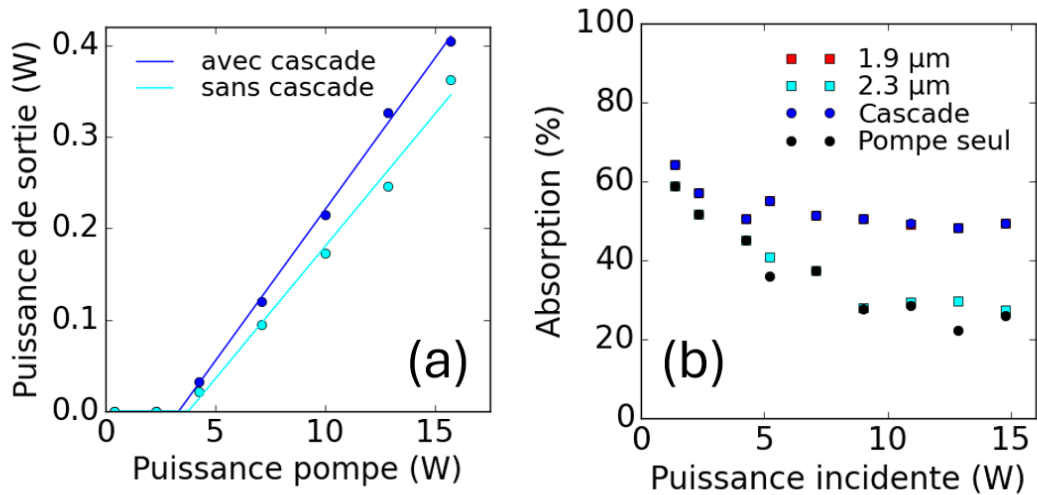


Fig. 12 : (a) Puissance à 2,3 μm en fonction de la puissance de pompe avec ou sans laser en cascade. (b) Absorption de la pompe en fonction de la puissance incidente dans différentes configurations laser. Les points rouges et noirs sont totalement superposés.

Pour une puissance de pompe de 15 W, la puissance laser à 2,3 μm est de 362 mW en absence de cascade laser à 1,9 μm et de 408 mW en présence d'une cascade laser. Dans le même temps, l'absorption de la pompe passe de 26 % à 48 %. Ainsi, quand bien même le gain en termes d'absorption reste intéressant en pompage diode, le gain en termes de puissance à 2,3 μm est plus faible que celui que nous avons obtenu avec le pompage Ti:Saphir avec le même cristal. Le gain de puissance à 2,3 μm passe en effet de +100% en pompage Ti:Saphir à +13% en pompage par diode. Cela peut s'expliquer dans le cadre de notre modèle par une augmentation du flux d'upconversion due à une augmentation du volume de la zone de gain. L'intensité de pompe relativement faible des diodes laser est un inconvénient pour la cascade laser et il est donc nécessaire d'utiliser des cristaux moins dopés en thulium pour retrouver l'effet bénéfique de la cascade en pompage diode. Les courbes de notre modèle ont été tracées et comparées au point expérimental réalisé et à celui de la littérature. L'effet bénéfique de la cascade laser pour un cristal dopé à 1,5 % est particulièrement visible [Huang 2019] (Fig. 13).

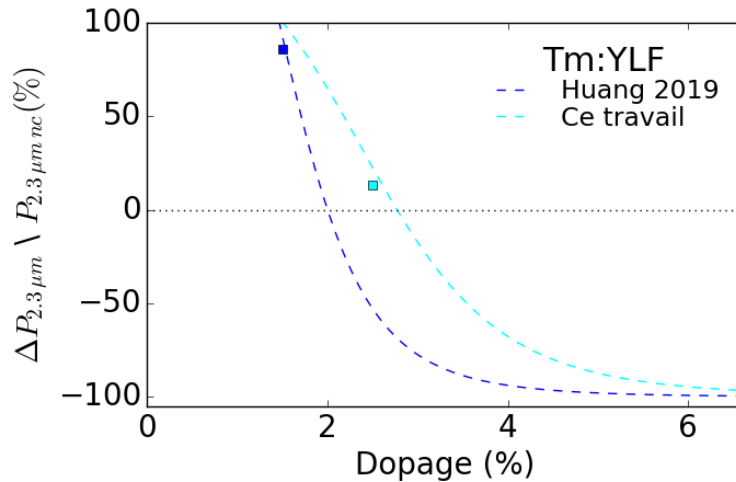


Fig. 13 : Variation de puissance à 2,3 μm normalisée par la puissance à 2,3 μm en absence de cascade par rapport au dopage en ion thulium lorsque les paramètres propres à chaque cristal sont utilisés.

Néanmoins, la nécessité d'utiliser de dopage inférieur à 2-3% pour que la cascade laser reste bénéfique n'est pas vraiment un problème en pompage diode. En effet, le comportement thermique des cristaux massifs fortement dopés est assez mauvais pour de fortes puissances de pompe et ces cristaux fortement dopés n'étaient déjà pas vraiment utilisables en pratique.

Nota Bene : Une étude plus détaillée sur la thermique sera réalisée au chapitre 5.

Pour conclure, l'effet bénéfique de la cascade laser est similaire en pompage haute brillance avec un Ti:Saphir et en pompage diode. Nous avons vu avec notre modèle qui colle bien au résultat de la littérature- qu'en raison d'une augmentation du volume de gain en pompage diode, il est nécessaire d'utiliser des cristaux au dopage inférieur à 2-3% pour que la cascade reste bénéfique pour l'émission laser à 2,3 μm.

3.1.9 Performance optimale à 2,3 μm en pompage diode

Le précédent banc expérimental avait été réalisé comme expérience préliminaire pour le développement d'un laser en régime déclenché d'où l'existence d'un second waist dans la cavité en Z pour placer un absorbant saturable. Ce laser sera étudié dans le dernier chapitre de cette thèse.

Or, cette cavité en Z n'est pas idéale pour un recouvrement optimal des modes de pompe et lasers. Mais elle a permis de montrer le rôle bénéfique de la cascade en pompage par diode. Une seconde cavité en V a donc été réalisée pour obtenir de plus forte puissance de sortie. Le montage est globalement identique au précédent à la différence notable que tous les miroirs situés après le miroir plan-concave sont remplacés par un unique miroir plan de transmission 7 % à 1,9 μm et de 3% à 2,3 μm.

De même, la puissance de pompe non absorbée a été recyclée à l'aide d'un miroir plan et d'une lentille de 100mm. Une puissance de 2,4 W a été obtenue à 1,9 μm avec une pente de 16% et une puissance de 857 mW a été obtenu à 2,3 μm avec une pente de 8%. Ce type de système laser représente une cavité optimisée à 2,3 μm utilisant le laser en cascade sans complexification de la cavité laser avec une séparation des deux lasers. On montre ici qu'un laser dont la cascade aurait été démontrée comme bénéfique (par exemple en utilisant notre modèle simplifié) ne nécessite pas un surplus de complexité pour la cavité laser.

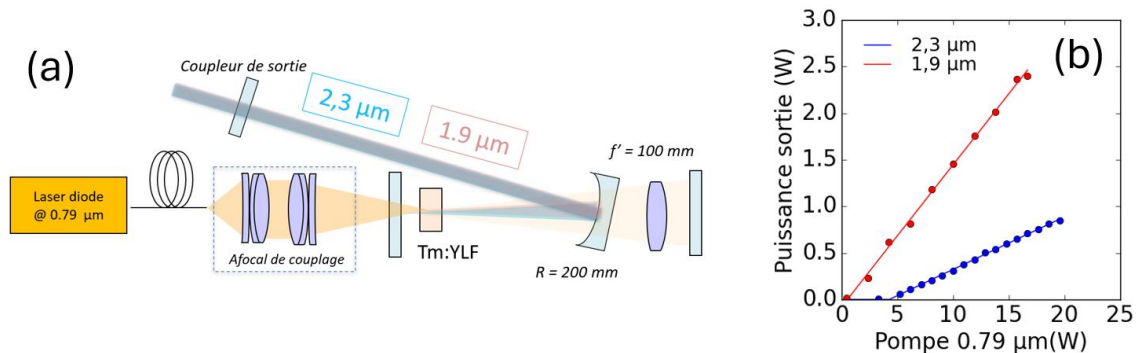


Fig. 14 : (a) Montage expérimental pour un laser en cascade compacte. Le miroir et la lentille de 100 mm servent à recycler la pompe non absorbée avec le Tm:YLF. (b) Puissance de sortie à 2,3 μm et à 1,9 μm .

3.1.10 Conclusion sur l'optimisation de l'émission à 2,3 μm dans le Tm:YLF

Une série d'expériences a été réalisée en utilisant des cristaux de YLF dopés au thulium. L'intérêt de cette matrice ayant déjà été démontré, nous nous sommes concentrés sur l'intérêt de rajouter un laser en cascade à 1,9 μm pour augmenter l'efficacité du laser à 2,3 μm . Une étude en fonction du dopage en thulium a été effectuée. Il a pu être observé que les cristaux de dopage inférieur à 3 % sont intéressants pour un schéma de pompage en cascade lorsqu'un Ti:Saphir est utilisé comme source de pompe. Dans le cas d'un pompage diode, l'augmentation de la taille du waist de pompe nécessitent d'utiliser des cristaux légèrement moins dopés pour préserver l'intérêt de la cascade.

3.2 LES PROBLEMATIQUES DU Tm:YAG

Les cristaux YAG utilisés comme matrices hôtes pour les ions thulium ont été utilisés de façon plus marginale que le YLF [Caird 1975] [Guillemot 2020]. La maturité technologique de cette matrice largement utilisée pour les lasers à base de néodyme à $1\ \mu\text{m}$ mais également pour l'ytterbium, l'holmium et l'erbium à $1\ \mu\text{m}$, $2,1\ \mu\text{m}$ et $2,9\ \mu\text{m}$ respectivement, en font un cristal prometteur pour l'émission à $2,3\ \mu\text{m}$ du thulium. Sa conductivité thermique et sa dureté sont meilleures que celles du YLF, ce qui en fait un cristal prometteur pour la montée en puissance. Néanmoins, dans la mesure où il s'agit d'un oxyde, les temps de vie sont notablement plus faibles que dans le YLF alors que les sections efficaces entre les deux cristaux sont comparables. Il est donc probable que les gains soient plus faibles que dans le YLF comme expliqué au Chap. 1. Les sections efficaces d'émission et d'absorption du Tm:YAG ont été mesurée au CIMAP. Comme pour le YAG, deux pics d'absorption sont disponibles à $781\ \text{nm}$ pour une section efficace de $0,61 \cdot 10^{-20}\ \text{cm}^{-2}$ et à $786\ \text{nm}$ pour une section efficace de $0,66 \cdot 10^{-20}\ \text{cm}^{-2}$. Pour l'émission, le pic se situe à $2324\ \text{nm}$ avec une section efficace de $0,35 \cdot 10^{-20}\ \text{cm}^{-2}$. Le temps de vie du niveau métastable 3F_4 est de $12\ \text{ms}$ et de $1,45\ \text{ms}$ pour le niveau 3H_4 . Davantage de données sont disponibles en annexe. Dans cette partie, un pompage à $0,8\ \mu\text{m}$ utilisant une diode de puissance a été réalisé. Le Tm:YAG est un exemple typique de ce qu'on appelle un laser « vibronique » où les transitions laser $^3H_4 \rightarrow ^3H_5$ et $^3F_4 \rightarrow ^3H_6$ peuvent se chevaucher dans la région des $2.1\ \mu\text{m}$ aidé par une transition vibronique. La problématique des lasers vibroniques sera détaillée dans la suite ainsi que la stabilité en régime continu.

3.2.1 Problématique de l'émission laser en cascade vibronique

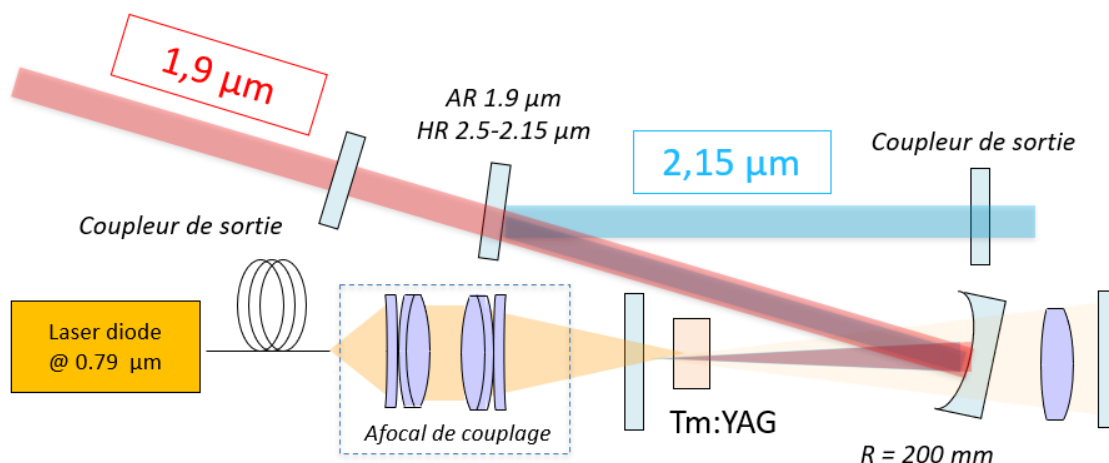


Fig. 15 : Montage expérimentale pour un laser en cascade compacte.

L'étude du Tm:YAG en pompage Ti:Saphir ayant déjà été réalisée [Guillemot 2020],

cette partie abordera l'intérêt d'utiliser ces cristaux pour la réalisation de laser de puissance au-delà de 2 μm . Le schéma de pompage reste inchangé par rapport à la précédente partie. Une voie permet l'émission laser à 1,9 μm et se termine par un coupleur de 7%. Une autre voie permet l'émission laser au-delà de 2,15 μm et se termine par un coupleur de 3 % de 2,1 μm à 2,4 μm . Le cristal utilisé est un Tm:YAG 3.2 at.% de 10 mm de long. Ses faces sont traitées anti-reflet pour la pompe et le laser.

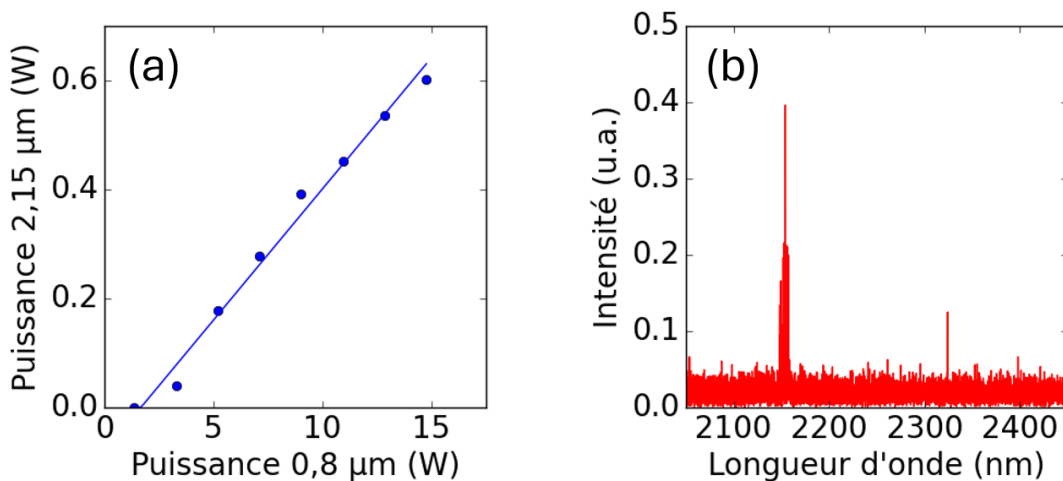


Fig. 16 : (a) Puissance à 2,1 μm en fonction de la puissance de diode. (b) Spectre du laser réalisé avec un spectromètre à transformé de Fourier.

Comme ce qui avait été observé par [Guillemot 2020], l'émission laser est fortement décalée vers 2,15 μm . Cette émission peut être expliquée par la présence d'une transition vibronique comme expliqué au chapitre 2. Dans ce cas de figure, le gain à 2,1 μm sur la transition 3F_4 vers 3H_6 n'est pas nul en raison d'une forte population du niveau 3F_4 . De même, le gain sur la transition 3H_4 vers 3H_5 reste important. Finalement, les deux transitions participent en même temps à l'émission laser. Une puissance de 608 mW a ainsi pu être obtenue pour une puissance de pompe de 15 W à 785 nm avec une pente de 4%. Et, en présence de laser à 1,9 μm , aucun laser au-delà de 2,15 μm n'a été obtenu.

3.2.2 Les instabilités temporelles

L'étude expérimentale du Tm:YAG s'est heurté à la présence de fortes instabilités temporelles. Bien que la plupart du temps, le laser au-delà de 2,15 μm soit très stable (instabilité non détectable avec notre détecteur), des impulsions géantes sporadiques ont été observées. Pour les détecter, le trigger de l'oscilloscope a été placé bien au-dessus de la puissance moyenne de sortie jusqu'à ce qu'un pulse géant soit détecté. Ce type d'évènement arrivait en général au bout de quelques minutes en régime continu. Quelques exemples sont reportés à la Fig. 17.

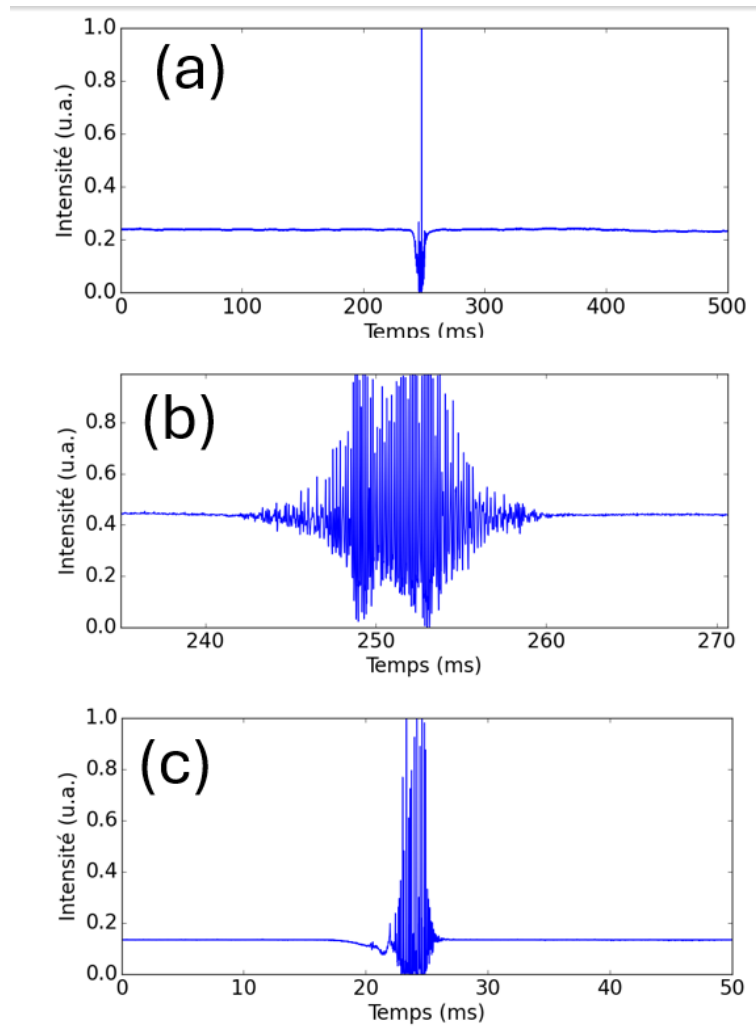


Fig. 17 : Instabilités temporelle de la puissance à 2,3 μm .

Diverses hypothèses peuvent expliquer ces instabilités. Elles peuvent être thermiques. Elles peuvent être dues à de la compétition de modes. Elles peuvent également être dues à une compétition entre les deux transitions qui participent à l'émission laser. Si une perturbation extérieure quelconque vient légèrement changer les pertes du laser, un régime transitoire (où la compétition entre les transitions est importante) risque de se mettre en place. L'effet de la cascade laser que nous avons vu précédemment tend à amplifier ce phénomène. La présence de puissance résiduelle à 2,3 μm dans le spectre laisse aussi penser à une instabilité spectrale. Il serait, pour valider ou invalider ceci, nécessaire de réaliser davantage de mesures. Malheureusement, ces pulses géants sont destructifs et abiment les surfaces du cristal (principalement le traitement antireflet). Peu d'études ont donc pu être réalisées à leur sujet. L'effet de ces impulsions géantes sur le cristal est montré à la figure 18. Le plus grand impact est dû à une poussière qui a brûlé au niveau du waist de la diode de pompe. Les dégâts dus aux instabilités sont plus petits et mesurent en moyenne 30 μm . Ils sont présents un peu partout sur le cristal dans la mesure où plusieurs tests ont été réalisés en déplaçant le cristal latéralement avant de se rendre compte de l'existence de ces impulsions géantes.

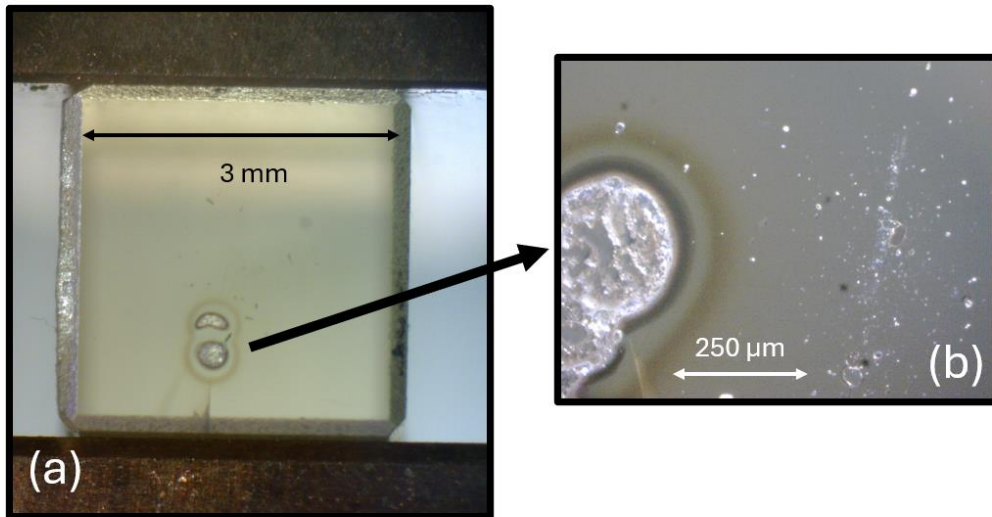


Fig. 18 : Impacts au niveau du traitement de surface du Tm:YAG.

3.2.3 Conclusion sur le Tm:YAG

En somme, le Tm:YAG n'a pas vraiment fait preuve de caractéristiques intéressantes pour l'émission à 2,3 µm. L'interaction avec la transition 3F_4 vers 3H_6 décale l'émission laser vers 2,1 µm. De plus, de fortes instabilités temporelles ont été observées. Celles-ci étant destructrice dans notre cas, nous n'avons pu en trouver l'origine à l'aide d'expériences *ad hoc*. Cependant, le cristal de Tm:YAG pourrait être intéressant pour l'émission directe à 2,1 µm en pompage diode direct en concurrence avec, par exemple, avec l'Ho:YAG dont le pompage diode direct est plus difficile. Les problèmes de stabilités devront néanmoins être résolus.

3.3 NOUVEAUX MATERIAUX A LARGE SPECTRE D'EMISSION

3.3.1 Tm: CALGO

3.3.1.1 Présentation du CALGO

L'une des principales limitations au développement de lasers thulium à large accordabilité ou femtoseconde fonctionnant sur la transition ${}^3H_4 \rightarrow {}^3H_5$ est la nécessité de disposer d'un milieu de gain présentant des propriétés d'émission à large bande spectrale. Une telle propriété peut être obtenue avec un cristal structurellement désordonné présentant un fort élargissement des bandes spectrales du Tm^{3+} .

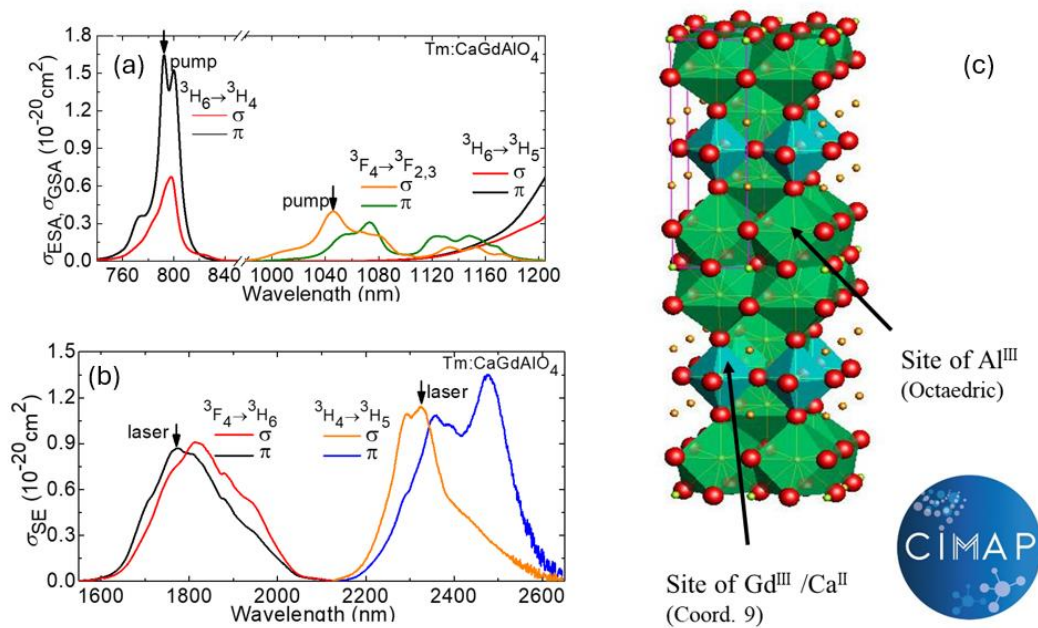


Fig. 19 : Section efficace (a) d'absorption et (b) d'émission du Tm:CALGO [Dupont 2023]. (c) Mailles cristalline de CALGO [Guillemot 2021].

L'aluminate de calcium et de gadolinium CaGdAlO₄ (en abrégé CALGO) est un cristal hôte de laser bien connu pour cela. Il cristallise dans la classe tétragonale (constantes de réseau : $a = 3.66052(9) \text{ \AA}$, $c = 11.986(5) \text{ \AA}$) et présente un désordre structural dû à une distribution aléatoire des cations Ca^{2+} et Gd^{3+} sur les mêmes sites du réseau Fig. 19(c). Les ions dopants Tm^{3+} remplacent les ions Gd^{3+} . De plus, en tant que matrice hôte, CaGdAlO₄ présente de bonnes propriétés thermiques, c'est-à-dire une conductivité thermique élevée malgré sa nature désordonnée, des coefficients dn/dT négatifs conduisant à un comportement athermique (la lentille dues à variation d'indice est en partie compensée par le bombage des faces dues à la dilatation cf. Chapitre 5), et une faible anisotropie de la dilatation thermique [Druon 2013] [Loiko 2014]. Ces propriétés favorisent le fonctionnement des lasers à haute puissance [Druon 2013]. L'énergie de phonon relativement faible du CALGO (parmi les cristaux d'oxyde) conduit à des temps de vie élevés. Un résumé des propriétés physiques du cristal hôte CALGO est donné dans le tableau en annexe. Les ions thulium dans le CALGO présentent des

spectres d'émission extrêmement larges et lisses fortement polarisée, ce qui est intéressant pour le développement de lasers à verrouillage de modes ou largement accordables [Zaouter 2006] [Sévillano 2014] [Wang 2021].

Les propriétés spectroscopiques du thulium dans le CALGO ont été mesurées au CIMAP par Lauren Guillemot Fig. 19. Les sections efficaces sont résumées dans la Fig. 19. La durée de vie intrinsèque du niveau 3F_4 est de 3,08 ms. Le temps de vie intrinsèque du niveau 3H_4 est de $420 \pm 5 \mu\text{s}$.

3.3.1.2 Pompage direct

Un cristal de Tm:CALGO de 3,5 at.% est utilisé pour la première fois comme milieu de gain à $2,3 \mu\text{m}$. La densité d'ions thulium est de $4,31 \cdot 10^{20} \text{cm}^{-3}$. Un échantillon rectangulaire est découpé dans le cristal recuit. Le cristal est orienté pour la propagation de la lumière le long de l'axe a. Il a une ouverture de $3,0 \times 3,0 \text{mm}^2$ pour une épaisseur de 6,0 mm. Ses deux faces sont polies et ne sont pas traitées avec de l'antireflet. Le cristal est monté dans une monture en cuivre refroidie passivement et le contact thermique avec le cristal est réalisé à l'aide d'une feuille d'indium.

Le schéma expérimental est présenté Fig. 20. Une cavité laser hémisphérique a été utilisée. Elle comporte un miroir de pompe dichroïque plan transmettant le rayonnement de la pompe (HT, $T > 95\%$ à $0,77\text{-}0,81 \mu\text{m}$ et $1,03\text{-}1,06 \mu\text{m}$) et réfléchissant l'émission laser (HR, $R > 99,9\%$ à $2,15\text{-}2,55 \mu\text{m}$). Le second miroir est le coupleur de sortie plan-concave avec un rayon de courbure 100 mm. Diverses transmissions sont disponibles. Le cristal est placé près du miroir de pompe, à incidence normale et à une distance d'environ 1 mm). La longueur géométrique de la cavité est de $\sim 99 \text{mm}$.

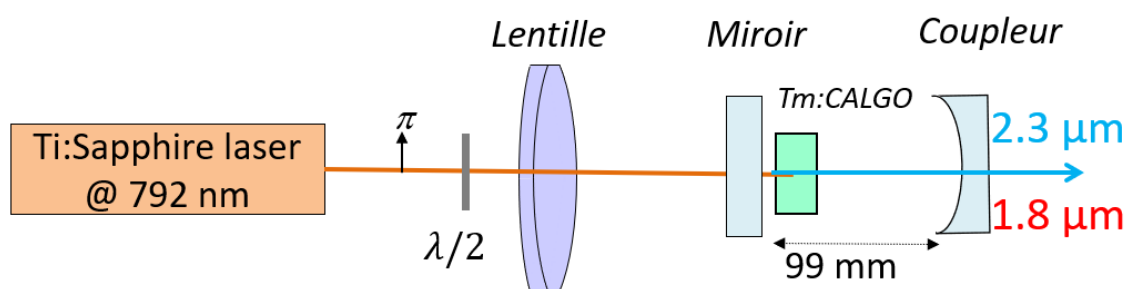


Fig. 20 : Schéma d'un laser Tm:CALGO

Afin d'avoir une émission laser, à loisir, uniquement sur la transition $^3H_6 \rightarrow ^3H_4$ ou en cascade sur la transition $^3H_6 \rightarrow ^3H_4$ et sur la transition $^3F_4 \rightarrow ^3H_6$, deux sets de miroirs peuvent être utilisés. Premièrement, pour une émission laser uniquement sur la transition $^3H_6 \rightarrow ^3H_4$, le miroir de pompe et les coupleurs de sortie sont traités HT ($T > 70\%$) à $1,9 \mu\text{m}$. Deuxièmement, pour étudier spécifiquement le fonctionnement des lasers en cascade, des miroirs de cavité permettant un fonctionnement à deux bandes sont employés, comprenant un miroir de pompe dichroïque plan traité pour haute-

réflexion HR à 2,1-2,5 μm et 1,76-1,88 μm et un coupleur de sortie avec pour transmissions 2,5% à 2,32 μm et 10% à 1,77 μm respectivement.

Pour le pompage direct, nous utilisons comme source de pompe un laser Ti:Saphir continu (3900S, Spectra Physics) délivrant 3,9 W à 792,2 nm (avec une largeur de raie FWHM de 0,1 nm) ainsi calé sur la transition ${}^3\text{H}_6 \rightarrow {}^3\text{H}_4$, avec une polarisation linéaire et un faisceau limité par la diffraction ($M^2 \approx 1$). Sa sortie est focalisée dans le cristal à travers le miroir de pompe à l'aide d'une lentille à revêtement antireflet (AR) (longueur focale : $f = 75$ mm), ce qui donne une tache focale de 31 ± 5 μm . La polarisation de la pompe est alignée selon l'axe π du cristal.

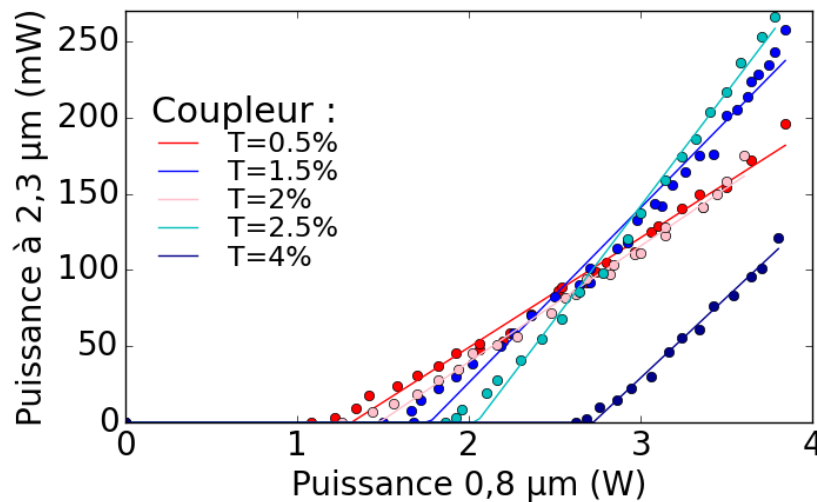


Fig. 21 : Puissance de sortie à 2,3 μm en fonction de la puissance de pompe pour le Tm:CALGO

Tout d'abord, le fonctionnement du laser a été étudié lorsqu'il fonctionne sur la transition ${}^3\text{H}_6 \rightarrow {}^3\text{H}_4$ uniquement. Les coupleurs de sortie ayant une transmission élevée autour de 1,9 μm sont utilisés et aucune émission laser sur la transition ${}^3\text{F}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_6$ n'est observée.

Le laser Tm:CALGO génère alors jusqu'à 264 mW de puissance de sortie à 2301-2325 nm pour le coupleur de sortie avec une transmission de 2,5%. La pente correspondante est de 16,2 % par rapport à la puissance de pompe incidente sur le cristal et le seuil du laser est de 1,77 W, Fig. 21. Cela correspond à une puissance de pompe incidente maximale de 3,60 W et à une efficacité optique de 7,3 %. L'augmentation de la puissance semble être limitée par la puissance de pompe disponible. Aucun signe d'effets thermiques n'est observé dans la gamme de puissances de pompe étudiée.

3.3.1.3 Problématique de la cascade dans le Tm:CALGO

Comme nous avons pu le voir dans le Tm:YLF, le fonctionnement des lasers en cascade sur les transitions ${}^3\text{H}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_5$ et ${}^3\text{F}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_6$ peut être intéressant pour l'augmentation de la puissance des lasers de 2,3 μm . Pour démontrer le fonctionnement du laser en cascade, des miroirs permettant un fonctionnement aux deux longueurs d'onde sont

utilisés. Nous utilisons un miroir de pompe plan traité HT à $0,79 \mu\text{m}$ et HR autour de $1,8 \mu\text{m}$ et $2,1\text{-}2,5 \mu\text{m}$ et un coupleur de sortie plan-concave ($R = 100 \text{ mm}$) avec un coupleur de sortie de transmission de $2,5 \%$ à $2,32 \mu\text{m}$ et 10% à $1,77 \mu\text{m}$. Pour mesurer la puissance de sortie totale après le coupleur, un filtre passe haut (LP1400, Thorlabs) est utilisé, et pour séparer l'émission laser à $2,3 \mu\text{m}$, nous employons un filtre passe-bande (FB2250-500, Thorlabs).

Le laser Tm:CALGO en cascade génère une puissance de sortie maximale de 585 mW à $1760\text{-}1772 \text{ nm}$ (${}^3\text{F}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_6$) et $2297\text{-}2335 \text{ nm}$ (${}^3\text{H}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_5$) avec une pente de $28,3 \%$ et un seuil laser de $1,43 \text{ W}$, Fig 22 (a). Pour la transition ${}^3\text{F}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_6$ à $1,77 \mu\text{m}$, la puissance de sortie maximale atteint est de 181 mW pour une pente de $7,7 \%$. L'émission sur la transition ${}^3\text{H}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_5$ à $2,32 \mu\text{m}$ correspond à 332 mW et avec une pente de $16,3 \%$. Par rapport au fonctionnement du laser uniquement sur la transition ${}^3\text{H}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_5$, cf. Fig. 21, le seuil du laser diminue sensiblement de 2W à $1,5\text{W}$, ce qui conduit à une puissance de sortie plus élevée.

Les spectres typiques d'émission du laser en cascade sont présentés dans la Fig. 22(c). Ils dépendent faiblement de la puissance de la pompe incidente. L'émission correspondant aux transitions ${}^3\text{F}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_6$ et ${}^3\text{H}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_5$ est émise à des polarisations laser orthogonales, respectivement selon π et σ , en accord avec l'anisotropie des sections efficaces, Fig. 19.

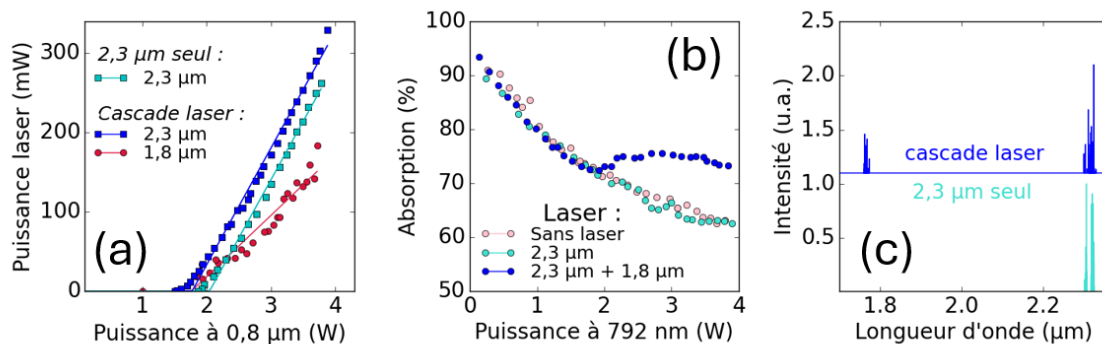


Fig. 22 : (a) Puissance de sortie à $2,3 \mu\text{m}$ en fonction de la puissance de pompe pour le Tm:CALGO (b) Absorption du Tm:CALGO (c) Spectres d'émission laser en cascade ou simple.

L'absorption de la pompe en fonction de la puissance de la pompe incidente est étudiée en conditions laser et non laser (Fig. 22(b)). Dans ce dernier cas, l'absorption diminue progressivement lorsque l'on augmente la puissance de la pompe, ce qui correspond à une saturation due au blanchiment de l'état fondamental (${}^3\text{H}_6$). Une tendance similaire est observée pour le laser fonctionnant uniquement sur la transition ${}^3\text{H}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_5$. Pour le laser en cascade, l'absorption de la pompe est bien plus importante en raison de l'effet positif de l'action du laser qui vide le niveau métastable ${}^3\text{F}_4$ et contrecarre la saturation.

3.3.1.4 Conclusion sur le Tm:CALGO

Une émission laser à $2,3 \mu\text{m}$ a, pour la première fois, été réalisée en utilisant du Tm:CALGO. L'intérêt d'ajouter un laser en cascade a de nouveau été testé et des

résultats positifs analogues à ce qui a été observé dans le Tm:YLF ont été obtenus. Les seuils des lasers obtenus sont néanmoins assez hauts et les puissances laser notablement plus faibles que dans le Tm:YLF. Le large spectre du Tm:CALGO en fait un matériau prometteur pour l'émission à verrouillage de modes et l'accordabilité mais le gain faible du thulium dans cette matrice risque néanmoins de compliquer l'alignement des cavités plus complexes telles celles adaptées au verrouillage de modes.

3.3.2 Tm:TANGSTATE

3.3.2.1 *Présentation des Tungstates*

Outre leur large spectre d'émission dont la section efficace est supérieure à $0,2 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^{-2}$ sur toute la gamme allant de 2,2 μm à 2,5 μm [Guillemot 2023] (axes Nm et Np), les tungstates dopés au thulium ont également l'avantage d'avoir de forts gains à 2,3 μm . Sur la polarisation Nm, le tungstate de potassium et de lutécium Tm:KLu(WO₄)₂ (ou Tm:KLuW) a ainsi une section efficace de $1,78 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^{-2}$ plus de trois fois supérieure à celle du Tm:YLF notamment. Son émission est fortement polarisée sur cet axe. Son large spectre tout autant que son fort gain en fait un candidat idéal pour la génération d'impulsions de quelques centaines de femtosecondes à 2,3 μm . Les mauvaises propriétés thermiques avec une conductivité faible de $3,8 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ et de forts coefficients de dilatation autour $16 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ limite néanmoins les applications pour les fortes puissances moyennes. Le développement des tungstates dopés au thulium pour l'émission laser à 2,3 μm permettrait d'avoir des lasers femtoseconde efficaces pour des applications ne nécessitant pas de fortes puissances moyennes.

3.3.2.2 *Un laser en cascade pour supprimer le laser vibronique*

Pour étudier l'intérêt des lasers thulium dans le tungstate de potassium et de lutécium, le schéma expérimental développé à la page 71 a été utilisé.

Une cavité laser double permettant un fonctionnement simultané du laser à 1,9 μm et 2,3 μm a été réalisée. Un cristal de Tm:KLuW 3% de longueur 5 mm est pompé par un laser Ti:Saphir émettant jusqu'à 3 W autour de 792 nm. Une lentille de focalisation d'une longueur focale optimisée à 100 mm est utilisée pour focaliser la pompe dans le cristal. Le diamètre de la tâche focale de la pompe est de 43 μm dans le cristal. Pour séparer l'émission sur la transition ${}^3\text{H}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_5$ à 2,3 μm de celle sur la transition ${}^3\text{F}_4 \rightarrow {}^3\text{H}_6$ à 1,9 μm , une double cavité en V imbriquée et de taille identique a été construite. Les deux cavités sont séparées à l'aide d'un miroir dichroïque revêtu pour une réflexion élevée (HR, R > 99,95 % à 2,15 - 2,4 μm) et une transmission élevée (HT, T > 99,5 % à 1,7-2,1 μm). Les deux cavités sont fermées par deux coupleurs de sortie indépendants. Le coupleur de sortie à 1,9 μm est de 2 % à 1,70 - 1,95 μm , et le coupleur à 2,3 μm est de 3 % sur la gamme 2,1 - 2,4 μm .

