

PERFORMANCES LASER EN

POMPAGE PAR DIODE DE NOUVEAUX CRISTAUX **GRENATS** (Yb:GGG), **BORATES** (Yb:GdCOB, Yb:BOYS, Yb:CaBOYS), ET **SILICATES** (Yb:SYS, Yb:YSO)

III.1. Un grenat pour concurrencer le YAG : Le GGG dopé à l'ytterbium ;

III.2. Performances de l'Yb:GdCOB en pompage par diode de forte puissance ;

III.3. Un nouveau borate au spectre très large: le BOYS.
Comparaison avec l'Yb:GdCOB et l'Yb:verre (phosphate QX).
Tentative d'amélioration avec l'Yb:CaBOYS ;

III.4. Performances de l'Yb:SYS, une apatite au spectre large ;

III.5. Un nouveau silicate aux bonnes propriétés thermiques :
l'Yb:YSO ;

III.6. Conclusion.

Dans ce chapitre nous présentons les performances en pompage par diode de plusieurs nouveaux cristaux dopés à l'ytterbium. Ces matériaux, aux formules souvent compliquées, seront toujours désignés par leurs sigles (le cas échéant par leurs acronymes). La signification de ces derniers est résumée dans le tableau III.0. Nous avons également indiqué (troisième colonne) la famille du cristal, des cristaux appartenant à la même famille ayant généralement des propriétés voisines.

Composé	Sigle	Famille
$Y_3Al_5O_{12}$	YAG	<i>grenat</i>
$Gd_3Ga_5O_{12}$	GGG	<i>grenat</i>
$Ca_4Gd(BO_3)_3O$	GdCOB	<i>borate</i>
$Ca_4Y(BO_3)_3O$	YCOB	<i>borate</i>
$Sr_3Y(BO_3)_3$	BOYS	<i>borate</i>
$(Sr_{1-x}Ca_x)_3Y(BO_3)_3$ $x = 0.3$	CaBOYS	<i>borate</i>
$SrY_4(SiO_4)_3O$	SYS	<i>oxyapatite (silicate)</i>
Y_2SiO_5	YSO	<i>silicate</i>
$KGd(WO_4)_2$	KGW	<i>tungstate (scheelite)</i>

Tableau III.0 : Les cristaux étudiés, leur sigle et leur famille. En grisé : les matériaux qui ne font pas l'objet d'une étude approfondie dans ce chapitre.

Tout d'abord nous présenterons les performances d'un **grenat**, le Grenat de Gadolinium et de Gallium (GGG). Il possède des propriétés spectroscopiques très proches de celles du YAG, il est donc intéressant de comparer ces deux cristaux dans les mêmes conditions.

Puis nous exposerons les résultats obtenus avec des cristaux de la famille des **borates**. Nous commencerons par un cristal auquel notre laboratoire s'intéresse depuis quelques années maintenant, l'Yb:GdCOB, que nous avons caractérisé ici pour la première fois en pompage par diode de forte puissance. Il s'agit d'un cristal dont le spectre d'émission est suffisamment large pour supporter des impulsions femtoseconde.

C'est un spectre exceptionnellement large (pour un cristal) qui fait l'intérêt et l'originalité du BOYS, un nouveau cristal de la famille des borates. Nous verrons en détail les performances et les limitations de ce matériau, et comment il se comporte face au GdCOB et au verre. Les problèmes thermiques sont, on le verra, le point d'achoppement de ce matériau : nous chercherons alors à savoir s'il est possible de corriger ces problèmes en recourant à un cristal de formule légèrement différente, appelé CaBOYS.

Puis nous en viendrons aux cristaux de la famille des **silicates**. Le premier dont il sera question, le SYS, est une apatite dont le spectre est aussi large que celui du BOYS. Nous étudierons ici non seulement les performances du matériau « simple », mais aussi celles d'un matériau *composite*, formé d'un cristal de SYS dopé soudé par diffusion sur un cristal de YAG non dopé.

Enfin, nous étudierons l'Yb:YSO, un cristal qui possède à la fois une très bonne conductivité thermique et un spectre relativement large.

III.1. Un grenat pour concurrencer le YAG : le GGG dopé à l'ytterbium.

Le cristal le plus connu dans le monde des lasers est sans conteste le YAG ($Y_2Al_5O_{12}$), un acronyme pour Yttrium Aluminium Garnet (*grenat d'aluminium et d'yttrium*). Grand nombre de systèmes laser commerciaux, pompés par lampe ou par diode, sont aujourd'hui fabriqués à base de YAG dopé au néodyme [Laser Focus World *annual report 2002*].

Le YAG est également, et de loin, le cristal *dopé à l'ytterbium* le plus étudié. Cela tient à trois propriétés remarquables :

- 1) il a de grandes sections efficaces d'absorption et d'émission (relativement aux autres...);
- 2) il a d'excellentes propriétés thermomécaniques, en particulier une grande conductivité thermique ($10.7 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour un cristal non dopé);
- 3) il est possible de le faire croître par la méthode de Czochralski, un procédé qui permet d'obtenir des monocristaux de grande taille et d'excellente qualité optique.

Ces propriétés sont plus généralement celles des matériaux de la famille des grenats, dont plus de vingt éléments ont été synthétisés et caractérisés [Slack 71]. Le GGG ($Gd_3Ga_5O_{12}$), grenat de gadolinium et de gallium, est un de ceux-là.

C'est un cristal connu depuis des décennies, disponible commercialement (non dopé) auprès de nombreux fournisseurs. Il a beaucoup été utilisé comme substrat pour des dispositifs magnétiques ou supraconducteurs, avant d'être identifié comme une matrice hôte intéressante pour des ions laser actifs. Des études spectroscopiques et des tests laser ont été rapportés dans des cristaux de GGG dopés au néodyme [Geusic 64, Yoshida 88], à l'erbium [Dinermann 92], ou au chrome et au calcium [Carrig 96]. Le Nd:GGG, en particulier, a été reconnu comme un matériau laser très attractif en raison de sa capacité à être synthétisé en monocristaux de grandes dimensions (jusqu'à 15 cm de diamètre), avec une excellente qualité optique.

Des lasers à base de GGG *dopé à l'ytterbium* ont été rapportés (à notre connaissance) deux fois dans la littérature [Belovolov 96, Shimokozono 96]. Dans ces expériences, un laser au saphir dopé au titane venait pomper soit un matériau massif [Belovolov 96], soit un dispositif de type guide d'onde intégré [Shimokozono 96]. Les puissances obtenues en sortie ne dépassaient pas quelques milliwatts dans les deux cas.

Nous avons étudié, pour la première fois à notre connaissance, les performances laser de l'Yb:GGG en pompage par diode. Nous commençons par une description des propriétés de ce cristal, suivies de l'examen de ses performances laser. Nous terminerons par une comparaison avec l'Yb:YAG, effectuée dans les mêmes conditions.

Le cristal d'Yb:GGG que nous avons utilisé a été élaboré par le LPCML de Lyon.

III.1.1. Propriétés optiques et thermiques du cristal de GGG

Nous présentons dans ce paragraphe une revue bibliographique de quelques propriétés optiques et thermiques du cristal de GGG. Nous indiquons les paramètres pour un cristal *non dopé*, à l'exception de la conductivité thermique, qui sera également donnée pour des cristaux dopés.