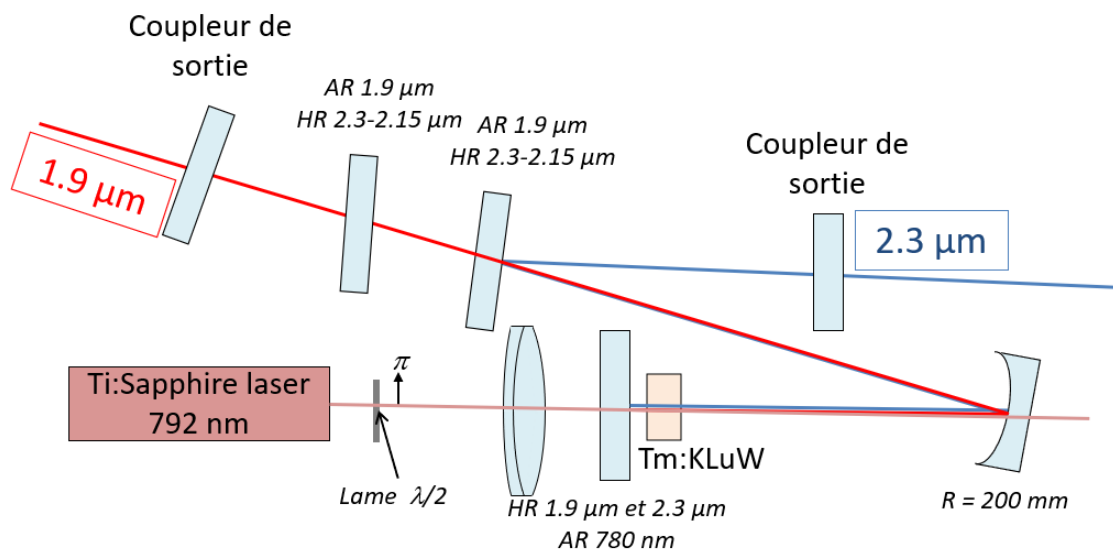


Fig. 23 : (a) Schéma expérimentale d'un laser Tm:KLuW fonctionnant en cascade

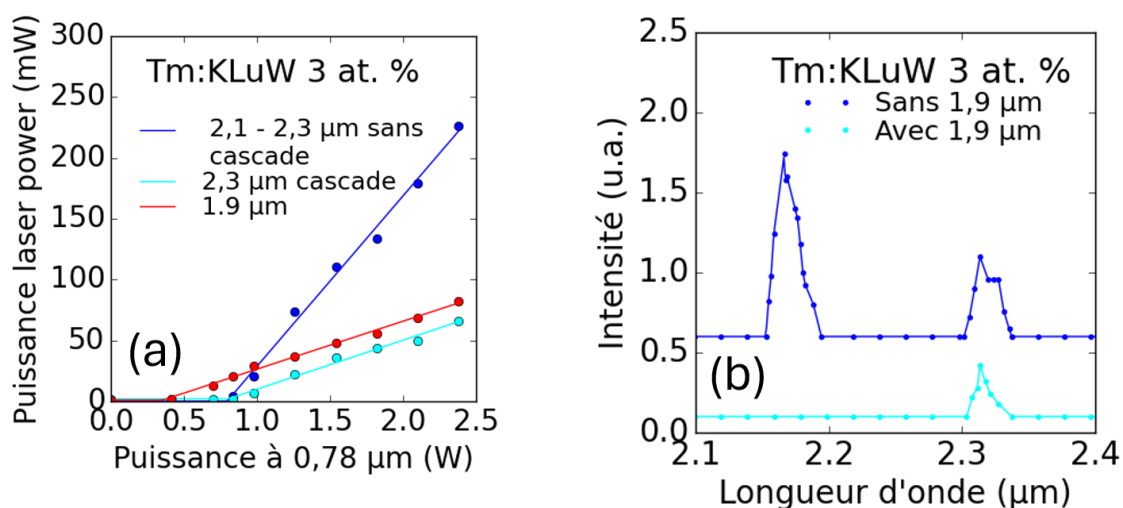


Fig. 24 : (a) Puissance des lasers en fonction de la puissance de pompe (b) Spectres d'émission du bras laser au-dessus de 2,1 μm réalisé au monochromateur.

Comme avec le Tm:YAG, une transition vibronique est également observée autour de 2,15 μm. En absence de laser en cascade à 1,9 μm, le spectre se partage alors entre la raie principale à 2,3 μm et la transition vibronique à 2,15 μm Fig. 24(b). Rajouter un laser à 1,9 μm, permet dans notre cas de supprimer la transition non souhaitée à 2,15 μm. Une autre utilité des lasers en cascade est ainsi de pouvoir remplacer l'émission vibronique non voulue à 2,15 μm par une émission à 1,9 μm qui est notablement plus facile à filtrer si on ne souhaite garder que l'émission à 2,3 μm.

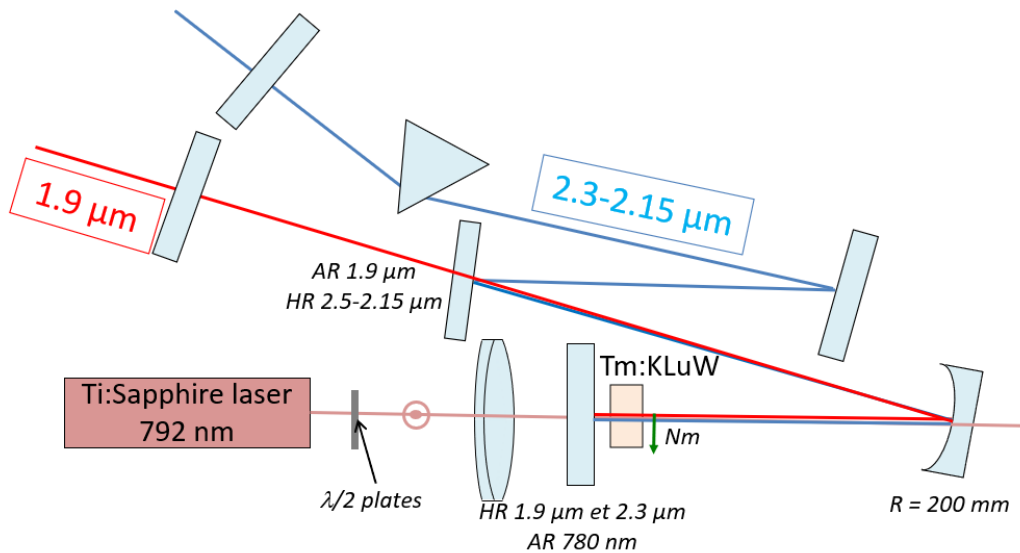


Fig. 25 : Schéma expérimentale d'un laser Tm:KLuW avec un prisme

Un prisme a été rajouté pour n'avoir un laser qu'à 2,3 μm ou qu'à 2,15 μm sur la seconde voie. Lorsque la cavité laser bleue μm est alignée pour laser uniquement à 2,15 μm , rajouter un laser à 1,9 μm supprime totalement la transition vibronique à 2,15 μm . Lorsque la cavité est alignée pour obtenir un effet laser à 2,3 μm , rajouter un laser à 1,9 μm diminue légèrement l'efficacité du laser à 2,3 μm dans une proportion qui était prévisible compte tenu du fort dopage du cristal considéré.

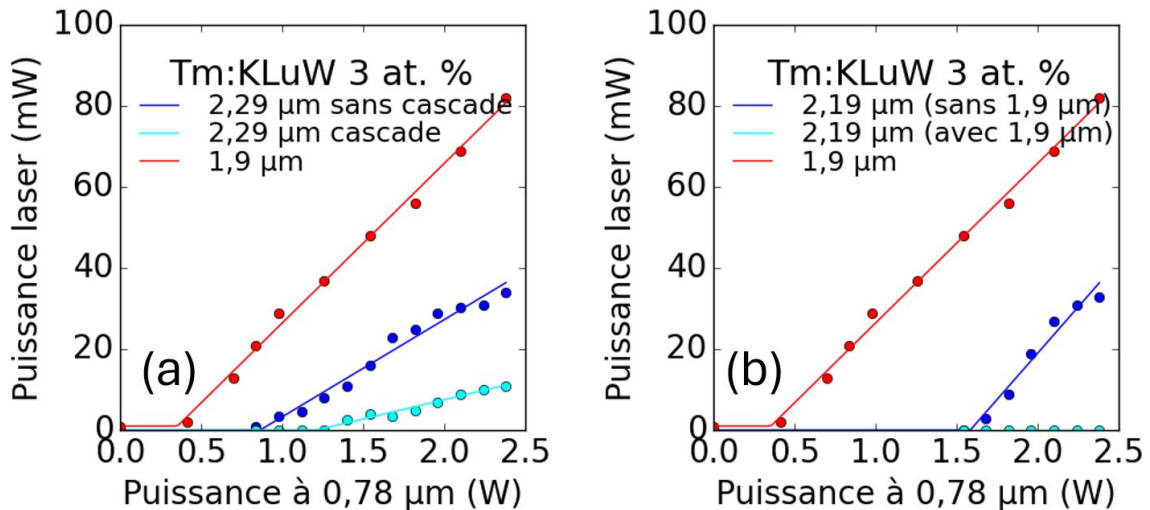


Fig. 25 : (a) Puissance des lasers à 2,3 μm en fonction de la puissance de pompe avec et sans cascade laser à 1,9 μm (b) Puissance des lasers à 2,15 μm en fonction de la puissance de pompe avec et sans cascade laser à 1,9 μm

En conclusion, le tungstate est un candidat potentiellement intéressant pour l'émission à 2,3 μm mais la présence d'une transition vibronique parasite à 2,15 μm tend à rendre ce cristal plus compliqué à utiliser que le Tm:CALGO ou le Tm:YLF. Cette transition peut néanmoins être supprimée à l'aide d'une cascade laser à 1,9 μm .

3.4 CONCLUSION

L'émission laser à 2,3 μm a été testée pour le Tm:YLF, le Tm:YAG, le Tm:CALGO et le Tm:KLuW en pompage direct autour de 0,8 μm . L'efficacité du Tm:YLF est nettement supérieure à celle des autres cristaux. Il s'agit à ce jour du cristal le plus prometteur en termes d'efficacité. Afin d'améliorer encore l'efficacité de ce cristal, l'intérêt d'ajouter un laser en cascade à 1,9 μm a été testé. Pour les faibles dopages, la présence d'une cascade permet d'augmenter l'efficacité pour le laser à 2,3 μm que ce soit en pompage Ti:Saphir ou en pompage diode. Un gain en puissance de sortie de 100% a ainsi été obtenu pour un cristal de Tm:YLF 2,5% en pompage Ti:Saphir. Un modèle semi-empirique permettant de quantifier l'intérêt de la cascade a également été développé. Ce modèle simple permet d'expliquer le rôle positif ou négatif de la cascade laser et surtout permet de prédire pour un cristal avec un dopage donné ce qu'il va se passer. Pour les oxydes, les matrices à forte énergie de phonon comme le Tm:YAG ou le Tm KLuW ont des transitions vibroniques autour de 2,1-2.25 μm qui viennent s'ajouter et perturber l'émission laser à 2,3 μm . Il a été montré que cette transition non souhaitée peut être supprimée en rajoutant un laser en cascade à 1,9 μm donnant ainsi un autre rôle à la cascade laser.

3.5 BIBLIOGRAPHIE

[Caird 1975] J. Caird, L. DeShazer, and J. Nella, "Characteristics of room-temperature 2.3- μm laser emission from Tm^{3+} in YAG and YAlO_3 ," IEEE J. Quantum Electron. 11(11), 874-881 (1975).

[Canbaz 2017] F. Canbaz, I. Yorulmaz, and A. Sennaroglu, "Kerr-lens mode-locked 23- μm Tm^{3+} :YLF laser as a source of femtosecond pulses in the mid-infrared," Opt. Lett. 42(19), 3964 (2017).

[Carter 1991] J. N. Carter, D. C. Hanna, R. G. Smart, and A. C. Tropper, "Thulium-doped fluorozirconate fiber lasers operating at around 0.8, 1.47, 1.9, and 2.3 μm pumped at 0.79 μm ," in Advanced Solid State Lasers (OSA, 1991), p. MIL13.

[Denker 2020] B. I. Denker, V. V. Dorofeev, B. I. Galagan, V. V. Koltashev, S. E. Motorin, V. G. Plotnichenko, and S. E. Sverchkov, "A 200 mW, 2.3 μm Tm^{3+} -doped tellurite glass fiber laser," Laser Phys. Lett. 17(9), 095101 (2020).

[Dupont 2023] H. Dupont, P. Loiko, A. Tyazhev, L. Giordano, Z. Pan, H. Chu, D. Li, B. Viana, A. Hideur, L. Guillemot, A. Braud, P. Camy, P. Georges, and F. Druon, "Tm:CALGO lasers at 2.32 μm : cascade lasing and upconversion pumping," Opt. Express 31(12), 18751 (2023).

[Druon 2013] F. Druon, M. Olivier, A. Jaffrès, P. Loiseau, N. Aubry, J. DidierJean, F. Balembois, B. Viana, and P. Georges, "Magic mode switching in Yb:CaGdAlO₄ laser under high pump power," Opt. Lett. 38(20), 4138-4141 (2013).

[Guillemot 2019] L. Guillemot, P. Loiko, A. Braud, J.-L. Doualan, A. Hideur, M. Koselja, R. Moncorge, and P. Camy, "Continuous-wave Tm:YAlO₃ laser at ~ 2.3 μm ," Opt. Lett. 44(20), 5077-5080 (2019).

[Guillemot 2020] L. Guillemot, P. Loiko, R. Soulard, A. Braud, J.-L. Doualan, A. Hideur, and P. Camy, "Close look on cubic Tm:KY₃F₁₀ crystal for highly efficient lasing on the $^3\text{H}_4 \rightarrow ^3\text{H}_5$ transition," Opt. Express 28(3), 3451-3463 (2020).

[Guillemot 2020b] L. Guillemot, P. Loiko, E. Kifle, J.-L. Doualan, A. Braud, F. Starecki, T. Georges, J. Rouvillain, A. Hideur, and P. Camy, "Watt-level mid-infrared continuous-wave Tm:YAG laser operating on the $^3\text{H}_4 \rightarrow ^3\text{H}_5$ transition," Opt. Mater. 101, 109745 (2020).

[Guillemot 2021] Lauren Guillemot. Etude de la transition $^3\text{H}_4 \rightarrow ^3\text{H}_5$ de l'ion Tm^{3+} pour une émission laser moyen infrarouge (entre 2 et 3 μm). Physique [physics]. Normandie Université, 2021. Français.

[Huang 2019] H. Huang, S. Wang, H. Chen, O. L. Antipov, S. S. Balabanov, and D. Shen, "High power simultaneous dual-wavelength CW and passively-Q-switched laser operation of LD pumped Tm:YLF at 1.9 and 2.3 μm ," *Opt. Express* 27(26), 38593 (2019).

[Jia 2017] C. Jia, B. J. Shastri, P. R. Prucnal, M. Saad, and L. R. Chen, "Simultaneous Q-switching of a Tm³⁺:ZBLAN fiber laser at 1.9 μm and 2.3 μm using graphene," *IEEE Photon. Technol. Lett.* 29(4), 405–408 (2017).

[Kifle 2020] E. Kifle, P. Loiko, L. Guillemot, J.-L. Doualan, F. Starecki, A. Braud, T. Georges, J. Rouvillain, and P. Camy, "Watt-level diode-pumped thulium lasers around 2.3 μm ," *Appl. Opt.* 59(25), 7530-7539 (2020).

[Loiko 2014] P. Loiko, F. Druon, P. Georges, B. Viana, and K. Yumashev, "Thermo-optic characterization of Yb:CaGdAlO₄ laser crystal," *Opt. Mater. Express* 4(11), 2241-2249 (2014).

[Loiko 2019] P. Loiko, R. Souldard, L. Guillemot, G. Brasse, J.-L. Doualan, A. Braud, A. Tyazhev, A. Hideur, F. Druon, and P. Camy, "Efficient Tm:LiYF₄ Lasers at 2.3 μm Effect of Energy-Transfer Upconversion," *IEEE Journal of Quantum Electronics* 55(6), 1–12 (2019).

[Loiko 2021] P. Loiko, E. Kifle, L. Guillemot, J.-L. Doualan, F. Starecki, A. Braud, M. Aguiló, F. Díaz, V. Petrov, X. Mateos, and P. Camy, "Highly efficient 2.3 μm thulium lasers based on a high-phonon-energy crystal: evidence of vibronic-assisted emissions," *J. Opt. Soc. Am. B* 38(2), 482 (2021).

[Perlin 2001] E. Yu. Perlin, A. M. Tkachuk, M.-F. Joubert, and R. Moncorge, "Cascade-avalanche up-conversion in Tm³⁺:YLF crystals," *Opt. Spectrosc.* 90(5), 691–700 (2001).

[Sévilano 2014] P. Sévilano, P. Georges, F. Druon, D. Descamps, and E. Cormier, "32-fs Kerr-lens mode-locked Yb:CaGdAlO₄ oscillator optically pumped by a bright fiber laser," *Opt. Lett.* 39(20), 6001-6004 (2014).

[Souldard 2018] R. Souldard, P. Loiko, G. Brasse, J.-L. Doualan, A. Braud, A. Tyazhev, A. Hideur, B. Guichardaz, L. Guillemot, F. Druon, and P. Camy, "Efficient bulk and waveguide Tm:LiYF₄ lasers at 2306 nm," in *Laser Congress 2018 (ASSL)* (OSA, 2018), p. ATu2A.32.

[Stoneman 1989] R. C. Stoneman, L. Esterowitz, and G. H. Rosenblatt, "Tunable 2.3- μm Tm³⁺:LiYF₄ Laser," in *Advanced Solid State Lasers* (OSA, 1989), p. DD2.

[Yorulmaz 2018] I. Yorulmaz and A. Sennaroglu, "Low-Threshold Diode-Pumped

2.3 μm Tm³⁺:YLF Lasers," IEEE J. Select. Topics Quantum Electron. 24(5), 1–7 (2018).

[Walsh 2004] B. M. Walsh, N. P. Barnes, M. Petros, J. Yu, and U. N. Singh, "Spectroscopy and modeling of solid state lanthanide lasers: Application to trivalent Tm³⁺ and Ho³⁺ in YLiF₄ and LuLiF₄," J. Appl. Phys. 95(7), 3255–3271 (2004).

[Wang 2019] S. Wang, H. Huang, H. Chen, X. Liu, S. Liu, J. Xu, and D. Shen, "High efficiency nanosecond passively Q-switched 23 μm Tm:YLF laser using a ReSe₂ -based saturable output coupler," OSA Continuum 2(5), 1676 (2019).

[Wang 2021] Y. Wang, X. Su, Y. Xie, F. Gao, S. Kumar, Q. Wang, C. Liu, B. Zhang, B. Zhang, and J. He, "17.8 fs broadband Kerr-lens mode-locked Yb:CALGO oscillator," Opt. Lett. 46(8), 1892-1895 (2021).

[Zaouter 2006] Y. Zaouter, J. Didierjean, F. Balembois, G. Lucas Leclin, F. Druon, P. Georges, J. Petit, P. Goldner, and B. Viana, "47-fs diode-pumped Yb³⁺:CaGdAlO₄ laser," Opt. Lett. 31(1), 119-121 (2006).

4 POMPAGE A AVALANCHE DE CRISTAUX DOPEES THULIUM : VERS DES LASERS DE HAUTES PUISSANCES

Le pompage à avalanche en général repose sur une absorption de deux photons de pompe pour émettre un photon laser. Des échanges d'énergie entre ions peuvent améliorer l'efficacité de ce pompage via un processus dit d'avalanche de photons [Joubert 1993]. Cette technique fut en premier lieu développée dans le thulium pour une émission dans le bleu [Nguyen 1990] [Paschotta 1997] via un pompage à 0,8 μm mais fut néanmoins abandonnée face à l'arrivée des diodes lasers bleues. Elle fut également utilisée pour avoir une émission laser à 1,47 μm sur la transition $^3\text{H}_4$ vers $^3\text{F}_4$ du thulium via un pompage à 1 μm [Komukai 1995]. Dans le même esprit l'intérêt du pompage à 1 μm a récemment été démontré pour l'émission laser à 2,3 μm sur la transition $^3\text{H}_4$ vers $^3\text{H}_5$ [Guillemot 2019] [Morova 2020]. Cette partie traitera de l'intérêt du pompage à avalanche à 1 μm pour l'émission laser à 2,3 μm dans les cristaux dopés thulium. Nous verrons que ce type de pompage à première vue peu efficace peut néanmoins s'avérer utile et compétitif pour la réalisation de lasers de fortes puissances à 2,3 μm .

Comme vu au Chapitre 2, les fluorures ont des gains plus importants en pompage à avalanche par rapport aux oxydes. Pour cette raison, nous nous sommes principalement intéressés à ces cristaux dans ce chapitre et plus particulièrement au Tm:YLF dont les performances sont remarquables à cette longueur d'onde. La section efficace d'absorption par l'état fondamental y est faible, de l'ordre de $\sigma_{GSA} = 0,001 \times 10^{-24} \text{ m}^{-2}$ car la transition ne se fait pas au maximum des raies mais sur les queues d'absorption. Concernant l'absorption par l'état excité (ESA), cette seconde absorption comporte des raies assez fines Fig. 4(b) et dépend grandement du pic qu'on est en mesure d'adresser avec la pompe qu'on utilise. La valeur de la section efficaces de ces pics est comprise entre $0,6 \times 10^{-24} \text{ m}^{-2}$ et $0,2 \times 10^{-24} \text{ m}^{-2}$ pour le Tm:YLF par exemple. Pour cette raison et dans l'ensemble du chapitre, le spectre d'émission de la pompe sera mis en parallèle avec la section efficace de l'ESA.

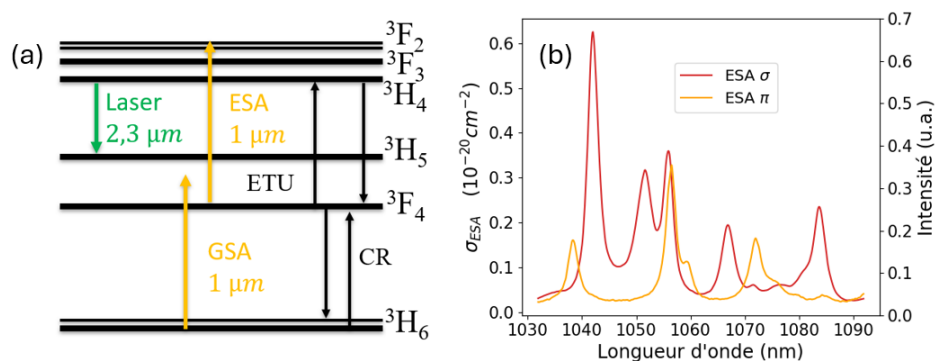


Fig. 1 : Niveaux d'énergie du thulium. ESA : absorption par l'état excité, GSA : absorption par l'état fondamental, ETU : upconversion, CR : relaxation croisée.

4.1 POMPAGE A AVALANCHE A L'AIDE D'UNE SOURCE LASER ACCORDABLE A BASE D'YTTERBIUM

Un certain nombre de sources de pompe existe à 1 μm basées sur les technologies néodyme ou ytterbium. Les sources ytterbium ont néanmoins l'avantage de pouvoir atteindre de fortes puissances moyennes lorsque des fibres sont utilisées [Nilsson 2003]. Par rapport au néodyme, ces sources sont largement accordables sur la plage 1030 nm-1080 nm et permettent ainsi d'atteindre précisément un des pics d'absorption du thulium à 1 μm .

Dans notre cas d'étude, nous avons opté pour un laser solide à base d'Yb:CaF₂ dont les propriétés d'accordabilité sont similaires à celles des fibres, malgré une plus faible puissance moyenne. Une source maison pouvait en effet être réalisée rapidement et est présentée en Fig. 2.

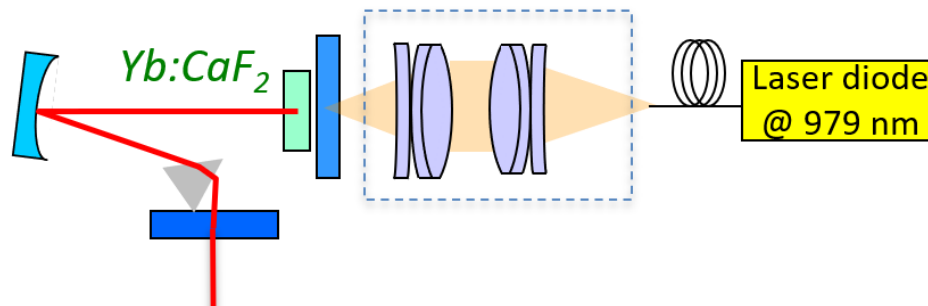


Fig. 2 : Schéma du laser à Yb:CaF₂ accordable pour le pompage à avalanche.

Ce laser est basé sur un cristal d'Yb:CaF₂ 2 % pompé par une diode laser InGaAs couplée à une fibre à 979 nm. Une cavité laser en forme de V est composée d'un miroir de pompe plan, d'un miroir concave haute réflexion à 1 μm ($R = 200$ mm) et d'un coupleur de sortie de 3%. L'accordabilité en longueur d'onde est réalisée en insérant un prisme en verre SF10 près du coupleur de sortie. Le maximum de la puissance de sortie du laser Yb:CaF₂ accordable est observée à $\sim 1,05$ μm . Le laser Yb accordable délivre jusqu'à 1 W à $\lambda_{P,UC} = 1050$ nm avec une largeur de raie : ~ 3 nm et une polarisation linéaire. Sans prisme, en régime libre, le laser Yb peut être émettre 3 W à une longueur d'onde centrale de 1050 nm. La taille du faisceau de pompe du laser Yb est ajustée à l'aide d'un système de télescope afocal composé de deux lentilles (L2 : $f = 75$ mm, L3 : $f = 100$ mm).

4.1.1 Schéma expérimental

La source précédente a été utilisée pour pomper un cristal de Tm:YLF 3,5% de longueur 8 mm. Le faisceau de pompe est focalisé avec une lentille de 50 mm sur un waist de $2w = 30 \pm 5$ μm . Il est également possible d'utiliser une lentille de focalisation de 150 mm. Les faces du cristal sont polies avec un bon parallélisme et ne sont pas traitées. Le cristal est contacté à un support en cuivre et il est refroidi passivement. Une cavité laser hémisphérique est réalisée et composée d'un miroir de pompe plan avec une

transmission élevée à $1\ \mu\text{m}$ ($T = 95\%$) et une réflexion élevée (HR, $R > 99,9\%$) à $2,3\ \mu\text{m}$. Le coupleur de sortie est plan-concave ($R = 100\ \text{mm}$) avec une transmission de 2% à $2,3\ \mu\text{m}$. Pour éviter l'émission laser à $1,9\ \mu\text{m}$, les transmissions des miroirs sont élevées sur ces gammes de longueur d'onde. La longueur géométrique de la cavité est de $99\ \text{mm}$.

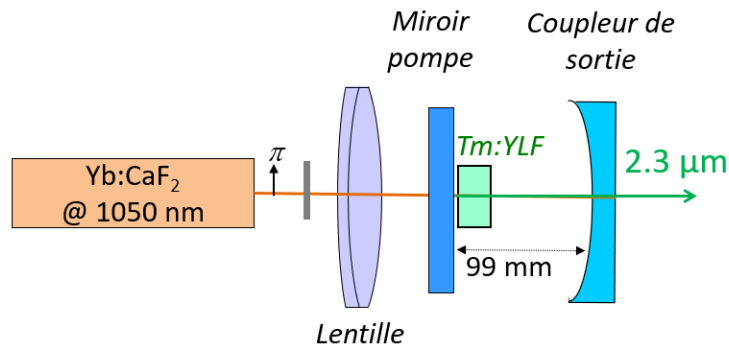


Fig. 3 : Schéma expérimental du pompage à avalanche pour une cavité hémisphérique.

4.1.2 Un modèle simple pour une absorption limitée

La longueur d'onde de ce laser Yb:CaF₂ est accordable en continu de 1043 à $1054\ \text{nm}$. Pour justifier le choix de la longueur d'onde de la pompe que nous utiliserons, nous avons étudié l'absorption de la pompe en fonction de la longueur d'onde et de la puissance de la pompe incidente. L'absorption de pompe la plus élevée est observée à $1050\ \text{nm}$ Fig. 4(b), en accord avec les spectres ESA des ions Tm³⁺ dans le YLF pour la polarisation σ , cf. Fig. 4(a). Un certain niveau de pompe caractéristique du pompage à avalanche est nécessaire pour atteindre une sorte de plateau pour l'absorption de la pompe ($\sim 30\%$). Cette augmentation de l'absorption peut s'expliquer par la non-linéarité du pompage à avalanche et a été développée de façon théorique au Chapitre 2. Expérimentalement, l'ajustement de la longueur d'onde de la pompe pour viser précisément l'un des pics de l'ESA est important. Dans le cas contraire, nous ne sommes pas en mesure d'enclencher correctement l'avalanche de photons et d'atteindre une absorption raisonnablement élevée.

Cette absorption peut être modélisée de façon plus simple et moins exhaustive que ce qui a été fait dans le Chapitre 2 en la comprenant de la façon suivante. A faible intensité de pompe, une première absorption non résonnante vient peupler le niveau 3F_4 puis le niveau 3H_4 par absorption par l'état excité. L'absorption est alors très faible. Dès lors que le niveau 3H_4 est davantage rempli et que le seuil laser est atteint, un état d'équilibre se met en place dans lequel le niveau 3F_4 est vidé par sa propre fluorescence et est rempli par la relaxation croisée. Un photon de pompe vient renvoyer l'ion qui s'est retrouvé sur le niveau 3F_4 via la relaxation croisée sur le niveau 3H_4 . Lorsque l'état d'équilibre est retrouvé, la relaxation croisée n'a apporté qu'un ion au niveau 3F_4

puisque le second a servi pour revenir à l'état d'équilibre (le facteur 2 disparaît donc du terme de relaxation croisée). De plus, comme on le verra expérimentalement dans une prochaine partie, les flux laser et de pompe depuis l'état excité se compensent. Le flux de pompe depuis l'état fondamental peut facilement être considéré comme négligeable. Sous ces hypothèses et en reprenant les notations de la table des notations, il est alors possible de calculer une estimation de l'absorption dans cet état d'équilibre :

$$\begin{cases} n_{3H_4} : \text{imposé par le gain et les pertes dans la cavité } (\sim 1\%) \\ n_{3H_4} + n_{3F_4} + n_{3H_6} \approx n_{3F_4} + n_{3H_6} = 1 \text{ (conservation des ions)} \\ C_{RC} N^2 n_{3H_4} n_{3H_6} - \frac{n_{3F_4}}{T_2} = 0 \text{ (Bilan sur le niveau } ^3F_4) \end{cases}$$

Il est alors possible d'estimer une valeur de la population du niveau 3F_4 :

$$n_{3F_4} = \frac{C_{RC} N^2 n_{3H_4}}{C_{RC} N^2 n_{3H_4} + \frac{1}{T_2}}$$

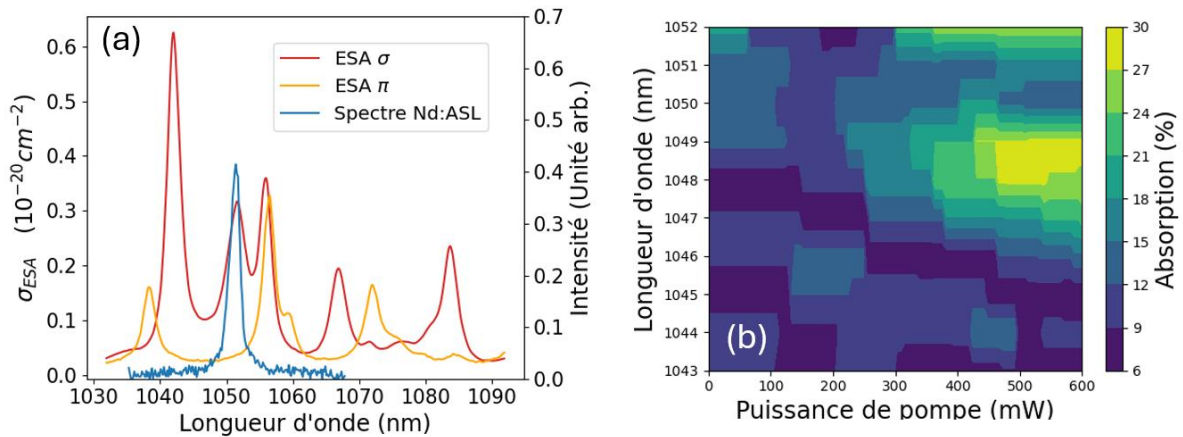


Fig. 4 : (a) Section efficace d'absorption par l'état excité et spectre d'émission du Yb:CaF₂ à 1050 nm. (b) Absorption de la pompe en fonction de la longueur d'onde et de la puissance de pompe pour une focale de 150 mm.

Nous prenons comme section efficace d'absorption $\sigma_{ESA} = 0,3 \times 10^{-24} \text{ m}^{-2}$ dans notre cas (Fig. 4 (a)) et les valeurs données dans la table du Chapitre 2. En appliquant la loi de Beer-Lambert avec cette population, on trouve une absorption de l'ordre de 40 %. C'est légèrement plus haut que ce qui a été mesuré pour une focalisation de 150 mm Fig. 4 (b) mais l'ordre de grandeur est cohérent avec ce qui a été mesuré avec une plus forte focalisation ($f=50\text{mm}$) Fig. 7(a). L'ordre de grandeur est donc le bon.

Ce calcul permet également de se rendre compte que l'absorption peut difficilement augmenter en changeant les propriétés du cristal. En effet, il faut notablement augmenter le niveau de dopage vers 6 % pour espérer avoir des absorptions supérieures à 80% mais nous avons vu au chapitre 2 que cela n'est pas favorable à

l'inversion de population à 2,3 μm . De plus, les forts dopages ont tendance à poser davantage de problèmes thermiques (voir Chapitre 5).

4.1.3 Des performances limitées avec du Tm:YLF

En utilisant une lentille de 50 mm, une puissance de sortie de 110 mW à 2,31 μm a été obtenue. La pente η est de 7,6 % par rapport à la puissance de pompe incidente et le seuil laser est de 0,51 W. Cependant, l'efficacité de la pente par rapport à la puissance de pompe absorbée est relativement élevée : 29%. Le rayonnement est linéairement polarisé (π). Son état de polarisation est imposé par l'anisotropie du milieu à gain. Pour illustrer l'intérêt de focaliser fortement dans le cristal, les courbes caractéristiques ont été tracées pour deux lentilles de $f = 50$ mm et $f = 150$ mm. En utilisant cette dernière lentille, la puissance de sortie maximale du laser n'est que de 80 mW avec un seuil de 1,2 W. Cette manip illustre l'idée vue au chapitre 2 qu'il est nécessaire d'avoir de fortes intensités pour avoir un pompage à avalanche efficace.

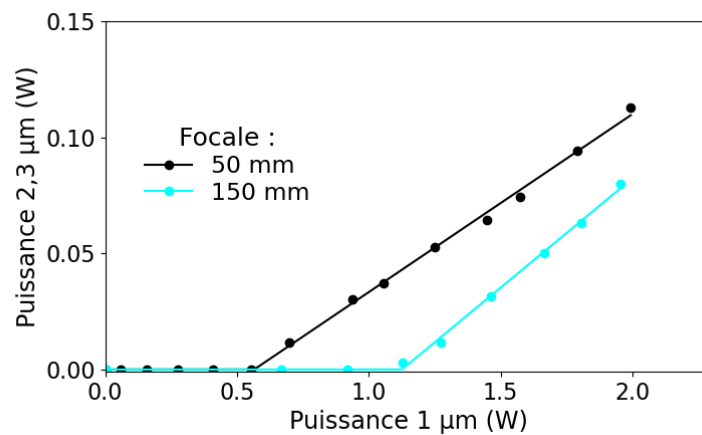


Fig. 5 : Puissance à 2,3 μm versus la puissance de pompe à 1 μm pour différentes focalisations.

Ces puissances de sortie sont faibles mais comparables aux précédents résultats de la littérature [Guillemot 2019] [Morova 2020]. Nous allons dans la suite tenter d'améliorer l'efficacité du pompage à avalanche.

4.1.4 Le double pompage

Aider le pompage à avalanche à être plus efficace en rajoutant une pompe à 0,8 μm est une idée séduisante. L'idée est de forcer le niveau 3F_4 à être davantage peuplé en rajoutant une seconde pompe à 0,8 μm pour « amorcer » la pompe à 1 μm . Par ce processus, on est alors en mesure d'augmenter l'absorption de la pompe à 1 μm . Cette idée a été testée d'un point de vue expérimental. Le laser Ti:Saphir du Chapitre 3 a été combiné avec la pompe à 1 μm via un cube polariseur dans la mesure où les maxima des sections efficaces à 0,8 μm et à 1 μm sont obtenus pour des polarisations croisées. Une lentille de focalisation de 50 mm est utilisée et pour le reste, les paramètres

expérimentaux sont identiques à la précédente partie.

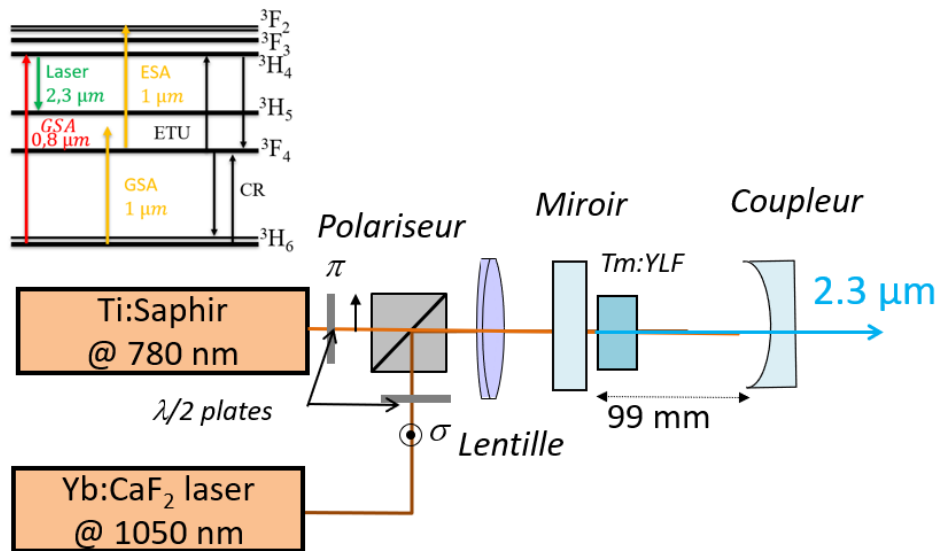


Fig. 6 : Schéma expérimental du double pompage avec du Tm:YLF.

Il est possible de remarquer qu'ajouter de la pompe à 0,8 μm permet effectivement d'augmenter l'absorption de la pompe à 1 μm . Cette augmentation de l'absorption est néanmoins limitée pour les fortes puissances de pompe à 1 μm et est beaucoup plus impactant à très faible puissance (Fig. 7a). Ainsi, dans notre cas, ajouter 0,5 W de pompe à 0,8 μm fait passer l'absorption de 32% à 43% pour des puissances de 1 μm supérieures à 400 mW. Ajouter ce même pompage à 0,8 μm permet également d'éviter d'avoir des absorptions négligeables à faible puissance de pompe à 1 μm dans la mesure où le niveau 3F_4 est prérempli par la pompe à 0,8 μm et dans ce cas-là l'absorption peut être multipliée par presque 3.

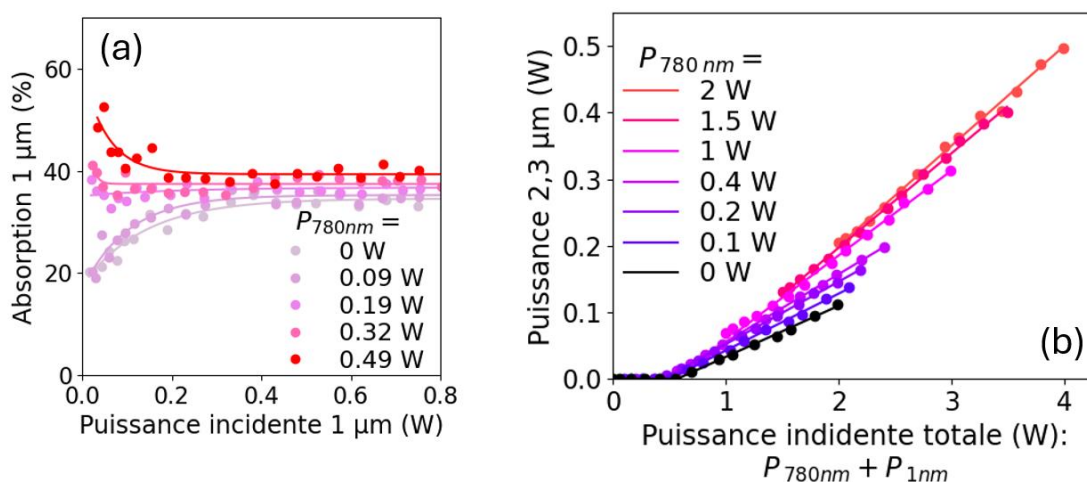


Fig. 7 : (a) Absorption de la pompe à 1 μm en fonction de la puissance incidente à 1 μm et différentes valeurs de puissances fixées à 0,8 μm (b) Puissance à 2,3 μm vs. la puissance incidente totale pour différentes valeurs fixes de puissances à 0,8 μm . Dans ses deux cas, la focale est de 50 mm pour la lentille de focalisation de la pompe.

Concernant les puissances de sortie à $2,3 \mu\text{m}$, rajouter une pompe à $0,8 \mu\text{m}$ permet principalement de doubler la pente de la puissance à $2,3 \mu\text{m}$ vs. la puissance incidente à $1 \mu\text{m}$ qui passe de 7% à 15% pour 2W à $0,8 \mu\text{m}$ Fig. 7(b) et Fig. 8(b). Le seuil du laser à $2,3 \mu\text{m}$ est aussi significativement réduit en présence d'une faible pompe à $1 \mu\text{m}$. Le double pompage reste néanmoins un système complexe à mettre en place car il comprend deux sources de pompe brillantes. Du reste, les performances restent moindres que ce qui peut être réalisé à l'aide d'un pompage direct où des pentes de 20 % peuvent être obtenues. Un double pompage a également été testé à l'aide de diode laser mais les performances sont encore plus faibles [Wang 2021].

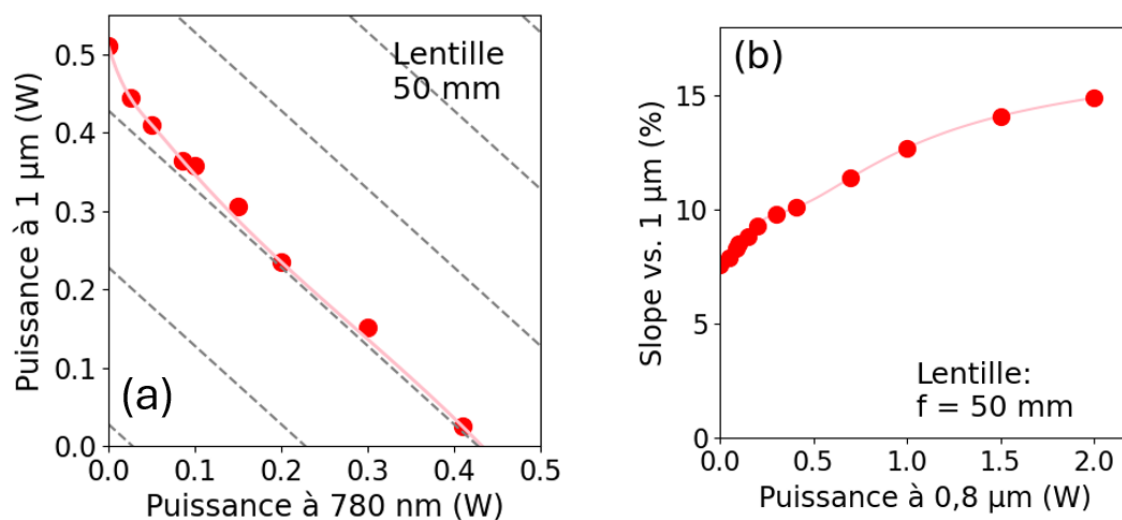


Fig. 8 : (a) Seuil du laser à $2,3 \mu\text{m}$ en fonction des deux puissances de pompe à $1 \mu\text{m}$ et à $0,8 \mu\text{m}$. Les courbes en pointillées représentent les iso-puissances ceci permettant de comparer l'impact du double pompage par rapport une même puissance de pompe totale (b) Pente de la caractéristique en fonction de la puissance incidente à $1 \mu\text{m}$ pour différentes valeurs fixes de puissance à $0,8 \mu\text{m}$. Dans ses deux cas, focale est de 50 mm.

4.1.5 Comprendre le fonctionnement du pompage à avalanche à l'aide d'une cascade

L'émission laser par pompage à avalanche n'a pas été obtenue avec un Tm:CALGO 3% de longueur 5mm, même avec des puissances de pompe allant jusqu'à 10W et pour un faisceau de pompe limité par diffraction. Un tel résultat était prévisible à l'aide de nos modélisations Chapitre 2. Malgré cela, pour étudier brièvement le pompage à avalanche dans le Tm:CALGO, un double pompage a été réalisé. Le schéma expérimental est identique au précédent (Fig. 6) à la différence près que le Tm:YLF a été remplacé par du Tm:CALGO. La bande d'émission à $1,9 \mu\text{m}$ du Tm:CALGO étant plus large, il est possible de laser sur le bord de la raie à $1,8 \mu\text{m}$. Nous avons donc obtenu un double laser à $2,3 \mu\text{m}$ et à $1,8 \mu\text{m}$ pompé par deux lasers à $1 \mu\text{m}$ et $0,8 \mu\text{m}$. Il est possible de montrer que la puissance de sortie de ses deux lasers peut être ajustée en changeant les deux puissances de pompe Fig. 10. Ce phénomène singulier pourrait

avoir des applications éventuelles pour des expériences pompes-sondes en permettant de changer indépendamment la pompe et la sonde dans un même laser.

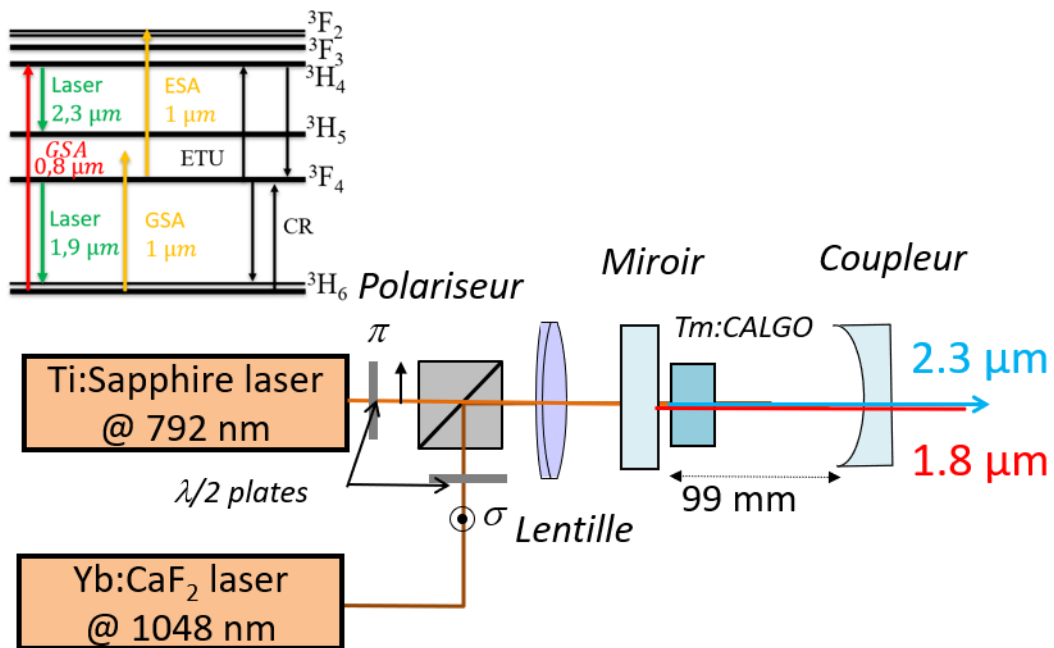


Fig. 9 : Schéma expérimental du double pompage avec du Tm:CALGO avec une cascade.

Il a également été remarqué qu'augmenter la puissance de pompe à 1 μm n'a pas vraiment d'incidence sur la puissance à 1,8 μm qui reste globalement constante. Cela signifie qu'en condition laser à 2,3 μm , pomper depuis le niveau 3F_4 ne vide pas ce niveau. Dans ce type de pompage, les ions restent piégés entre le niveau 3F_4 et 3H_4 de telle manière que le flux de pompe à 1 μm et le flux laser à 2,3 μm se compensent. Ce résultat intéressant tend à confirmer l'hypothèse que nous avons faite pour l'estimation rapide de l'absorption selon laquelle ces deux derniers flux se compensent.

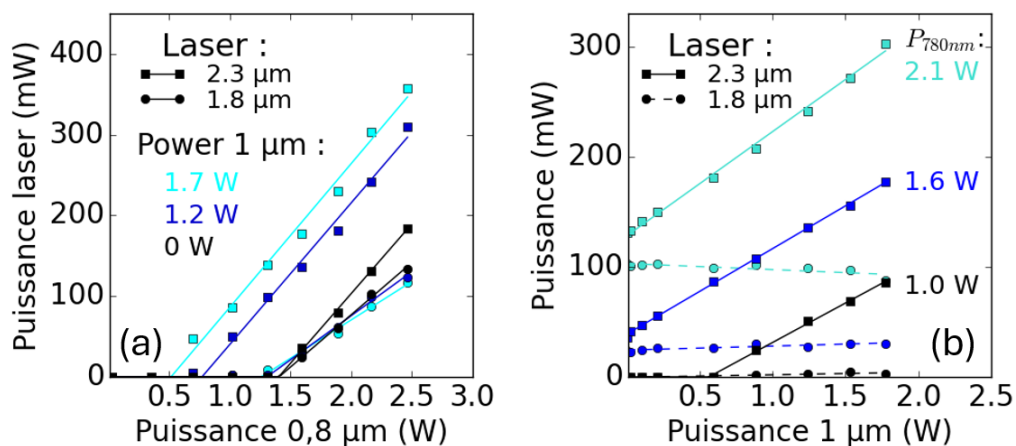


Fig. 10 : (a) Puissances de sortie en fonction de la puissance à 0,8 μm pour différentes puissances fixées à 1 μm . (b) Puissances de sortie en fonctions de la puissance à 1 μm pour différentes puissances fixées à 0,8 μm .

4.2 POMPAGE A AVALANCHE EN INTRACAVITE : UNE VOIE PROMETTEUSE POUR ATTEINDRE DES LASERS DE FORTE PUISSANCE A 2.3 μM

4.2.1 Les raisons du pompage en intracavité

Dans la précédente partie, nous avons vu que l'intérêt du pompage à avalanche pour les lasers thulium émettant à 2,3 μm à l'aide de sources ytterbium comme pompe « externe » était limité. Les puissances de sortie sont basses et les lasers peu efficaces en raison d'une absorption faible de la pompe à 1 μm . Or comme on l'a dit, cette absorption peut difficilement être augmentée en changeant les paramètres du cristal. Partant de ce constat, nous avons souhaité pomper un laser thulium à l'intérieur d'une cavité à base de cristaux dopés au néodyme. En effet, le pompage en intracavité résout un grand nombre des problèmes du pompage à avalanche. Premièrement, il est possible d'atteindre de très fortes intensités de pompe à 1 μm à l'intérieur d'une cavité. Nous avons vu au chapitre 2 que l'utilisation de pompe de forte intensité était nécessaire pour obtenir un pompage à avalanche efficace. Deuxièmement, le pompage en intracavité permet d'augmenter considérablement l'efficacité de pompage. Même avec de faibles absorptions dans les cristaux, la puissance à 1 μm reste confinée dans la cavité et finira par être absorbée par le thulium au bout d'un certain nombre de passages. Cette technique est donc prometteuse pour avoir des lasers efficaces à 2,3 μm via un pompage à avalanche.

Par le passé, des pompes analogues en intracavité ont déjà été réalisés pour des lasers à colorant [Kohn 1971] ou des lasers néodyme [Herault 2008]. Ce pompage est principalement utilisé aujourd'hui pour pomper de l'holmium à partir de cristal dopé au thulium [Stoneman 1992] [So 2006].

4.2.2 Le Néodyme : un ion adaptée pour pomper le Tm:YLF dans la même cavité

Les cristaux dopés au néodyme sont particulièrement intéressants pour le pompage en intracavité. Les forts gains de cet ion rendent possible l'insertion de cristaux dopés au thulium venant créer quelques dizaines de pourcents de pertes dans la cavité à 1 μm . Par contraste, cela aurait été plus difficile avec des cristaux dopés à l'ytterbium où le gain est notablement plus faible. Le second avantage du néodyme est sa finesse spectrale. Il est ainsi possible d'adresser précisément un pic d'absorption du thulium dont la largeur est de l'ordre de quelques nanomètres. Cela aurait été plus difficile avec de l'ytterbium dont le large spectre d'émission peut permettre au laser de se décaler facilement du pic où les pertes sont maximales.

4.2.3 Pompage intracavité haute puissance et haute efficacité

Nous nous sommes intéressés dans cette partie au pompage en intracavité à l'aide de deux matrices différentes dopées au néodyme. En premier lieu, le Nd:ASL permet d'adresser précisément un pic d'absorption du Tm:YLF autour de 1051 nm. En second lieu, le Nd:YVO₄ permet d'avoir des puissances de pompe intracavité plus importantes mais à 1064 nm et donc en dehors du maximum du pic d'absorption. Ces deux études fournissent une comparaison entre le pompage résonnant et non résonnant à 1 μm .

4.2.3.1 Pompage résonnant à l'aide de Nd:ASL : des premiers résultats prometteurs

Comme matériaux à gain pour cette première démonstration de principe du schéma de pompage avalanche en intracavité, nous avons utilisé un cristal Tm:YLF dopé à 2,5% (8 mm d'épaisseur) et un cristal d'aluminate de strontium-lanthanum de formule suivante $\text{Sr}_{1-x}\text{Nd}_y\text{La}_{x-y}\text{Mg}_x\text{Al}_{12-x}\text{O}_{19}$ dopé à 3 % en Nd^{3+} (abrégié : Nd:ASL). Ce cristal fait 10 mm de longueur et est conditionné pour être pompé à forte puissance dans la mesure où son diamètre est petit (1 mm) et qu'il est brasé dans une monture en cuivre pour un très bon contact thermique. Ce choix a été fait compte tenu aussi des performances prometteuses précédemment obtenues pour le Tm:YLF dans le cadre d'un pompage à avalanche [Guillemot 2021] et de la correspondance intéressante entre le spectre d'absorption du Tm^{3+} dans le YLF et la longueur d'onde d'émission laser du Nd:ASL (1051 nm), voir Fig. 11. Les sections efficaces d'absorption par l'état excité correspondantes sont de $0,32 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ pour la polarisation σ et de $0,04 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ pour la polarisation π à 1051 nm. La section efficace d'émission stimulée des ions Nd^{3+} dans l'ASL à 1051 nm est de $0,32 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ pour la polarisation σ avec une forte anisotropie en faveur de cette polarisation qui impose une polarisation linéaire du laser selon l'axe σ de l'ASL.

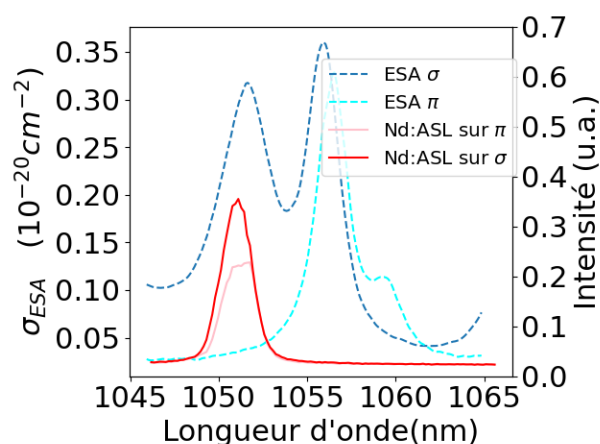


Fig. 11 : Sections efficaces d'absorption par l'état excité du Tm:YLF et spectre d'émission du Nd:ASL autour de 1050 nm. Deux émissions laser du Nd:ASL sont représentées selon l'orientation du cristal de Tm:YLF : orienté pour avoir une absorption selon son axe π ou σ . L'émission du Nd:ASL est quant à elle toujours polarisée selon l'axe σ du cristal Nd:ASL grâce à l'anisotropie des sections efficaces de ce cristal. On notera que l'émission laser du Nd:ASL reste fixée autour de

fuite du premier miroir plano-concave dont la transmission est de 0,27% (expliquant les grandes barres d'erreurs de mesures sur l'absorption fig. 14). Le rayonnement de la pompe à 1,05 μm est polarisé linéairement, ce qui correspond à polarisation σ dans le cristal Tm:YLF.

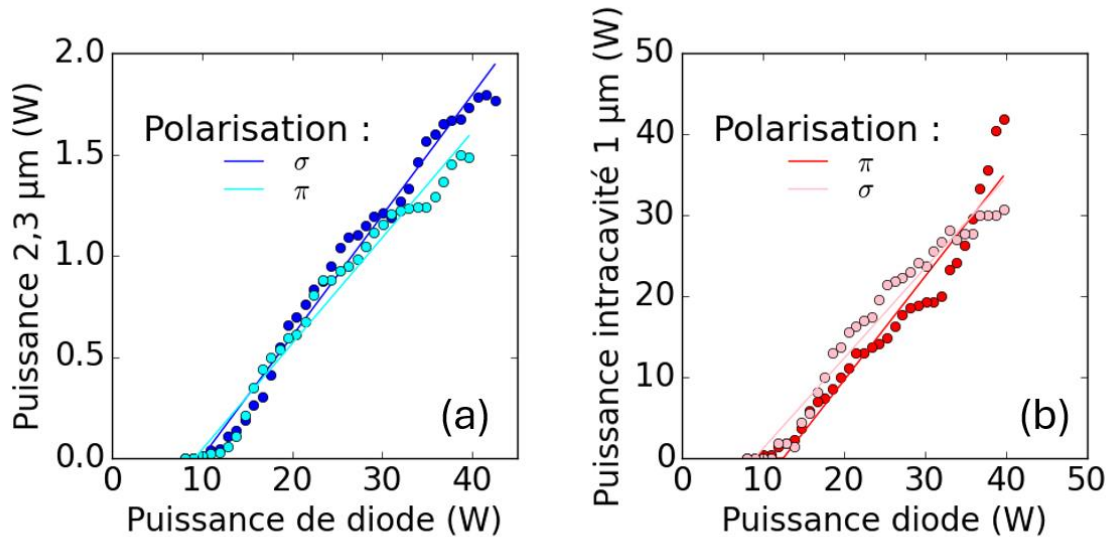


Fig. 13 : (a) Puissance à 2,3 μm vs. la puissance incidente de diode lorsque la pompe à 1 μm adresse la polarisation π ou σ . (b) Puissance à 1 μm vs. la puissance incidente de diode lorsque la pompe à 1 μm adresse la polarisation π ou σ .

L'absorption de la pompe à 1051 nm dans le Tm:YLF est de 20 % par passage. A très basse puissance de pompe, l'absorption est faible et correspond majoritairement à l'absorption par l'état fondamental car l'intensité est trop faible pour remplir suffisamment le niveau 3F_4 et accéder à la forte absorption par l'état excité. L'absorption augmente dans ce cas là avec l'intensité de pompe. Or, nous ne sommes plus du tout dans le même régime d'absorption que dans le cas du pompage extra-cavité réalisé avec l'Yb:CaF₂. En pompage intracavité la puissance devient très vite importante et on se situe bien au-delà du régime où l'intensité est trop faible pour remplir le niveau 3F_4 et où l'absorption augmente avec la puissance de pompe. Pour le pompage à haute puissance, l'absorption sature même vers 30 % voire commence à décroître légèrement. Ceci peut être expliquée par la relaxation croisée et l'upconversion comme le montre la bonne adéquation avec le modèle numérique simulant les équations des populations. Modifier les coefficients de la relaxation croisée et de l'upconversion nous a en effet permis de valider leur importance dans cette saturation de l'absorption. La puissance maximale à 2,3 μm obtenue est limitée par la lentille thermique dans le cristal de Nd:ASL qui devient difficile à compenser pour des puissances de pompe à 0,8 μm supérieures à 42 W.

A notre connaissance, cette puissance de sortie constitue à ce jour un premier record de puissance à 2,3 μm pour le pompage à avalanche tous matériaux confondus, fibres et cristaux. À titre de comparaison, [Guillemot 2019] a obtenu 0,10 W à 2,30 μm en

pompant un cristal Tm:YLF avec 0,8 W de puissance de pompe absorbée à 1,04 μm et [Morova 2020] a réalisé un laser Tm:KYF délivrant 0,12 W à 2,34 μm pour 2,36 W de puissance de pompe incidente à 1,06 μm . L'architecture laser développée permet également d'obtenir, pour tout type de pompages confondus, la puissance de sortie continue la plus élevée à 2,3 μm en utilisant un cristal Tm:YLF. Jusqu'à présent [Kifle 2020] détenait le record de puissance en continu de 1,7 W en pompage diode, leur source pouvant également délivrer 2,11 W à 2,30 μm mais en quasi-continu à cause des limitations thermiques. Ainsi, le schéma de pompage en intracavité améliore non seulement l'efficacité du pompage à avalanche d'un ordre de grandeur, mais le rend également clairement compétitif avec rapport au pompage direct par diode.

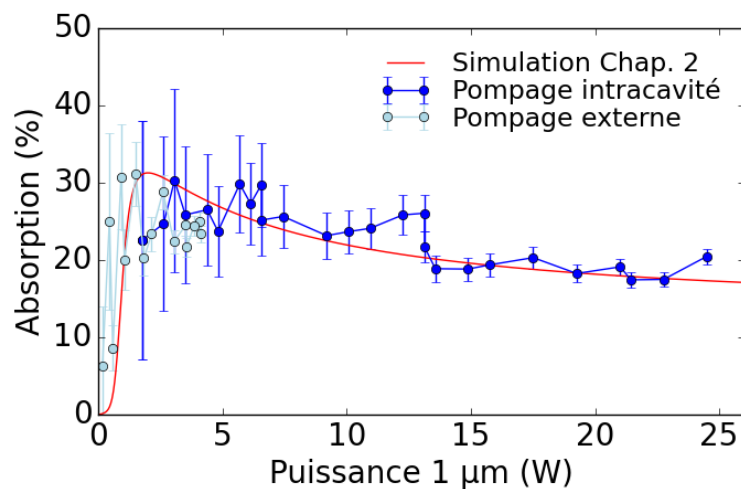


Fig. 14 : Puissance absorbée pour un passage dans le cristal de Tm:YLF pour un pompage en intracavité ou à l'aide d'une source néodyme extérieure pour les faibles puissances de pompe. Une simulation reprenant le modèle développé au Chap. 2 a été tracée.

De ce point de vue, l'un des avantages du pompage à avalanche par rapport au pompage direct par diode repose sur la gestion de la thermique répartie notamment sur les deux cristaux. Le chauffage important dû au pompage par diode à haute puissance est localisé dans le cristal de Nd:ASL et la disponibilité commerciale de cristaux dopés au Nd^{3+} et refroidis de manière optimale permet une gestion thermique simple. De plus, la charge thermique résiduelle des lasers néodyme est nettement meilleure que celle des lasers thulium fonctionnant à 2,3 μm . Cela implique que, dans notre cas, l'échauffement du cristal Tm:YLF reste modéré même à ce niveau élevé de puissance de pompe primaire. En effet, lorsque le cristal Tm:YLF est aligné pour être pompé à 1 μm en polarisation σ , le gradient de température mesuré à la surface de ce cristal n'est que de 15 $^{\circ}\text{C}$. En l'absence d'émission laser à 2,3 μm , ce gradient est de 7 $^{\circ}\text{C}$. Les notions de thermiques seront discutées en détail au chapitre 5.

Un point essentiel à considérer dans le pompage laser intracavité concerne la forte interaction entre l'absorption du Tm:YLF et la puissance intracavité de 1,05 μm , puisque

le premier effet peut être considéré comme des pertes intracavité pour le laser néodyme. Ce point peut être facilement vérifié en utilisant le fait que les sections efficaces d'absorption des ions Tm^{3+} dans le YLF sont différentes pour les polarisations σ et π . Le cristal peut être tourné de 90° pour l'aligner selon l'une ou l'autre de ses polarisations avec le laser à $1 \mu m$. Lorsque l'on oriente le cristal $Tm:YLF$ pour un pompage en polarisation π , l'absorption à $1,05 \mu m$ diminue drastiquement ainsi que les pertes pour le laser néodyme. L'absorption mesurée à $1,05 \mu m$ passe en effet de 20 % à seulement 8 % par passage et la puissance intracavité augmente jusqu'à 40 W dans cette dernière configuration (pour une puissance laser-diode de 42 W). *In fine*, ces deux effets se compensent et la puissance de sortie à $2,3 \mu m$ ne chute que de manière marginale. On obtient 1,51 W pour le pompage en polarisation π . Ainsi, malgré les fortes différences d'absorption entre les polarisations π et σ , leur effet sur l'émission laser à $2,3 \mu m$ est assez limité. Ces résultats mettent en évidence l'adaptabilité du schéma de pompage intracavité par rapport à l'absorption du cristal $Tm:YLF$. Lorsque l'absorption de la pompe à $1,05 \mu m$ diminue, les pertes à $1 \mu m$ diminuent et la puissance intracavité à cette longueur d'onde tend à augmenter. La tolérance à l'absorption du thulium est considérablement améliorée car diminuer l'absorption ici revient à augmenter la puissance de pompe à $1 \mu m$. Cette grande adaptabilité à l'absorption du thulium est un avantage clé du schéma de pompage à avalanche en intracavité par rapport au pompage externe à $1 \mu m$. En effet, ce dernier schéma est très sensible aux variations de l'intensité de la pompe et à la concentration du dopage Tm^{3+} , et le choix du cristal laser est donc particulièrement critique. Ce n'est plus vraiment le cas avec le pompage en intracavité.

On peut noter que le fait d'utiliser un laser dopé au Nd permet de fixer la longueur d'onde d'émission et que même pour un cristal (l'ASL) dont la largeur d'émission est considérée comme « large » pour un Nd [Lin 2024], la variation correspondante de la longueur d'onde centrale est faible avec un décalage de 0,7 nm. Cependant, le spectre autour de 1051 nm et donc l'absorption de la pompe à cette longueur d'onde sont sensibles à la variation de polarisation et à l'alignement. Cette auto-adaptation, peut amener dans notre processus d'optimisation basée sur la puissance du laser à $2,3 \mu m$ à une grande variabilité sur les performances du laser à $1,05 \mu m$ car le laser à $2,3 \mu m$ peut donner des puissances similaires avec plusieurs configurations (*id est* puissance à $1 \mu m$ et absorption : une diminution de l'absorption pouvant être compensée par une augmentation de la puissance intracavité). Ces variabilités sont visibles dans le tracé de l'absorption (Fig. 14) où des variations rapides d'absorption sont visibles correspondant à de légères variations de longueur d'onde. L'effet sur les performances du laser à $2,3 \mu m$ est néanmoins limité.

Qui dit pompage intracavité, implique aussi un couplage entre les lasers et de potentielles sources d'instabilités. Or, dans notre cas, aucune instabilité temporelle ni aucun décalage de la longueur d'onde du laser à $1,05 \mu m$ n'est observée dans le temps pour des valeurs de pompes et un alignement fixé. Le laser à $2,3 \mu m$ est stable également.

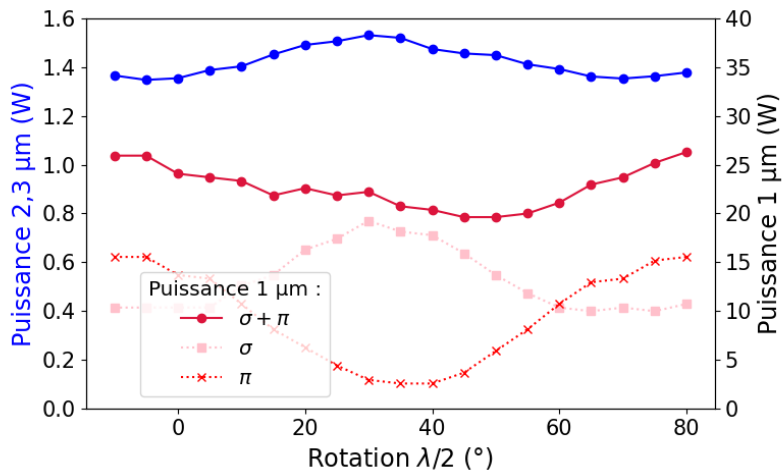


Fig. 15 : Puissance à 2,3 μm et à 1 μm lorsqu'une $\lambda/2$ est ajoutée et tournée dans la cavité néodyme avant le premier passage dans le cristal de Tm:YLF. (Cf Fig. 12)

L'adaptabilité du pompage en intracavité peut également être observée en introduisant une lame demi-onde avant la lentille de focalisation ($f = 80$ mm) dans la cavité du laser néodyme. Dans ce cas, nous avons mesuré une polarisation linéaire inchangée après le cristal Nd:ASL. Avant le Tm:YLF, une polarisation est linéaire et devient une combinaison linéaire des absorptions sur les axes de polarisation propres π et σ du Tm:YLF. La polarisation π du Tm:YLF et l'axe neutre de la lame d'onde se confondent pour un angle de rotation de 0° . Lorsque l'angle augmente, la rotation de la polarisation à 1,05 μm tend à réduire la puissance intracavité à 1,05 μm de 25 % dans le pire des cas en raison d'une plus forte absorption du Tm:YLF. Dans le même temps, la puissance à 2,3 μm augmente de 19 %. Notez que la variation de la lentille thermique due aux variations de puissance à 1,05 μm et 2,3 μm n'est pas compensée pendant la rotation de la lame d'onde.

Une autre question clé liée au schéma de pompage intracavité où l'intensité du laser à 1,05 μm est très élevée, concerne la population des niveaux excités de 1D_2 et 1G_4 . En effet, à des niveaux aussi élevés d'intensité laser à 1,05 μm dans le cristal, on observe une fluorescence visible intense aux longueurs d'onde de 300 à 500 nm (Fig. 16). Celle-ci était d'une intensité bien moindre dans les précédents pompage. La possibilité d'une absorption à 1 μm significative depuis le niveau 3H_4 n'est pas négligeable, et on peut se demander si cet effet peut limiter les performances du laser à 2,3 μm . Nous avons donc mesuré cette fluorescence avec et sans émission laser à 2,3 μm pour obtenir des informations sur la population des niveaux 1D_2 , 1G_4 et 3H_4 . La figure 16 montre les correspondances entre les longueurs d'onde de fluorescence et les transitions de l'ion thulium. Ce schéma indique également les rapports de branchement (en pourcentages) et les durées de vie de fluorescence des états excités, d'après [Guillemot 2021] [Walsh 1998]. Les principaux pics de fluorescence y sont attribués.

plusieurs lignes de fluorescence, ainsi que celles avec et sans laser à 2,3 μm , on peut calculer les populations pour les niveaux d'énergie. En présence de laser à 2,3 μm , les populations $^1\text{D}_2$, $^1\text{G}_4$ et $^3\text{H}_4$ sont respectivement de 1×10^{-4} %, 0,03 % et 1 %. Sans laser à 2,3 μm , elles s'élèvent à 0,08 %, 0,3 % et 10 %, respectivement. Bien que la population du niveau $^1\text{G}_4$ ne soit pas négligeable sans laser à 2,3 μm , sa population diminue considérablement sous l'action du laser, ce qui réduit son impact négatif potentiel. Cette diminution est due à la diminution de la population du niveau $^3\text{H}_4$ depuis laquelle se faisait l'absorption à 1 μm vers le niveau $^1\text{G}_4$.

En conclusion, les résultats obtenus mettent en évidence le potentiel du schéma de pompage en intracavité pour l'émission laser dans le Tm:YLF à 2,3 μm . Il a été montré que l'adaptabilité du schéma de pompage en intracavité par rapport à l'absorption à du Tm:YLF joue un rôle important dans l'amélioration des performances du laser. Comme la puissance intracavité s'adapte à l'absorption à 1,05 μm , le problème de la faible absorption dans les cristaux de Tm:YLF pompés à 1 μm observée en pompage « extracavité » n'apparaît plus comme une limitation. Il s'agit là d'un avantage essentiel du schéma de pompage avalanche en intracavité. La puissance de sortie obtenue dans le présent travail, qui constitue non seulement la première preuve de concept, mais est d'ores et déjà compétitive par rapport aux lasers Tm:YLF à 2,3 μm pompés directement par diode. De plus, comparé à ce dernier schéma de pompage, le chauffage du cristal Tm est relativement faible et ne représente pas de limitation pour l'augmentation de la puissance, ce qui ouvre de nouvelles perspectives intéressantes pour les lasers de forte puissance à 2,3 μm basés sur la technologie du thulium.

4.2.3.2 Pompage non résonnant à l'aide de Nd:YVO₄ : l'efficacité d'un cristal à fort gain

Il a été vu dans la précédente partie qu'il n'était pas forcément nécessaire d'avoir une bonne absorption dans le cristal de Tm:YLF pour avoir un pompage efficace en intracavité. En effet, dans le cadre du pompage à 1051 nm à l'aide du Nd:ALS, de fortes puissances moyennes ont été obtenues même lorsque la pompe à 1051 nm n'est pas selon la polarisation π du Tm:YLF. Partant de ce constat, il est alors légitime de se demander s'il n'est pas plus intéressant de pomper à 1 μm en dehors des maximums des pics d'absorption, notamment à 1064 nm. En effet, les cristaux dopés au néodyme émettant à 1064 nm ont des gains plus élevés que le Nd:ASL et ont l'avantage notable d'être très facilement disponibles commercialement. Parmi ces cristaux, les vanadates ont des gains particulièrement élevés qui permettraient de compenser la plus faible absorption du thulium par des puissances très élevées à l'intérieur de la cavité. De plus, c'est un cristal anisotrope, ce qui favorise le contrôle de la polarisation de la pompe à 1 μm en intracavité.

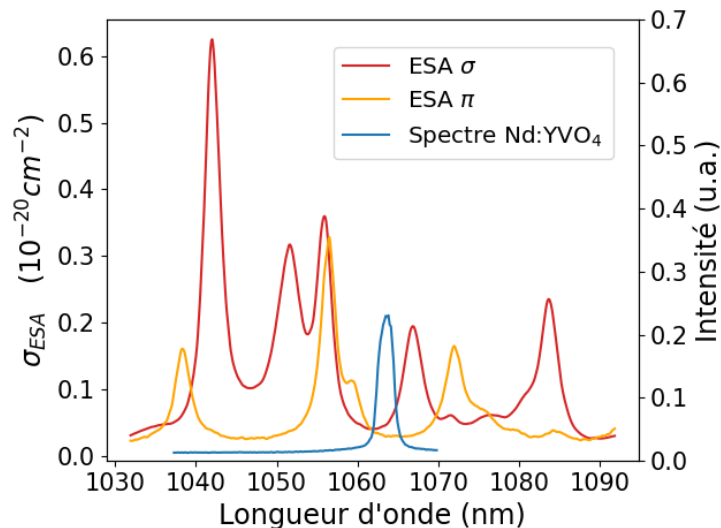


Fig. 18 : Section efficace d'absorption par l'état excité et spectre d'émission du Nd:YVO₄ à 1064 nm.

Des cristaux de Tm:YLF dopé à 2%, 2,5%, 3% et 6% avec respectivement une longueur de 10 mm, 8 mm, 8 mm et 5 mm ont été utilisés. Un cristal de Nd:YVO₄ dopé à 1 % (5 mm d'épaisseur) a été pris dans ce cas. Les sections efficaces d'absorption à 1064 nm par l'état excité correspondantes sont de $0,08 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ pour la polarisation σ et de $0,04 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ pour la polarisation π . Ces dernières valeurs sont largement plus faibles qu'à 1050nm, cf. Fig. 18. La section efficace d'émission stimulée des ions Nd³⁺ dans le YVO₄ à 1064 nm est de $12 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ pour la polarisation π avec une forte anisotropie en faveur de cette polarisation qui impose une polarisation linéaire du laser selon l'axe π du YVO₄.

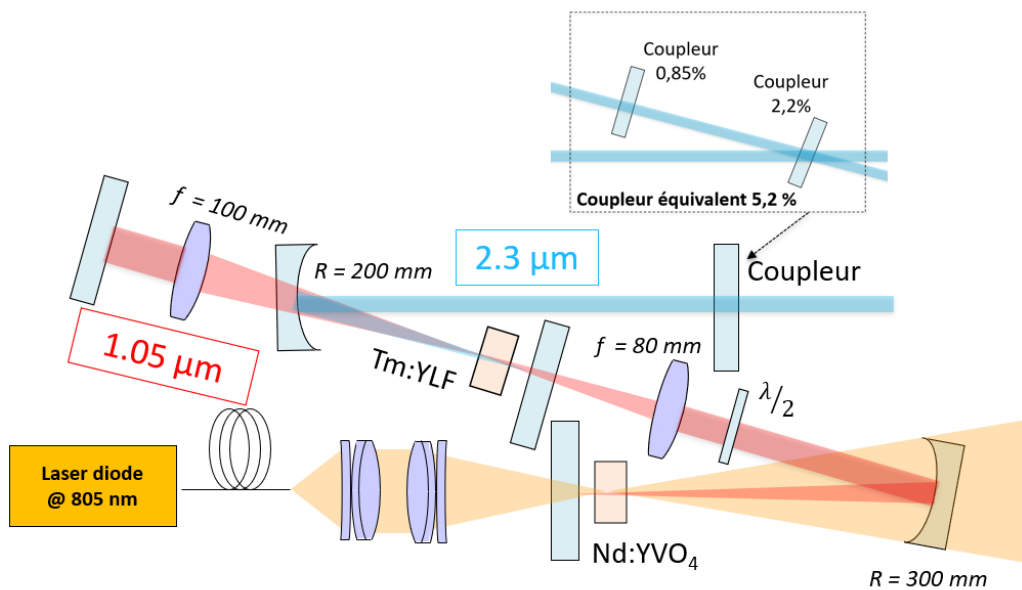


Fig. 19 : Schéma expérimental du pompage en intracavité du Tm:YLF par du Nd:YVO₄

Le schéma expérimental est analogue au précédent. Les points de différence sont les suivants. La source de pompage primaire est ici une diode laser haute puissance avec un diamètre de cœur de fibre de 200 μm, émettant jusqu'à 40 W à 805 nm (légèrement décalée par rapport au pic d'absorption du Nd :YVO₄). Le miroir de pompe du Nd:YVO₄ est directement placé sur l'une des faces du cristal via un traitement haute réflexion à 1064 nm et haute transmission à 0,8 μm. Les faisceaux de 1,05 μm et de 2,3 μm sont TEM₀₀. Différents coupleurs de sorties peuvent être utilisés à 2,3 μm.

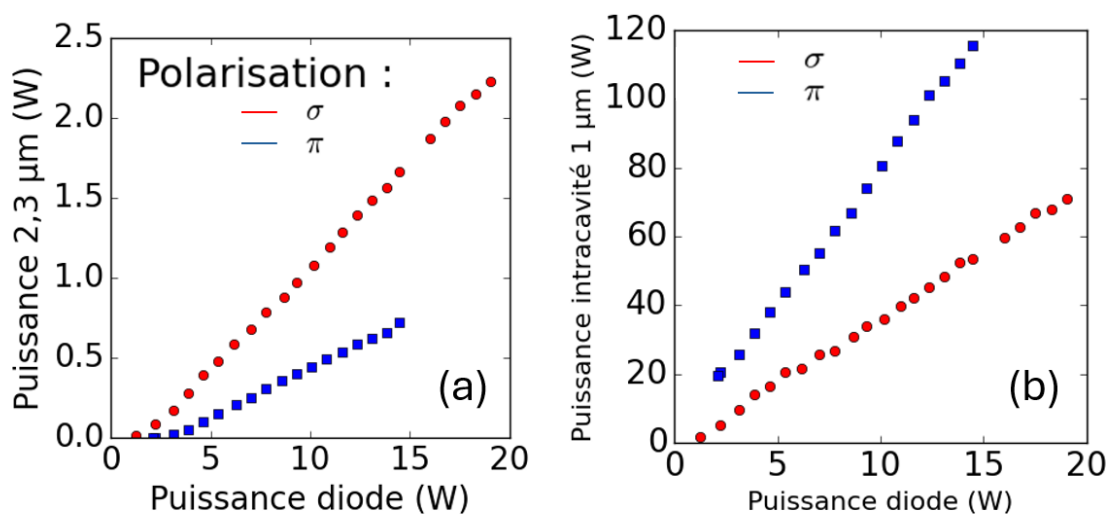


Fig. 20 : (a) Puissance à 2,3 μm lorsque la pompe à 1 μm adresse la polarisation π ou σ du Tm:YLF. (b) Puissance à 1 μm lorsque la pompe à 1 μm adresse la polarisation π ou σ du Tm:YLF.

Dans un premier temps, un coupleur de 3 % à 2,3 μm a été utilisé. Dans cette nouvelle configuration, une puissance de 2,23 W à 2,3 μm a été obtenue pour une puissance de pompe de diode laser de 19 W (Fig. 20). La pente par rapport à la puissance incidente de diode est de 13%. Cela correspond à une puissance intracavité avant le Tm:YLF de 70 W à 1064-nm calculée sur la base de la fuite du premier miroir plano-concave dont la transmission est de 0,1%. Le rayonnement de la pompe à 1,05 μm est polarisé linéairement, qui correspond à polarisation σ dans le cristal Tm:YLF. L'absorption est alors mesurée à $6 \pm 2\%$ à pour une puissance de pompe de 19 W. Lorsque le cristal de Tm:YLF est tourné de 90° pour que la pompe à 1 μm soit selon la polarisation π , une puissance de 0,72 W à 2,3 μm a été obtenue pour une puissance de pompe de diode laser de 14,5 W. Cela correspond à une puissance intracavité avant le Tm:YLF de 120 W à 1064-nm avec une absorption dans le Tm:YLF de $2 \pm 1\%$.

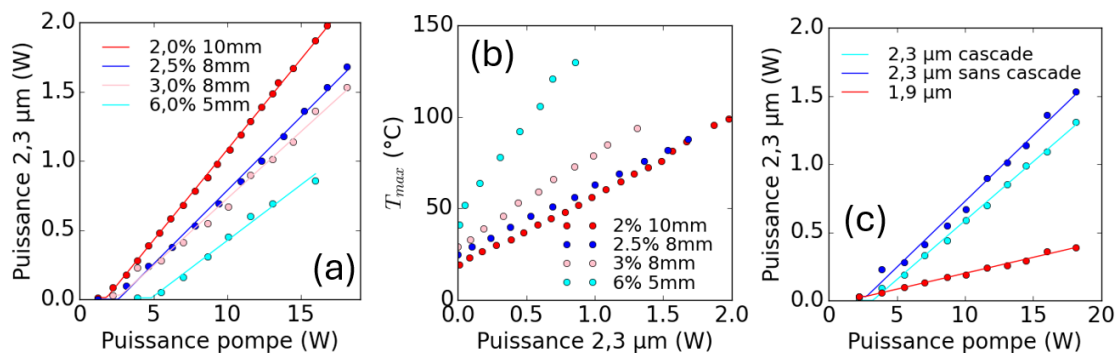


Fig. 22 : (a) Puissance à 2,3 μm lorsque la pompe à 1 μm adresse la polarisation σ du Tm:YLF pour différents dopage en thulium (b) Température au centre du laser en face arrière du cristal de Tm:YLF pour différents dopage. (c) Puissance de sortie à 2,3 μm en présence ou non d'une cascade laser à 1,9 μm pour un Tm:YLF 3%.

Nous avons, dans un second temps, cherché à savoir quel était le dopage optimal pour le pompage en intracavité. L'ensemble des cristaux de Tm:YLF présenté a ainsi été étudié avec une pompe à 1 μm . Le pompage se fait selon l'axe σ où l'absorption à 1,06 μm et l'efficacité laser à 2,3 μm sont les plus fortes. Le coupleur utilisé pour cette étude est de 3,1 %. On mesure des absorptions de $6 \pm 2\%$, $7 \pm 2\%$, $9 \pm 2\%$, $10 \pm 2\%$ pour des cristaux respectivement dopés à 2%, 2,5%, 3%, 6%. On peut noter que pour les dopages les plus élevés à partir de 3 % typiquement, il était possible d'avoir une cascade laser à 1,9 μm Fig. 22 (c). Or pour le pompage à avalanche, le laser à 1,9 μm s'avère négatif pour l'émission laser à 2,3 μm . Cela s'explique par le fait que le laser à 1,9 μm vient limiter l'absorption (ESA) à 1,06 μm en vidant le niveau 3F_4 . Pour éviter ce second laser délétère, nous avons placé avant le coupleur de sortir un miroir plan avec une haute transmission à 1,9 μm et une haute réflexion à 2,3 μm . Une fois ce problème résolu, il a pu être remarqué que plus le dopage était élevé, plus il était difficile d'obtenir de fortes puissances à 2,3 μm (pour une même puissance de pompe). Par ailleurs, plus le dopage en thulium est important, plus l'échauffement local du cristal est fort Fig. 22 (b) et le risque de fracture élevé. Dans la mesure où le cristal dopé à 2% permet d'obtenir les plus fortes puissances de sortie à 2,3 μm avec l'échauffement le plus faible,

ce cristal est donc celui utilisé dans la suite de l'étude.