Le GGG est un cristal cubique, comme le YAG : il est donc optiquement isotrope. Wood et Nassau [Wood 90] ont mesuré l'indice de réfraction sur la gamme de transparence du GGG, qui

s'étend de 380 nm à 6 microns, et en ont déduit les coefficients de Sellmeier. L'indice est donné par l'expression suivante, en fonction de la longueur d'onde :

$$n^2 - 1 = \sum_{i=1}^3 \frac{A_i \lambda^2}{\lambda^2 - L_i^2} \quad (\text{III.1.})$$

avec λ : longueur d'onde en μm ($0.38 < \lambda < 6 \mu\text{m}$) ;
 $A_1 = 1.7727$; $A_2 = 0.9767$; $A_3 = 4.9668$;
 $L_1 = 0.1567$; $L_2 = 0.01375$; $L_3 = 22.715$.

L'indice de réfraction moyen du GGG vers $1 \mu\text{m}$ vaut donc 1.94.

Pour les problèmes liés à la montée en puissance, il est important de connaître un certain nombre de paramètres thermiques et thermo-optiques, au premier rang desquels on trouve le dn/dT , la chaleur massique c_p , et la conductivité thermique K_c .

Wood et Nassau [Wood 90] donnent une relation empirique reliant le dn/dT mesuré à la longueur d'onde :

$$\frac{dn}{dT} = \left(1.69 + \frac{0.06}{\lambda^3} \right) \times 10^{-5} / ^\circ\text{C} \quad \lambda \text{ en } \mu\text{m} (0.38 < \lambda < 6 \mu\text{m}) ;$$

Ce coefficient vaut $1.75 \times 10^{-5} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ vers $1 \mu\text{m}$, ce qui est supérieur (bien que du même ordre de grandeur), à la valeur mesurée par Wynne *et al.* dans le YAG ($0.9 \times 10^{-5} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$) [Wynne 99].

J. Ahn [Ahn 82] s'est intéressé aux propriétés thermiques du GGG, et a en particulier effectué des mesures d'émissivité dans l'infrarouge. Il donne également la chaleur massique à différentes températures, une donnée utile pour les lasers de puissance fonctionnant dans le régime impulsionnel (voir seconde partie, § I.2.). Sa valeur à 324 K est $415 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$.

Pour les lasers continus, c'est la conductivité thermique qui est le paramètre essentiel. À notre connaissance, deux valeurs différentes sont disponibles dans la littérature. La première est due à Slack *et al.* [Slack 71] qui rapportent une conductivité de $8 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour le GGG à 300 K. La seconde est due à Ahn [Ahn 82] qui donne $12 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, d'après des mesures de diffusivité thermique effectuées à 1400 K.

Mais il est bien connu que la conductivité thermique d'un cristal décroît de façon significative avec le taux de dopage (on trouvera une étude approfondie de cet aspect dans [Gaumé 02]). Nous présentons à la figure III.1.1. des mesures de conductivité thermique effectuées par R. Gaumé à l'ESPCI grâce à une technique de réflectométrie photothermique [Fournier 01]. L'échantillon de GGG dopé à 5.7% en ions ytterbium (utilisé dans les tests présentés plus loin) a été comparé à un échantillon non dopé. La conductivité a également été mesurée dans plusieurs échantillons de YAG (dopés à 0, 3, 6, 8, et 15 % en ions Ytterbium). Il apparaît à la figure III.1.1. que la conductivité thermique du GGG non dopé est de $8 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, alors qu'elle vaut $7.5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ dans l'échantillon dopé.

En revanche, la conductivité thermique du YAG décroît beaucoup plus rapidement avec le taux de dopage. Ce comportement a été modélisé par R. Gaumé [Gaumé 02] : l'ajustement théorique est également représenté sur la même figure. On peut expliquer physiquement ce phénomène de la façon suivante : dans le GGG l'ion Yb^{3+} vient substituer un ion Gd^{3+} dont la masse est comparable. La propagation des phonons dans le cristal se retrouve alors peu affectée. Par contre, dans le YAG où c'est un ion Y^{3+} (de masse plus faible) qui est substitué, les ions Yb^{3+} agissent comme des centres diffusants pour les phonons de la matrice, ce qui a pour effet de rendre moins « aisée » leur propagation, et de réduire la conductivité thermique.

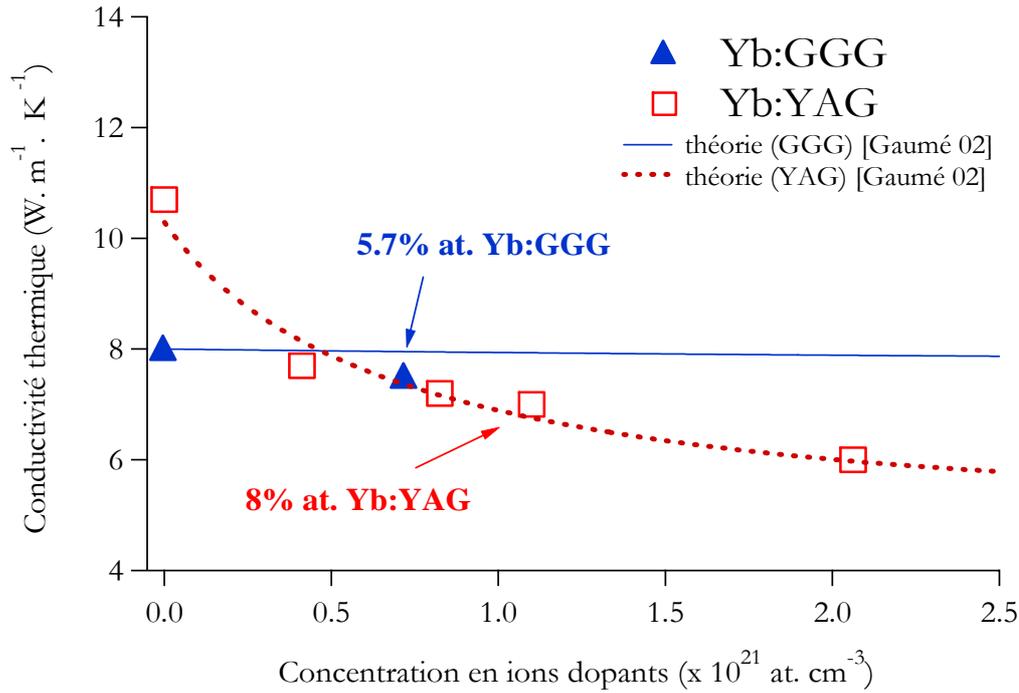


Figure III.1.1 : conductivité thermique de l'Yb:GGG et de l'Yb:YAG pour différents taux de dopage (d'après [Gaumé 02]).

Nous remarquons en particulier que lorsque la densité en ions dopants devient supérieure à 5.10^{20} ions/ cm^3 (ce qui correspond à 3.6 % pour l'Yb:YAG et à 4 % pour l'Yb:GGG, en pourcentages atomiques), la conductivité thermique du GGG devient *supérieure* à celle de l'Yb:YAG. C'est un point très positif, qui rend les propriétés thermiques du GGG supérieures à celles du YAG pour de forts taux de dopage.