Nota bene : La thermique est présentée ici sous la forme d'une optimisation expérimentale. Les raisons de la corrélation entre l'échauffement et la puissance à 2,3 μm et l'influence du dopage sur cet échauffement seront détaillées plus précisément au chapitre 5 liant points de vue théorique et expérimental.

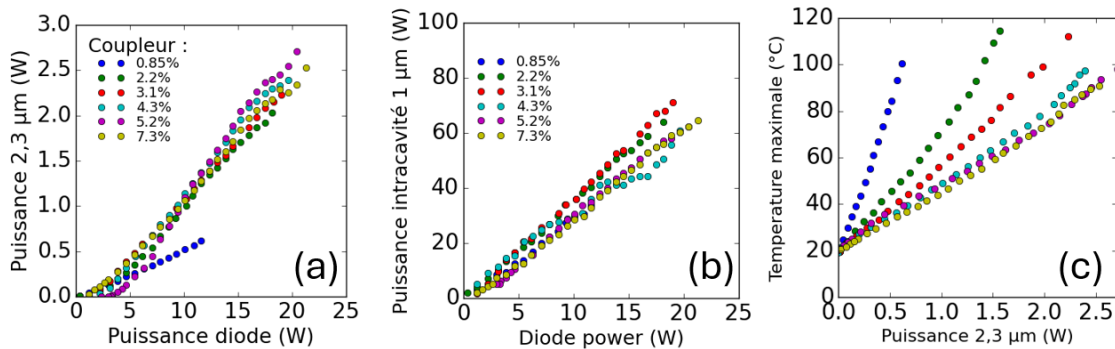


Fig. 23 : (a) Puissance à 2,3 μm lorsque la pompe à 1 μm est polarisée selon σ du Tm:YLF dopée à 2% pour différents coupleurs de sorties (b) Puissance à 1 μm pour les mêmes conditions. (c) Température maximale mesurée à la surface du cristal en fonction de la puissance à 2,3 μm et pour différents coupleurs utilisés.

La puissance à 2,3 μm a été, dans un second temps, optimisée en testant différentes transmissions pour les coupleurs de sortie à 2,3 μm . Trois coupleurs de sortie calibrés ont ainsi pu être utilisés de transmission 0,85%, 2,2% ou 3,1%. Les coupleurs de plus hautes transmissions ont été réalisés en combinant plusieurs de ces coupleurs de sortie tel que présenté à la Fig. 19. Les puissances de chaque sortie ont été sommées. Pour un coupleur équivalent de 5,2% une puissance de 2,70 W a ainsi été obtenue pour une puissance incidente de diode de 20,4 W et une pente de 17%. En plaçant une lame de germanium d'épaisseur 1 mm avant le coupleur de sortie, un gain de 1,7 par passage dans le Tm:YLF a été mesuré pour cette même puissance de pompe.

Nous avons, dans un second temps, observé que l'augmentation de la transmission du coupleur de sortie permettait de diminuer l'échauffement du cristal (en plus de permettre une optimisation de la puissance de sortie). En effet, l'échauffement du Tm:YLF est fortement liée à la puissance intracavité à 2,3 μm et donc au coupleur. Pour un échauffement constant, augmenter la transmission du coupleur nous a ainsi permis de pomper plus fort sans prendre de risque pour le cristal. Notre recherche de coupleur optimal ne s'est pas fait comme classiquement à puissance de pompe constante. L'optimisation du coupleur s'est ainsi faite de façon à augmenter la puissance à 2,3 μm tout en diminuant la charge thermique dans le cristal, et ceci jusqu'à que ce soit la thermique dans le Nd:YVO₄ qui devienne le facteur limitant. Pour éviter tout risque d'endommagement, nous nous sommes donc limités à une température maximale autour de 100 $^{\circ}\text{C}$ à la surface des deux cristaux.

Nota bene : Des notions de thermique spécifiques à l'émission laser à 2,3 μm et utiles pour la montée en puissance seront développées dans le Chapitre 5 qui est dédié à la

thermique.

Les puissances obtenues à 2,3 μm ainsi que le gain à 2,3 μm , tout autant que les fortes pentes caractéristiques rendent ce pompage en intracavité particulièrement intéressant comparé aux précédents résultats avec le Tm:YLF. Des puissances obtenues sont notablement plus élevées que ce qui avait été obtenu en pompage intracavité avec le Nd:ASL et sont également bien au-delà de ce qui avait été obtenu en pompage direct par diode laser.

Des améliorations technologiques supplémentaires concernant le refroidissement permettrait sans doute de gagner encore en puissance. Il est à noter également que l'utilisation de Nd:YVO₄ à la place de Nd:ASL réduit considérablement l'effet particulièrement limitant de la lentille thermique du néodyme que nous avons observé avec l'ASL. Cependant ce cristal dopé au Nd devient aussi une cause de limitation dans notre cas et son conditionnement pourrait être lui aussi amélioré.

4.2.3.3 Conclusion sur le pompage en avalanche en intracavité : une voie privilégiée pour la montée en puissance

Les deux expériences réalisées précédemment permettent de montrer l'intérêt du pompage en intracavité pour la montée en puissance des lasers à 2,3 μm . Cette méthode est clairement compétitive par rapport au pompage diode direct. Dans ce cas, il n'est même pas nécessaire de pomper sur un pic d'absorption du Tm:YLF. Pomper à 1064 nm à l'aide de cristaux néodyme à fort gain permet d'obtenir de très fortes efficacités de pompage pour l'émission laser à 2,3 μm .

4.2.4 Les cavités couplées : une alternative au pompage en intracavité compatible avec les lasers néodyme commerciaux

4.2.4.1 Pompage résonnant à l'aide de Nd:YLF : des puissances records à 2.3 μm au prix d'une plus faible efficacité

Nous nous intéressons dans cette partie au fait d'utiliser un autre cristal dopé au néodyme communément utilisé et facilement disponible : le Nd:YLF. Une de ces émissions laser à 1053 nm (selon la polarisation σ) est en effet proche du pic d'absorption à 1050 nm du Tm:YLF. Des gains élevés peuvent être obtenus, mais ils restent néanmoins inférieurs à ceux des vanadates dans des conditions similaires. La section efficace d'émission stimulée selon la polarisation σ des ions Nd^{3+} dans le YLF est de $10 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ à 1053 nm. Néanmoins l'émission à 1047 nm étant plus favorable et sur la polarisation π , il est nécessaire de placer un polariseur dans la cavité pour sélectionner l'émission à 1053 nm. La section efficace d'absorption par l'état excité correspondantes dans le Tm:YLF est de $0,22 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ pour la polarisation σ et de $0,05 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ pour la polarisation π à 1053 nm.

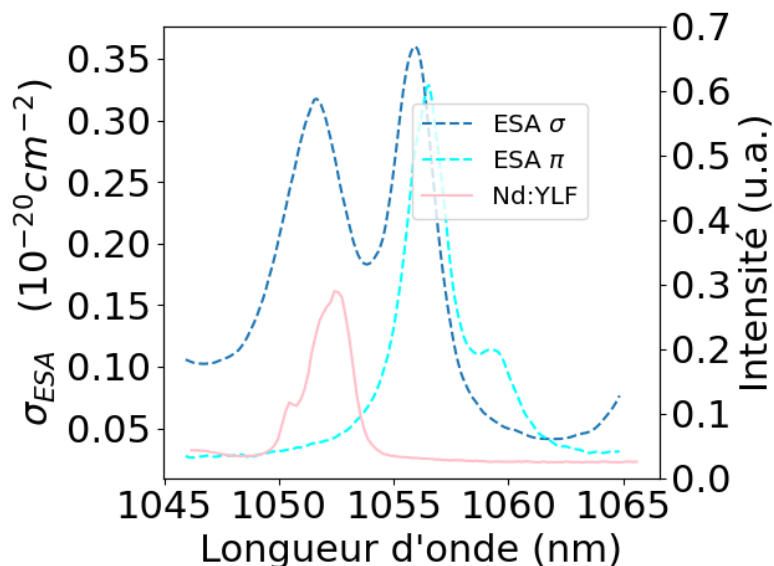


Fig. 24 : Section efficace d'absorption par l'état excité et spectre d'émission du Nd:YLF à 1053 nm.

Contrairement aux pompages en intracavité précédents, le laser que nous utilisons ici utilise une tête de pompage avec un barreau de YLF dopé au néodyme pompé transversalement avec des diodes de puissances. C'est une technologie assez répandue dans l'industrie permettant de pomper les cristaux avec de très fortes puissances. Ainsi, nous avons pu profiter du démantèlement d'un laser « Jade » de la société Thalès -en vu d'en faire un TP à L'IOGS- pour avoir accès à ce type de technologie industrielle. L'idée était de voir si le pompage intracavité est aussi compatible avec les technologies qui ont déjà été largement développées pour les lasers à base de néodyme.

D'un point de vue expérimental, cette tête-laser comprend un barreau de Nd:YLF de 8 cm de long et de 5 mm de diamètre. Il est pompé transversalement par 6 barrettes de diode pouvant émettre jusqu'à 1kW de pompe à 808 nm. L'ensemble est refroidi à eau.

Un cristal de Tm:YLF dopé à 2% (15 mm d'épaisseur) a été utilisé. Il est orienté pour que la pompe à 1,05 μm soit selon la polarisation σ . La cavité laser à 1 μm est composée (dans l'ordre) d'un premier miroir plan-concave de rayon de courbure 300 mm, d'un barreau de Nd:YLF placé proche de ce miroir pour maximiser le recouvrement entre le milieu amplificateur et le mode fondamental de la cavité, d'un polariseur placé pour ne laser qu'à 1053 nm, d'une lentille de focalisation de 40 mm pour permettre de créer un second waist où vient se positionner le cristal de Tm:YLF, d'une seconde de 80 mm pour recollimater le faisceau à 1053 nm et d'un miroir plan de fond de cavité (cf. Fig. 25). A l'intérieur de cette cavité à 1 μm , une cavité en V à 2,3 μm a été placée avec un coupleur de 3%.

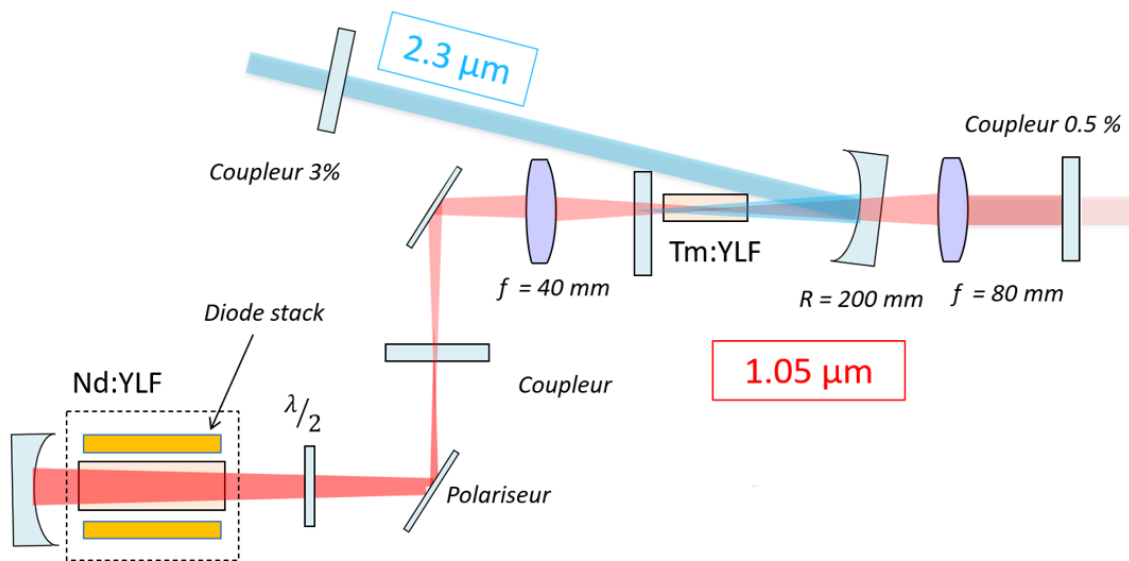


Fig. 25 : Schéma expérimental d'une cavité couplée à 1 μm à base de Nd:YLF servant pour pomper un Tm:YLF.

Nous avons remarqué que pomper les cristaux de néodyme sur les côtés rajoutait une difficulté. Par rapport aux cristaux qui sont pompés longitudinalement où le mode TEM₀₀ est facile à obtenir, il était dans notre cas plus dur d'avoir une émission monomode avec ce pompage transverse. Il a pu être observé visuellement à la carte-IR au niveau des sorties des miroirs de fond de cavité que le faisceau laser à 1,05 μm était spatialement fortement multimode. De même, la puissance intracavité restait faible de l'ordre du watt malgré une puissance de pompe élevée de l'ordre de 200 W et un seuil largement dépassé. Nous n'avons pas réussi à augmenter cette puissance. Nous pensons que ce problème vient du fait que le Tm:YLF vient favoriser davantage encore les modes d'ordres élevés du laser Nd:YLF. En effet, comme l'absorption dans le Tm:YLF dépend de l'intensité, le Tm:YLF a tendance à favoriser les modes d'ordre élevés moins intenses. Ceci conduit à un faisceau intracavité largement multimode de plutôt faible brillance. En ce sens, le pompage en intracavité n'a pas été une réussite.

Dans la mesure où nous avons cette tête pour une durée limitée, je préférerais chercher

une solution pour rendre ce système plus efficace plus que de faire des mesures sur un pompage intracavité qui ne semblait pas aboutir. Pour pallier le problème du faisceau multimode à $1,05 \mu\text{m}$, un coupleur intermédiaire de 20% a été inséré après le barreau de Tm:YLF. Il vient imposer le mode de la cavité à $1 \mu\text{m}$ quasi-indépendamment de la réaction du Tm:YLF. De la même manière qu'en intracavité, la puissance de pompe à $1 \mu\text{m}$ reste recyclée dans la cavité couplée jusqu'à être absorbée. Les puissances sont néanmoins bien plus faibles qu'en intracavité pure. A titre d'exemple dans notre cas, une puissance de 34 W pour 300W de pompe a été obtenue avant le cristal de Tm:YLF tandis que nous avons obtenu une puissance de 40 W à $1,05 \mu\text{m}$ pour 40 W de pompe avec le Nd:ASL en intracavité à une longueur d'onde proche.

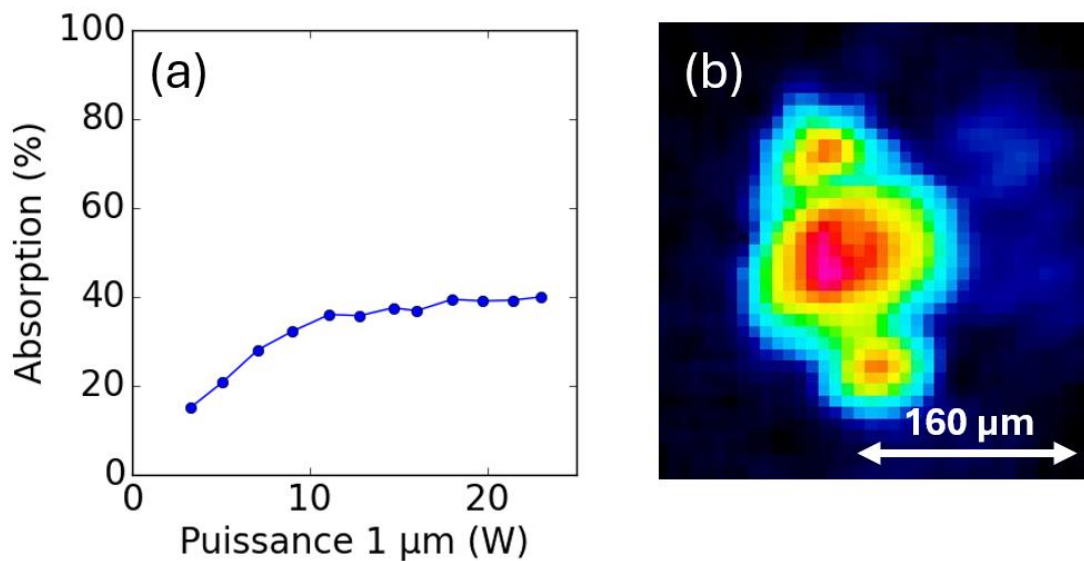


Fig. 26 : (a) Absorption du Tm:YLF 2% 15mm en simple passage (b) Profil du faisceau au waist dans le Tm:YLF en cavité couplée.

Dans cette configuration, le rayon du waist au point focal est de $2w = 160 \mu\text{m}$. Malgré l'ajout d'un coupleur intermédiaire, le faisceau reste légèrement multimode Fig. 26 (b). Ce mode n'est pas sans impact sur la courbe d'absorption dans la mesure où il réduit l'intensité de la pompe. La saturation de l'absorption observée dans les expériences précédentes en intracavité n'est donc pas présente dans la mesure où l'intensité est notablement plus faible ici. L'absorption maximale tend vers 40% par passage. La puissance à $2,3 \mu\text{m}$ est alors de 3,29 W pour une puissance de diode de 0,3 kW. La puissance à 1053 nm avant le cristal est de 34 W.

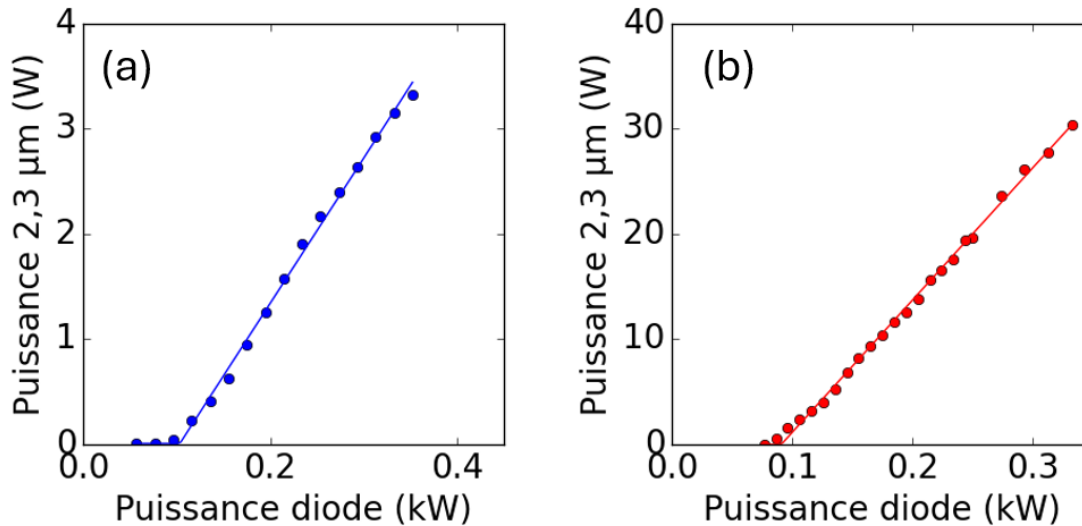


Fig. 27 : (a) Puissance à 2,3 μm vs. la puissance des diodes (b) Puissance à 1 μm avant le Tm:YLF vs. la puissance des diodes.

Le cristal s'est néanmoins fracturé au-delà de cette puissance et il n'a donc pas été possible d'optimiser davantage l'expérience. Un coupleur plus élevé à 2,3 μm aurait néanmoins permis de limiter les problèmes thermiques dans le Tm:YLF comme nous l'avons vu précédemment mais ces recherches ont été faites *a posteriori*. De même, augmenter la valeur du coupleur intermédiaire à 1053 nm aurait pu permettre d'augmenter la puissance à l'intérieur de la cavité couplée. Mais comme ces premiers résultats restaient décevants en termes d'efficacité avec une pente de 5% par rapport à la puissance de pompe des diodes, nous n'avons pas voulu prendre le risque de casser un nouveau cristal pour une efficacité finale aussi faible. Nous avons décidé d'en rester ici.

Malgré tout, cette expérience a permis d'obtenir les plus fortes puissances jamais obtenues à 2,3 μm dans le Tm:YLF, au prix certes d'une efficacité nettement dégradée. Nous avons ainsi démontré avec succès que des têtes laser néodyme industrielles pouvaient être utilisées pour réaliser du pompage à avalanche. Il a aussi été montré que des cristaux de Nd:YLF pouvaient être utilisés pour réaliser un pompage à avalanche. L'utilisation d'une cavité couplée à 1 μm nous a permis de pallier des problèmes de qualité de faisceau lié au pompage en intracavité.

4.3 CONCLUSION SUR LE POMPAGE A AVALANCHE

Un pompage à avalanche a été utilisé pour pomper des cristaux dopés au thulium dans différentes configurations. En utilisant un pompage à l'aide de pompes ytterbium à 1 μm (en extra-cavité classique), de faibles puissances à 2,3 μm ont été obtenues n'excédant pas quelques centaines de mW. Un double pompage a été tenté pour améliorer l'absorption des cristaux dopés au thulium mais les performances n'ont pas été améliorées significativement. Partant du constat qu'il était nécessaire d'utiliser des sources de pompe de très forte intensité et de forte puissance, un pompage intracavité a été développé à base de cristaux dopés néodyme à 1 μm . Ce pompage nous a permis d'atteindre une puissance de 2,7 W dans du Tm:YLF avec des efficacités compétitives avec le pompage direct par diode laser. Ces puissances sont de plus bien au-delà des derniers résultats de la littérature utilisant le pompage diode dans ce même cristal. Ces premiers résultats rendent le pompage intracavité particulièrement attractif pour la montée en puissance à 2,3 μm par rapport au pompage direct utilisant des diodes de puissance. Partant de ces bons résultats, nous avons cherché à savoir s'il était possible d'utiliser des têtes de pompes industrielles néodyme pour atteindre de très fortes puissances à 2,3 μm . Les spécificités du pompage transverse utilisé dans ces têtes nous ont invité à utiliser une cavité couplée à 1 μm plutôt qu'un pompage en intracavité. Une puissance record de 3,3 W a alors été obtenue.

4.4 BIBLIOGRAPHIE

[Guillemot 2019] L. Guillemot, P. Loiko, R. Soulard, A. Braud, J.-L. Doualan, A. Hideur, R. Moncorgé, and P. Camy, "Thulium laser at $\sim 2.3 \mu\text{m}$ based on upconversion pumping," *Opt. Lett.* 44(16), 4071 (2019).

[Guillemot 2021] Lauren Guillemot. Etude de la transition $^3\text{H}_4 \rightarrow ^3\text{H}_5$ de l'ion Tm^{3+} pour une émission laser moyen infrarouge (entre 2 et $3 \mu\text{m}$). Physique [physics]. Normandie Université, 2021. Français.

[Herault 2008] E. Herault, F. Balembois, P. Georges, and T. Georges, "1064 nm Nd:YVO₄ laser intracavity pumped at 912 nm and sum-frequency mixing for an emission at 491 nm," *Opt. Lett.*, OL 33(14), 1632–1634 (2008).

[Joubert 1993] M. F. Joubert, S. Guy, and B. Jacquier, "Model of the photon-avalanche effect," *Phys. Rev. B* 48(14), 10031–10037 (1993).

[Kifle 2020] E. Kifle, P. Loiko, L. Guillemot, J.-L. Doualan, F. Starecki, A. Braud, T. Georges, J. Rouvillain, and P. Camy, "Watt-level diode-pumped thulium lasers around $2.3 \mu\text{m}$," *Appl. Opt.* 59(25), 7530–7539 (2020).

[Kohn 1971] R. L. Kohn, C. V. Shank, E. P. Ippen, and A. Dienes, "An intracavity-pumped CW dye laser," *Optics Communications* 3(3), 177–178 (1971).

[Komukai 1995] T. Komukai, T. Yamamoto, T. Sugawa, and Y. Miyajima, "Upconversion pumped thulium-doped fluoride fiber amplifier and laser operating at $1.47 \mu\text{m}$," *IEEE J. Quantum Electron.* 31(11), 1880–1889 (1995).

[Lin 2024] W. Lin, C. Huang, S. Li, S. Tao, G. Chen, M. Xu, C. Zhao, Q. Fang, X. Ye, and Y. Hang, "Tunable laser operations on Nd-doped strontium and lanthanum aluminate crystals," *Infrared Physics & Technology* 136, 105066 (2024).

[Paschotta 1997] R. Paschotta, P. R. Barber, A. C. Tropper, and D. C. Hanna, "Characterization and modeling of thulium:ZBLAN blue upconversion fiber lasers," *J. Opt. Soc. Am. B* 14(5), 1213 (1997).

[Morova 2020] Y. Morova, M. Tonelli, V. Petrov, and A. Sennaroglu, "Upconversion pumping of a $2.3 \mu\text{m}$ $\text{Tm}^{3+}:\text{KY}_3\text{F}_{10}$ laser with a 1064 nm ytterbium fiber laser," *Opt. Lett.* 45(4), 931 (2020).

[Nguyen 1990] D. C. Nguyen, G. E. Faulkner, M. E. Weber, and M. Dulick, "Blue upconversion thulium laser," in G. Dube, ed. (1990), p. 54.

[Nilsson 2003] J. Nilsson, J. K. Sahu, Y. Jeong, W. A. Clarkson, R. Selvas, A. B. Grudinin, and S. Alam, "High-power fiber lasers: new developments," in L. N. Durvasula, ed. (2003), p. 50.

[So 2006] S. So, J. I. Mackenzie, D. P. Shepherd, W. A. Clarkson, J. G. Betterton, E. K. Gorton, and J. A. C. Terry, "Intra-cavity side-pumped Ho:YAG laser," *Opt. Express* 14(22), 10481 (2006).

[Stoneman 1992] R. C. Stoneman and L. Esterowitz, "Intracavity-pumped 209- μm Ho:YAG laser," *Opt. Lett.* 17(10), 736 (1992).

[Walsh 1998] B. M. Walsh, N. P. Barnes, and B. Di Bartolo, "Branching ratios, cross sections, and radiative lifetimes of rare earth ions in solids: Application to Tm^{3+} and Ho^{3+} ions in LiYF_4 ," *Journal of Applied Physics* 83(5), 2772–2787 (1998).

[Wang 2021] Fei Wang, Haitao Huang, Haiwei Chen, Yushuo Bao, Zihan Li, and Deyuan Shen, "GSA and ESA dual-wavelength pumped 2.3 μm Tm:YLF laser on the $3\text{H}_4 \rightarrow 3\text{H}_5$ transition," *Chin. Opt. Lett.* 19, 091405- (2021)

5 BREVES CONSIDERATIONS THERMIQUES : UNE LIMITE POUR LA MONTEE EN PUISSANCE

Les problématiques liées à la gestion de la thermique sont un sujet transverse, présent dans chaque partie de cette thèse. Sans y être central, ce point revêt une importance non négligeable. Quel que soit le régime laser ou le pompage utilisé, une partie de la puissance de la pompe va être dissipée sous forme de chaleur dans le cristal. C'est à ce dépôt de chaleur et à ses impacts délétères que nous allons nous intéresser ici.

Cette énergie thermique conduit d'une part à une élévation globale de la température et induit une dilatation de l'ensemble du cristal. Elle est aussi à l'origine de contraintes et de stress qui contribuent au risque de fracture du cristal. Pour éviter ces problèmes, nous avons systématiquement placé les cristaux entre deux plaques de cuivre thermalisées à 18°C. Ces plaques permettent d'évacuer efficacement la chaleur du cristal. Une feuille d'indium molle conductrice a été insérée entre le cuivre et le cristal pour lui permettre de se dilater dans un milieu mou et pour permettre un bon contact thermique afin d'évacuer au mieux la chaleur.

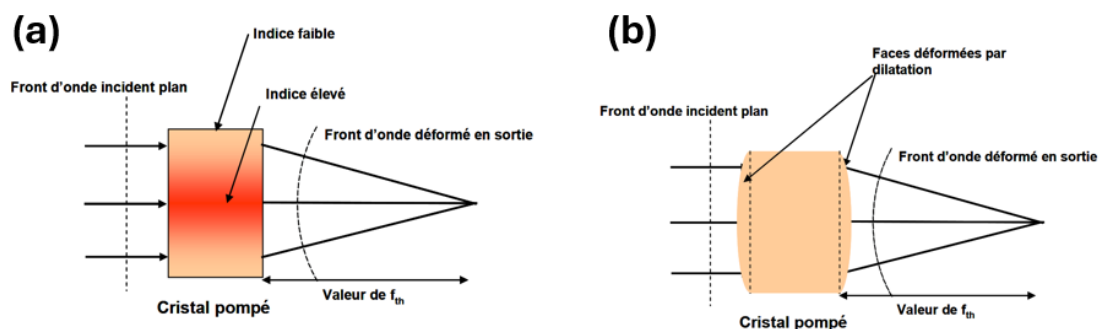


Fig. 1 : Effet d'un dn/dT positif dans un cristal laser. (b) Effet du coefficient de dilatation positif dans un cristal laser. [Didierjean 2007]

D'autre part, l'émission de chaleur due au pompage va conduire à une élévation locale de température. Les faisceaux de pompe tout comme les faisceaux lasers sont gaussiens dans notre cas, c'est-à-dire qu'il y a davantage d'intensité au centre du faisceau que sur les bords. La source de chaleur étant au centre du cristal et l'évacuation de chaleur par conduction se faisant sur le bord, il va donc y avoir un gradient de température radial dans le cristal. Ce phénomène a deux conséquences. D'une part, la dilatation sera plus forte au centre de la pompe et les faces du cristal vont légèrement se bomber pour créer une lentille convergente Fig. 1(b). De même, l'indice optique dépend également de la température du cristal. La variation d'indice est plus forte au centre que sur les bords, ce qui va conduire également à la création d'une lentille qui peut être positive ou négative selon le signe du coefficient thermo-optique $\frac{dn}{dT}$.

Dans le cas général, il est possible d'estimer la lentille thermique sous cette forme [Didierjean 2007] [Chenais 2002] :

$$\frac{1}{f'} = \frac{\eta_{th} P_{abs}}{2\pi w^2 \kappa} \left[\frac{dn}{dT} + (n - 1)(1 - \nu)\alpha \right]$$

Où ν est le coefficient de poisson du matériau, η_{th} est la charge thermique (*ie* le pourcentage de puissance absorbée qui est convertie en chaleur), κ est la conductivité, $\frac{dn}{dT}$ est la coefficient thermo-optique, α est le coefficient de dilation thermique, n est l'indice optique. Les unités sont rappelées dans la table des notations et les valeurs de ces paramètres sont données pour différents cristaux en annexe.

Cette lentille thermique change la stabilité des cavités. Il est ainsi possible de laser pour de faibles puissances de pompe puis de ne plus laser pour des puissances de pompe plus élevée parce que la lentille thermique du cristal nous fait sortir de la zone de stabilité de la cavité. La lentille thermique peut néanmoins être compensée en adaptant le design de la cavité en fonction de l'échauffement prévu pour le fonctionnement nominal.

Nota Bene : on peut se poser la question quant à la linéarité de la dioptrie thermique par rapport à la puissance absorbée ou de manière équivalente de l'invariance de η_{th} en fonction de cette même puissance. En effet, dans le cas du thulium certains échanges d'énergie entre ions rendent les équations de taux non-linéaires avec un impact sur la charge thermique. η_{th} n'est donc pas évident à estimer dans notre cas. Nous négligerons donc les non-linéarités et nous montrerons expérimentalement plus tard que l'échauffement suit bien une loi linéaire en fonction de la puissance absorbée dans notre cas.

5.1 CONSIDERATIONS THEORIQUES : UNE CHARGE THERMIQUE AMPLIFIEE PAR L'EMISSION LASER A 2,3 MICRON

D'un point de vue thermique, les lasers à 2,3 μm à base de thulium sont un peu particulier. En effet, il existe de nombreuses voies de désexcitation possibles par fluorescence et par laser, ce qui rend les équations de charges thermiques plus complexes que pour l'ion ytterbium, par exemple où le défaut quantique est facile à calculer.

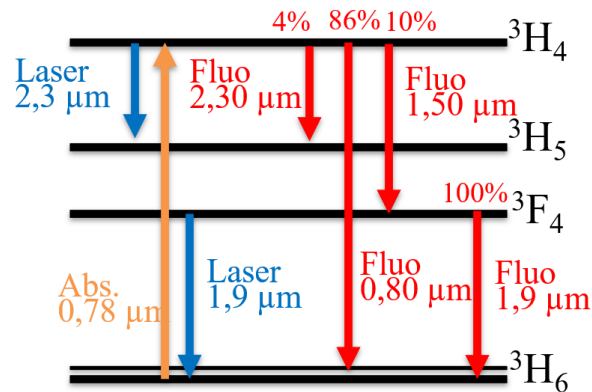


Fig. 2 : Spectroscopie du thulium avec les facteurs de branchement exprimés en haut de chaque transition (en %) pour le Tm:YLF.

Il est facile de se rendre compte de ce problème en calculant la charge thermique avec et sans laser à 2,3 μm . En première approximation, celle-ci correspond à la différence d'énergie entre un photon de pompe et un photon de fluorescence divisée par l'énergie d'un photon de pompe. Dans la mesure où il y a plusieurs chemins de fluorescence possibles avec des facteurs de branchement β , il faut considérer l'ensemble de ces chemins dans le calcul. Les échanges d'énergie entre ions sont, on le rappelle, négligés ici par soucis de simplification. Nous nous plaçons aussi dans le cas simple du pompage direct. On obtient :

$$\eta_{th,sans\ laser} = \lambda_{780nm} \left[\beta_{41} \left(\frac{1}{\lambda_{780nm}} - \frac{1}{\lambda_{800nm}} \right) + \beta_{42} \left(\frac{1}{\lambda_{780nm}} - \frac{1}{\lambda_{1500nm}} - \frac{1}{\lambda_{1900nm}} \right) + \beta_{43} \left(\frac{1}{\lambda_{780nm}} - \frac{1}{\lambda_{2300nm}} - \frac{1}{\lambda_{1900nm}} \right) \right]$$

Dans le Tm:YLF on obtient une charge thermique de 4%. Cette charge thermique est relativement faible et est à nuancer. En effet, dans notre cas, les désexcitations non-radiatives n'ont pas été prises en compte. Elles peuvent s'expliquer par la désexcitation de plusieurs phonons. Elles sont ainsi plus probables dans les matrices à fortes énergies de phonon où moins de phonons sont nécessaires pour désexciter la transition [Riseberg 1977]. Les désexcitations non-radiatives peuvent aussi s'expliquer par la présence d'impureté dans le cristal et vont conduire à des désexcitations thermiques qui contribueront également à l'échauffement. Ce calcul illustratif de la charge thermique peut ainsi être compris comme un minimum permettant de se rendre

compte de l'élévation de la température induite par le laser.

En régime laser, le chemin de désexcitation de l'ion est radicalement différent. La fluorescence à 0,8 μm et à 1,5 μm est négligeable en comparaison du flux qui part vers le niveau $^3\text{H}_5$ via la transition laser à 2,3 μm . De plus, la transition de l'état $^3\text{H}_5$ vers le niveau $^3\text{F}_4$ se fait uniquement par relaxation multi-phonons que ce soit dans les oxydes ou les fluorures. La charge thermique s'écrit alors sur la forme :

$$\eta_{th,avec\ laser} = \lambda_{780nm} \left[\left(\frac{1}{\lambda_{780nm}} - \frac{1}{\lambda_{2300nm}} - \frac{1}{\lambda_{1900nm}} \right) \right]$$

Dans le cas du Tm:YLF, la charge thermique pour un photon absorbé passe à 25%. La différence de charge thermique en présence de laser et sans laser est donc considérable et va conduire au développement de stratégies spécifiques pour réduire l'impact du laser à 2,3 μm sur l'échauffement du cristal.

Dans notre cas, l'échauffement vient donc essentiellement de l'émission laser à 2,3 μm davantage que de la puissance de la pompe seule, ce qui est un changement de paradigme important par rapport aux lasers développés par le passé.

5.2 MISE EN EVIDENCE DE L'INFLUENCE DU LASER A 2,3 MICRON SUR L'ELEVATION DE LA TEMPERATURE DANS LE CRISTAL

L'influence du laser à 2,3 μm sur la charge thermique dans les cristaux peut être vue dans le cadre du pompage direct avec une cascade à 1,9 μm . Le schéma expérimental des lasers en cascade en pompage diode développé au chapitre 3 a été rappelé ci-dessous. Dans ce cas, pour une pompe de 15 W, la puissance à 1,9 μm était de 2,5 W et la puissance à 2,3 μm était de 408 mW en présence de cascade et de 362 mW sans cascade. Le coupleur de sortie est de 3%.

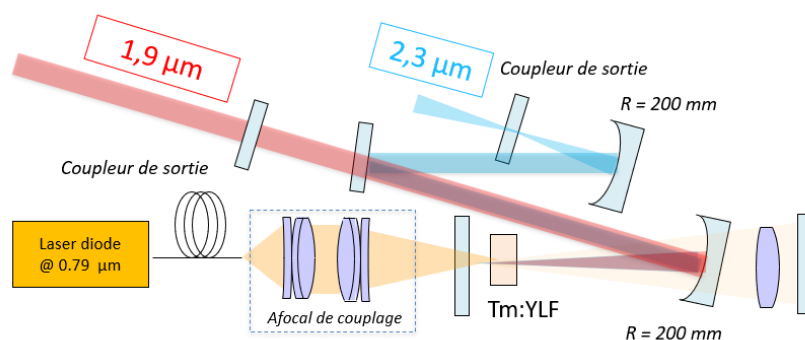


Fig. 3 : Schéma expérimental d'un schéma de pompage direct avec une émission en cascade

Les cristaux ont, on le rappelle, été montés dans une monture en cuivre refroidie à eau à 18°C. Une feuille d'indium molle de 1 mm d'épaisseur a été introduite entre le cuivre

et le cristal pour augmenter le transfert de chaleur et amortir la dilatation thermique du cristal. Une carte des températures permettant de visualiser le schéma de refroidissement est présentée Fig. 4. Elle a été obtenue à l'aide d'une caméra thermique à bolomètres sensible entre 8 et 12 μm .

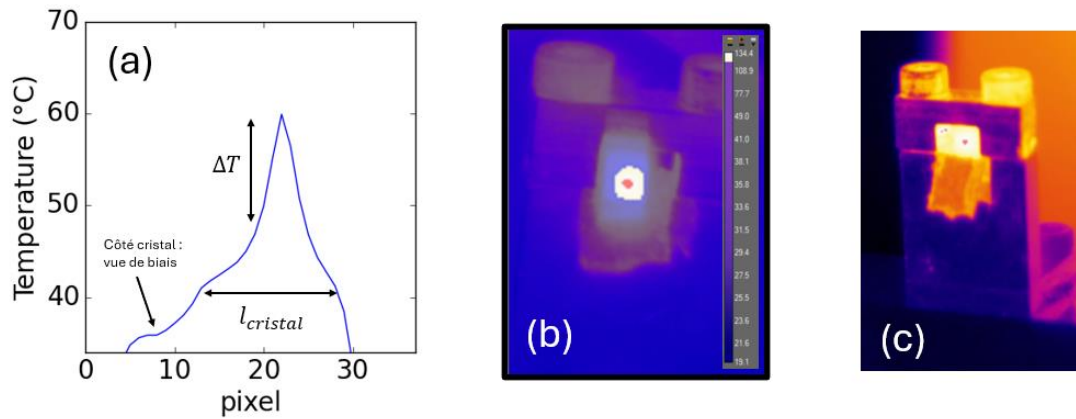


Fig. 4 : (a) Profil spatial de l'élévation de température en face arrière (c'est-à-dire à l'opposé de la source de pompe : seule face visible par la caméra thermique) du cristal de Tm:YLF 2,5 % pour une pompe fixe de 15 W (b) Carte des températures pour Tm YLF 3% avec émission laser à 2,3 μm (c) Vue d'ensemble de la carte des températures pour le même cristal qu'en (b).

Le profil spatial de température peut être extrait à l'aide du logiciel de la caméra thermique. L'élévation de température absolue maximum au centre des faisceaux peut être mesurée et comparée aux températures en bord de cristal Fig. 4(a). Cette comparaison revint à mesurer le gradient de température. Ce gradient est intéressant dans la mesure où il permet d'avoir une idée de la charge thermique subie par le cristal, de la lentille thermique potentielle et également des contraintes thermiques à l'intérieur du cristal. Ce gradient de température a été mesuré dans différentes configurations par la suite.