III.1.2. Propriétés du GGG dopé à l'ytterbium

Le GGG fond de manière congruente à une température relativement basse, 1725 °C, ce qui est inférieur d'environ 200°C à la température de fusion du YAG. La croissance a été effectuée par la méthode de Czochralski au LPCML de Lyon, impliqué de longue date dans le développement de cristaux grenats avec des dopages en ions Cr^{3+} , V^{4+} , $\text{Cr}^{3+}\text{-Tm}^{3+}$, $\text{Yb}^{3+} - \text{Tm}^{3+}$, et Ho^{3+} . Les conditions expérimentales de croissance sont détaillées dans [Chénaïs 02]. Le dopage est de 7.2×10^{20} ions/ cm^3 , ce qui représente 5.7 at. %.

Les spectres d'absorption et d'émission, mesurés à température ambiante, sont présentés à la figure III.1.2. Ils sont très similaires à ceux du YAG, exposés à la figure III.1.3., à une notable différence près : le pic d'émission se situe à une longueur d'onde plus basse dans l'Yb:GGG ($\lambda_{\text{pic}} = 1025$ nm contre $\lambda_{\text{pic}} = 1031$ nm pour l'Yb:YAG).

Le spectre d'émission est aussi large que celui du YAG ($\Delta\lambda = 12$ nm à mi hauteur autour de λ_{pic}).

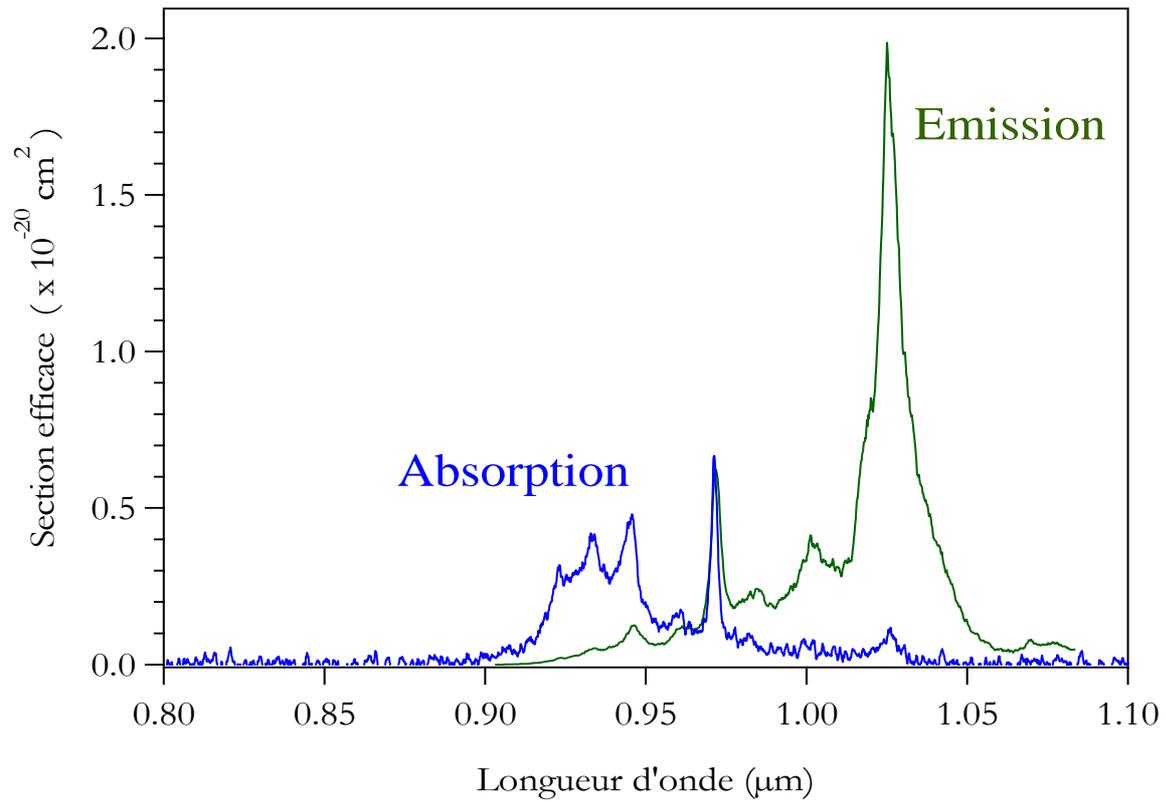


Figure III.1.2. : Spectres d'absorption et d'émission de l'Yb:GGG.

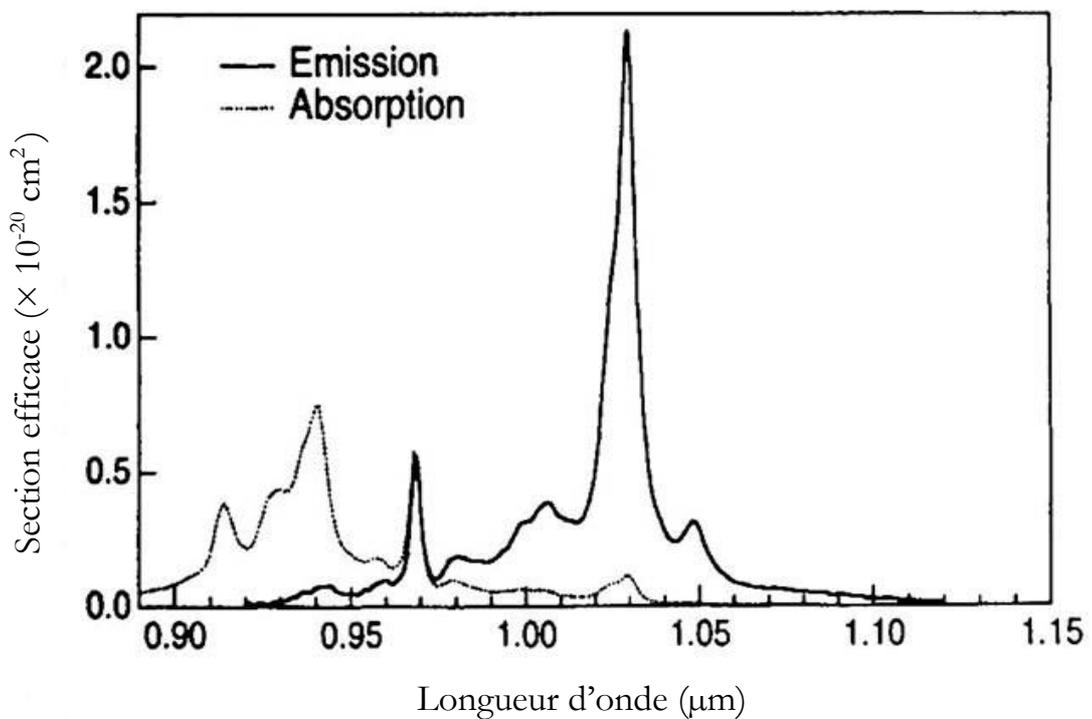


Figure III.1.3 : Spectres d'absorption et d'émission de l'Yb:YAG (d'après [Hönninger 99])

La longueur d'onde de la *zero line* est de 971 nm dans le GGG (contre 968 nm dans le YAG), ce

qui est très facilement accessible avec des diodes laser en InGaAs. Notons que, tout comme le YAG, il est possible de pomper ce cristal à 940 nm.