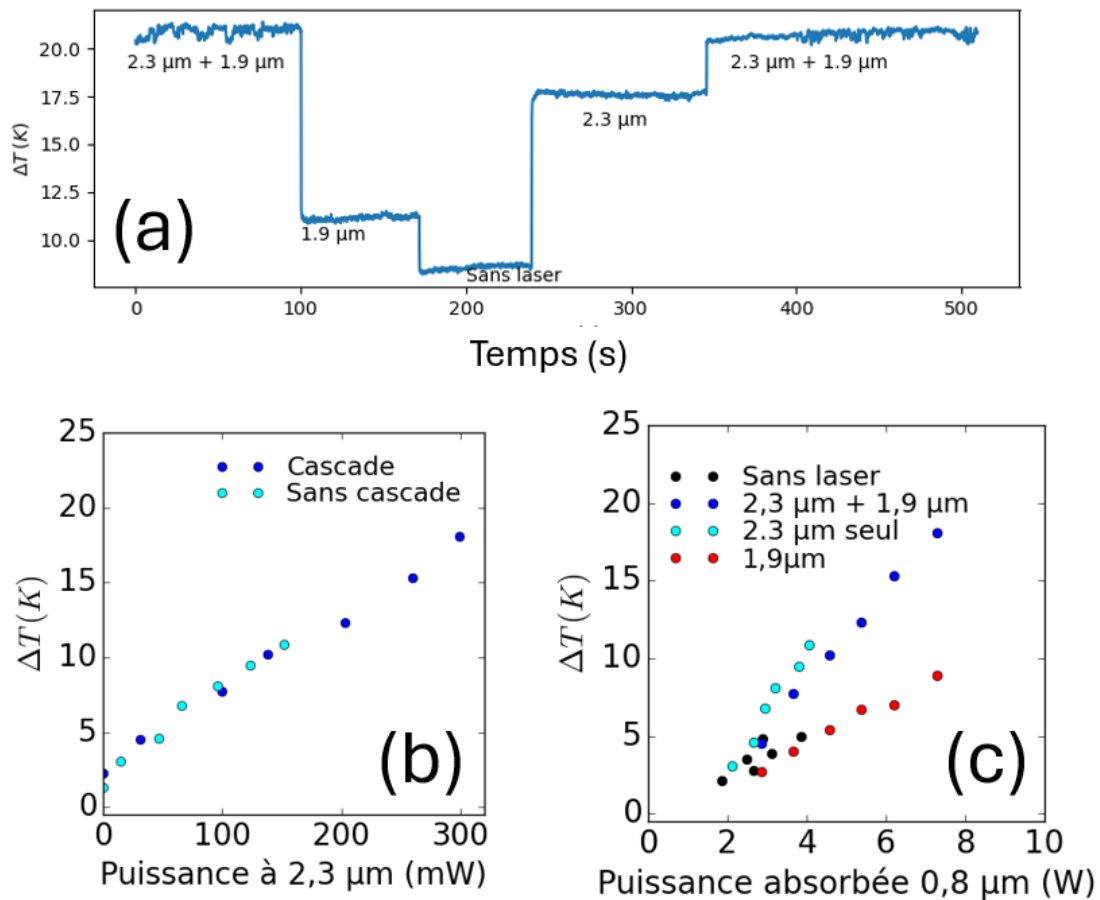


Fig. 5 : Gradient de température en face arrière du cristal de Tm:YLF (a) pour une pompe fixe de 12 W et différentes configurations laser (b) Pour différentes puissances extraites à 2,3 μm avec et sans cascade pour un coupleur fixe de 2,5 % (c) pour différentes puissances de pompe.

Dans un premier temps, une puissance de pompe constante de 12 W a été appliquée pour différentes configurations laser au cours du temps. L'élévation du gradient de température a été mesurée Fig. 5(a). Il est possible de remarquer que l'élévation de température reste assez faible en absence de laser à 2,3 μm et à 1,9 μm. Lorsque qu'une émission à 1,9 μm seule est autorisée, le gradient passe alors de 8°C à 11°C (il est donc toujours faible). Cette très légère augmentation peut en partie s'expliquer dans la mesure où le laser à 1,9 μm permet d'augmenter la puissance de pompe absorbée en vidant le niveau 3F_4 . En présence de laser à 2,3 μm, comme on s'y attendait, le gradient augmente de façon bien plus importante, passant de 8°C à 17,5 °C. L'impact du laser à 2,3 μm est bien plus important thermiquement que celui du laser à 1,9 μm, d'autant plus que la puissance extraite à 2,3 μm est bien plus faible qu'à 1,9 μm. De même, l'absorption n'augmente pas de façon significative avec le laser à 2,3 μm. Ces premières mesures permettent de se rendre compte de l'influence cruciale du laser à 2,3 μm sur la charge thermique notamment par rapport à l'émission à 1,9 μm.

L'influence de la puissance absorbée sur la charge thermique a aussi été regardée dans

différentes configurations laser Fig. 5 (c). Elle ne semble néanmoins pas être le terme prépondérant pour l'échauffement bien qu'elle semble quand même jouer un rôle. Par exemple, le cristal chauffe moins avec 6 W absorbés sans effet laser à 2,3 μm qu'avec 4 W absorbés mais avec effet laser à 2,3 μm . Par opposition, une forte corrélation entre l'élévation du gradient thermique et la puissance à 2,3 μm a été observée. En mesurant la puissance à 2,3 μm en présence de cascade ou non et en la comparant au gradient, il a pu être observé que la charge thermique était en grande partie corrélée à la puissance à 2,3 μm .

Ces premières mesures permettent de se rendre compte de l'influence négative du laser à 2,3 μm dans les cristaux dopés au thulium. Ainsi, pour éviter de trop chauffer un cristal dopé Tm^{3+} , le mieux c'est d'éviter l'émission laser à 2,3 μm , ce qui n'est pas vraiment une bonne nouvelle pour nous...

5.3 REDUIRE LA CHARGE THERMIQUE DUE AU LASER A 2,3 MICRON POUR LA MONTEE EN PUISSANCE

La charge thermique additionnelle due au laser à 2,3 μm était également un paramètre limitant lorsque nous avons tenté de monter en puissance avec le pompage en intracavité Chapitre 4. Le schéma expérimental est rappelé ci-dessous.

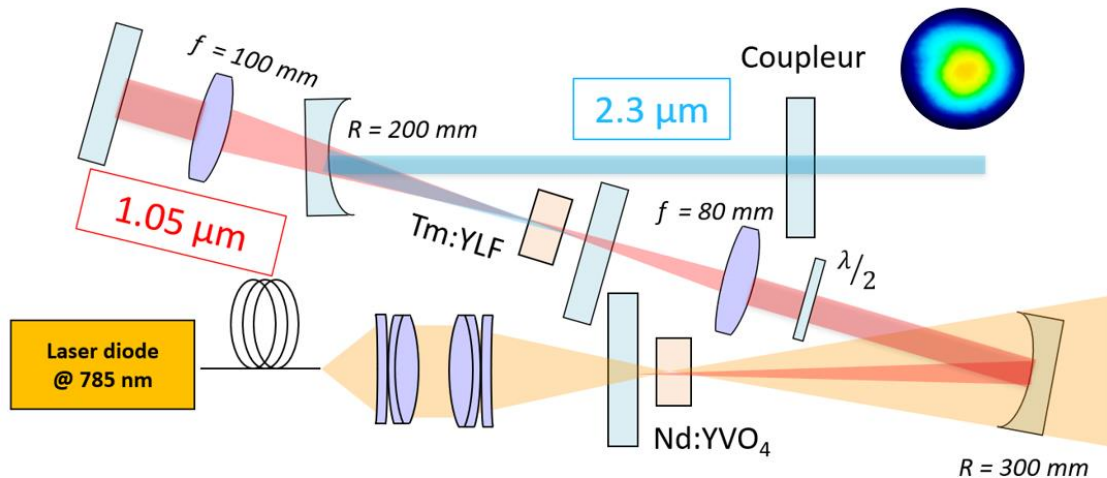


Fig. 6 : Schéma expérimental d'un schéma de pompage en intracavité et spot à 2,3 μm .

Ce schéma expérimental permet d'obtenir les puissances à 2,3 μm les plus importantes jamais obtenues avec le Tm:YLF. D'après la discussion précédente (chap. 5 1.2), il est donc évident que les problèmes thermiques vont être présents. Pour cette raison, nous avons cherché à réduire l'influence du laser à 2,3 μm sur la charge thermique. Le gradient de température a de nouveau été mesuré pour différents coupleurs de sortie. Comme dans la partie précédente, l'élévation de température en absence de laser à 2,3 μm est assez faible autour de 7 $^{\circ}\text{C}$ (Fig. 7 (c) - points noirs). L'élévation de température ne semble pas non plus corrélée directement à la puissance de pompe à 1 μm . Pour

s'en convaincre, l'élévation du gradient thermique a également été mesurée en fonction de la puissance à 2,3 μm extraite et intracavité. Nous avons, dans le cas de la puissance extraite à 2,3 μm , remarqué une assez faible corrélation entre la puissance extraite et la charge thermique, Fig. 7(b). En effet, pour une même puissance il peut y avoir presque un ordre de grandeur de différence sur l'échauffement selon le coupleur utilisé. Au contraire, il semble assez clair que l'élévation de la charge thermique est liée à la puissance intracavité à 2,3 μm Fig. 7 (a) car toutes les courbes se superposent. Cette information est une très bonne nouvelle dans notre cas. Elle signifie qu'augmenter la transmission du coupleur de sortie (ce qui revient à diminuer la puissance en intracavité pour une même puissance extraite) permet de diminuer significativement la charge thermique. C'est grâce à cette idée qu'il nous a été possible de monter en puissance à 2,3 μm à l'aide du pompage en intracavité sans risquer d'endommager notre cristal. En effet, contrairement au cas classique, ici, la puissance de pompe n'est pas constante pour optimiser le laser à 2,3 μm mais peut augmenter pour les plus forts coupleurs.

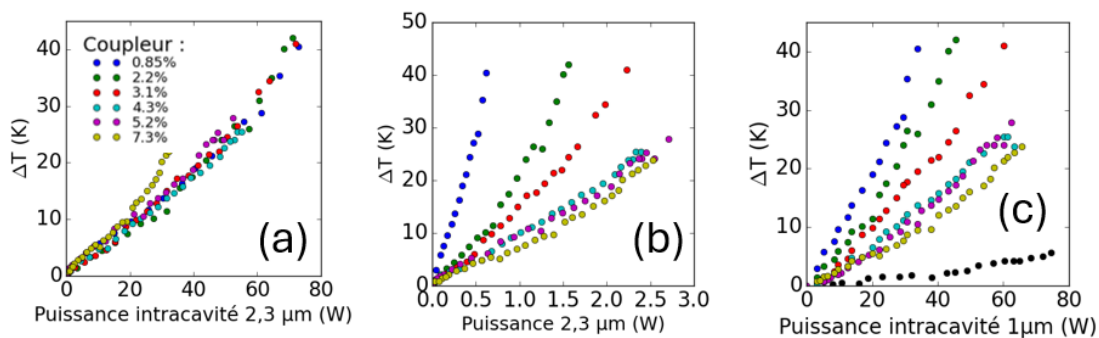


Fig. 7 : Gradient de température dans un Tm:YLF 2% pour différents coupleurs de sortie (a) en fonction de la puissance en intracavité à 2,3 μm (b) de la puissance extraite à 2,3 μm (c) et de la puissance de pompe à 1 μm avant le Tm:YLF. Les points noirs correspondent à une absence de laser à 2,3 μm .

Il y a également été remarqué que l'élévation du gradient thermique dépendait aussi de la polarisation que la pompe Fig. 8. Pour 10 W de puissance intracavité à 2,3 μm , quand bien même la puissance absorbée est de 4,2 W selon la polarisation σ contre seulement 3,2 W selon la polarisation π , l'élévation de température est plus forte lorsqu'on pompe selon cette dernière polarisation (10°C contre 4°C). Cette plus forte élévation de la température peut éventuellement s'expliquer par le fait que la puissance incidente, lorsqu'on pompe selon la polarisation π , est bien plus importante Fig. 8(b) pour une même absorption. La fraction de puissance dissipée sous forme de chaleur dû au rendement quantique et liée aux défauts du cristal étant constante, elle prend une part plus importante lorsque le cristal absorbe peu (à cause d'une faible section efficace) et, dans notre cas, une puissance à 1 μm plus importante est donc dissipée par cette voie purement non-radiative lorsque l'on pompe selon la polarisation π . De plus, dans la mesure où le cristal a été tourné dans la monture de cuivre pour effectuer cette mesure, le contact thermique n'est pas le même ce qui peut également avoir une

influence sur l'échauffement sur cristal.

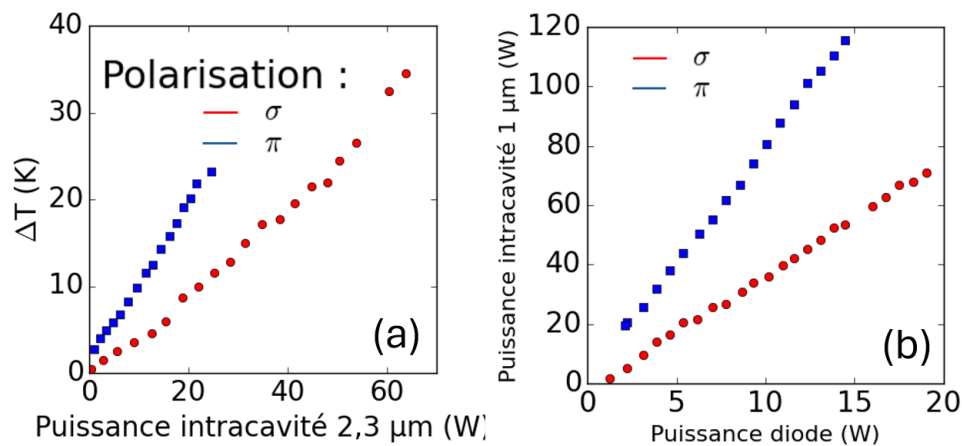


Fig. 8 : (a) Gradient de température dans un Tm :YLF 2% en fonction de la puissance intracavité à 2,3 μm lorsque la pompe est selon la polarisation σ ou π (b) Puissance incidente à 1 μm pour les deux polarisation du cristal.

5.4 COMPARAISON DES POMPAGES

De même, il a pu être observé dans les précédentes parties que l'échauffement était plus faible dans le cas du pompage à avalanche par opposition au pompage direct par diode à 0,8 μm . Pour une puissance émise à 2,3 μm de 300 mW, le gradient de température est de 20°C en pompage diode et d'environ 5° en pompage intracavité pour le même coupleur de sortie de 2,5 % (Fig. 9). Les meilleures performances thermiques du pompage à avalanche s'expliquent par la plus grande efficacité du pompage à 1 μm (puissance laser à 2,3 μm versus puissance de pompe absorbée) comparée au pompage direct par diode à 0,8 μm . Pour une même puissance émise de 300 mW, la puissance absorbée en pompage diode est de 7,5 W contre seulement 2,4 W en pompage à avalanche. Ainsi, le pompage à avalanche, implique moins de photons absorbés donc l'échauffement dû à la puissance absorbée est moindre. Bien que nous ayons montré précédemment que l'échauffement était principalement dû à l'émission laser à 2,3 μm , la puissance de pompe absorbée contribue néanmoins à l'échauffement mais de manière un peu moins importante. Cet échauffement dû uniquement à la puissance absorbée est en particulier visible Fig. 5, ou pour une puissance de pompe de diode à 0,8 μm de 12 W, gradient 8°C a été obtenu en absence de laser à 2,3 μm .

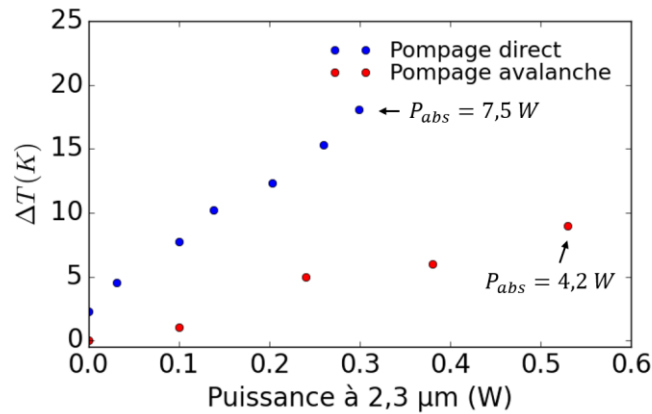


Fig. 8 : Gradient de température dans un Tm :YLF 2% en fonction de la puissance intracavité à 2,3 μm lorsque la pompe est selon la polarisation σ

5.5 INFLUENCE DU DOPAGE SUR L'ÉCHAUFFEMENT DES CRISTAUX

Nous nous sommes également intéressés à l'influence du dopage en thulium sur l'échauffement des cristaux. Le schéma expérimental précédent Fig. 6 a été repris avec différents cristaux de Tm:YLF ayant des dopages de 2%, 2,5%, 3% et 6% avec des longueurs de 10 mm, 8 mm, 8 mm et 5 mm respectivement. Ces cristaux ont été pompés à 1,06 μm selon la polarisation σ . L'échauffement à la surface du Tm:YLF a été mesuré à l'aide d'une caméra thermique (8-12 μm) en fonction de la puissance extraite à 2,3 μm pour un coupleur de sortie fixe de 3.1 %, cf. Fig. 9(a,b).

Nota Bene : En utilisant le même coupleur, la puissance extra-cavité garde toujours le même coefficient de proportionnalité avec la puissance intracavité, ce qui permet de les comparer.

Nous remarquons que plus le dopage en thulium est élevé, plus l'échauffement est important. En particulier, le gradient de température croît légèrement pour les dopages de 2% à 3% et devient particulièrement important pour un dopage de 6%. L'influence du dopage sur l'échauffement global du cristal est clairement visible Fig. 9(a,b). Plus le cristal est dopé, plus l'échauffement au niveau de waist du laser à 2,3 μm est important. Pour une puissance extraite de 0,8 W à 2,3 μm, une température de 130°C a été atteinte avec un dopage de 6% tandis que l'échauffement n'était que de 50°C pour le cristal dopé à 2%. Ces mesures mettent en évidence l'intérêt d'utiliser de faibles dopages pour obtenir des lasers de puissances à 2,3 μm. Moins l'échauffement sera important, plus il sera possible de pomper fort pour atteindre de fortes puissances.

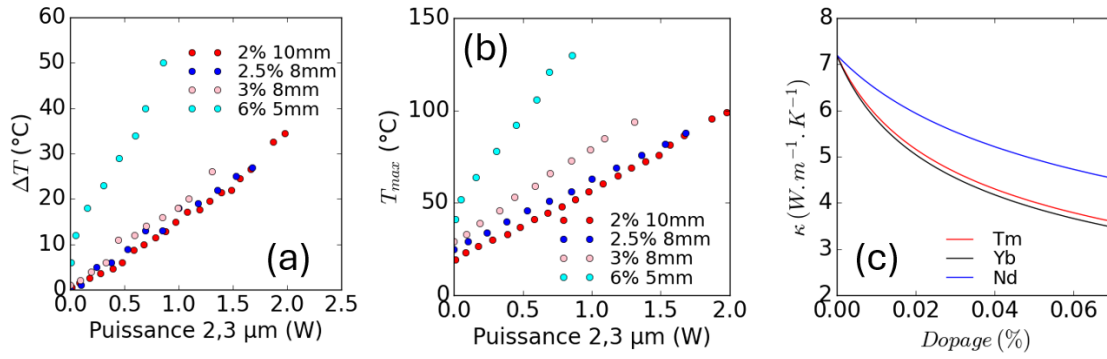


Fig. 9 : (a) Gradient de température pour différents cristaux en fonction de la puissance à 2,3 μm . (b) Température maximale à la surface pour différents cristaux. (c) Evolution de la conductivité thermique maximale (axe extraordinaire) dans le Tm:YLF en fonction du dopage dans le thulium, l'ytterbium ou le néodyme en utilisant le modèle de Gaumé [Gaumé 2002].

Cette évolution de l'échauffement en fonction du dopage peut en partie s'expliquer par le fait que doper des cristaux tend à réduire leur conductivité thermique. Ainsi, plus ils sont dopés, plus leur capacité à évacuer la chaleur est faible. Ce phénomène a été en particulier montré dans des cristaux de YAG [Sato 2009] [Gaume 2002] et a été théorisé dans la thèse de Romain Gaumé [Gaume 2002] comme suivant la relation :

$$\kappa(C) = \frac{1}{\pi a} \sqrt{\frac{2k_B v \kappa(C=0)}{\delta}} \arctan\left(\pi a \sqrt{\frac{\kappa(C=0)\delta}{2k_B v}}\right)$$

Avec $\delta = \sum_i c_i \left(\frac{M_i - M}{M}\right)$ et $M = \sum_i c_i M_i$ et $a = 2^3 \sqrt{\frac{3V}{4\pi Z}}$

D'une manière générale, la vitesse du son dans un cristal tourne autour de $v \sim 7000 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ [Gaume 2002]. Dans le YLF, qui est la matrice qui nous intéresse dans cette étude, la conductivité est de $\kappa(C=0) = 7.2 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\text{K}^{-1}$ selon l'axe extraordinaire en absence de dopage ($C=0$) [Zelenogorskii 2010]. La masse molaire de l'yttrium qui est substitué dans le YLF est de $88,8 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$ tandis que la masse molaire des dopants tels que le thulium, l'ytterbium et le néodyme est de $168,9 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$, $173,1 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$, $144,2 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$. Le volume de la maille est de $2,8 \times 10^{-28} \text{ m}^3$ [Guillemot 2021].

Dans le cadre de ce modèle, la conductivité chute fortement à $3,8 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\text{K}^{-1}$ pour un dopage de 6% contre $5,0 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\text{K}^{-1}$ pour un dopage de 3% Fig. 9(c). Cette chute permet d'expliquer au moins en partie l'échauffement plus important des cristaux les plus dopés. Elle est d'autant plus marquée dans notre cas que les ions thulium sont particulièrement lourds comparés aux ions d'yttrium qu'ils substituent. L'influence d'ions plus légers tels que le néodyme est plus faible à titre de comparaison.

D'autres phénomènes viennent s'ajouter et peuvent également expliquer l'échauffement plus important des cristaux plus fortement dopés. En particulier, les échanges d'énergie entre ions peuvent aussi exercer une influence sur la thermique.

Cet effet est néanmoins difficile à quantifier.

En conclusion, nous avons remarqué dans cette partie que l'utilisation de cristaux faiblement dopés autour de 2% permet de limiter l'échauffement et ainsi d'atteindre de plus fortes puissances à 2,3 μm en limitant les risques de fracture pour les cristaux.

5.6 CONCLUSION

Dans ce chapitre, il a été possible de montrer que l'échauffement dans les lasers à 2,3 μm à base de thulium pouvait en grande partie être attribuée à l'émission laser à 2,3 μm elle-même. Cet échauffement excessif est dû à la désexcitation non-radiative entre le niveau du bas de la transition laser $^3\text{H}_5$ et le niveau $^3\text{F}_4$ qui mène à un défaut quantique beaucoup plus fort avec le laser à 2,3 μm par rapport au cas d'une désexcitation uniquement par fluorescence. Il a été montré que l'échauffement est corrélé à la puissance à 2,3 μm en intracavité et ceci pour différents pompages. Afin de limiter les effets thermiques délétères lors de la montée en puissance, des coupleurs de sortie ayant des transmissions plus élevées peuvent être utilisés. De même, les cristaux faiblement dopés ayant une meilleure conductivité, leur utilisation permet de limiter l'échauffement.

5.7 BIBLIOGRAPHIE

[Chenais 2002] Sébastien Chenais. Nouveaux matériaux laser dopés à l'ytterbium : performances en pompage par diode et étude des effets thermiques. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2002.

[Didierjean 2007] Julien Didierjean. Etude thermique des cristaux lasers, Réalisation de lasers à fibres monocristallines. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2007.

[Gaume 2002] Romain Gaume. A crystal chemistry approach for high-power ytterbium doped solid-state lasers. Diffusion-bonded crystals and new crystalline hosts.. Chemical Sciences. Chimie ParisTech, 2002.

[Guillemot 2021] Lauren Guillemot. Etude de la transition $^3H_4 \rightarrow ^3H_5$ de l'ion Tm^{3+} pour une émission laser moyen infrarouge (entre 2 et $3\mu m$). Physique [physics]. Normandie Université, 2021. Français.

[Guillemot 2021] Lauren Guillemot. Etude de la transition $^3H_4 \rightarrow ^3H_5$ de l'ion Tm^{3+} pour une émission laser moyen infrarouge (entre 2 et $3\mu m$). Physique [physics]. Normandie Université, 2021. Français.

[Joubert 1993] M. F. Joubert, S. Guy, and B. Jacquier, "Model of the photon-avalanche effect," *Phys. Rev. B* 48(14), 10031–10037 (1993).

[Riseberg 1977] L. A. Riseberg and M. J. Weber, "III Relaxation Phenomena in Rare-Earth Luminescence," in *Progress in Optics* (Elsevier, 1977), **14**, pp. 89–159.

[Sato 2009] Y. Sato, J. Akiyama, and T. Taira, "Effects of rare-earth doping on thermal conductivity in $Y_3Al_5O_{12}$ crystals," *Optical Materials* 31(5), 720–724 (2009).

[Zelenogorskii 2010] V. V. Zelenogorskii and E. A. Khazanov, "Influence of the photoelastic effect on the thermal lens in a YLF crystal," *Quantum Electron.* 40(1), 40–44 (2010).

6 REGIME IMPULSIONNEL : LA ROUTE VERS LE CHAOS

Le présent chapitre traitera du régime déclenché dit « *Q-switch* » à $2,3 \mu\text{m}$ à l'aide de cristaux dopés au thulium sur la transition ${}^3\text{H}_4$ vers ${}^3\text{H}_5$. Dans la littérature, il est courant de voir des trains d'impulsions à $2,3 \mu\text{m}$ comportant de fortes instabilités temporelles (Fig. 1) et un régime chaotique récurant a pu être observé dans l'ensemble de nos expériences en régime déclenché. Ce chapitre s'intéresse ainsi à l'étude de ce régime déclenché et explore des pistes de stabilisation. Nous allons majoritairement décrire avec pragmatisme cette dynamique chaotique en émettant quelles pistes permettant de l'expliquer, mais en raison du grand nombre de paramètres mis en jeu, il est actuellement difficile de comprendre précisément l'ensemble de la physique en jeu.

Le plan est le suivant. Pour montrer le potentiel systémique du chaos dans le thulium, des régimes déclenchés ont été étudiés pour différentes cavités et schémas de pompage : premièrement, à l'aide d'un pompage utilisant un Ti:Saphir, deuxièmement, à l'aide d'un pompage diode et, pour finir, à l'aide d'un pompage à avalanche. Dans l'ensemble de ces expériences, une description du chaos observé a été réalisée et des propositions ont été faites pour stabiliser le train d'impulsions. La dernière partie sur le pompage à avalanche cherche davantage à comprendre l'origine physique du chaos observé.

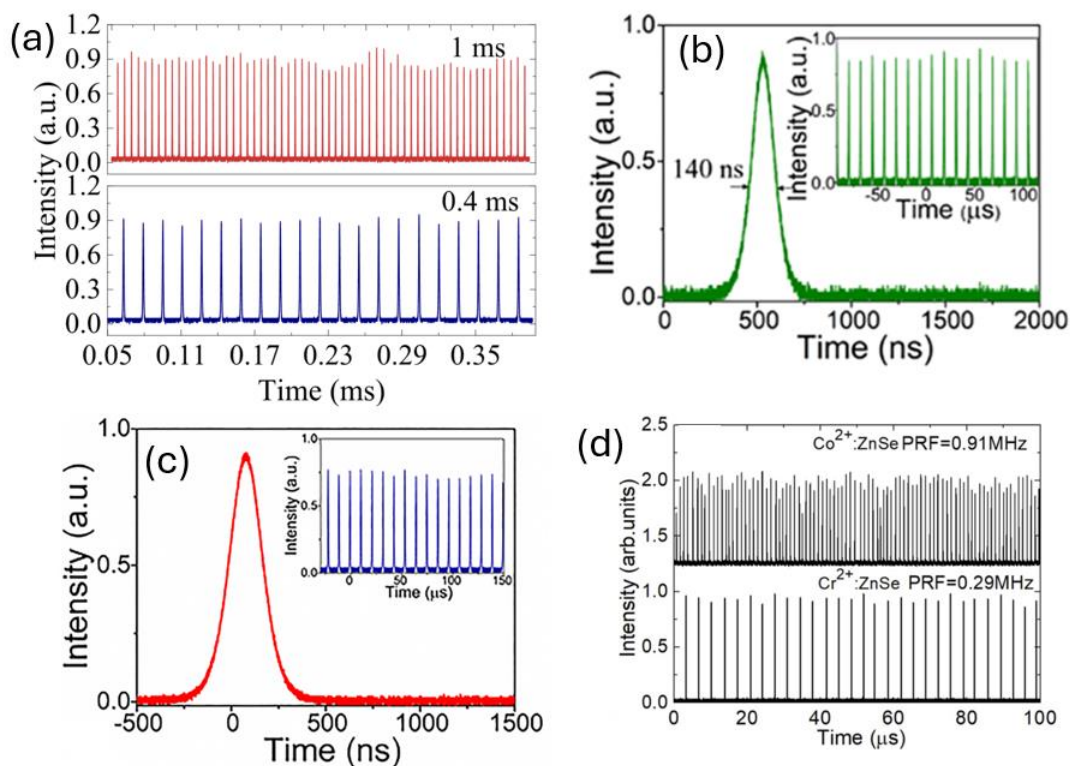


Fig. 1 : (a) Train d'impulsions utilisant un Tm:YVO₄ [Yu 2024] (b) un Tm:YAP [Dong 2021] (c) un autre Tm:YAP [Chu 2022] (d) un guide d'onde en Tm:YLF [Loiko 2020]

6.1 ETAT DE L'ART DES REGIMES CHAOTIQUES DANS LES LASERS

De nombreux régimes chaotiques ont été observés dans les lasers en particulier dans les diodes laser où ces régimes sont particulièrement aisés à réaliser, à contrôler et à étudier [Sciamanna 2015]. De même, une personne souhaitant avoir accès à des régimes chaotiques peut coupler ensemble deux oscillateurs [Donati 2012]. Le chaos est ici voulu et il est possible de l'éviter. Il existe également des cas où les instabilités dues au chaos sont involontaires et donc négatives si on souhaite réaliser des lasers stables et fiables. C'est notamment le cas dans certains lasers à verrouillages de mode où ce type de dynamique a été étudiée [Kovalsky 2004] [Chemla 1995] [Morgner 1996] [Mozdy 2000]. Les prochaines parties se focaliseront sur les chaos observés dans les régimes *Q-switch*.

6.1.1 L'influence du spectre sur les régimes chaotiques

Dans les lasers solides, les régimes chaotiques s'expliquent dans la très grande majorité des cas par l'interaction entre les différents modes de la cavité qu'ils soient longitudinaux ou transverses [Bracikowski 1991]. La présence de deux longueurs d'onde d'émission bien distinctes peut conduire à des instabilités [Yao 2010] bien que cette condition ne soit ni nécessaire, ni suffisante [Liu 2017].

6.1.1.1 Compétition de modes pour le gain

La première explication des régimes chaotiques des lasers multimodes en régime déclenché vient de la compétition des différents modes pour le gain laser. Dans la mesure où l'émission laser à une longueur d'onde tend à réduire le gain pour la seconde, les deux émissions sont fortement couplées par le gain, ce qui favorise l'apparition de régimes chaotiques [Liang 2018] [Larotonda 1999] [Zhang 2004].

6.1.1.2 Battement entre les modes

L'interférence entre plusieurs longueurs d'onde proches est également de nature à créer des instabilités en introduisant des battements [Goldsborough 1964] [Kervevan 2007] [Luo 2017]. Ces battements sont néanmoins fortement liés à la longueur de la cavité qui vient changer l'intervalle spectral libre entre les modes longitudinaux. De même, les paramètres de stabilité de cavité sont aussi de nature à changer l'intervalle entre les modes transverses et longitudinaux. Sous certaines conditions de stabilité, il est ainsi possible de ne pas avoir de battements avec les modes transverses [Chen 2004]. Dans la mesure où les modes transverses sont liés à la stabilité de la cavité, leurs fréquences sont directement reliées à la lentille thermique et de forts couplages ont pu être démontrés entre la thermique et les battements de modes transverses [Ozygus 1995] [Chen 2004].

6.1.2 Un chaos spectroscopique ?

Un article explore également la possibilité d'avoir un chaos d'origine spectroscopique [Valcárcel 1995]. *Valcárcel et al.* ont utilisé un modèle théorique de laser à 3 niveaux en cascade pour obtenir un régime chaotique. Les hypothèses de calcul sont néanmoins éloignées de nos cas expérimentaux (lasers continus, polarisation variable, ...). Bien que ce type d'instabilités n'ait jamais été observé expérimentalement dans d'autres lasers, il n'est pas à exclure que de telles dynamiques puissent être observées. En particulier, d'autres instabilités spectroscopiques très exotiques ont été observées dans le thulium en cas de régime Q-switch en cascade à 1,9 μm et à 2,3 μm en même temps [Huang 2019]. L'influence réciproque des impulsions à 1,9 μm sur ceux à 2,3 μm a été étudiée. Il s'agit néanmoins d'instabilités relativement faciles à éviter dans la mesure où frustrer le laser à 1,9 μm suffit à réduire l'influence délétère des impulsions à 1,9 μm sur le train d'impulsions à 2,3 μm .

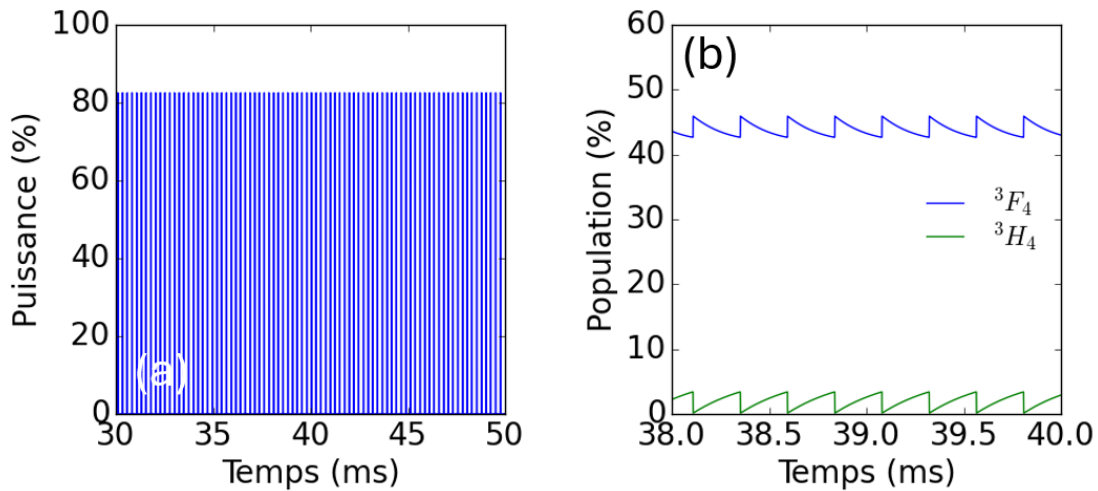


Fig. 2 : (a) Train d'impulsions en régime déclenché et (b) populations des niveaux calculées à l'aide des équations mentionnées ci-dessous.

Prenant acte de ces deux précédents articles, nous avons cherché à savoir si les équations de niveaux du thulium conduisaient systématiquement à des régimes chaotiques. Les équations de niveaux du chapitre 2 ont été reprises en régime non-stationnaire dans le cas du pompage direct (qui est notablement plus rapide à résoudre numériquement que le pompage à avalanche) :

$$\begin{aligned}
 (1) \quad \frac{dn_4}{dt} &= \sigma_{14}n_1\Phi_{0,8\mu\text{m}} - \sigma_{43}n_4\Phi_{2,3\mu\text{m}} + C_{ETU}N^2n_2^2 - C_{RC}N^2n_4n_1 - \frac{n_4}{T_4} \\
 (2) \quad \frac{dn_2}{dt} &= \sigma_{43}n_4\Phi_{2,3\mu\text{m}} - \frac{n_2}{T_2} + \beta_{4(3+2)}\frac{n_4}{T_4} - 2C_{ETU}N^2n_2^2 + 2C_{RC}N^2n_4n_1 \\
 (3) \quad n_1 + n_2 + n_4 &= 1
 \end{aligned}$$

L'équation laser à 2,3 μm a été rajoutée :

$$(4) \frac{d\Phi_{2,3 \mu m}}{dt} = 2\sigma_{43}N(n_4 - \delta)\Phi_{2,3 \mu m}l \frac{c}{L}$$

Où l correspond à la longueur du cristal, L correspond à la longueur de la cavité, δ correspond au taux d'inversion de population pour compenser les pertes de la cavité. Les valeurs spectroscopiques sont les mêmes que dans le chapitre 2. La longueur du cristal est de 1 cm et la longueur de la cavité de 10 cm ici. Pour les pertes, nous avons considéré un absorbant très rapide dont les pertes passent de 3% à 1% si l'intensité photonique $\Phi_{2,3 \mu m}$ est supérieure à $10^{29} m^{-2}s^{-1}$ et inversement. Ces équations ont été résolues en régime temporel à l'aide de la méthode de Runge Kutta avec pour condition initiale, une population dans l'état fondamental uniquement et $\Phi_{2,3 \mu m}(t = 0) = 1 s^{-1}$. Bien que ces équations fassent apparaître des termes couplés, aucun régime chaotique comparable à ce que nous avons expérimentalement n'a été observé sur des temps allant jusqu'à la seconde. Nous nous sommes également assuré d'avoir un échantillonnage important des impulsions pour ne pas créer de bruit d'échantillonnage trop important. Le train d'impulsions comme les populations sont stables dans tous les cas. Cela signifie que, seul, ce système d'équations constitué des populations et d'un laser monomode à 2,3 μm ne conduit pas à un système fondamentalement chaotique. D'autres équations ou termes sont donc nécessaires pour faire apparaître un régime chaotique.

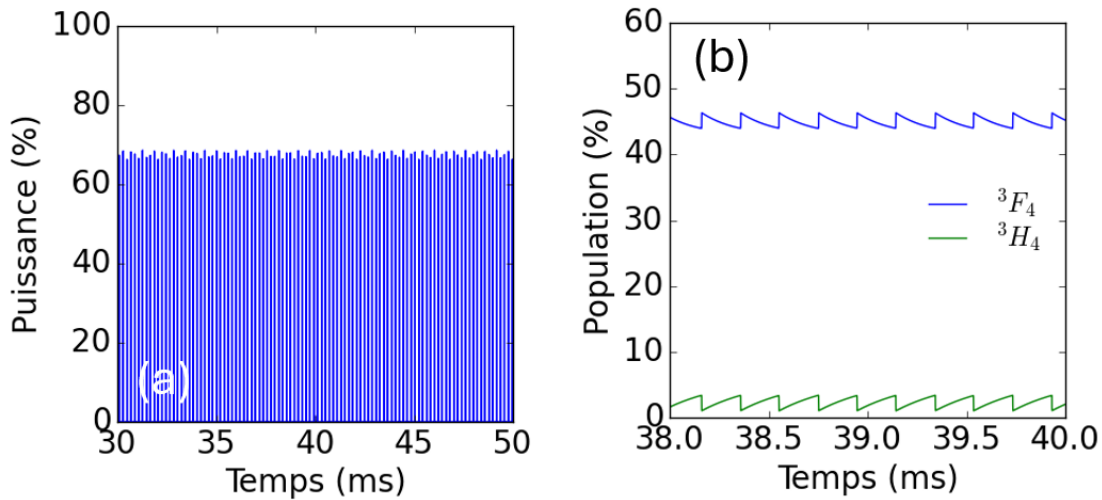


Fig. 3 : (a) Train d'impulsion avec des instabilités de 3% et (b) populations des niveaux calculés à l'aide des équations mentionnées ci-dessous avec des pertes modulées à 20kHz, sur une profondeur de 1%.

Néanmoins, lorsque les pertes sont modulées activement, il est possible d'observer des instabilités sur le train d'impulsions Fig. 3. Ces fluctuations des pertes peuvent illustrer divers phénomènes tels que du bruit électrique, mécanique, des battements, l'ajout d'équations (thermique, dépolarisation, ...). Ce calcul permet seulement d'illustrer avec les mains comment l'ajout de perturbations ou d'équations supplémentaires inconnues peuvent rendre aisément le système chaotique.

6.2 UN CHAOS POSSIBLEMENT SYSTEMIQUE : DESCRIPTION DE LA DYNAMIQUE POUR DIFFERENTES CONFIGURATIONS

6.2.1 Le pompage Ti:Saphir et les intermittences de type I

Les premiers régimes chaotiques ont été observés à l'aide d'un pompage direct avec un Ti:Saphir émettant jusqu'à 2 W à 780 nm. Le milieu à gain est constitué d'un cristal de Tm:LiYF₄ dopé à 3 %. Deux cavités imbriquées à 1,9 μm et à 2,3 μm partagent ce même milieu à gain et sont séparées par un miroir dichroïque. Dans le bras à 2,3 μm, l'absorbeur saturable utilisé est un cristal de Cr²⁺:ZnSe dopé à $2,76 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ sur une épaisseur de 1,2 mm. Ses pertes saturables sont de 4,1%. La puissance du laser à 1,9 μm peut être ajustée voire réduite à zéro en bloquant la cavité correspondante à l'aide d'un diaphragme. La transmission du coupleur de sortie à 2,3 μm est de 1% ou 3%, alors que pour la ligne laser à 1,9 μm, la transmission du coupleur est fixée à 2%.

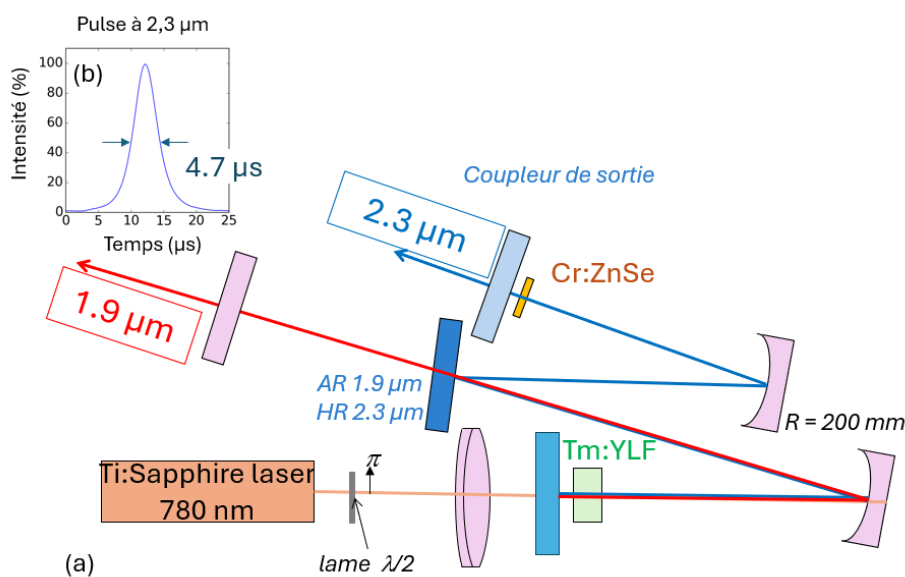


Fig. 4 : Schéma expérimental d'un régime déclenché pompé à l'aide d'un Ti:Saphir

Pour la configuration laser décrite, avec ou sans laser en cascade à 1,9 μm, un train d'impulsions avec une cadence allant de 1 à 30 kHz a été obtenu avec une durée d'impulsion constante d'environ 4,7 μs (Fig. 5(b)). Le taux de répétition des impulsions augmente de manière monotone avec la puissance de la pompe (Fig. 5 (b)(c)). Les « barres d'erreur » ne sont pas des incertitudes de mesures mais indiquent la valeur de la déviation standard du taux de répétition mesurée sur quelques secondes (quantifiant ainsi la gigue temporelle). Les zones chaotiques peuvent être clairement identifiées lorsque la dispersion du taux de répétition diverge [Kovalsky 2010]. Les zones stables varient en fonction des différentes configurations laser. Avec le coupleur de sortie de

1 % à 2,3 μm , elles se situent dans les plages de 8,9 - 10,9 kHz et 13,2 - 16 kHz en l'absence de laser en cascade, et dans les plages de 9,5 - 12,3 kHz et 14,6 - 19,4 kHz avec le laser en cascade. Le laser à cascade n'est pas une condition préalable pour obtenir un régime chaotique puisque des observations similaires sont faites avec ou sans laser à cascade. Les comportements chaotiques sont équivalents et le chemin vers le chaos passe toujours par des intermittences. Une telle route vers le chaos avait déjà été observée dans des lasers CO₂ mais était d'origine électrique [Kim 1993].

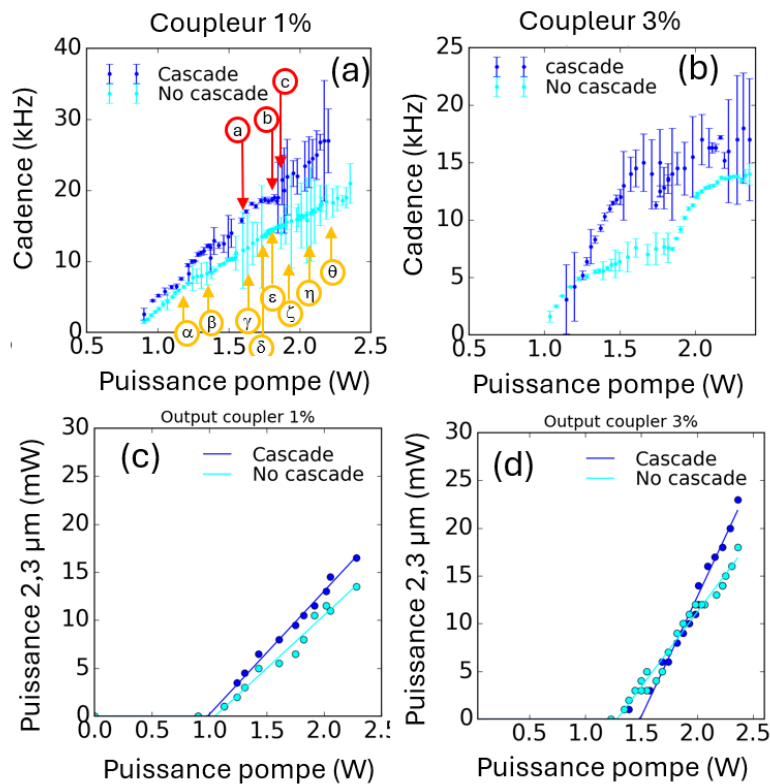


Fig. 5 : (a) Cadence du train d'impulsion en fonction de la puissance de pompe un coupleur de 1%. Les lettres correspondent à la position des spectres et des trains d'impulsions des Fig. 6 et 7. (b) Cadence du train d'impulsion en fonction de la puissance de pompe un coupleur de 3%. Les barres d'erreurs correspondent au valeur rms des cadences mesurées. (c) Puissance de sortie à 2,3 μm pour un coupleur de 1% et (d) pour un coupleur de 3%.

Il est à noter qu'en présence d'un régime chaotique, le spectre contient plusieurs fréquences largement séparées Fig. 6 (a) (spectre β et γ). Néanmoins, lorsque la puissance de pompe augmente et qu'une nouvelle zone stable est atteinte, le spectre n'a plus qu'un seul pic (spectre δ et ϵ). Il semblerait ainsi dans notre cas que ces différents pics spectraux soient davantage une conséquence qu'une cause de notre régime chaotique. Dans le cas contraire, ses pics multiples n'auraient pas disparu lorsqu'un nouveau régime stable est atteint. Néanmoins, une éventuelle compétition de mode pour le gain ne peut pas être exclue ici.

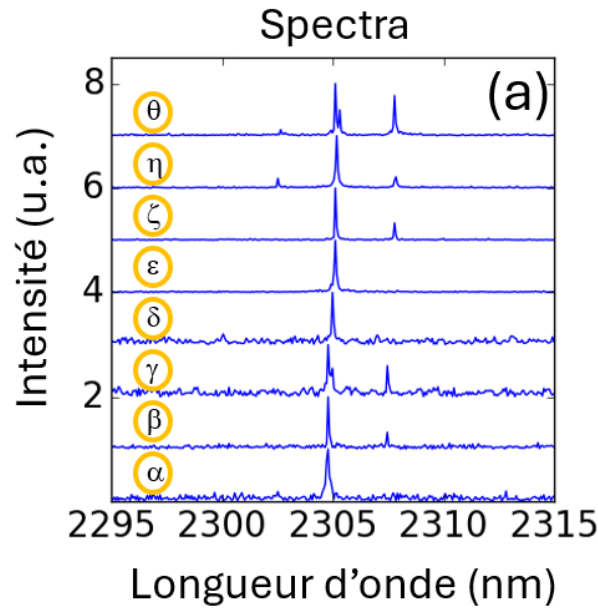


Fig. 6 : (a) Spectre du laser à 2,3 μm pour différentes puissances de pompe conduisant à différents régimes placés sur la Fig. 5(a). Le coupleur était de 1%. Il n'y avait pas de cascade à 1,9 μm . Les spectres sont acquis sur 1 s, ces longueurs d'onde ne sont donc pas forcément présentes à chaque impulsions.

Nous allons maintenant concentrer notre étude sur les différentes dynamiques impliquées dans la route vers le chaos. Nous considérons tout d'abord la géométrie du laser sans cascade (émission à 2,3 μm seulement) avec un coupleur de 3%. Pour une analyse précise du comportement temporel, nous utilisons un oscilloscope avec une grande mémoire (jusqu'à 134 Mpts) permettant une acquisition sur de longues durées avec un bon échantillonnage et une détection précise de la puissance crête. L'étude portera sur le chemin vers le chaos d'un train d'impulsions autour de 20 kHz. Pour cette analyse, les puissances crêtes des impulsions ont été extraites. Cela permet d'avoir accès à des paramètres intéressants pour l'étude du chaos tels que l'entropie¹ des puissances pics et les cartes de Poincaré. Pour analyser les différents régimes, les oscillogrammes ont été présentés sur la première ligne de la Fig. 7. En seconde ligne, les cartes de Poincaré, correspondant à la valeur de la puissance pic en fonction de la puissance pic précédente, ont été tracées. Cette carte de Poincaré permet d'identifier des corrélations déterministes entre les pics en les différenciant du bruit blanc ou du jitter qui sont aléatoires. Concernant la *sample entropie*², cette grandeur quantifie la prédictibilité d'une valeur connaissant les m valeurs précédentes. Elle a pour paramètre

¹ L'entropie est une valeur permettant de quantifier le chaos d'un train d'impulsions. Des outils existent dans la librairie « nolds » de python permettant de la calculer. Ces outils sont utilisés par exemple pour étudier les problèmes de régularité du rythme cardiaque souvent annonciateurs de crise.

² Ou « Sampen » dans la librairie nolds de Python. Cette grandeur permet de caractériser le niveau de chaos d'une série de point. Elle est définie par $Sample\ entropie = -\ln\left(\frac{A}{B}\right)$. A est le nombre vecteur respectant la condition $d[\{x_i, \dots, x_{i+m}\}, \{x_j, \dots, x_{j+m}\}] < r$, $d[\]$ étant un opérateur de distance (euclidienne dans notre cas) et B est le nombre de vecteur tel que $d[\{x_i, \dots, x_{i+m-1}\}, \{x_j, \dots, x_{j+m-1}\}] < r$. r et m sont des paramètres variables.

r qui est la distance en dessous de laquelle deux listes de points de longueur m sont considérés comme identiques [Richman 2000]. Une entropie nulle correspond à une suite prévisible et des valeurs supérieures ou divergentes correspondent à une suite très peu prévisible.

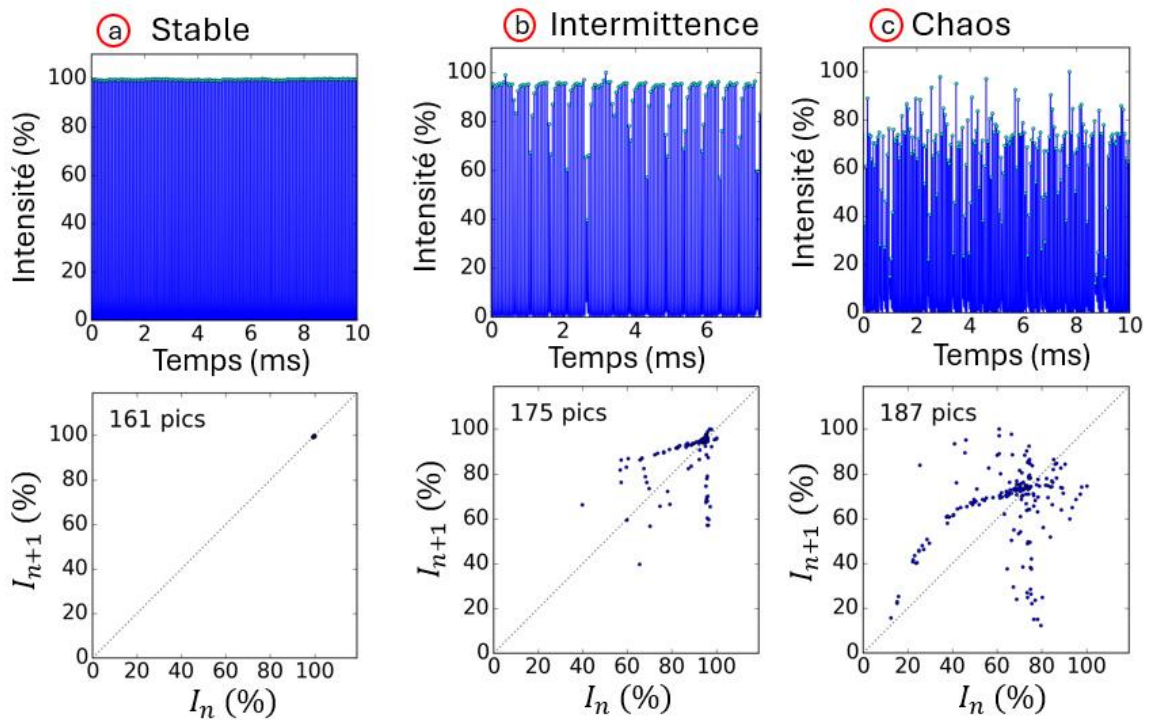


Fig. 7 : Oscillogramme en régime (a) stable (b) avec des intermittences (c) chaotique. Les carte de Poincaré présentant la puissance pic normalisée en fonction de la puissance pic précédente sont placés au-dessous.

Des régimes très stables ont pu être obtenus Fig. 7(a). Une transition vers le chaos par intermittence a été observée (suivant le scénario de Pomeau-Manneville [Bergé 1997]). L'intermittence est précédée par une longue période de comportement presque régulier appelé phase laminaire interrompue par un sursaut chaotique limité dans le temps. Dans notre cas, les intermittences consistent en des périodes successives laminaires, principalement d'une durée d'environ 7 à 8 impulsions telles que présenté à la Fig. 7(b). Ces intermittences sont les prémises des régimes chaotiques et représentent, dans notre cas, la transition (route) observée vers ces derniers. Pour chacun de ces trains d'impulsions, la *sample entropie* a été calculée. Pour les régimes stables, le comportement est prévisible. La *sample entropie* est alors de 0 pour $m = 3$ et une tolérance r de $2\%^3$. Lorsque les intermittences se produisent, l'entropie se dégrade à 0,547 et atteint 1,551 pour le régime chaotique. Cette valeur caractérise bien

³ Pourquoi 2% ? Comme nous effectuons les calculs d'entropie à partir de mesures et que nous voulons éviter que cette valeur soit perturbée par le bruit, nous avons choisi de paramétrer une tolérance de 2% (dans la fonction Sampen)

une suite de points très peu prévisibles.

Sur les cartes de Poincaré, pendant la "phase laminaire", les fonctions $I_{n+1} = I_n$ - où I_n est l'intensité de la n-ième impulsion laser - sont au-dessus de la ligne bissectrice dans le cas de la transition par intermittence selon le modèle de Pomeau. Ce comportement est typique de la route vers le chaos par intermittence [Bergé 1997]. Pour conclure sur la signature du type d'intermittence [Tang 1992], nous avons tenté d'ajuster l'évolution de la phase laminaire dans la carte de Poincaré [Bergé 1997]. Les points de la phase laminaire (observés avant la chute de l'intensité maximale) s'approchent tangentiellement de la bissectrice, ce qui est compatible avec une intermittence de type I. Il est possible de modéliser l'évolution des pics de phase laminaire $I_{n+1} = f(I_n)$ avec une fonction polynomiale. Cette fonction permet d'estimer que la courbe de Poincaré s'approche tangentiellement de la bissectrice avec une distance ε de 0,0165. Pour aller plus loin dans le raisonnement, il est également possible d'évaluer la dépendance exponentielle entre la longueur de la phase laminaire L et cette distance ε . Dans le cas d'une longueur laminaire moyenne mesurée d'environ 7 à 8 impulsions (dans notre cas $\langle L \rangle = 7,75$), on trouve $L = \varepsilon^{-\lambda}$ avec $\lambda = 0,49$: valeur proche de la valeur théorique de 0,5 pour des intermittences de type I. Au vu de la dispersion des points au niveau de la bissectrice, ceci ne constitue pas une preuve irréfutable, cependant ceci tend quand même à corroborer l'hypothèse d'intermittences de type I.

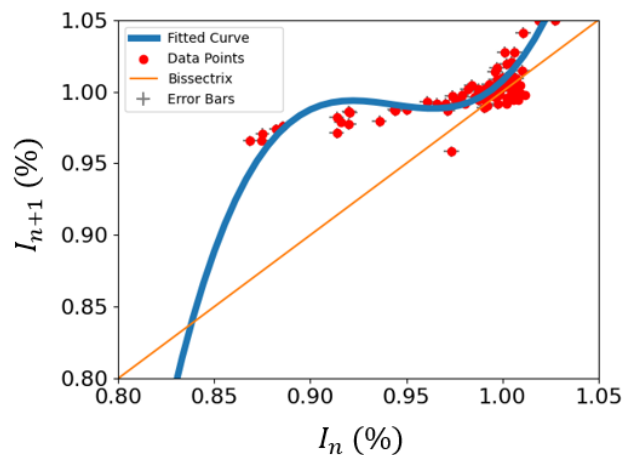


Fig. 8 : Carte de Poincaré de différentes phases laminaires accompagnée d'un fit polynomial cubique issu du modèle de Pomeau utilisé pour extraire ε .

Le chemin vers le chaos peut également être observé en régime transitoire. La figure 9 représente ce régime dans lequel nous avons fait quelques zooms intéressants. Pour obtenir ce régime transitoire, la cavité laser à 2,3 μm est ouverte puis fermée et le train d'impulsions est enregistré pendant un quart de seconde. Avant d'atteindre le régime chaotique, un train d'impulsions stable est observé à un taux de répétition de 19,4 kHz correspondant à celui attendu pour cette puissance de pompe (Fig. 5). Cependant, ce régime stable n'est pas accessible dans le régime stationnaire. En effet, après un court

laps de temps le régime devient chaotique en passant par une phase d'intermittences. Ce phénomène transitoire peut permettre l'obtention d'un train stable. C'est une hypothèse intéressante à prendre en compte pour permettre de stabiliser des régimes Q-switch lorsque la pompe est hachée [Kifle 2021] car, en hachant le signal de pompe, le laser est constamment ramené dans une phase transitoire. Des considérations thermiques peuvent éventuellement expliquer ce phénomène transitoire. Lorsque l'émission laser à 2,3 μm apparaît, l'absorption change dans le Cr:ZnSe. Nous avons mesuré son élévation de température à environ 26 °C à l'aide d'une caméra thermique (et en considérant une émissivité de 0,05 [Zhang 1997]). Durant la thermalisation cette légère variation permet de passer d'un régime stable à un régime chaotique en passant par un régime d'intermittences. Cette expérience nous montre et corrobore bien la route déjà observée vers le chaos.

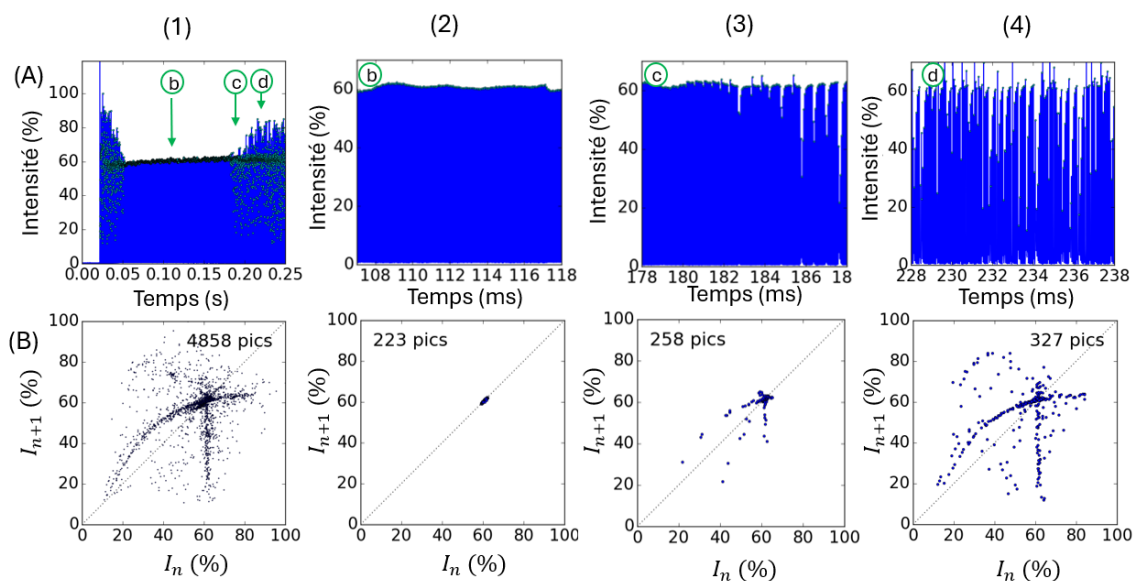


Fig. 9 : Pour la colonne (1), régime transitoire observé sur un quart de seconde. Colone (2) : zoom sur le régime stable. Colone (3) : zoom sur les premières intermittences (4) zoom sur le régime chaotique. Ligne (A) : oscillogramme en régime transitoire. Ligne (B) : Cartes de Poincaré des oscillogrammes correspondant à la même colonne et issu de l'oscillogramme de la ligne (A)

Rajoutons maintenant à notre étude l'observation du régime temporel du laser à 1,9 μm . Pour cela, nous débloquons simplement la cavité à 1,9 μm . Pour rappel, lorsque le laser à 1,9 μm opère seul (sans co-laser à 2,3 μm) le régime temporel est totalement continu, car rien dans la cavité à 1,9 μm ne module temporellement les pertes. Lorsque le laser en cascade opère, une impulsion à 2,3 μm donne lieu à des oscillations de relaxation à 1,9 μm . Celles-ci peuvent s'expliquer dans la mesure où l'impulsion à 2,3 μm vient brutalement remplir le niveau 3F_4 qui est le haut du niveau laser à 1,9 μm . Le gain est légèrement augmenté conduisant à la mise en place d'un régime transitoire pour le laser à 1,9 μm et pour la population du niveau métastable 3F_4 , prenant la forme d'oscillations de relaxation faiblement amorties de type « laser ringing ». Celles-ci dépendent principalement des taux de pompage et des pertes de la cavité. Ces

oscillations de relaxation sont caractéristiques des lasers très faiblement perturbés [Siegmán 1986]. Dans notre cas en effet, les perturbations sont trop faibles pour prendre la forme d'oscillation de relaxation sous la forme de « laser spiking » - que nous observerons néanmoins plus tard pour des impulsions de plus forte énergie-. Ces oscillations de relaxation sont facilement visibles à très basses cadences (quelques kHz) et Fig. 10 il semble y avoir un problème de synchronisation entre les deux lasers : le laser à 2,3 μm n'arrivant pas systématiquement à la même phase de cette oscillation de relaxation. Ceci conduit à des instabilités en intensités (sur les deux lasers) et une dispersion des points dans le diagramme de Poincaré.

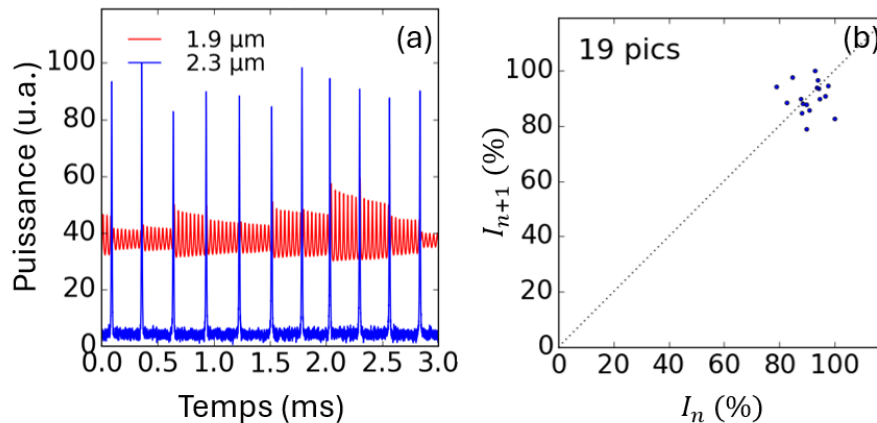


Fig. 10 : (a) Laser à 2,3 μm au seuil et oscillation de relaxation du laser à 1,9 μm . (b) Carte de Poincaré du train à 2,3 μm .

Pour les régimes stables à plus haute cadence, il est possible de remarquer que la cadence à 2,3 μm est en phase avec les oscillations de relaxation du laser à 1,9 μm .

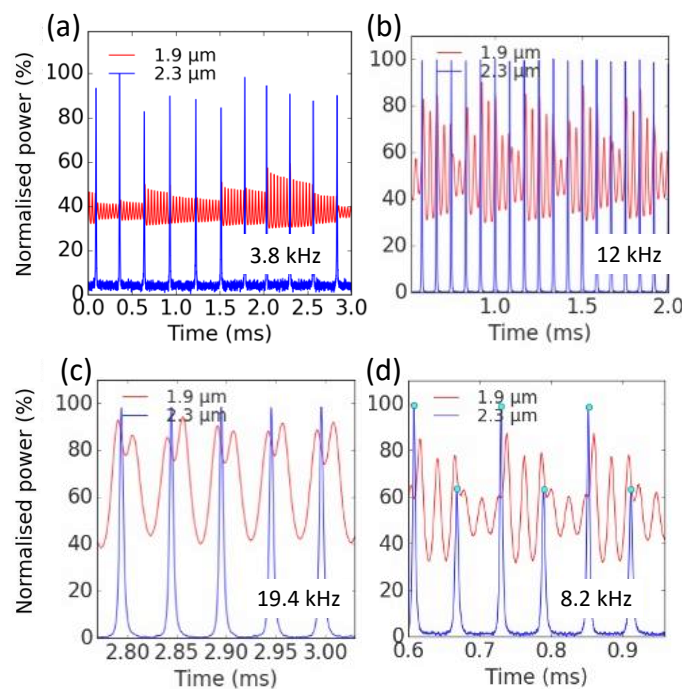


Fig. 11 : Exemple de régimes stables avec synchronisation des lasers en cascades.

Cet effet de synchronisation est particulièrement visible lorsqu'on trace la puissance laser à 2,3 μm en fonction de la puissance à 1,9 μm . En régime stable, la boucle « Puissance à 2,3 μm vs. puissance à 1,9 μm » passe systématiquement par la même trajectoire. Ce n'est plus le cas quand le régime devient instable à 2,3 μm en subissant une intermittence. Le laser à 1,9 μm perd la synchronisation (fig. 12) : le Q-switch à 2,3 μm semble se restabiliser mais pas le laser à 1,9 μm . Les boucles ne suivent plus la même trajectoire et se dispersent selon l'axe des « puissances à 1,9 μm ».

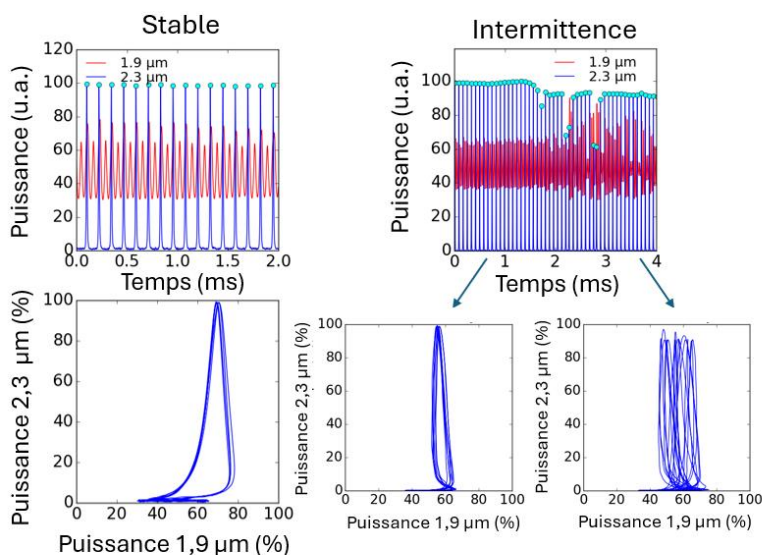


Fig. 12 : Trains d'impulsion stable ou comportant des intermittences et leurs map « Puissance à 2,3 μm vs. la puissance à 1,9 μm » respectives.

En conclusion, cette partie offre la première description empirique d'un régime chaotique observé en régime déclenché dans le thulium. Une route vers le chaos prenant la forme d'intermittence de type I a pu être observée, ce qui est atypique pour ce type de régime déclenché. Afin de savoir s'il s'agit d'un chaos systémique, le régime déclenché va également être étudié dans d'autres configurations, notamment le pompage par diode.

De même, dans ces premières mesures, le laser à 1,9 μm apporte une nouvelle composante mesurable à l'étude du chaos même si la nature du régime chaotique observé ne peut pas être totalement expliquée. En effet, le laser en cascade complexifie le système en rajoutant une équation mais ne semble pas modifier les régimes observés : chaos et intermittences sont toujours les mêmes avec ou sans ce paramètre supplémentaire.

1,12 , 1,12 et 2,58 mm. Tous les cristaux sont traités AR afin de minimiser les pertes dues aux réflexions de Fresnel à la surface du cristal.

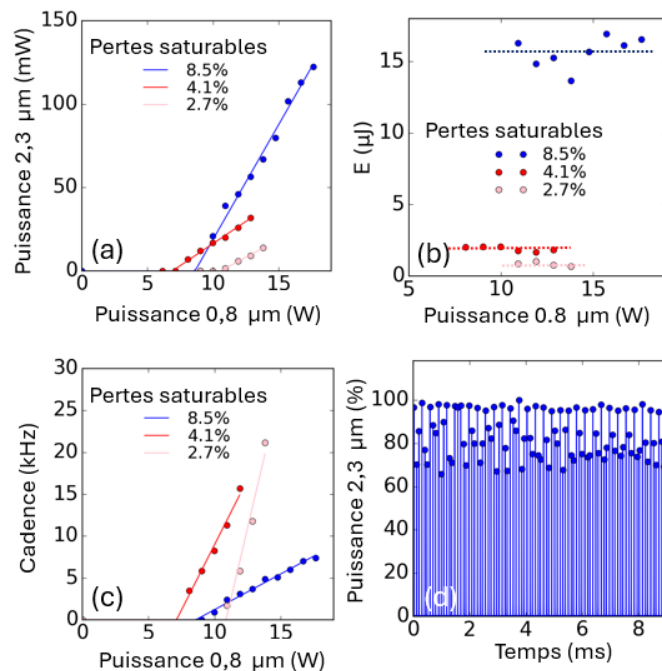


Fig. 14 : (a) Puissance moyenne à 2,3 en fonction de la puissance de pompe pour différentes pertes saturables. (b) Energie moyenne des impulsions à 2,3 μm en fonction de la puissance de pompe pour différentes pertes saturables. (c) Cadence moyenne des impulsions à 2,3 μm en fonction de la puissance de pompe pour différentes pertes saturables. (d) Trains d'impulsions chaotiques observé pour des pertes saturables de 8,5 %.

Les trois cristaux différents de Cr:ZnSe ont été placés dans la cavité en Z afin d'étudier l'influence de l'énergie des impulsions sur les régimes temporels observés. Pour 8,5 % de pertes saturables, une puissance moyenne maximum de 122 mW a été obtenue pour une cadence de 7,5 kHz et une énergie de 16 μJ. Pour des pertes saturables de 4,1% et 2,7%, des puissances moyennes de 33 mW et 15 mW ont été obtenues avant de blanchir continûment l'absorbant saturable pour de plus grandes puissances de pompe et avoir un régime continu. Pour ces puissances, les cadences sont de 21 kHz et 16 kHz respectivement pour des énergies de 1 μJ et 2 μJ.

La durée des impulsions est de 1 μs, 2 μs et 10 μs pour des pertes saturables de 8,5%, 4,1% et 2,7% respectivement. Les différences importantes de puissances moyennes entre le Cr:ZnSe absorbant 8,5% et les deux autres peut s'expliquer par une qualité de traitement de surface différente induisant les pertes passives plus fortes pour les Cr:ZnSe absorbant 4,1% et 2,7%. Pour chacun des absorbants saturables utilisés, les trains d'impulsions observés avaient un comportement chaotique, réduisant grandement la prédictibilité de la puissance pic émise d'un pulse à l'autre.

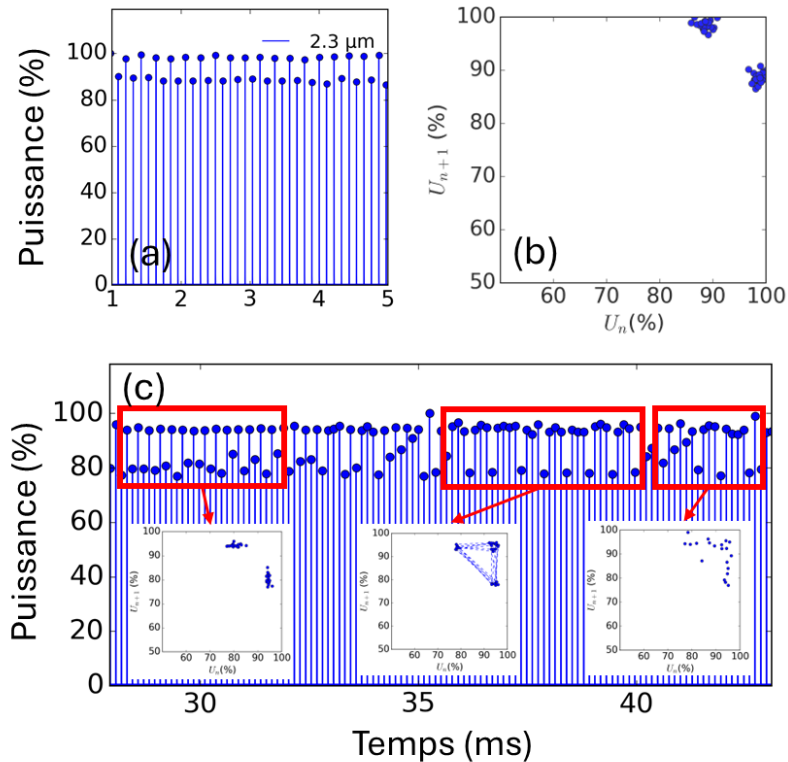


Fig. 15 : (a) Train d'impulsion bi-stable d'entropie 0,03 (b) Carte de Poincaré du précédent oscillogramme (c) Route vers le chaos prenant la forme d'apériodicité et cartes de Poincaré au cours du temps

Les chemins vers le chaos menant aux régimes chaotiques se sont néanmoins avérés significativement différents suivant l'absorbant saturable utilisé. Pour des énergies de $16 \mu\text{J}$, un chemin vers le chaos prenant la forme d'apériodicités plus ou moins régulières a été observé Fig. 15. Ce chemin a également été observé plus rarement pour des impulsions de $2 \mu\text{J}$. Pour des énergies de $1 \mu\text{J}$ et de $2 \mu\text{J}$, un chemin vers le chaos prenant la forme d'intermittence a été observé de façon prépondérante Fig. 16.

Comme dans la partie précédente, pour quantifier et identifier les différentes formes de régimes chaotiques, deux outils ont été réutilisés. En premier lieu, un diagramme de Poincaré consistant à tracer la puissance pic normalisée I_{n+1} en fonction de la puissance pic normalisée précédentes I_n . Un autre outil utilisé est l'entropie qui permet de quantifier à quel point le pulse $m+1$ est prévisible par rapport à ce qu'on sait des m pulses précédant avec une marge r prise à 3% dans notre cas. La valeur utilisée dans la suite sera $m=2$.

Aucun régime stable pulse à pulse sur une durée significative n'a été observé pour les impulsions de $16 \mu\text{J}$. Des périodes de bistabilités récurrentes entre les périodes chaotiques ont néanmoins été observées. Dans le cas des trains bistables, l'entropie calculée sur les puissances crête et sur une période de 5 ms Fig. 15(a) est de 0,03, allant dans le sens d'un train d'impulsion plutôt prévisible bien que bistable. Le diagramme

de Poincaré permet également de façon plus graphique encore de mettre en évidence les deux zones de stabilité. Le train d'impulsions alterne continûment entre des périodes de fortes instabilités et ses périodes de bistabilité sur une échelle de temps de l'ordre de quelques minutes. Entre ces deux périodes, des chemins vers le chaos peut être observé, prenant la forme d'apériodicité Fig. 15(c) où le nombre de zones de stabilité augmente progressivement sur le diagramme de Poincaré avant d'atteindre un chaos plus poussé d'entropie 0,7 ou plus. Cette dernière phase dure en général plusieurs secondes.

Cependant, des périodes relativement stables pulse à pulse sur une durée significative de quelques dizaines de ms ont pu être observées pour les impulsions de 2 μ J et 1 μ J Fig. 16 (c). Une entropie de 0,14 a été mesurée sur 201 impulsions d'énergie 2 μ J pour une fenêtre de 20 ms. De même, des périodes de bistabilité ont également été observées mais plus rarement pour les impulsions de 2 μ J que de façon similaire à ce qui a été observé avec les impulsions de 16 μ J.

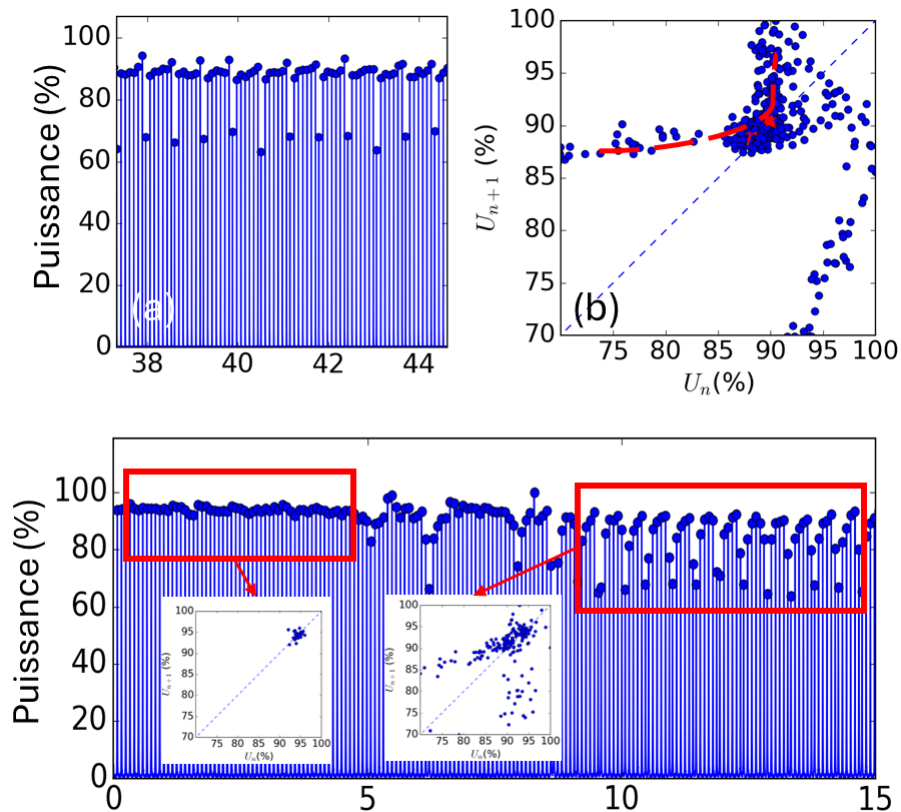


Fig. 16 : (a) Train d'impulsions contenant des intermittences d'entropie 0,4 (b) Carte de Poincaré du précédent oscillogramme, on peut noter là encore une adéquation avec l'hypothèse de Pomeau concernant les intermittences de type I dans la transformation du boulanger ([Bergé 1997]), (c) Route vers le chaos via des intermittences commençant avec une entropie de 0,03 pour aller vers une entropie de 0,8 pour la seconde zone contenant des intermittences.

Ces régimes stables se situent toujours d'un point de vue temporel entre des trains d'impulsions chaotiques d'entropies plus élevées. Entre les deux, des chemins vers le chaos peuvent être observés, prenant la forme d'intermittences successives Fig. 16(c) avant que le système ne devienne totalement chaotique Fig. 14(d). Dans ce cas, la puissance pic ne cesse de croître avant de s'effondrer brutalement, ce qui dans le diagramme de Poincaré se matérialise par une courbe venant approcher la bissectrice, là encore sans la croiser ce qui est similaire au régime observé en pompage par Ti:Saphir.

Comme précédemment, l'ajout du laser à 1,9 μm permet de mettre en évidence des oscillations de relaxation du laser à 1,9 μm . Cependant contrairement au pompage par Ti:saphir, les perturbations sur le laser à 1,9 μm sont de natures différentes comme on peut le voir Fig. 17 pour des impulsions de 16 μJ à 2,3 μm .

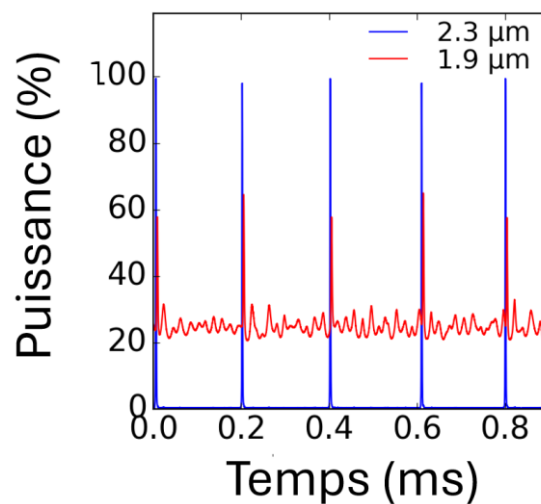


Fig. 17 : Pulse à 2,3 μm en présence d'un laser continu à 1,9 μm sans modulation de la pompe.

Dans la mesure où l'énergie des impulsions est plus importante qu'en pompage Ti:Saphir (où elle était de 0,7 μJ), le laser à 1,9 μm est davantage perturbé par l'impulsion à 2,3 μm et les oscillations de relaxation ressemblent davantage à des *spikes* plus classiques. L'impulsion du laser à 2,3 μm n'est donc plus faiblement perturbative comme pour le Ti:Saphir et des oscillations de relaxation monofréquences ne sont plus observées à 1,9 μm .

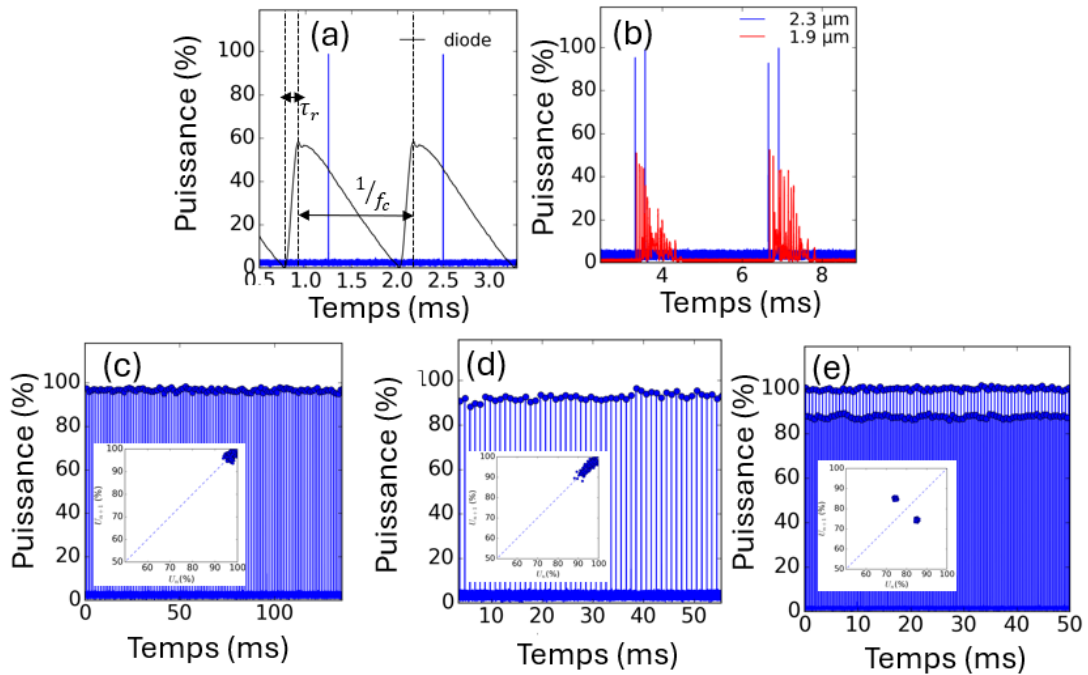


Fig. 18 : (a) Pulse à 2,3 μm en présence d'un pompage impulsionnel. La diode est représentée en noir. Une rampe constante est imposée par l'électronique de puissance sur une durée τ_r avant que la puissance ne diminue lentement à cause de l'électronique. La cadence de la pompe est également imposée. (b) Impulsions à 2,3 μm pour une puissance de pompe en régime non continu. (c) Double pulses à 2,3 μm et laser spiking à 1,9 μm en raison de la perturbation induite par les pulses à 2,3 μm . Train d'impulsions à 2,3 μm pour une pompe hachée à la cadence f_c (d) 400 Hz (e) 600 Hz (f) 1,5 kHz

J'ai pensé que la durée de relaxation de ce laser à 1,9 μm pouvait être similaire à la durée nécessaire pour que l'ensemble des grandeurs pertinentes dans l'établissement du chaos reviennent à l'état stationnaire. En effet, ces grandeurs finissent tôt ou tard par quitter leur régime transitoire pour rejoindre un état stable en absence d'impulsion (même si ces paramètres ne sont pour l'heure pas clairement identifiés). Si la durée entre chaque pulse est suffisante pour quitter le régime transitoire, alors chaque pulse repart du même régime stationnaire qui est unique et connu. La mémoire de ce qui s'est passé au pulse précédent n'est plus présente dans les grandeurs physiques en régime stationnaire (contrairement au cas du régime transitoire) et il n'y a donc plus d'influence du pulse précédent sur le pulse étudié. J'ai testé cette hypothèse afin de tenter une stabilisation du train d'impulsion. Différentes durées entre les impulsions ont été imposées pour observer pour quelles cadences un régime stable pouvait être observé. La cadence des impulsions a été progressivement augmentée jusqu'à ce que les régimes transitoires se recouvrent à nouveau et qu'un régime chaotique soit à nouveau observé. Cette mesure nous permet d'obtenir ce qui pourrait s'apparenter à une « durée de décohérence entre pulse » à partir de laquelle il n'y a plus de chaos possible entre deux pulses successifs.