Le temps de vie radiatif a été mesuré par Belovolov *et al.* [Belovolov 96] qui donnent une valeur de 0.8 ms. Dans notre échantillon le temps de vie mesuré (au LPCML) était de 1.56 ms, un écart dû au piégeage de la fluorescence¹.

À partir du temps de vie radiatif, et en appliquant les relations de Füchtbauer-Ladenburg [Krupke 86], nous avons pu déduire des spectres de fluorescence les sections efficaces d'émission stimulée. À 1025 nm cette section efficace vaut 2.10^{-20} cm², ce qui est égal à la valeur du YAG ($2.03.10^{-20}$ cm² à 1031 nm [DeLoach 93]).

Les données spectroscopiques de l'Yb:GGG et de l'Yb:YAG sont rassemblées dans le tableau III.1.1.

	Yb:GGG	Yb:YAG
Longueur d'onde d'absorption λ_{ZL} (« zero line »)	971 nm	968 nm
Section efficace d'absorption à λ_{ZL} (cm ²)	$6.6 \cdot 10^{-21}$	$7 \cdot 10^{-21}{}^b$
Longueur d'onde d'émission λ_{pic}	1025 nm	1031 nm
Temps de vie radiatif (ms)	$0.8{}^a$	$1.01{}^b$
Section efficace d'émission à λ_{pic} (cm ²)	$2 \cdot 10^{-20}$	$2.03 \cdot 10^{-20}{}^b$
Conductivité thermique (W.m ⁻¹ .K ⁻¹) :		
- Non dopé	8	10.7
- Dopé (taux de dopage, en pourcentage atomique)	7.5 (5.7 %)	7 (8 %)
dn/dT (°C ⁻¹)	$1.75 \cdot 10^{-5}{}^c$	$0.9 \cdot 10^{-5}{}^d$
Indice de réfraction à 1 μ m	$1.94{}^c$	$1.82{}^b$

a : Réf. [Belovolov 96] ; *b* : Réf. [DeLoach 93] ; *c* : Réf. [Wood 90] ; *d* : Réf. [Wynne 99].

Tableau III.1.1. : Données spectroscopiques et thermiques de l'Yb:GGG et de l'Yb:YAG.

III.1.3. Performances laser en pompage par diode

Les tests laser en pompage par diode ont été réalisés avec un cristal de 3.12 mm de longueur, traité anti-reflet sur les deux faces. La diode de pompe est la diode OptoPower (cf. § II.1.1) qui émet ici une puissance de 9.8 Watts à 971 nm, focalisés sur une tache circulaire de 250 μ m de diamètre dans le cristal.

Les résultats sont résumés à la figure III.1.4. Les meilleures performances ont été obtenues avec un miroir de sortie de transmission 6 %, grâce auquel une puissance de 1.85 Watts a été obtenue à 1022 nm, alors que le cristal absorbait 5.65 W (c'est-à-dire 59 % de la puissance incidente, mesurés en présence d'effet laser). La pente d'efficacité est dans ce cas de 46 %, et la puissance de pompe absorbée au seuil de 1.48 W. Le faisceau est limité par diffraction ($M^2 < 1.1$).

¹ L'écart entre le temps de vie radiatif et le temps de vie mesuré est un phénomène bien connu en spectroscopie : voir par exemple [Haumesser 00] pour un traitement de cet aspect.

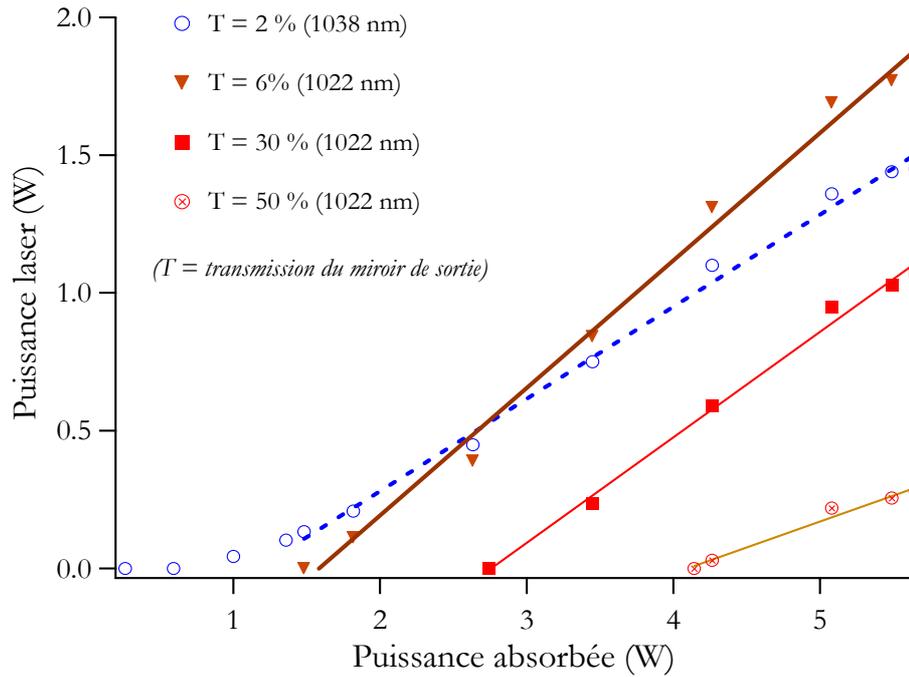


Figure III.1.4 : performances laser de l'Yb:GGG. Le cristal est pompé par la diode Optopower (9.8 W incidents sur 250 μm).

Comme on peut s'y attendre d'une cavité contenant un cristal optiquement isotrope et aucun élément polarisant, le faisceau obtenu n'est pas polarisé. Nous avons obtenu l'effet laser avec un miroir de sortie de transmission aussi grande que 50 %, ce qui montre que le gain est élevé (au moins égal à 2). Nous avons mesuré le gain petit signal en appliquant la technique décrite au § II.2.5 : un gain de 2.26 a été obtenu à la puissance de pompe maximale. Ce fort gain montre l'intérêt potentiel de l'Yb:GGG en tant qu'amplificateur.

L'accordabilité du laser a été mesurée en insérant un prisme en SF10 dans le bras collimaté de la cavité (cf § II.2.4). Avec un miroir de sortie de transmission 2 %, nous avons pu accorder le laser continûment entre 1022 et 1075 nm (voir figure III.1.5), c'est-à-dire sur un intervalle de 53 nm, avec une puissance maximale de 1.2 Watts à 1038 nm. Cette large accordabilité ne tient pas tant à la largeur du spectre d'émission (qui est assez modeste) qu'au fort gain du cristal.