D'un point de vue expérimental, la diode laser a été utilisée en régime impulsionnel sur une durée variable τ_r , avec une cadence f_c et une rampe de $0,11 \text{ W}\mu\text{s}^{-1}$ (imposée par l'électronique de la diode) (Fig. 18 (a)). La cadence de la diode impose la durée entre chaque pulse à $2,3 \mu\text{m}$, la durée τ_r permet d'avoir un (Fig. 18 (a)) ou plusieurs pulses (Fig. 18(b)) chaque fois que la rampe est appliquée. La durée de relaxation du laser à $1,9 \mu\text{m}$ est de $0,97 \text{ ms}$ imposant une limite en cadence à 1 kHz avant que le laser à $1,9 \mu\text{m}$ ne repasse en continu. Concernant la stabilité, aucun régime stable n'a été observé lorsque plusieurs impulsions sont émises dans un créneau de pompe. *A contrario*, des régimes très stables ont pu être obtenus lorsqu'un seul pulse était émis à la fois, confirmant l'hypothèse précédente. Pour des cadences de 400Hz , 600Hz , 800Hz , 1kHz les entropies mesurées étaient de $0,01$; $0,02$; $0,03$ et $0,17$ respectivement sur 1s de mesure. Plus la cadence augmente, plus l'entropie augmente jusqu'à obtenir des régimes bien moins stables à 1 kHz Fig. 18(e) et à nouveau des régimes bistables pour des cadences de $1,5 \text{ kHz}$ à la pompe Fig. 18(d). Pour une puissance moyenne de pompe de $7,03 \text{ W}$ et une cadence de 800 Hz , une puissance moyenne en sortie de 6 mW a été obtenue correspondant à une énergie par pulse de $7,5 \mu\text{J}$.

En conclusion, plusieurs types de régimes chaotiques ont pu être observés en régime laser Q-switch en utilisant la transition à $2,3 \mu\text{m}$ du thulium et trois absorbants saturables de Cr:ZnSe différents ayant des pertes passives de $2,7\%$, $4,1\%$ et $8,5\%$. Les impulsions les plus énergétiques de $16 \mu\text{J}$ prenaient un chemin vers le chaos passant par l'apparition de trains de plus en plus aperiodiques tandis que les trains d'impulsions avec une énergie de $1 \mu\text{J}$ par pulse rejoignaient le chaos par des intermittences similaires à celles observées avec le pompage en Ti:saphir. En utilisant la pompe en régime impulsionnel, des régimes stables ayant des entropies inférieures à $0,03$ ont pu être mesurés sur des périodes de 1 seconde, démontrant ainsi une forte augmentation de la stabilité et de la fiabilité des lasers thulium émettant à $2,3 \mu\text{m}$. Ce gain en termes de stabilité se fait néanmoins au prix d'une réduction significative de la cadence des impulsions à $2,3 \mu\text{m}$.

6.2.3 Chaos en pompage à avalanche : identification de quelques paramètres signifiants

Le régime chaotique a également été observé en utilisant le pompage à avalanche. Dans notre cas, le schéma de pompage en intracavité du chapitre 5 utilisant un Nd:YVO₄ a été utilisé pour pomper une cavité utilisant un cristal de Tm:YLF dopé à 2,5 %. Cette cavité contient un cristal de Cr:ZnSe conduisant à des pertes saturables de 8.5%. Un coupleur de 1% a été utilisé. Une puissance moyenne maximale de 0,2 W pour une cadence de 16 kHz et une énergie de 12 μ J a été obtenue. Les régimes chaotiques observés sont très similaires à ceux étudiés en pompage diode pour une énergie de 16 μ J. Pour cette raison, nous nous sommes davantage concentrés ici sur l'identification des paramètres physiques pouvant conduire au chaos.

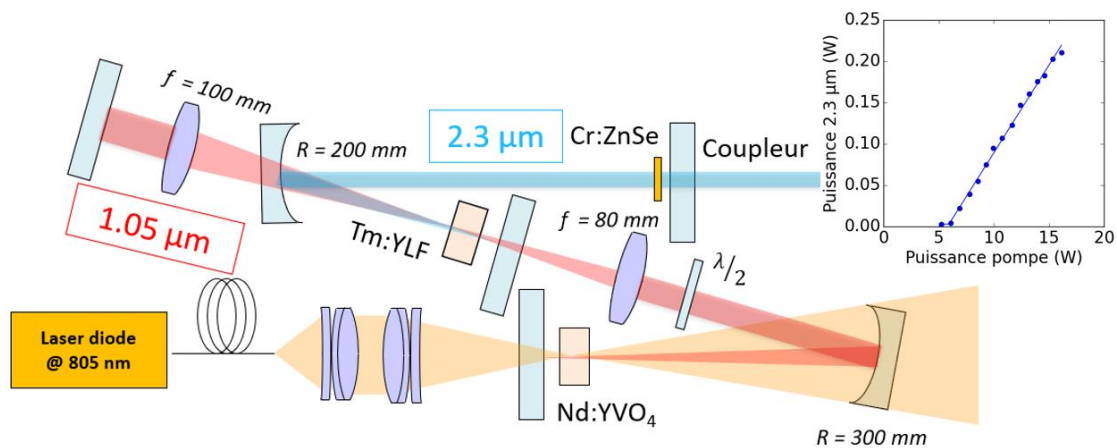


Fig. 19 : Schéma expérimental laser Q switch à 2,3 μ m pour un pompage à avalanche.

6.2.3.1 Stabilité de la pompe à 1 μ m en pompage intracavité

Dans un premier temps, la puissance de la pompe à 1 μ m a été mesurée en même temps que le train d'impulsion pour vérifier que la cavité couplée à 1 μ m ne conduise pas intrinsèquement à un régime chaotique. Les variations de la puissance de pompe à 1 μ m observées après une impulsion à 2,3 μ m sont assez faibles, de l'ordre de 0,3%. De même, le temps caractéristique du régime transitoire à 1 μ m est de 7 μ s, ce qui est bien trop rapide pour avoir une influence sur la stabilité du prochain pulse à 2,3 μ m Fig. 20 (b) qui arrive plus de 100 μ s après le précédent. La pompe à 1 μ m ne semble ainsi pas contribuer au chaos que nous observons.

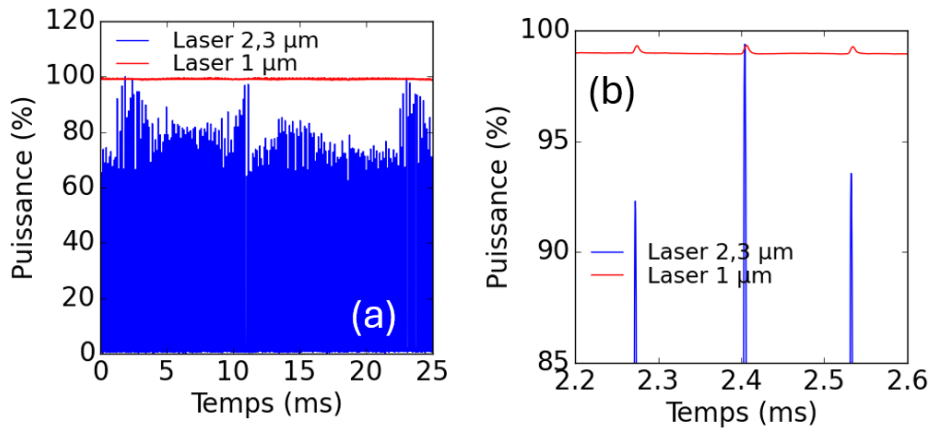


Fig. 20 : Laser à 1 μm et à 2,3 μm en régime impulsionnel ramené en % de leur puissance maximale en fonctionnement nominal sur (a) 25 ms et (b) sur 0,4 ms

6.2.3.2 *Des instabilités qui dépendent de l’alignement : quantification et comparaison avec le régime continu*

Au cours de l’alignement, il a été observé que la profondeur du chaos dépendait grandement de l’alignement de la cavité à 2,3 μm . Pour une puissance nominale, lorsque le miroir de pompe est charioté sur une distance de 1 mm, deux régimes chaotiques plus ou moins intenses ont été obtenus Fig. 21. Lorsque le miroir est le plus loin du cristal, l’écart-type des puissances pics est de 13 % avec une valeur pic-to-valley (PV) de 53%. Lorsque le miroir est rapproché, l’écart-type passe à 6% pour un écart pic-to-vallée de 32%.

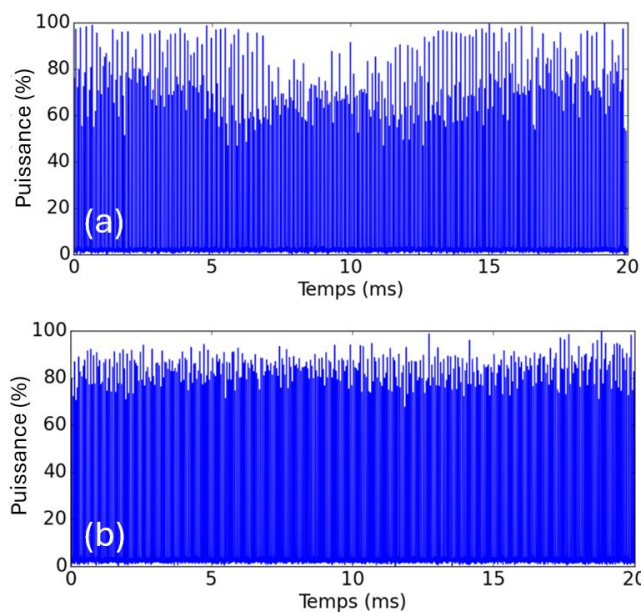


Fig. 21 : Train d’impulsions pour une puissance de pompe à la diode de 15 W. Entre les graphs (a) et (b) le miroir de pompe est reculé de 1 mm sans que les performances ne soient significativement changées.

Ces instabilités liées à l'alignement sont similaires à ce que j'avais observé brièvement en régime continu sur la même cavité lorsque l'absorbant saturable est retiré. Dans ce cas, des battements avaient été observés pour un « mauvais » alignement Fig. 22(a) et le spectre RF de ses instabilités avait été mesuré Fig. 22(b). L'alignement peut devenir « mauvais » lorsqu'on tilt ou qu'on recule le miroir dichroïque proche du cristal. Cela ne modifie quasiment pas la puissance moyenne, mais peut affecter le régime temporel. Une bosse large centrée à 0,07 MHz de demi-largeur 0,02 MHz à -3dB est détectée pour une pompe de 14 W. Sa forme, sa largeur et sa position varient légèrement en fonction de la puissance de pompe. Lorsque l'alignement était davantage optimisé, ces instabilités n'étaient pas observées Fig. 22(c).

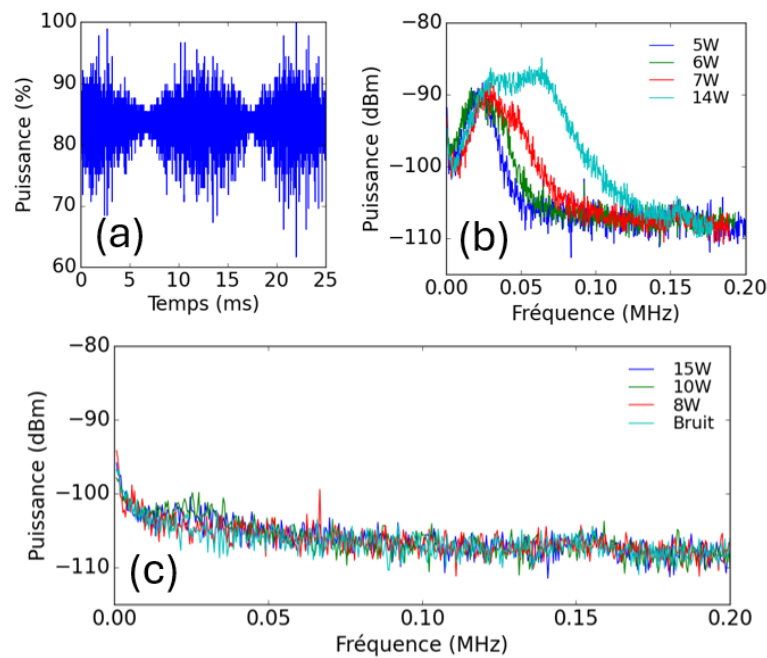


Fig. 22 : (a) Instabilité temporelle en fonction du temps en continu due à un mauvais alignement. (b) Instabilité fréquentielle (RF) due au même mauvais alignement pour différentes puissances de pompe (c) Stabilité fréquentielle (RF) pour un meilleur alignement. Le bruit mesuré est dû au bruit de notre électronique de mesure.

Il est possible que ces instabilités en régime continu soient d'origine thermique au vu des temps caractéristiques observés. Lorsque l'alignement est trop près de la limite de stabilité géométrique de la cavité, le laser à 2,3 μm peut induire une lentille thermique qui peut faire sortir la cavité de sa zone de stabilité. Dans ce cas, la puissance à 2,3 μm diminue et la cavité redevient stable conduisant à une augmentation de la puissance à 2,3 μm qui refait sortir la cavité de sa zone de stabilité et ainsi de suite... Pour savoir si nous sommes face au même phénomène, le spectre RF en régime Q-switch a également été mesurée afin de le comparer à ce que nous avons en régime continu.

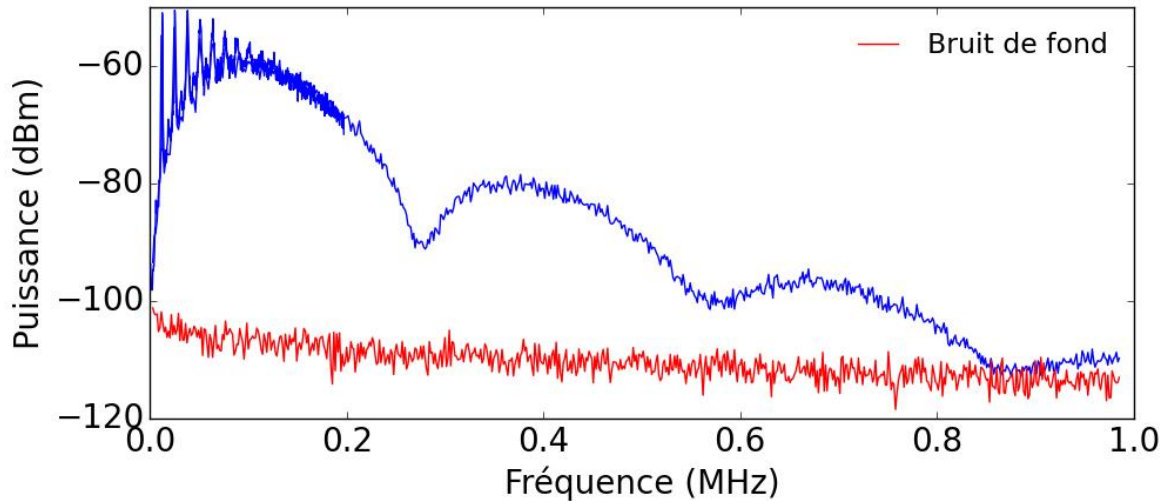


Fig. 23 : Spectre RF d'un train d'impulsions à 2,3 μm pour une durée d'acquisition d'une dizaine de minute. Le laser fonctionne au point nominal.

Plusieurs pics correspondant à des multiples de 14 kHz ont été observés, ils correspondent à la cadence des impulsions à 2,3 μm lors de l'acquisition. Une bosse large centrée à 0,1 MHz de demi-largeur 0,05 MHz à -3dB est détectée, faisant penser au même type d'instabilité. La fréquence centrale de la bosse est néanmoins dans ce cas un peu plus élevé qu'en continu. Il est possible que son origine physique soit la même.

En changeant l'alignement, il est possible d'atteindre plusieurs cadences à 2,3 μm . Plus cette cadence est élevée, plus la profondeur du chaos observé est importante. Ainsi, pour une cadence de 17 kHz, la profondeur du chaos est de 13% PV tandis qu'elle est de 40% pour un alignement conduisant à une cadence de 22 kHz. Les seules stabilités possibles se trouvent donc loin du maximum de la bosse, aucune explication physique complète concernant l'existence de cette bosse n'a pour l'heure été trouvée. Des considérations thermiques sont probables mais aucune mesure que nous avons faite jusqu'alors en lien avec la thermique n'a permis de conclure clairement.

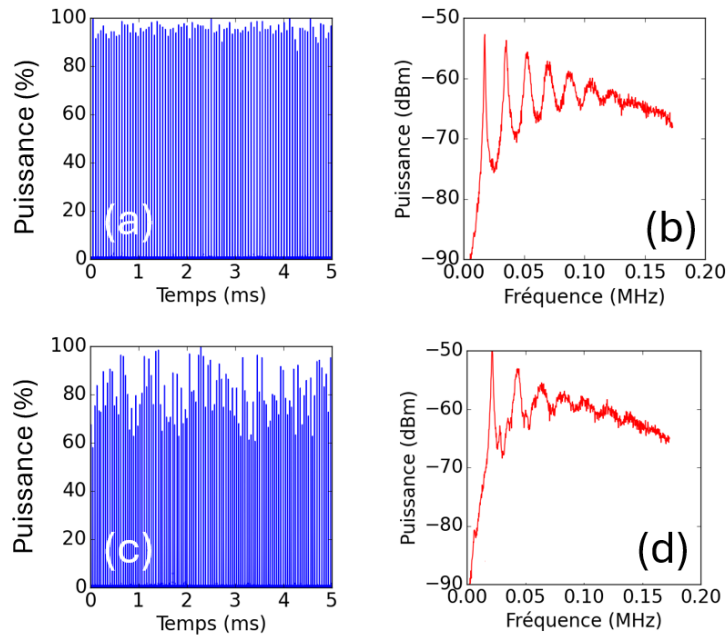


Fig. 24 : Train d'impulsions pour une cadence de (a) 17 kHz et de (c) 22 kHz. Spectre RF pour une cadence de (b) 17kHz et de (d) 22kHz

6.2.3.3 Influence des longueurs d'onde d'émission multiples à 2,3 μm sur la stabilité

Dans la continuité des précédents questionnements, j'ai cherché à regarder si le spectre d'émission à 2,3 μm et si le nombre de raies d'émission avait une influence sur la stabilité du train d'impulsion à travers une éventuelle compétition pour le gain entre les différentes raies d'émission. Pour ce faire, la cavité a été étendue avec un prisme en YAG et une fente réglable permettant d'ajuster la largeur spectrale à 2,3 μm . Le faisceau à 2,3 μm est alors focalisé dans le même cristal de Cr:ZnSe à l'aide d'un miroir de rayon de courbure de 200 mm (fig. 25).

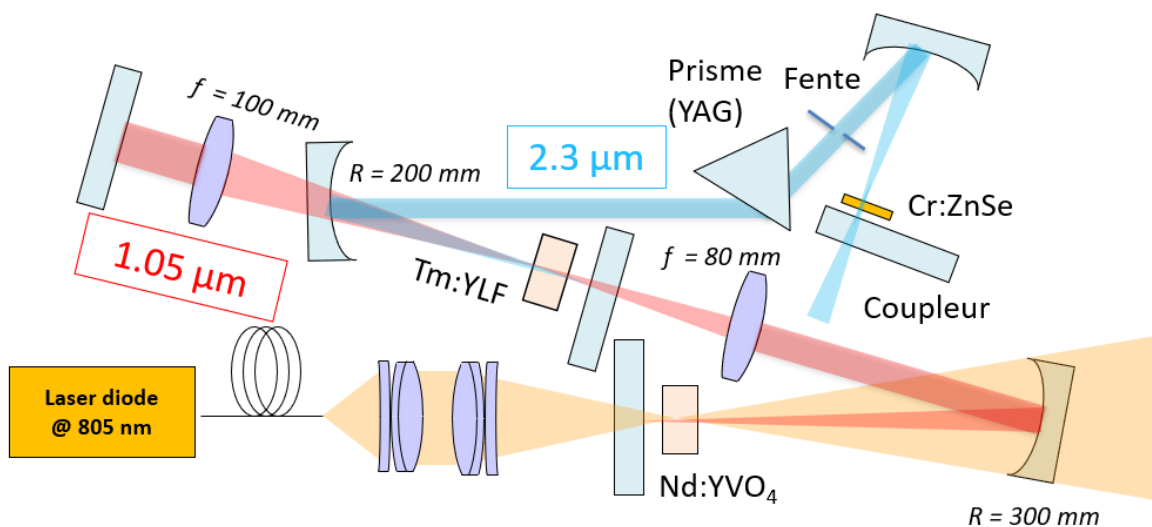


Fig. 25 : Schéma expérimental laser Q switch à 2,3 μm accordable avec un pompage à avalanche.

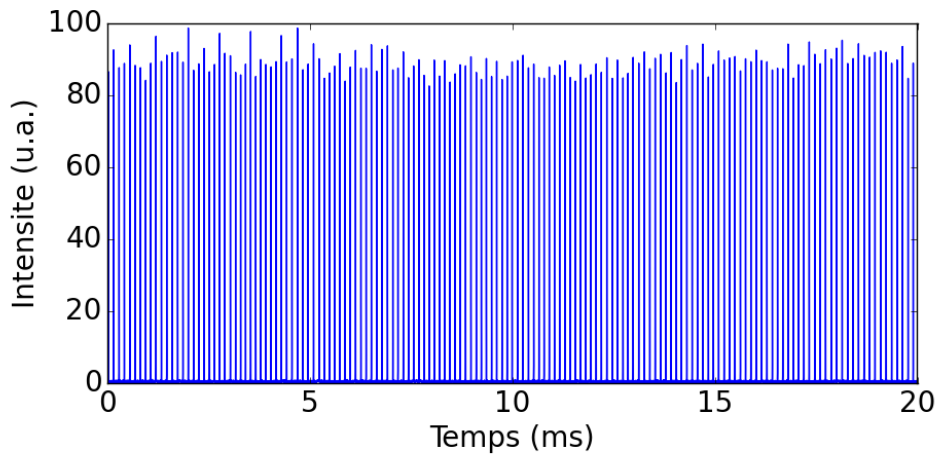


Fig. 26 : Train d'impulsions à $2,3 \mu\text{m}$ pour un fonctionnement nominal avec l'expérience de la figure 25. La fente est pleinement ouverte.

Avec une fente largement ouverte, une puissance moyenne de 180 mW pour une cadence de 8 kHz a été obtenue pour une pompe de 15 W. L'écart type des puissances pics était de 3,3 % pour un écart PV de 17%. Ce premier résultat constitue déjà une amélioration significative en termes de stabilité.

NB : A titre de comparaison, une stabilité identique a été obtenue lorsqu'un prisme est introduit dans la cavité et que le faisceau à $2,3 \mu\text{m}$ n'est pas focalisé sur le Cr:ZnSe, comme dans la précédente expérience Fig. 19. J'ai observé que cette focalisation sur le Cr:ZnSe n'avait pas d'impact significatif sur la stabilité.

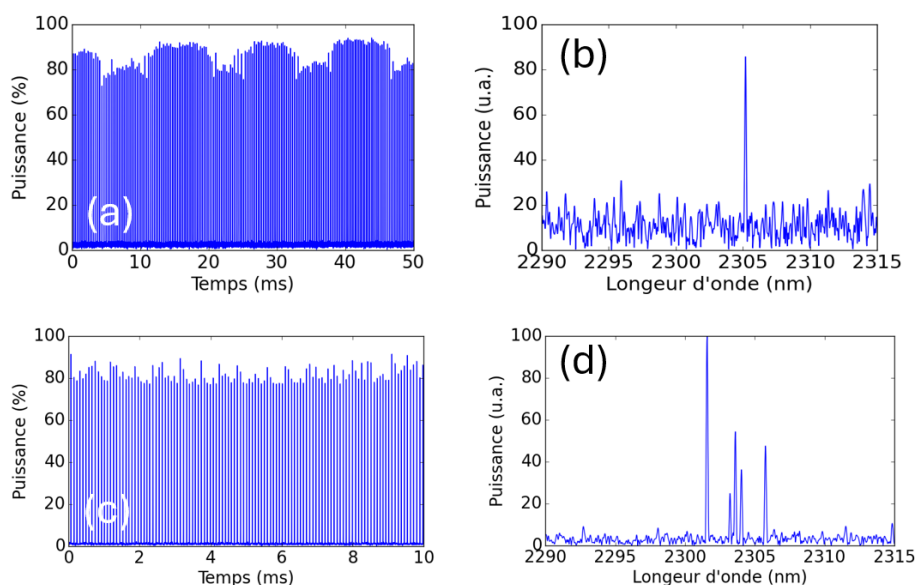


Fig. 27 : (a) Train d'impulsions d'un faisceau monofréquence et spectre correspondant : (b) (c)

Train d'impulsions d'un faisceau multifréquence et spectre correspondant : (d)

Le spectre du laser à 2,3 μm a ensuite été mesuré tandis que nous fermions la fente pour affiner le spectre d'émission et n'autoriser qu'un seul pic à laser (dans la précision du spectromètre). Néanmoins, aucune corrélation n'a été observée entre le nombre de pics isolés dans le spectre et la stabilité du train d'impulsion à 2,3 μm . Tandis qu'une variation PV de 10% a pu être observée pour une fente permettant à 5 pics de laser, une instabilité sur les puissances pic de 14% PV a été observée lorsqu'un seul pic est observé dans le spectre à 2,3 μm ... L'hypothèse d'une compétition entre les différents pics d'émission distincts à 2,3 μm peut donc *a posteriori* être exclu dans notre cas puisqu'un chaos est observé même en présence d'un seul pic. Cette mesure n'exclut néanmoins pas de la compétition de mode entre plusieurs modes à l'intérieur d'un pic. La question de savoir pourquoi rajouter un prisme permet de réduire la profondeur du chaos est donc difficile à expliquer dans la mesure où la largeur du spectre ne semble pas avoir d'influence. Le prisme peut éventuellement exercer une influence sur la dépolarisation ou sur la stabilité de la cavité. L'influence positive du prisme a également été observée lorsque le faisceau est collimaté au niveau du Cr:ZnSe.

6.2.3.4 Influence de la population du niveau 3H_4 sur la stabilité

Ayant exploré différentes hypothèses sur l'origine du chaos, je me suis ensuite intéressé à l'influence des populations du thulium sur la stabilité du train d'impulsion dans le schéma expérimental précédent. La fluorescence à 0,8 μm a ainsi été mesurée au cours du temps à l'aide d'une photodiode. Dans la mesure où elle provient du haut du niveau laser, elle nous permet d'avoir directement accès à la variation de l'inversion de population. Figure 28, cette fluorescence a été mesurée en même temps que le train d'impulsions. Il a été observé que les pics temporels les plus intenses étaient dus à une augmentation globale de l'inversion de population expliquée par le fait que les pics précédents avaient de plus faibles énergies. Cet excès d'inversion de population se vide en quelques pics. Cette mesure permet d'affirmer qu'il est nécessaire de prendre en compte les populations si nous voulons comprendre l'origine du chaos, bien que ce paramètre ne soit pas suffisant à lui seul pour expliquer le chaos.

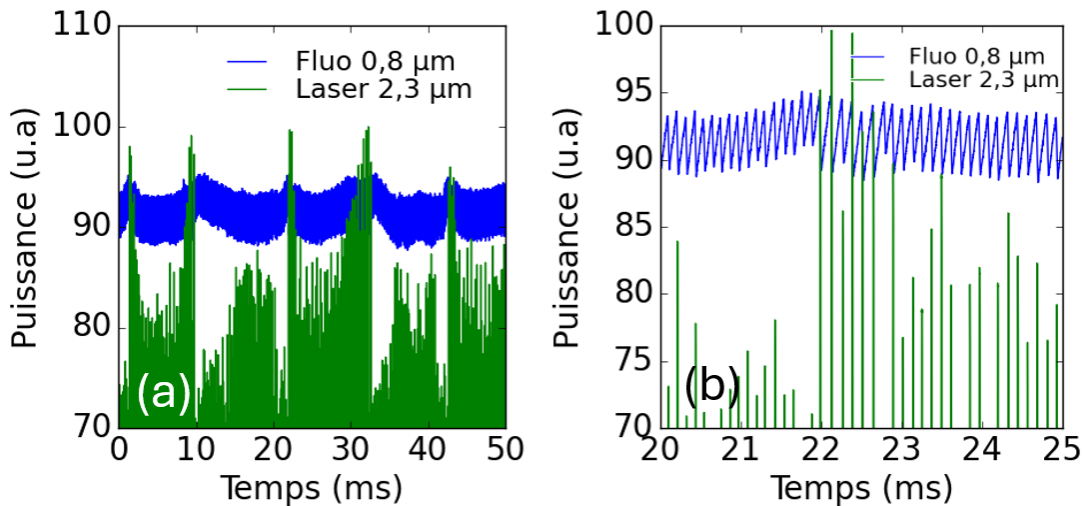


Fig. 28 : (a) Train d'impulsions sur 50 ms et fluorescence à 0,8 μm du cristal de Tm:YLF. Le bas des impulsions à 2,3 μm a été coupé dans un souci de visibilité. (b) Zoom sur une durée de 5 ms (b)

L'ensemble des mesures précédentes nous a permis de poser les premières pierres afin d'explorer la physique autour du régime chaotique des trains d'impulsions à 2,3 μm dans le cas d'un pompage à avalanche. Des hypothèses sur l'origine du chaos ont pu être mises de côté et quelques paramètres importants pour la compréhension du chaos ont pu être isolés. Notamment, l'hypothèse d'une compétition entre les différentes fréquences distinctes du spectre à 2,3 μm a pu être exclue dans ce cas précis. Néanmoins, il a pu être montré que la cadence du train d'impulsions et la population du niveau 3H_4 sont des paramètres importants pour comprendre l'origine du chaos. L'ajout d'un prisme dans la cavité permet aussi de modifier la profondeur des instabilités.

6.3 CONCLUSION

En conclusion, des régimes Q-switch chaotiques ont été observés dans diverses configurations de pompage et de cavité que ce soit en pompage direct ou en pompage à avalanche. La nature du chaos observé est néanmoins différente selon l'énergie des impulsions : une route vers le chaos semblable à des intermittences a été observée pour des énergies extraites inférieures au μJ , tandis que pour des énergies plus importantes des régimes bistables ont été observés. Ces régimes chaotiques sont certainement systémiques, mais rien ne permet de conclure sur le fait qu'il soit de nature totalement identique ou non.

Diverses méthodes de stabilisation ont été testées. Pour le pompage à l'aide d'un Ti:Saphir, un régime stable peut être obtenu lors du régime transitoire ou entre des régimes chaotique. Pour le pompage diode, des trains d'impulsions extrêmement stables à très basses cadences ont pu être obtenus en réduisant la cadence à $2,3 \mu\text{m}$ en hanchant la diode de pompe. De même, en pompage à avalanche, l'ajout d'un prisme ou la modification de paramètres de cavité permet de diminuer légèrement l'écart-type des puissances pics.

Diverses expériences ont été réalisées pour déterminer l'origine du comportement chaotique des trains d'impulsions à $2,3 \mu\text{m}$. Des paramètres signifiants ont pu être isolés pour essayer de comprendre le régime chaotique, tel que la cadence des impulsions et la population du niveau $^3\text{H}_4$. Ces travaux ont donc simplement entrouvert une porte vers ce monde du chaos et mériteraient d'être approfondis.

6.4 BIBLIOGRAPHIE

[Bergé 1997] Pierre Bergé, Yves Pomeau, Christian Vidal, "L'ordre dans le chaos: Vers une approche déterministe de la turbulence", Collection : "Enseignement des sciences", Hermann Edition, EAN13 : 9782705659806 (1997)

[Bracikowski 1991] C. Bracikowski and R. Roy, "Chaos in a multimode solid-state laser system," *Chaos: An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science* 1(1), 49–64 (1991).

[Chen 2004] C.-H. Chen, P.-T. Tai, and W.-F. Hsieh, "Cavity-configuration-dependent instability in a tightly focused end-pumped solid-state laser," *Optics Communications* 241(1–3), 145–153 (2004).

[Chemla 1995] G. Sucha, S. R. Bolton, S. Weiss, and D. S. Chemla, "Period doubling and quasi-periodicity in additive-pulse mode-locked lasers," *Opt. Lett.* 20(17), 1794–1796 (1995).

[Chu 2022] H. Chu, L. Dong, Z. Pan, X. Ma, S. Zhao, and D. Li, "Passively Q-switched Tm:YAP laser with a zeolitic imidazole framework-67 saturable absorber operating at 3H₄→3H₅ transition," *Optics & Laser Technology* 147, 107679 (2022).

[Donati 2012] S. Donati and S.-K. Hwang, "Chaos and high-level dynamics in coupled lasers and their applications," *Progress in Quantum Electronics* 36(2–3), 293–341 (2012).

[Dong 2021] L. Dong, H. Chu, S. Xu, S. Zhao, and D. Li, "Sulfur-doped graphitic carbon nitride for Tm:YAIO 3 laser operation at 2.3 μm," *Opt. Lett.* 46(9), 2043 (2021).

[Goldsborough 1964] J. P. Goldsborough, "Beat Frequencies Between Modes of a Concave-Mirror Optical Resonator," *Appl. Opt.* 3(2), 267 (1964).

[Guillemot 2021] Lauren Guillemot. Etude de la transition ³H₄->³H₅ de l'ion Tm³⁺ pour une émission laser moyen infrarouge (entre 2 et 3μm). Physique [physics]. Normandie Université, 2021. Français.

[Huang 2019] H. Huang, S. Wang, H. Chen, O. L. Antipov, S. S. Balabanov, and D. Shen, "High power simultaneous dual-wavelength CW and passively-Q-switched laser operation of LD pumped Tm:YLF at 1.9 and 2.3 μm," *Opt. Express* 27(26), 38593 (2019).

[Kim 1993] J. M. Kim, C.-M. Kim, K.-S. Lee, S.-O. Kwon, C.-J. Kim, and J.-M. Lee, "Route to chaos through the type I intermittency of a gain-modulated CO₂ laser caused by the discharge instability at low frequency," *J. Opt. Soc. Am. B* 10(9), 1651 (1993).

[Kifle 2021] E. Kifle, P. Loiko, L. Guillemot, J.-L. Doualan, F. Starecki, A. Braud, A. Hideur,

and P. Camy, "Design and modeling of a passively Q-switched diode-pumped Thulium laser at 2.3 μ m," *Optics Communications* 500, 127219 (2021).

[Kervevan 2007] L. Kervevan, H. Gilles, S. Girard, and M. Laroche, "Beat-note jitter suppression in a dual-frequency laser using optical feedback," *Opt. Lett.* 32(9), 1099 (2007).

[Kovalsky 2004] M. G. Kovalsky and A. A. Hnilo, "Different routes to chaos in the Ti:sapphire laser," *Phys. Rev. A* 70, 043813 (2004).

[Kovalsky 2010] Marcelo Kovalsky and Alejandro Hnilo, "Chaos in the pulse spacing of passive Q-switched all-solid-state lasers," *Opt. Lett.* 35, 3498-3500 (2010)

[Larotonda 1999] M. A. Larotonda, A. M. Yacomotti, and O. E. Martínez, "Antiphase Q-switch dynamics in a multimode solid-state laser with saturable absorber," *Optics Communications* 169(1-6), 149-158 (1999).

[Liang 2018] H. C. Liang, D. Li, E. H. Lin, C. C. Hsu, and H. Y. Lin, "Investigation of the antiphase dynamics of the orthogonally polarized passively Q-switched Nd:YLF laser," *Opt. Express* 26(20), 26590 (2018).

[Liu 2017] Y. Liu, K. Zhong, J. Mei, C. Liu, J. Shi, X. Ding, D. Xu, W. Shi, and J. Yao, "Compact and stable high-repetition-rate terahertz generation based on an efficient coaxially pumped dual-wavelength laser," *Opt. Express* 25(25), 31988 (2017).

[Loiko 2020] P. Loiko, R. Soulard, G. Brasse, L. Guillemot, A. Braud, B. Guichardaz, A. Hideur, and P. Camy, "Passive Q-switching of a Tm³⁺:LiYF₄ waveguide laser by Cr²⁺:ZnSe and Co²⁺:ZnSe saturable absorbers," *Optical Materials* 107, 110116 (2020).

[Luo 2017] H. Luo, D. Liu, T. Liu, D. Lyu, and Q. Sun, "Beat Frequency Characterization and Stabilization for Short-Cavity DBR Fiber Grating Laser Based Sensor," *IEEE Photonics Journal* 9(4), 1-9 (2017).

[Morgner 1996] U. Morgner, L. Rolefs, and F. Mitschke, "Dynamic instabilities in an additive-pulse mode-locked Nd:YAG laser," *Opt. Lett.* 21(16), 1265-1267 (1996).

[Mozdy 2000] E. J. Mozdy and C. R. Pollock, "Chaos in an additive-pulse mode-locked laser," *Appl. Phys. Lett.* 77(12), 1771-1773 (2000).

[Richman 2000] J. S. Richman and J. R. Moorman, "Physiological time-series analysis using approximate entropy and sample entropy," *American Journal of Physiology-Heart and Circulatory Physiology* 278(6), H2039-H2049 (2000).

[Ozygus 1995] B. Ozygus and J. Erhard, "Thermal lens determination of end-pumped solid-state lasers with transverse beat frequencies," *Applied Physics Letters* 67(10), 1361–1362 (1995).

[Sciamanna 2015] M. Sciamanna and K. A. Shore, "Physics and applications of laser diode chaos," *Nature Photon* 9(3), 151–162 (2015).

[Siegman 1986] A. E. Siegman, *Lasers*, University Science Books, page 963, Fig. 25.8, 1986.

[Tang 1992] D. Y. Tang, M. Y. Li, and C. O. Weiss, "Laser dynamics of type-I intermittency" *Phys. Rev. A* 46, 676 – Published 1 July 1992

[Valcárcel 1995] G. J. De Valcárcel, E. Roldán, V. Espinosa, and R. Vilaseca, "Types I and II intermittencies in a cascade laser model," *Physics Letters A* 206(5–6), 359–364 (1995).

[Yao 2010] B. Yao, Y. Tian, G. Li, and Y. Wang, "InGaAs/GaAs saturable absorber for diode-pumped passively Q-switched dual-wavelength Tm:YAP lasers," *Opt. Express* 18(13), 13574 (2010).

[Yu 2024] Xiaoxu Yu, Kirill Ereemeev, Zhongben Pan, Pavel Loiko, Hongwei Chu, Han Pan, Alain Braud, Patrice Camy, and Dechun Li, "Polarized spectral properties and 2.3 μm laser performance of the Tm:YVO₄ crystal," *Opt. Express* 32, 18055-18067 (2024)

[Zhang 2004] Q. Zhang, B. Feng, D. Zhang, P. Fu, Z. Zhang, Z. Zhao, P. Deng, J. Xu, X. Xu, Y. Wang, and X. Ma, "Antiphase state in passively Q-switched Yb: YAG microchip multimode lasers with a saturable absorber GaAs," *Phys. Rev. A* 69(5), 053815 (2004).

[Zhang 1997] X. Zhang, S. Zhao, Q. Wang, Q. Zhang, L. Sun, S. Zhang, "Optimization of Cr⁴⁺-doped saturable-absorber Q-switched lasers", *IEEE J. Quantum Electron.* 33, 2286–2294 (1997).

CONCLUSION GENERALE

Une grande partie de ce manuscrit porte sur les stratégies d'optimisation les plus pertinentes pour obtenir des sources efficaces à 2,3 μm à l'aide de cristaux dopés au thulium. Après avoir étudié d'un point de vue théorique, dans le chapitre 2, les différentes possibilités qui s'offraient à nous, les différentes pistes les plus prometteuses que nous avons envisagées, ont été testées dans les chapitres 3 et 4.

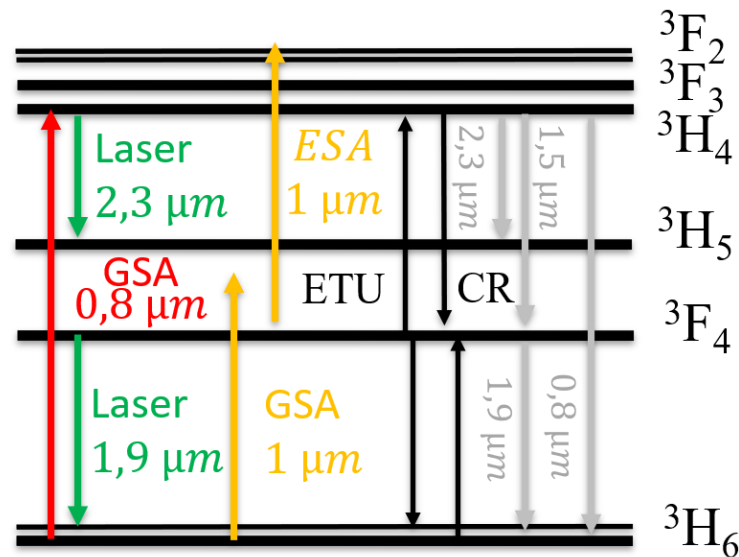


Fig. 1 : (Rappel) Spectroscopie de l'ion Tm^{3+} . CR : relaxation croisée (*cross relaxation*), ETU : Upconversion (*Energy transfert upconversion*), GSA : absorption par l'état fondamental (*ground state absorption*), ESA : absorption par un état excité (*excited state absorption*).

Dans le chapitre 3, l'intérêt d'utiliser le pompage direct à 0,8 μm a été exploré dans les cristaux de $\text{Tm}:\text{YLF}$, $\text{Tm}:\text{YAG}$, $\text{Tm}:\text{CALGO}$ et $\text{Tm}:\text{KLuW}$. En particulier, l'émission laser à 2,3 μm a été obtenue pour la première fois à l'aide de $\text{Tm}:\text{CALGO}$ avec un potentiel pour la génération d'impulsions femtoseconde. Pour les cristaux de $\text{Tm}:\text{YAG}$ et de $\text{Tm}:\text{KLuW}$, la forte énergie de phonon de ces cristaux décale le spectre vers les basses longueurs d'onde en raison d'une transition vibronique depuis le niveau ${}^3\text{F}_4$ vers le niveau ${}^3\text{H}_6$. Des problèmes de stabilité ont également été soulevés dans le $\text{Tm}:\text{YAG}$ rendant ce cristal difficile à utiliser. Parmi tous ces cristaux, l'efficacité du $\text{Tm}:\text{YLF}$ est nettement supérieure à celle des concourants précédemment nommés (hors vanadate) : une puissance de 0,8 W a été obtenue à 2,3 μm pour 15 W de pompe.

Nous avons donc poussé l'étude sur le $\text{Tm}:\text{YLF}$ en s'intéressant à l'ajout d'un éventuel laser en cascade à 1,9 μm dans l'optique d'améliorer l'efficacité du laser à 2,3 μm . Pour les faibles dopages, le gain en efficacité est important pour le laser à 2,3 μm que ce soit en pompage $\text{Ti}:\text{Saphir}$ ou en pompage diode. Dans certaines conditions, les pentes caractéristiques peuvent même être doublées. Néanmoins, pour des cristaux plus fortement dopés, l'ajout d'une cascade peut s'avérer négatif pour les performances du

laser à 2,3 μm . Un modèle semi-empirique permettant de prédire l'intérêt de la cascade a ainsi été développé. Il permet de quantifier l'influence opposée sur les performances à 2,3 μm de l'augmentation de l'absorption et de la diminution du flux d'upconversion induite tous les deux par l'ajout d'un laser en cascade à 1,9 μm .

Pour les oxydes, les matrices à forte énergie de phonon comme le Tm:YAG ou le Tm:KLuW ont des transitions vibroniques autour de 2,1-2,25 μm . Il a été montré que cette transition non souhaitée peut être supprimée en rajoutant un laser en cascade à 1,9 μm .

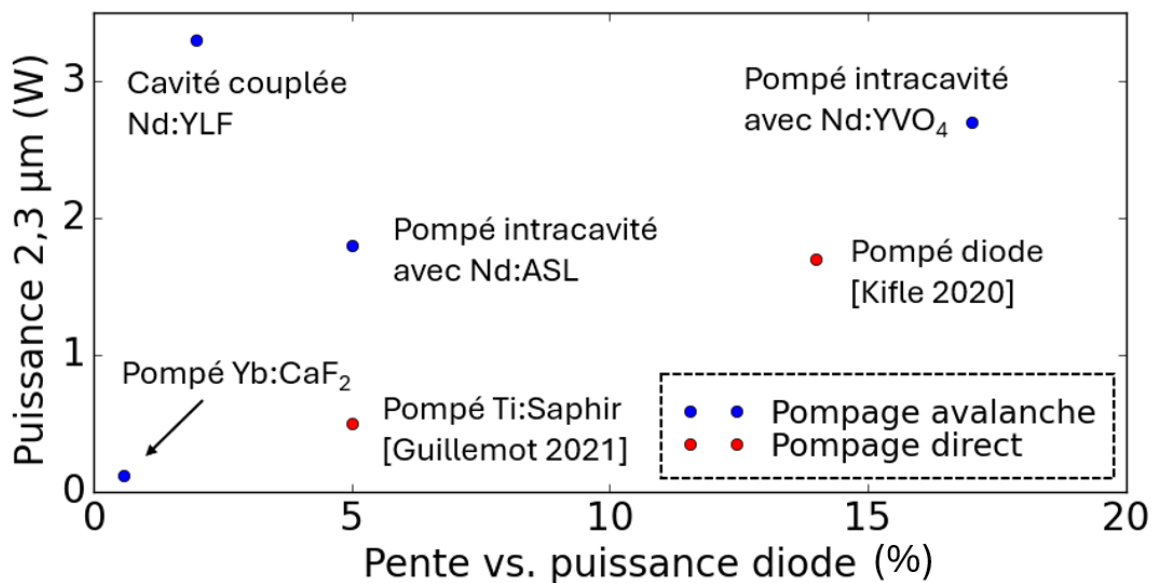


Fig. 2 : Puissance laser en continu et efficacité obtenues dans cette thèse et dans la littérature à l'aide de cristaux de Tm:YLF émettant à 2,3 μm .

Dans le chapitre 4, l'intérêt d'utiliser le pompage à avalanche à 1 μm a été exploré pour le Tm:YLF principalement. La démonstration de ce pompage étant plus récente, les performances dans la bibliographie au début ma thèse étaient assez faibles (autour de 0,1 W). Nous avons cherché à améliorer l'efficacité de ce type de pompage. La piste du double pompage (direct à 0,8 μm + avalanche à 1 μm) a été explorée avec des résultats mitigés. Dans la mesure où le pompage à avalanche nécessite de très fortes intensités de pompe pour être efficace et que l'absorption est assez faible, un pompage en intracavité à l'aide de cristaux dopés au néodyme a été exploré. Des puissances et des efficacités record ont été obtenues et dépassent largement les précédentes performances du pompage direct à l'aide de diode de puissance dans le Tm:YLF. En particulier, lorsqu'un Nd:YVO₄ est utilisé en intracavité pour pomper un Tm:YLF, une puissance record de 2,7 W a été obtenue pour une pente de 17% par rapport à la puissance de diode. Ces résultats rendent le pompage intracavité particulièrement attractif pour la montée en puissance à 2,3 μm par rapport au pompage direct utilisant des diodes de puissance. La figure 2 montre l'état de l'art des résultats laser à 2,3 μm obtenu avec le Tm:YLF

A la fin de cette conclusion, j'ai fait des rappels à l'aide de tableaux récapitulatifs permettant de comparer l'efficacité des lasers à 2,3 μm en fonction du cristal utilisé et des conditions de pompage. Il ressort de ces tableaux que le meilleur moyen à ce jour d'obtenir des sources efficaces et de fortes puissances est soit d'utiliser un Tm:YLF pompé à 1 μm en intracavité, soit d'utiliser un pompage direct de cristaux Tm:GdVO₄.

Ayant réalisé les études préliminaires permettant d'augmenter l'efficacité des lasers à 2,3 μm , les recherches menées se sont ensuite arrêtées sur l'étude du régime déclenché « *Q-switch* » et sur sa stabilité. Des régimes chaotiques récurrents ont été observés et décrits. Des méthodes de stabilisations ont été proposées. En particulier, pour les impulsions de faibles énergies, un régime transitoire stable est observable lorsque la pompe est hachée. Pour les plus fortes énergies, il est possible d'utiliser la diode laser de pompe en régime impulsif pour réduire la cadence et obtenir des régimes stables. Lorsqu'un pompage à avalanche est utilisé, placer un prisme dans la cavité permet de réduire légèrement l'écart-type sur les puissances crêtes à 2,3 μm .

Pour conclure, les recherches menées durant ce doctorat ont permis d'optimiser le pompage des lasers solides à 2,3 μm utilisant du thulium en partant de considérations spectroscopiques. La stabilité du régime déclenché reste à comprendre avec plus de finesse afin d'optimiser la stabilité et la fiabilité de ces sources. De même, les gains qui sont actuellement obtenus nous permettent de considérer l'émission à 2,3 μm du thulium pour la réalisation de laser à verrouillage de modes plus efficaces que les précédents lasers qui ont été réalisés par le passé.

MEILLEURES PERFORMANCES

Les records de puissances ou d'efficacité pour différents types de pompage ont été reportés ici. Dans la mesure où les gains des cristaux n'étaient pas toujours mesurés, la cavité utilisée a également été précisée. Il est effet bien plus facile d'avoir de fortes efficacités avec des cavités élémentaires comme des plan-plan ou des plan-concave qu'avec des cavités en V ou en Z. Ces deux dernières sont néanmoins nécessaires si on veut réaliser des lasers déclenchés ou à verrouillage de mode. Pour se rendre compte de l'influence des cavités sur les efficacités, un premier tableau comparatif a été fourni.

Cavité simple vs. Cavité plus étendue

Source de pompe / Cristal	Puissance max. en continue	Pente	Cavité	Avantage /inconvénient	Réf
Pompe : Ti:Saphir $\lambda = 780nm$ $M^2 = 1$ Cristal : Tm:YLF 3,5 % 8mm	0,5W	22% vs. puissance incidente de 780nm 5% vs. la puissance de 532 nm pour pomper le Ti :Saphir	Plan-concave	Non adapté pour du verrouillage de modes	Chap. 3
Pompe : Ti:Saphir $\lambda = 780nm$ $M^2 = 1$ Cristal : Tm:YLF 3 % 8mm	0,2W	10 % 2% vs. la puissance de 532 nm pour pomper le Ti :Saphir	En V	Plus de pertes dans la cavité donc moins de puissance en sortie	Chap. 3

Pompage direct

Source de pompe / Cristal	Puissance max. en continue	Pente	Cavité	Avantage /inconvénient	Réf
Pompe : Ti:Saphir $\lambda = 780nm$ $M^2 = 1$ Cristal : Tm :YLF 3,5 % 8mm	0.5W	22% vs. puissance incidente de 780nm 5% vs. la puissance de 532 nm pour pomper le Ti :Saphir	Plan-concave	Très faible efficacité à la prise compte tenu des faibles rendements du Ti:Saphir	Chap. 3
Pompe : Ti:Saphir $\lambda = 773nm$ $M^2 = 1$ Cristal : Tm:KYF 3,5 % 8mm	0.8W	47% vs. puissance incidente de 773nm	Plan-concave	Très faible efficacité à la prise compte tenu des faibles rendements du Ti:Saphir	[Guille mot 2020]
Pompe : Diode $\lambda = 789nm$ $\phi = 105 \mu m$ $M^2 = 45$ Cristal : Tm:YLF 3.5 % 8mm	1.7 W (2,1W en quasi continu)	13,5% vs. la puissance incidente de diode	Plan-concave	Système compact – pas de montée en puissance en continu	[Kifle 2020]
Pompe : Diode $\lambda = 789nm$ $\phi = 105 \mu m$ $M^2 = 45$ Cristal : Tm:YAP 2.5 % 8mm	1,3 W (2,7 W en quasi continu)	22% vs. la puissance incidente de diode	Plan-concave	Système compact – transition vibronique probable - pas de montée en puissance en continue	[Kifle 2020]
Pompe : Diode $\lambda = 789nm$ $\phi = 200 \mu m$ $NA = 0.22$ Cristal : Tm:GdVO ₄ 2,5 % 8mm	6W	22% vs. la puissance incidente de diode	Plan-plan	Système compact – Bonne thermique - transition vibronique probable – Cavité plan-plan avec une mauvaise qualité de	[Yu 2023]

Comparaison pompage direct avec et sans cascade

Source de pompe / Cristal	Puissance max. en continue	Pente	Cavité	Avantage /inconvénient	Réf
Pompe : Diode $\lambda = 789nm$ $\phi = 105 \mu m$ $NA = 0.22$	Sans cascade : 0,36 W Avec : 0,41 W	Sans cascade : 3.6% Avec cascade : 4.1 %	En Z	Système compact	Chap. 3
Cristal : Tm:YLF 2,5 % 8mm					
Pompe : Diode $\lambda = 789nm$ $\phi = 400 \mu m$ $NA = 0.22$	Sans cascade : 0,20 W Avec : 0,6 W	Sans cascade : 1% Avec cascade : 4.6 %	Plan-plan	Système compact	[Huang 2019]
Cristal : Tm:YAP 1,5 % 8mm					
Pompe : Ti:Saphir $\lambda = 780nm$ $M^2 = 1$	Sans cascade : 0,09W Avec : 0,18W	Sans cascade : 4,5 % Avec cascade : 9 %	En V	Très faible efficacité à la prise compte tenu des faibles rendements du Ti:Saphir	Chap. 3
Cristal : Tm:YLF 2,5 % 8mm					

Pompage à avalanche

Source de pompe / Cristal	P. max. en continue	Pente	Cavité	Avantage /inconvénient	Réf
Pompe : Yb:CaF ₂ λ = 1050nm M ² = 1 Cristal : Tm:YLF 3 % 8mm	0,12W	8 % vs. la puissance incidente de 1 μ m	Plan-concave	Faible efficacité – faible absorption	Chap. 4 Résultat similaire à [Guillemot 2019]
Pompe : Yb fibre λ = 1064nm M ² = 1 Cristal : Tm:KYF 8 %	0,12 W	5% vs. la puissance incidente à 1 μ m	Plan-concave	Faible efficacité – faible absorption	[Morova 2020]
Pompe : Nd: ASL en intracavité λ = 1050 nm M ² = 1 Cristal : Tm:YLF 2,5 % 10 mm	1,8 W	5% vs. la puissance incidente de diode	Cavité en V	Bonne gestion de la thermique – facile à aligner – système compact - Cristaux de Nd:ASL non commerciaux	Chap. 4
Pompe : Nd: YVO₄ en intracavité λ = 1064 nm M ² = 1 Cristal : Tm :YLF 2 % 10 mm	2,7 W	17% vs. la puissance incidente de diode	Cavité en V	Bonne gestion de la thermique - facile à aligner – système compacte	Chap. 4
Pompe : Nd: YLF en cavités couplées	3,3 W	2% vs. la puissance incidente de diode	Cavité en V	Repose sur un pompage industriel - facile à aligner	Chap. 4

$\lambda =$
1053 nm
Multimode

Cristal :
Tm:YLF 2
% 15 mm

Bibliographie

[Guillemot 2019] L. Guillemot, P. Loiko, R. Soulard, A. Braud, J.-L. Doualan, A. Hideur, R. Moncorgé, and P. Camy, "Thulium laser at $\sim 23 \mu\text{m}$ based on upconversion pumping," *Opt. Lett.* 44(16), 4071 (2019).

[Guillemot 2020] L. Guillemot, P. Loiko, R. Soulard, A. Braud, J.-L. Doualan, A. Hideur, and P. Camy, "Close look on cubic Tm:KY 3 F 10 crystal for highly efficient lasing on the $3 H 4 \rightarrow 3 H 5$ transition," *Opt. Express* 28(3), 3451 (2020).

[Huang 2019] H. Huang, S. Wang, H. Chen, O. L. Antipov, S. S. Balabanov, and D. Shen, "High power simultaneous dual-wavelength CW and passively-Q-switched laser operation of LD pumped Tm:YLF at 19 and $23 \mu\text{m}$," *Opt. Express* 27(26), 38593 (2019).

[Kifle 2020] E. Kifle, P. Loiko, L. Guillemot, J.-L. Doualan, F. Starecki, A. Braud, T. Georges, J. Rouvillain, and P. Camy, "Watt-level diode-pumped thulium lasers around $2.3 \mu\text{m}$," *Appl. Opt.* 59(25), 7530 (2020).

[Yu 2023] X. Yu, K. Ereemeev, Z. Pan, P. Loiko, H. Chu, H. Pan, S. Zhao, A. Braud, P. Camy, and D. Li, "Six-watt diode-pumped Tm:GdVO₄ laser at $2.29 \mu\text{m}$," *Opt. Lett.*, OL 48(24), 6404–6407 (2023).

[Morova 2020] Y. Morova, M. Tonelli, V. Petrov, and A. Sennaroglu, "Upconversion pumping of a $2.3 \mu\text{m}$ Tm³⁺:KY3F10 laser with a 1064 nm ytterbium fiber laser," *Opt. Lett.*, OL 45(4), 931–934 (2020).

ANNEXE A : PROCEDURE D'ALIGNEMENT DES CAVITES

Contrairement aux cavités laser visibles ou proche-infrarouges, les cavités à 2,3 μm posent un certain nombre de difficultés d'alignement. Le faisceau laser n'est pas visible à l'œil nu et peu de diagnostics permettent de « voir » le faisceau. En outre, ils sont souvent de moins bonne qualité que dans le proche infrarouge quand ils existent. Pour rajouter à cette difficulté, le gain des laser thulium étant relativement faible, l'alignement des cavités doit être particulièrement précis pour minimiser les pertes dues à un mauvais alignement et ainsi espérer atteindre le seuil laser. Diverses techniques ont été développées afin d'aligner ces cavités le plus précisément possible. Et j'ai trouvé intéressant d'en faire part de ces astuces, car c'est un point expérimental important de cette thèse.

ALIGNEMENT PAR AUTO-COLLIMATION

Une méthode simple pour aligner la cavité est d'utiliser un laser externe qui servira d'axe optique de référence pour notre cavité. Il peut s'agir d'un laser indépendant (type He,Ne ou diode monomode) ou, dans le cadre d'un pompage longitudinal, ce peut être simplement le laser de pompe. Cette dernière méthode a l'avantage de superposer automatiquement le faisceau de pompe et le mode de la cavité. Le point de passage du faisceau est alors localisé à l'aide d'au moins un diaphragme. Lorsqu'on ajoute le miroir 1 à la figure 1, une partie du faisceau laser d'alignement est réfléchi. Le miroir est aligné géométriquement lorsque cette partie réfléchi, passe à nouveau dans le diaphragme. Lorsque le laser est visible, on peut contrôler ce retour à l'œil nu. Lorsque le laser est dans le proche infrarouge, une carte ou un viseur infrarouge doivent être utilisés.

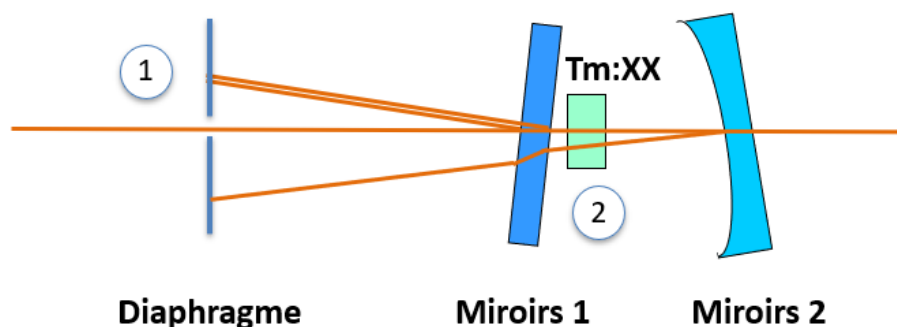


Figure 1 : Alignement par auto-collimation des différentes interfaces. En 1, alignement grâce à un diaphragme. En 2, utilisation de la fluorescence visible du cristal pour visualiser la zone de gain. Dans le cadre d'un pompage longitudinal et lorsqu'on utilise un système optique (miroirs 2) qui refocalise la pompe dans le cristal dopé au thulium, il est possible d'utiliser le cristal de thulium comme capteur. En effet, une fluorescence

visible est émise lors des deux passages de la pompe. En les superposant, on s'assure que le système optique refocalisant est bien aligné. Cette méthode a l'avantage d'être utilisable à l'œil (à l'aide de lunette ne coupant que l'IR).

ALIGNEMENT PAR OPTIMISATION DU LASER A 2,3 μM

L'alignement par autocollimation à l'avantage d'être facile à mettre en œuvre mais elle reste globalement assez grossière et n'est pas optimale lorsqu'on cherche à aligner des cavités plus complexes. Une autre solution consiste à aligner une cavité laser plan concave simple en atteignant l'effet laser à 2,3 μm (Etape 1). Ensuite, en utilisant un puissance mètre on va optimiser à la puissance de sortie à 2,3 μm. A ce moment-là, le cristal de thulium, la pompe et le miroir 1 sont alignés avec une grande précision. Ensuite, à l'étape 2, on va pouvoir étendre la cavité en alignant uniquement le miroir 3 par auto-collimation. Cette méthode d'alignement est particulièrement utile lorsqu'on a des gains particulièrement faibles.

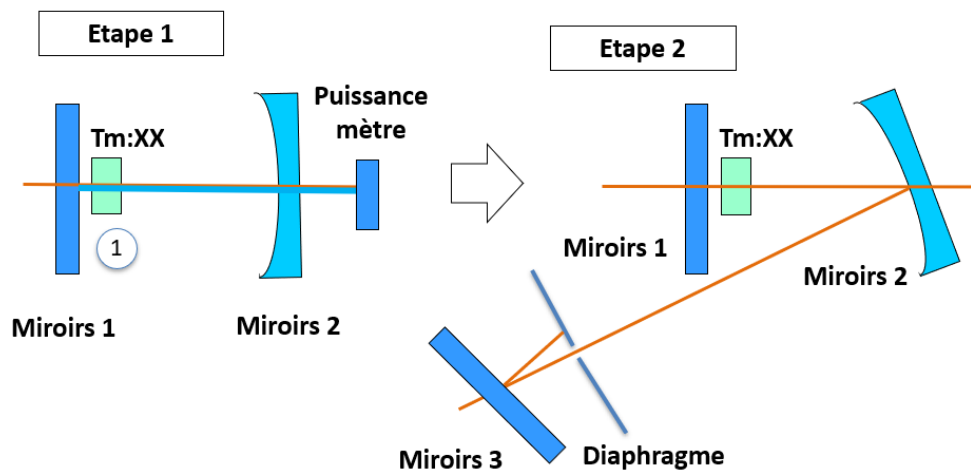


Figure 2 : 1, alignement de précision du bloc « miroir 1 – Tm :XX – pompe » grâce à un puissance mètre. En 2, extension de la cavité avec un premier bloc parfaitement aligné.

ALIGNEMENT PAR AUTO-COLLIMATION EN PROFITANT DU FORT GAIN A 1,9 μM

Une autre stratégie consiste à aligner les cavités plus complexes par auto-collimation en utilisant le fort gain du thulium à 1,9 μm. Pour ce faire, il faut utiliser des miroirs n'entraînant pas de fortes pertes à 1,9 μm. Le gain étant fort à 1,9 μm, on peut atteindre le seuil laser en étant grossièrement aligné (comme avec un laser néodyme). On optimise alors la puissance à 1,9 μm pour obtenir un alignement d'une grande précision. On peut alors échanger le coupleur de sortie à 1,9 μm par un coupleur de sortie à 2,3 μm et aligner celui-ci par auto-collimation. Si on veut supprimer le laser à 1,9 μm, il suffit que le nouveau coupleur de sortie ait de fortes pertes à 1,9 μm.

ALIGNEMENT UTILISANT UN LASER INTERMEDIAIRE

Les alignements par auto-collimation utilisant la pompe ou un laser extérieur sont parfois difficiles à mettre en œuvre, notamment dans le cas de cavités comportant un grand nombre de miroirs ou d'optiques. Après être passé sur plusieurs miroirs, le faisceau est grandement atténué et n'est donc plus détectable. Il est alors possible d'utiliser un laser intermédiaire à $2,3\ \mu\text{m}$ qui sera utilisé comme référence pour une nouvelle auto-collimation. La question est alors de savoir comment voir le faisceau laser à $2,3\ \mu\text{m}$. On va principalement s'intéresser ici à l'échauffement que produit le laser à $2,3\ \mu\text{m}$ sur le diaphragme en utilisant une caméra thermique sur la gamme $8\ \mu\text{m}$ - $10\ \mu\text{m}$. On pourra alors superposer l'échauffement dû au laser à $2,3\ \mu\text{m}$ avec le trou du diaphragme. Le faisceau à $2,3\ \mu\text{m}$ peut également être localisé en utilisant une carte thermique prévue à cet effet. Une fois que le faisceau à $2,3\ \mu\text{m}$ est auto-collimaté, une surpuissance sera visible sur la puissance à $2,3\ \mu\text{m}$ qu'on va tenter de maximiser pour affiner l'alignement. Le coupleur de sortie intermédiaire peut alors être retiré pour laser sur la cavité laser plus étendue. Un exemple d'alignement est présenté ci-dessous.

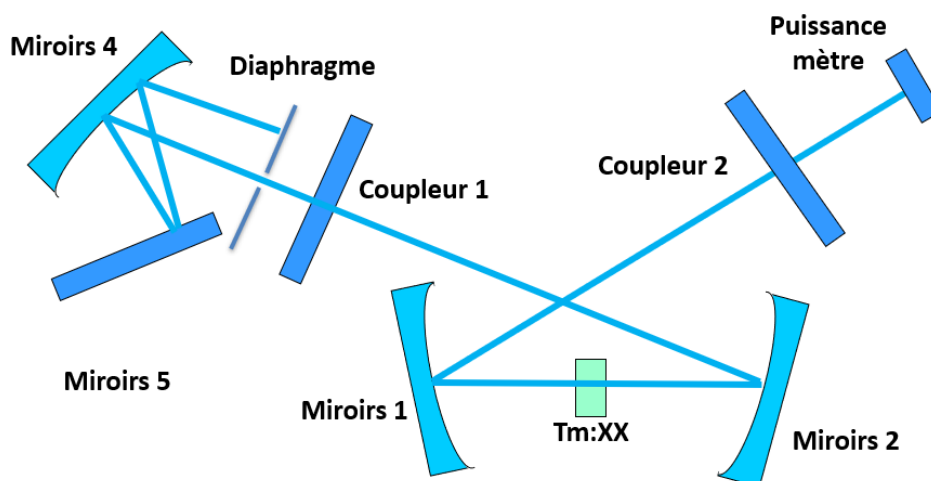


Figure 3 : Une cavité en papillon simple est étendue pour pouvoir focaliser sur le miroir 5. La cavité est alignée avec deux coupleurs de sortie. La sortie du coupleur 1 est renvoyée dans la cavité grâce au miroir 4 et 5. Le re-couplage grossier se fait par auto-collimation. Une surpuissance est alors mesurable au puissance-mètre qu'on va maximiser pour aligner les miroirs 4 et 5 le plus précisément possible. Le coupleur 1 est alors retiré est la cavité papillon est ainsi étendue.

ANNEXES B : DONNEES SPECTROSCOPIQUES ET THERMIQUES

NOTATION ET UNITES SPECIFIQUEMENT UTILISEES DANS LE TABLEAU :

Numérotation des niveaux du thulium :

1 : niveau 3H_6

2 : niveau 3F_4

3 : niveau 3H_5

4 : niveau 3H_4

α : coefficient de dilatation thermique ($10^{-6}K^{-1}$)

β_{XY} : facteur de branchement, proportion de fluorescence du niveau X vers le niveau Y (%)

C_{ETU} : coefficient d'upconversion à partir du niveau 3F_4 ($10^{-37} cm^6s^{-1}$)

C_{CR} : coefficient de relaxation croisée vers le niveau 3F_4 ($10^{-37}cm^6s^{-1}$)

D : Dureté de Mohs (*Koops*)

Δ : FWHM de la section efficace (*nm*)

dn/dT : Coefficient thermo-optique Mohs ($10^{-6} K^{-1}$)

E : Module d'Young (*GPa*)

E_p : Energie de phonon maximal (cm^{-1})

n : Indice optique

N : dopage en ion thulium dans le milieu hôte pour un dopage de 1% ($10^{20}cm^{-3}$)

N_X : population du niveau X (m^{-3})

κ : Conductivité thermique ($W.m^{-1}K^{-1}$)

$\sigma_{XY}(\lambda)$: section efficace pour la transition X vers Y ($10^{-24} m^{-2}$)

T_X : temps de vie du niveau X (ms)

	T_2	T_4	β_{43}	β_{42}	C_{CR}	σ_{14}	σ_{24}	σ_{43}	σ_{21}	κ	$N_{1\%}$	dn/T	n	E	D	α_{xyz}	E_p
YAG	12.3 ²	1.45 ²	3.1 ²	9.5 ²	0.55 ²	0.61@781nm ² 0.66@785nm ²	0.48@1031nm 0.41@1093nm 0.03@1064nm	0.35@2324nm ²	2.2@2013nm ²²	10.7 ¹	1.38 2	8.9 ¹	1.82 ⁸	280 ¹	8.5 ¹	6.7 ¹	857 ²
YAP	5.4 ²	0.86 ²	5.2 ²	11.3 ²	0.4 ²	1.04@795nm/ B^2 0.97@795nm/ A^2	1.55@1044nm/ A^2 0.36@1064nm/ A^2	1.14@2447nm/ A^2 0.79@2275nm/ B^2	5.0@1980nm/ A^{22}	11 ¹	1.96 2	8.5(a) 7.9(b) 12.8(c) ⁹	1.93 1.92 1.91 ⁸		9 ¹⁴	18.3(a) 7.2 (b) 18.0(c) ⁷	552 ²
KLuW	1.483 ²	0.47/0.2 ²	3.29 ²	7.86 ²	2.7 ²	9.96@793nm/ N_p^2	3.64@1069nm/ N_p^2 2.35@1072nm/ N_m^2 1.41@1064nm/ N_p^2	1.78@2290nm/ N_m^2	3.71@1841nm/ N_m^{23}	3.8 ¹	0.78 2	0.4 ¹	2.11		4 ¹⁶	16.1 ¹	907 ²
YVO₄	1.24 ¹⁸	0.224 ¹⁸	4 ¹⁸	41 ¹⁹		2.5@798nm/ π 21		1.07@2.21 μ m/ σ 18	2.35@1.81 μ m (π) ¹⁸	6 ¹		8.5 - 3 ¹	1.94 ¹⁰		5 ¹	1.5 - 8.2 ¹	940 ⁵
CALGO	2.46 ²	0.42 ²	3 ²	8.9 ²	0.45 ⁴	1.65@793nm/ π^2	0.41@1046nm/ σ^2 0.24@1064nm/ σ^2 0.24@1064nm/ π^2	0.40@2358nm/ π^2 0.48@2477nm/ π^2	0.36@1762nm (c) ¹⁸	6.9 ³ 6.3	1.23 2	-7.6 ³ -8.6 ³	1.92 ¹¹		6 ¹³	10.0 ³ 16.0 ³	650 ²
CNGG	4.11 ¹	0.7 ²	3.1 ²	9.5 ²		0.39@786nm ²		0.28@2331nm ²					1.98				848 ²
YLF	9.96 ²	2.2 ²	2.4 ²	10.2 ²	0.25 ²	0.85@780nm/ π^2 0.65@792nm/ π^2	0.62@1042nm/ σ^2 0.32@1051nm/ σ^2 0.05@1064nm/ σ^2	0.57@2304nm/ σ^2	0.25@1910nm/ σ^{25}	5.8 ²⁰ 7.2 ²⁰	1.38 2	-2 ²⁰ , -4.3 ²⁰	1.44 ¹²	80 ¹	5 ¹⁷	14 ¹	460 ²
KYF	9.408 ²	1.14 ²	2.9 ²	10.2 ²	0.28 ²	0.56@772nm ² 0.66@778nm ²	0.91@1067nm 2 0.24@1064nm 2	0.34@2342nm ²	0.6@1.85 μ m/ σ 26	2.5 ⁵	1.52 2	- 8.9 ⁶	1.42 ¹⁵		3 ¹²	11.3 ⁶	501 ²
CaF₂	16.8 ²	2.51 ²	4.6 ²	8.4 ²	High cluster	0.77@766nm ²			0.39@1.82 μ m ²⁷	10 ¹		-10.6 ¹	1.42 ⁸	110 ¹	4	26 ¹	463 ²

REFERENCES POUR LES DONNEES DU TABLEAU

- [1] Romain Gaume. A crystal chemistry approach for high-power ytterbium doped solid-state lasers. Diffusion-bonded crystals and new crystalline hosts.. Chemical Sciences. Chimie ParisTech, 2002. English.
- [2] Lauren Guillemot. Etude de la transition $3H_4 \rightarrow 3H_5$ de l'ion Tm^{3+} pour une émission laser moyen infrarouge (entre 2 et $3\mu m$). Physique [physics]. Normandie Université, 2021. Français.
- [3] P. Loiko, F. Druon, P. Georges, B. Viana, and K. Yumashev, "Thermo-optic characterization of Yb:CaGdAlO₄ laser crystal," *Opt. Mater. Express* 4(11), 2241-2249 (2014).
- [4] H. Dupont, P. Loiko, A. Tyazhev, L. Giordano, Z. Pan, H. Chu, D. Li, B. Viana, A. Hideur, L. Guillemot, A. Braud, P. Camy, P. Georges, and F. Druon, "Tm:CALGO lasers at $2.32\mu m$: cascade lasing and upconversion pumping," *Opt. Express* 31(12), 18751 (2023).
- [5] Cours de Krankel
- [6] M. Chen, P. Loiko, J. M. Serres, S. Veronesi, M. Tonelli, M. Aguiló, F. Díaz, S. Y. Choi, J. E. Bae, F. Rotermund, S. Dai, Z. Chen, U. Griebner, V. Petrov, and X. Mateos, "Fluorite-type Tm^{3+} :KY₃F₁₀: A promising crystal for watt-level lasers at $\sim 1.9\mu m$," *Journal of Alloys and Compounds* 813, 152176 (2020).
- [7] H. Zhang, D. Sun, J. Luo, J. Chen, H. Yang, J. Xiao, Q. Zhang, and S. Yin, "Growth, thermal, and spectroscopic properties of a Cr,Yb,Ho,Eu:YAP laser crystal," *Optical Materials* 36(8), 1361–1365 (2014).
- [8] R. Adair, L. L. Chase, S. A. Payne. Nonlinear refractive index of optical crystals, *Phys. Rev. B* 39, 3337 (1989)
- [9] Z. Zeng, H. Shen, M. Huang, H. Xu, R. Zeng, Y. Zhou, G. Yu, and C. Huang, "Measurement of the refractive index and thermal refractive index coefficients of Nd:YAP crystal," *Appl. Opt.* 29(9), 1281 (1990).
- [10] H. S. Shi, G. Zhang and H. Y. Shen. Measurement of principal refractive indices and the thermal refractive index coefficients of yttrium vanadate, *J. Synthetic Cryst.* 30, 85-88 (2001)
- [11] P. Loiko, P. Becker, L. Bohatý, C. Liebald, M. Peltz, S. Vernay, D. Rytz, J. M. Serres, X. Mateos, Y. Wang, X. Xu, J. Xu, A. Major, A. Baranov, U. Griebner, V. Petrov. Sellmeier equations, group velocity dispersion, and thermo-optic dispersion formulas for CaLnAlO₄ (Ln = Y, Gd) laser host crystals, *Opt. Lett.*, 42, 2275–2278 (2017)
- [12] B. Xu, F. Starecki, D. Pabœuf, P. Camy, J. L. Doualan, Z. P. Cai, A. Braud, R. Moncorgé, Ph. Goldner, and F. Bretenaker, "Red and orange laser operation of Pr:KYF₄ pumped by a Nd:YAG/LBO laser at 4691nm and a InGaN laser diode at 444nm," *Opt. Express* 21(5), 5567 (2013).
- [13] Z. Qin, G. Xie, L. Kong, P. Yuan, L. Qian, X. Xu, and J. Xu, "Diode-Pumped Passively Mode-Locked Tm: {CaGdAlO}₄ Laser at $2\mu m$ Wavelength," *IEEE Photonics J.* 7(1), 1–5 (2015).

- [14] M. Fibrich, H. Jelínková, J. Šulc, K. Nejezchleb, and V. Škoda, "Visible cw laser emission of GaN-diode pumped Pr:YAlO₃ crystal," *Appl. Phys. B* 97(2), 363–367 (2009).
- [15] G. Galzerano, P. Laporta, L. Bonelli, A. Toncelli, and M. Tonelli, "Single-frequency diode-pumped Yb:KYF₄ laser around 1030 nm," *Opt. Express* 15(6), 3257 (2007).
- [16] M. C. Pujol, X. Mateos, A. Aznar, X. Solans, S. Suriñach, J. Massons, F. Díaz, and M. Aguiló, "Structural redetermination, thermal expansion and refractive indices of KLu(WO₄)₂," *J Appl Crystallogr* 39(2), 230–236 (2006).
- [17] Z. Cui, B.-Q. Yao, X.-M. Duan, J. Li, S. Bai, X.-L. Li, Y. Zhang, J.-H. Yuan, T.-Y. Dai, Y.-L. Ju, C.-Y. Li, and Y.-B. Pan, "Experimental Study on a Passively Q-Switched Ho:YLF Laser with Polycrystalline Cr²⁺:ZnS as a Saturable Absorber," *Chinese Phys. Lett.* 32(8), 084205 (2015).
- [18] X. Yu, K. Eremeev, Z. Pan, P. Loiko, H. Chu, H. Pan, A. Braud, P. Camy, and D. Li, "Polarized spectral properties and 2.3 μm laser performance of the Tm:YVO₄ crystal," *Opt. Express* 32(10), 18055 (2024).
- [19] M. Wu, W. Yang, J. K. Chen, and J. Zhuang, "Absorption spectrum and parameters calculation of Tm³⁺ in YVO₄ crystal," in S.-S. Mei and K. A. Truesdell, eds. (1998), p. 68.
- [20] V. V. Zelenogorskii and E. A. Khazanov, "Influence of the photoelastic effect on the thermal lens in a YLF crystal," *Quantum Electron.* 40(1), 40–44 (2010).
- [21] K. Ohta, H. Saito, and M. Obara, "Spectroscopic characterization of Tm³⁺:YVO₄ crystal as an efficient diode pumped laser source near 2000 nm," *Journal of Applied Physics* 73(7), 3149–3152 (1993).
- [22] From crytur commercial brochure
- [23] Mateos, Petrov, Liu, Pujol, Griebner, Aguiló, Diaz, Galan, and Viera, "Efficient 2 μm Continuous-Wave Laser Oscillation of Tm:KLu(WO₄)₂," *IEEE J. Quantum Electron.* 42(10), 1008–1015 (2006).
- [24] J. Q. Di et al., "Growth and spectra properties of Tm, Ho doped and Tm, Ho co-doped CaGdAlO₄ crystals," *J. Lumin.*, vol. 155, pp. 101–107, Jun. 2014
- [25] U. Demirbas, J. Thesinga, M. Kellert, F. X. Kärtner, and M. Pergament, "Temperature dependence of the fluorescence lifetime and emission cross section of Tm:YLF in the 78–300 K range," *Opt. Mater. Express* 12(12), 4712 (2022).
- [26] M. Chen, P. Loiko, J. M. Serres, S. Veronesi, M. Tonelli, M. Aguiló, F. Díaz, S. Y. Choi, J. E. Bae, F. Rotermund, S. Dai, Z. Chen, U. Griebner, V. Petrov, and X. Mateos, "Fluorite-type Tm³⁺:KY3F10: A promising crystal for watt-level lasers at ~1.9 μm," *Journal of Alloys and Compounds* 813, 152176 (2020).
- [27] P. Camy, J. L. Doualan, S. Renard, A. Braud, V. Ménard, and R. Moncorgé, "Tm³⁺:CaF₂ for 1.9 μm laser operation," *Optics Communications* 236(4–6), 395–402 (2004).

ANNEXES C : PUBLICATIONS

CONFERENCES

High power 2.3 μm Tm:YLF laser using an intracavity upconversion pumping

Hippolyte Dupont, Timothée Lenfant, Lauren Guillemot, Pavel Loiko, Alain Braud, Patrice Camy, Pascal Loiseau, Bruno Viana, Thierry Georges, Patrick Georges, and Frédéric Druon in Optica MICS Congress 2024, (Optica Publishing Group), 2022.

Tm:CALGO: Spectroscopy and Laser Operation at 2.32 μm

H. Dupont, P. Loiko, Z. Pan, H. Chu, D. Li, L. Giordano, B. Viana, A. Hideur, L. Guillemot, A. Braud, P. Camy, P. Georges, and F. Druon in Conference on Lasers and Electro-Optics/Europe (CLEO/Europe 2023) and European Quantum Electronics Conference (EQEC 2023), Technical Digest Series (Optica Publishing Group, 2023), paper ca_3_2.

Non-Competitive Cascade Lasing at 1.8 and 2.3 μm Using a Tm:CALGO Crystal

H. Dupont, P. Loiko, Z. Pan, H. Chu, D. Li, B. Viana, A. Hideur, A. Braud, L. Guillemot, P. Camy, P. Georges, and F. Druon, in Optica Advanced Photonics Congress 2022, Technical Digest Series (Optica Publishing Group, 2022), paper ATu3A.1.

Improvement of 1 μm upconversion pumping of mid-infrared Tm:YLF laser at 2.3 μm by dual-wavelength-pumping

H. Dupont, L. Guillemot, P. Loiko, A. Braud, J. Doualan, P. Camy, P. Georges, and F. Druon, in Optica Advanced Photonics Congress 2022, Technical Digest Series (Optica Publishing Group, 2022), paper ATu3A.2.

Dual-wavelength pumping of a Tm:YLF laser at 2.3 μm .

H. Dupont, L. Guillemot, P. Loiko, A. Braud, J. Doualan, P. Camy, P. Georges, and F. Druon, 10th QEOD Europhoton Conference, Aug 2022, Hannover, Germany.

ARTICLES

High-power 2.3 μm Tm:YLF laser with intracavity upconversion pumping by a Nd:ASL laser at 1051 nm

Hippolyte Dupont, Timothée Lenfant, Lauren Guillemot, Pavel Loiko, Xavier Delen, Pascal Loiseau, Bruno Viana, Thierry Georges, Patrick Georges, Patrice Camy, and Frédéric Druon, *Opt. Lett.* 49, 2093-2096 (2024)

Cascade laser optimization for $^3\text{H}_4 \rightarrow ^3\text{H}_5$ and $^3\text{F}_4 \rightarrow ^3\text{H}_6$ sequent transitions in Tm³⁺-doped materials

Hippolyte Dupont, Lauren Guillemot, Pavel Loiko, Rosa Maria Solé, Xavier Mateos, Magdalena Aguiló, Francesc Díaz, Alain Braud, Patrice Camy, Patrick Georges, and Frédéric Druon, *Opt. Express* 31, 34201-34212 (2023)

Tm:CALGO lasers at 2.32 μm : cascade lasing and upconversion pumping

Hippolyte Dupont, Pavel Loiko, Aleksey Tyazhev, Luidgi Giordano, Zhongben Pan, Hongwei Chu, Dechun Li, Bruno Viana, Ammar Hideur, Lauren Guillemot, Alain Braud, Patrice Camy, Patrick Georges, and Frédéric Druon, *Opt. Express* 31, 18751-18764 (2023)

Excited-state absorption and upconversion pumping of Tm³⁺-doped potassium lutetium double tungstate

Aleksey Tyazhev, Pavel Loiko, Lauren Guillemot, Alexandre Kouta, Rosa Maria Solé, Xavier Mateos, Magdalena Aguiló, Francesc Díaz, Hippolyte Dupont, Patrick Georges, Frédéric Druon, Alain Braud, Patrice Camy, and Ammar Hideur, *Opt. Express* 31, 14808-14820 (2023)

Dual-wavelength-pumping of mid-infrared Tm:YLF laser at 2.3 μm : demonstration of pump seeding and recycling processes

Hippolyte Dupont, Lauren Guillemot, Pavel Loiko, Alain Braud, Jean-Louis Doualan, Patrice Camy, Patrick Georges, and Frédéric Druon, *Opt. Express* 30, 32141-32150 (2022)