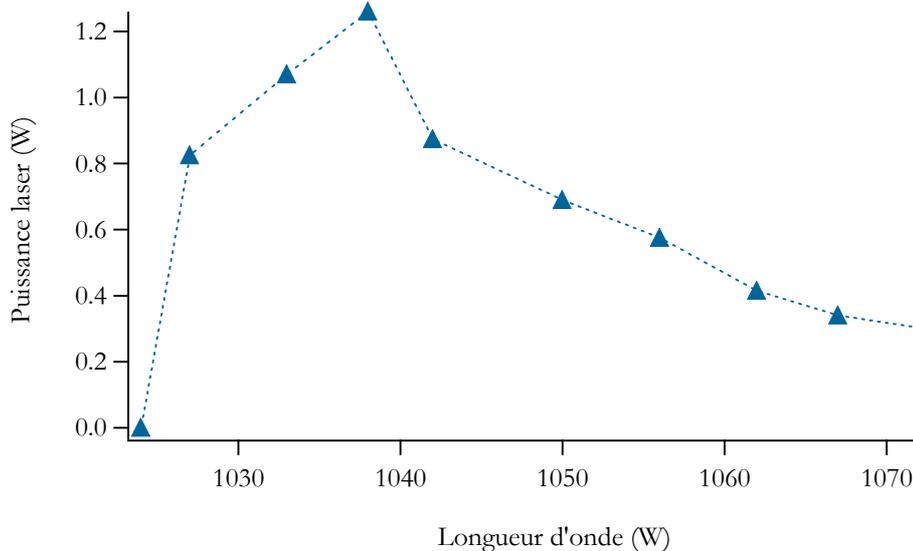


Figure III.1.5 : accordabilité du laser Yb:GGG.

III.1.4. Comparaison avec l'Yb:YAG

Nous avons vu au § III.1.1 et III.1.2 que l'Yb:GGG et l'Yb:YAG avaient un grand nombre de propriétés communes : il est donc particulièrement instructif de les comparer. Le cristal d'Yb:YAG utilisé pour ces expériences a été élaboré au LETI (Grenoble) ; il mesure 1.95 mm de long, est dopé à 8 % en ions ytterbium (ce qui correspond à 11.10^{20} ions/cm³), et il est traité anti-reflet sur ses deux faces.

Pour des raisons pratiques, nous avons effectué cette expérience de comparaison avec la diode LIMO (cf. § II.1.1) qui émet une puissance de 14 Watts à 971 nm, à la sortie d'une fibre de 200 µm de diamètre de cœur et d'ouverture numérique 0.22. Avec cette diode plus brillante les performances du GGG furent, on s'en doute, améliorées. Nous avons obtenu en effet une puissance de 4.15 W dans un faisceau limité par diffraction, pour 8 Watts de puissance absorbée. Le miroir de sortie optimal avait alors une transmission de 4 %.

Pour l'Yb:YAG, la longueur d'onde de la *zero line* se situe à 968 nm : la température de la diode doit donc être diminuée pour que le spectre émis soit toujours accordé sur le spectre d'absorption. La puissance de diode disponible à 968 nm était dans notre cas de 12.9 Watts, le cristal absorbant alors 7.2 W (en présence d'effet laser). La transmission optimale du coupleur de sortie était également 4 %, et 3.8 W de puissance laser ont été obtenus, dans un faisceau également limité par diffraction.

Dans cette expérience la longueur d'onde laser était de 1038 nm dans le GGG, et de 1049 nm dans le YAG.

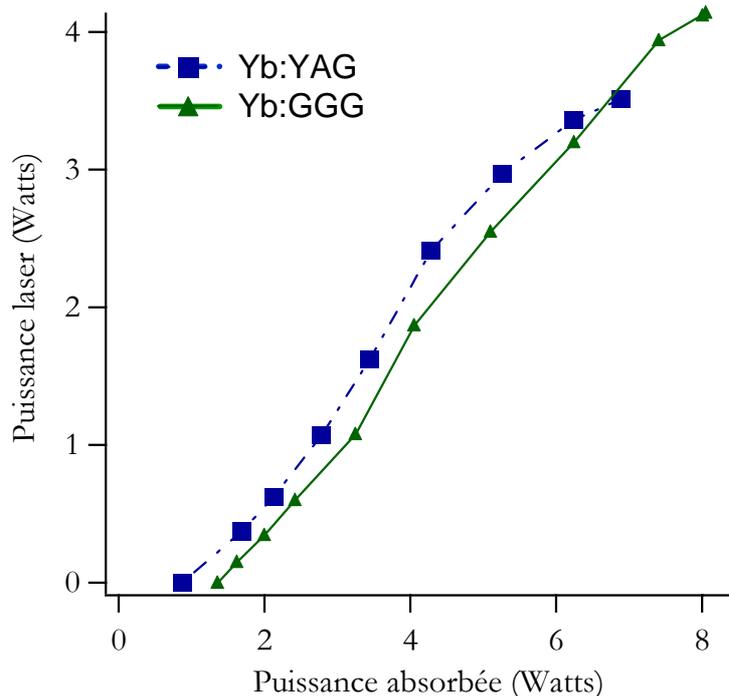


Figure III.1.6. : Comparaison des performances de l'Yb:GGG et de l'Yb:YAG. La diode de pompe est la diode LIMO (émettant 14 W sur 200 μm).

La figure III.1.6 représente les performances comparées de ces deux cristaux : on constate que les courbes d'efficacité sont pratiquement confondues.

On constate que les seuils sont proches (1.36 W pour le GGG et 0.85 W pour le YAG), et les pentes d'efficacité estimées à partir des points expérimentaux identiques (65 %).

L'étude plus poussée des effets thermiques (et en particulier la mesure des lentilles thermiques avec et sans effet laser) dans ces deux cristaux sera menée dans la seconde partie.

III.1.5. Conclusion

Le cristal de GGG dopé à l'ytterbium a été caractérisé, pour la première fois, en pompage par diode. Nous avons obtenu de très bonnes performances (jusqu'à 4.15 Watts dans un faisceau limité par diffraction, avec une pente d'efficacité de 63 %), mesuré un gain élevé (2.26) et obtenu une large accordabilité sur un intervalle de 53 nm.

L'Yb:GGG peut-il dès lors concurrencer l'Yb:YAG ? Nous pouvons, à la lumière de ce qui précède, apporter une réponse en mettant en avant trois aspects :

- **Le GGG est facile à croître en monocristaux de grande dimension**, et il bénéficie d'une température de fusion plus faible de 200°C par rapport à celle du YAG. La facilité de croissance est cependant un paramètre très difficile à quantifier, qu'on ne peut pas résumer à la simple donnée de la température de fusion. La récente obtention de cristaux de GGG de 15 cm de diamètre [Rotter 01] est tout de même, sur ce point, tout à fait encourageante. Précisons en effet que les « cristallogéniteurs » du *Lawrence Livermore National Laboratory*, experts dans l'art de faire croître des cristaux de dimensions particulièrement élevées, s'intéressent de près au GGG (dopé au néodyme), en justifiant leur intérêt assez récent pour ce matériau par sa « facilité de croissance ». Il se pourrait donc très bien qu'il soit effectivement plus facile à faire croître que le YAG.

- Les mesures de conductivités thermiques effectuées avec plusieurs niveaux de dopage ont mis en évidence que **la conductivité thermique du GGG est supérieure à celle du YAG pour un dopage supérieur à 5×10^{20} ions/cm³** (ce qui correspond à 3.6 % pour l'Yb:YAG). La conductivité thermique est le paramètre physique clé (en régime continu) qui gère la distribution de température dans le cristal (voir seconde partie, § I.2).
- Les mesures d'efficacité réalisées en pompage par diode montrent que **les performances de ces deux matériaux sont tout à fait comparables.**

Il apparaît donc que l'Yb:GGG pourrait remplacer l'Yb:YAG dans des lasers *de forte puissance*, et spécialement dans les systèmes nécessitant des cristaux fortement dopés. C'est généralement ce que l'on souhaite dans tout laser pompé par diode, car cela minimise la longueur du cristal nécessaire et rend donc meilleur le recouvrement spatial entre le mode de pompe et le mode de cavité. Et cela est d'autant plus profitable aux lasers dits à « disque mince » [Giesen 94]. Dans l'un des seuls lasers commerciaux (à la date où nous écrivons) qui exploitent un cristal dopé à l'ytterbium (l'Yb:YAG en l'occurrence [ELS Versadisk]), c'est cette dernière technologie qui est employée : on y trouve un cristal dont l'épaisseur est de l'ordre de 200 μm , et qui est, selon toute vraisemblance (d'après [Karszewski 98]), dopé à $\approx 8\%$ en ions ytterbium. Si l'on considère le cristal de GGG de même épaisseur qui aurait la même absorption, il aurait une conductivité thermique supérieure de 15 % environ à celle du YAG.

L'Yb:GGG s'avère donc particulièrement prometteur.

III.2. Performances de l'Yb:GdCOB en pompage par diode de forte puissance.

Le GdCOB ($\text{Ca}_4\text{Gd}(\text{BO}_3)_3\text{O}$) n'est pas à proprement parler un cristal « nouveau », dans le sens où il a déjà fait l'objet de plusieurs études dans le passé au LCAES [Mougel 99] et au sein de l'équipe ELSA [Augé 00, Druon 01, Lucas-Leclin 00]. Breveté en 1995, c'est maintenant un cristal disponible commercialement, qui possède la particularité d'être non seulement un cristal laser mais aussi un cristal *non linéaire*, ce qui a permis la réalisation de lasers autodoubleurs de fréquence, avec un dopage au néodyme [Augé 00, Lucas-Leclin 00].

Dopé à l'ytterbium, il est apparu comme un matériau capable de jeter un pont entre les deux grandes classes d'applications que nous avons évoquées dans l'introduction.

En effet, le seul matériau dopé à l'ytterbium qui était, jusqu'alors, capable de générer ou d'amplifier des impulsions de moins de 100 fs, était le verre [Hönninger 99, Danger 96, Liu 99]. Cette appellation de *verre* désigne en fait tous les composés amorphes, dont les formules chimiques ne sont, en général, pas connues dans le détail. La structure des verres étant naturellement désordonnée, les spectres d'émission sont très larges (voir encadré du § I.1.1). Mais, à cause précisément de leur structure désordonnée, les verres sont aussi de très mauvais conducteurs de la chaleur, avec une conductivité thermique très faible ($< 1 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$).

Le GdCOB a été l'un des premiers *cristaux* dont le spectre était si large qu'il tendait presque à ressembler à celui d'un verre. Le fait que ce soit un cristal lui confère une meilleure conductivité thermique ($2.1 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ pour le GdCOB non dopé) et de plus grandes sections efficaces.

Les performances laser de l'Yb:GdCOB ont déjà été étudiées en régime continu, avec un pompage à 902 nm [Augé 99] puis à 976 nm, sur la *zero line* [Druon 00-1], mais toujours avec des puissances de pompe faibles ($< 2 \text{ W}$). L'étude du cristal en régime femtoseconde a ensuite permis

d'obtenir des impulsions de 90 fs à la sortie d'un oscillateur, grâce à une technique de blocage de modes passif par miroir à absorbant saturable semi-conducteur (SESAM) [Druon 00-2].

Nous avons ici caractérisé ce cristal pour la première fois en pompage par diode *de forte puissance*, en régime continu.

III.2.1 Propriétés spectroscopiques de l'Yb:GdCOB

Les propriétés physiques et spectroscopiques de l'Yb:GdCOB ont fait l'objet d'une étude détaillée dans [Mougel 99].

Le GdCOB est un cristal biaxe : son orientation est donc définie à partir de la donnée de trois axes cristallographiques X, Y et Z. Les spectres d'absorption et d'émission mesurés en lumière polarisée sont donnés aux figures III.2.1 et III.2.2.

Les paramètres optiques et spectroscopiques utiles sont répertoriés dans le tableau III.2.1.

On voit (d'après les spectres d'émission) que la section efficace d'émission est plus grande pour un faisceau polarisé selon Z (E//Z) : le laser sera donc naturellement polarisé selon cette direction. Le cristal que nous avons utilisé était optimisé pour un pompage à 902 nm : il était donc taillé pour une propagation le long de l'axe Y (k//Y).

Yb:GdCOB	
Longueur d'onde d'absorption λ_{ZL} (« zero line »)	976 nm
Section efficace d'absorption à λ_{ZL} (cm ²)	1.5 10 ⁻²⁰ (E//Y)
	1.1 10 ⁻²⁰ (E//Z)
	1.1 10 ⁻²⁰ (E//X)
Largeur (à mi-hauteur) du spectre d'absorption $\Delta\lambda_{abs}$ à λ_{ZL} (moyenne pour les trois polarisations)	3 nm
Longueur d'onde λ_{pic} au pic de la courbe d'émission	1032 nm
Temps de vie radiatif (ms)	2.7
Section efficace d'émission à λ_{pic} (cm ²) pour E//Z	0.36 10 ⁻²⁰
Largeur spectrale à mi-hauteur (nm)	44
Conductivité thermique (W.m ⁻¹ .K ⁻¹) du cristal non dopé	2.1
dn/dT (°C ⁻¹)	1.9 10 ⁻⁶
Indice de réfraction à 1 μ m	1.69

Tableau III.2.1 : Paramètres caractéristiques de l'Yb:GdCOB. D'après [Mougel 99].

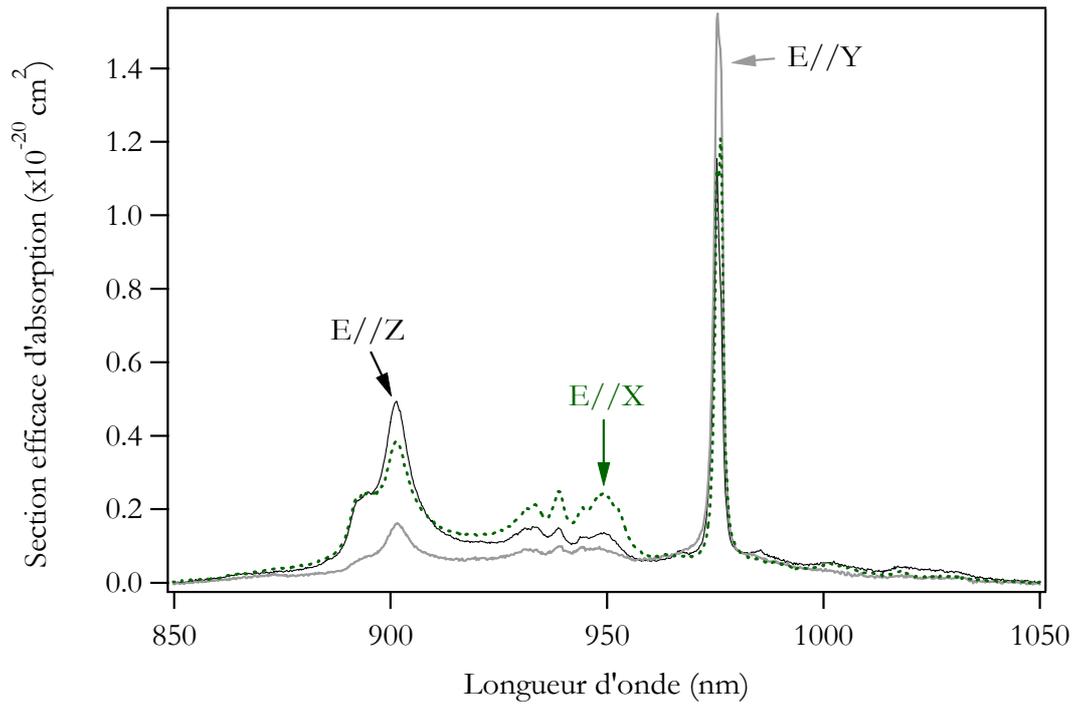


Figure III.2.1 : Spectre d'absorption en lumière polarisée de l'Yb:GdCOB. X, Y, Z sont les axes cristallographiques. E désigne le champ électrique de l'onde. D'après [Mongel 99].

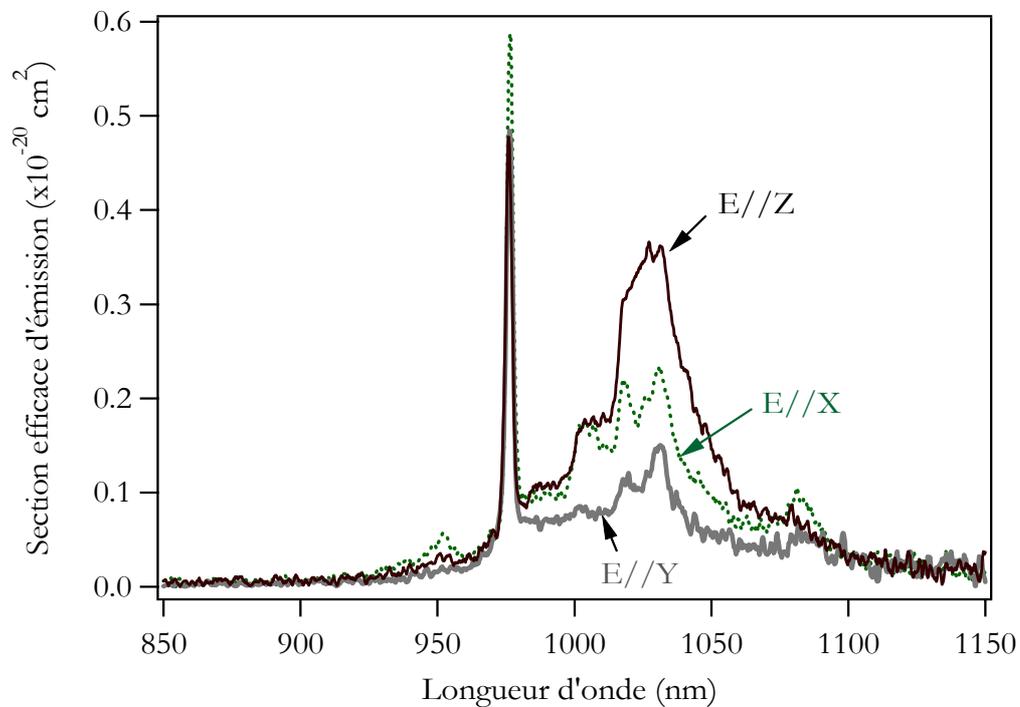


Figure III.2.2 : Spectres d'émission en lumière polarisée de l'Yb:GdCOB. D'après [Mongel 99].

III.2.2. Performances laser de l'Yb:GdCOB avec la diode OptoPower®.

Nous présentons ici les résultats obtenus avec la diode Optopower fibrée, émettant une puissance de 10 Watts à 976 nm, dont le faisceau est focalisé dans le cristal sur une tache circulaire de 250 μm de diamètre. Le cristal est dopé à 15 at.% (ce qui correspond à $6.6 \cdot 10^{20}$ ions/ cm^3), il a une longueur de 3 mm, il est traité anti-reflet sur ses deux faces. Pour ces expériences le cristal était refroidi par effet thermoélectrique (élément Peltier) à environ 10°C. Le coefficient d'absorption non saturé vaut dans ces conditions $\alpha_{\text{NS}} = 4 \text{ cm}^{-1}$: en fonctionnement laser, le cristal absorbait 58 % de la puissance incidente (soit 5.2 W), ce qui revient à réduire le coefficient d'absorption à 3 cm^{-1} .

III.2.2.1. Performances, gain et accordabilité

Pour 5.2 Watts de puissance de pompe absorbés, nous avons obtenu jusqu'à 3.2 W de puissance laser à 1043 nm. Le seuil est bas — 570 mW en termes de puissance absorbée — et la pente d'efficacité (toujours relativement à la puissance absorbée) est très élevée — 81 %, alors que la limite ultime imposée par l'écart entre les longueurs d'onde de la pompe et du laser est $976/1043 = 93.5\%$.

Le rendement optique-optique du laser est de 32 %, ce qui correspond à un rendement électrique-optique de 11 %, une valeur remarquablement élevée².

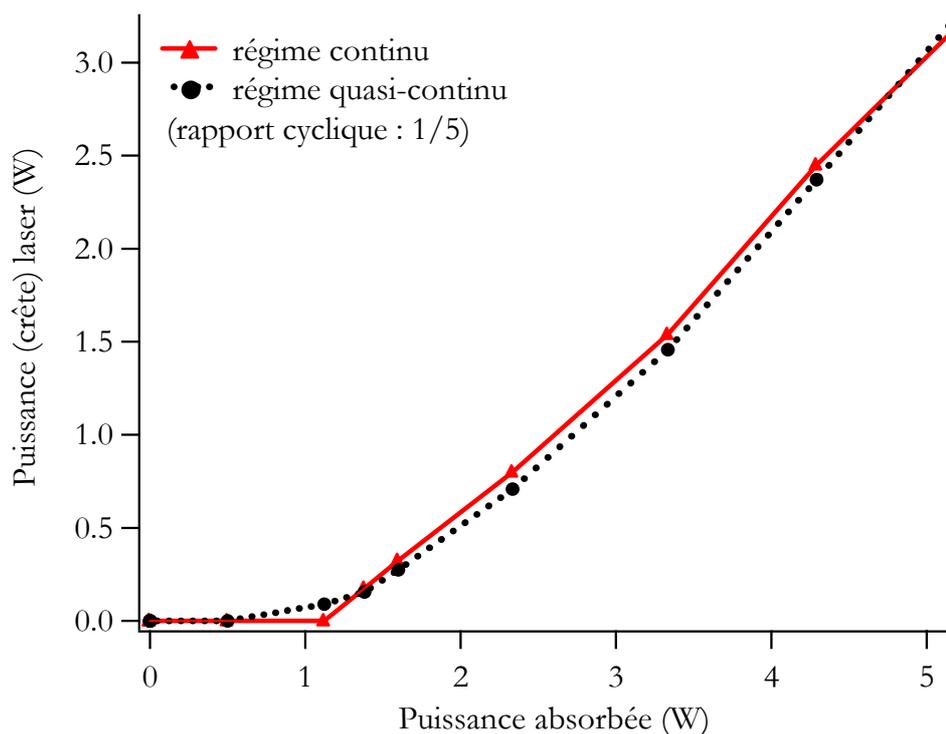


Figure III.2.3 : performances de l'Yb:GdCOB, avec un miroir de sortie de transmission $T = 4 \%$. En pointillés : puissance crête en régime quasi-continu (rapport cyclique : 1/5). En traits pleins : puissance en régime continu.

² Le rendement électrique-optique affiché ici est calculé comme suit : la diode émet 10 W en sortie de fibre mais 15 Watts à la sortie de la barrette « nue ». Le rendement électrique/optique de la diode est de l'ordre de 50 % (valeur donnée par le constructeur), ce qui donne cette valeur de 11 %. On n'a pas pris en compte ici la puissance électrique nécessaire au fonctionnement du circuit régulateur de température : cette valeur n'est donc pas à prendre comme un rendement « à la prise électrique ».

L'influence des effets thermiques a été évaluée en comparant la puissance continue mesurée à la puissance crête obtenue en régime quasi-continu (voir § II.2.2). On constate sur la figure III.2.3. que les courbes se superposent, ce qui prouve que les effets thermiques, sans préjuger de leur existence ou même de leur importance, n'ont en tout cas pas d'influence notable sur les performances à ce niveau de pompage.

Le gain petit signal a été mesuré, en fonction de la puissance de pompe, avec la technique exposée au § II.2.5. Les résultats sont exposés à la figure III.2.4. Un gain égal à 1.53 a été mesuré à la puissance de pompe maximale. C'est une valeur médiane, qui permet d'expliquer que ce type de lasers est plus difficile à régler qu'un laser à base d'un matériau comme l'Yb:YAG ou l'Yb:GGG dont il a été question précédemment. La linéarité de la courbe de la figure III.2.4 est une preuve supplémentaire que les effets thermiques n'ont pas ici d'influence sur les performances [Balembois 97].

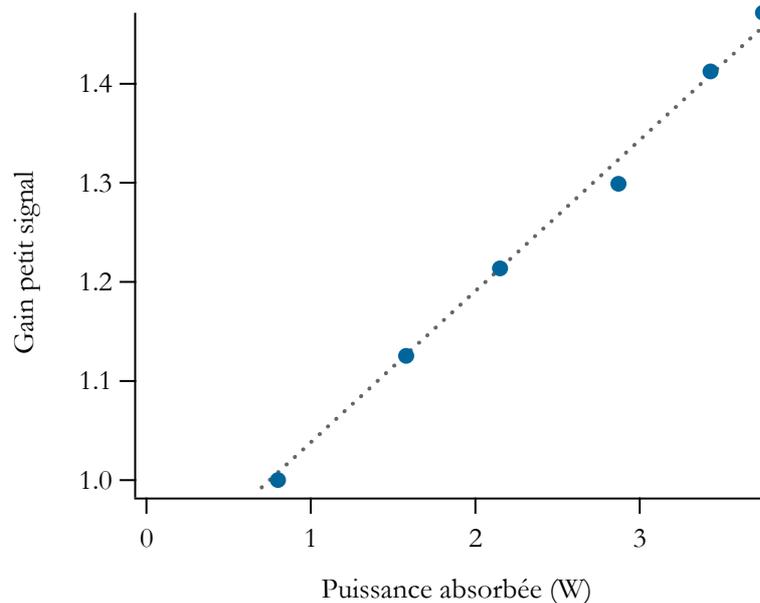


Figure III.2.4 : gain petit signal en fonction de la puissance absorbée (mesurée en l'absence d'effet laser).

L'accordabilité du laser a été étudiée en insérant un prisme (en SF10) dans le bras collimaté de la cavité (voir §II.2.4.). La figure III.2.5. montre que le laser est continûment accordable entre 1018 et 1086 nm, avec plus d'1 Watt de puissance laser sur une plage de 30 nm. L'accordabilité est limitée aux basses longueurs d'onde par les traitements dichroïques sur les miroirs (voir § II.1.2).

III.2.2.2 Qualité du faisceau

Lorsque nous avons effectué ces expériences, nous n'avions pas d'idée de l'ordre de grandeur de la lentille thermique, ce qui ne nous permettait pas de concevoir une cavité dite « insensible à la lentille thermique », dont le principe a été exposé au § II.1.2. La mesure du paramètre M^2 nous a alors révélé que le laser fonctionnait dans un régime multimode transverse ($M^2 = 2.8$ dans une direction et $M^2 = 3.1$ dans la direction perpendiculaire).

En appliquant la technique de mesure de lentilles thermiques commentée en détail dans la seconde partie de ce mémoire, nous avons pu évaluer la distance focale de la lentille thermique à 7 cm environ. Grâce à cette donnée, la cavité a pu être redimensionnée en conséquence pour améliorer la qualité du faisceau obtenu en sortie.

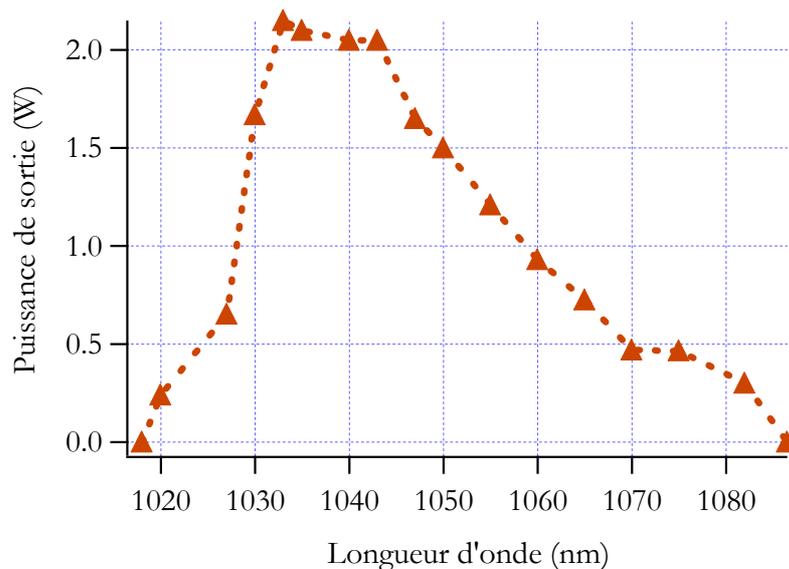
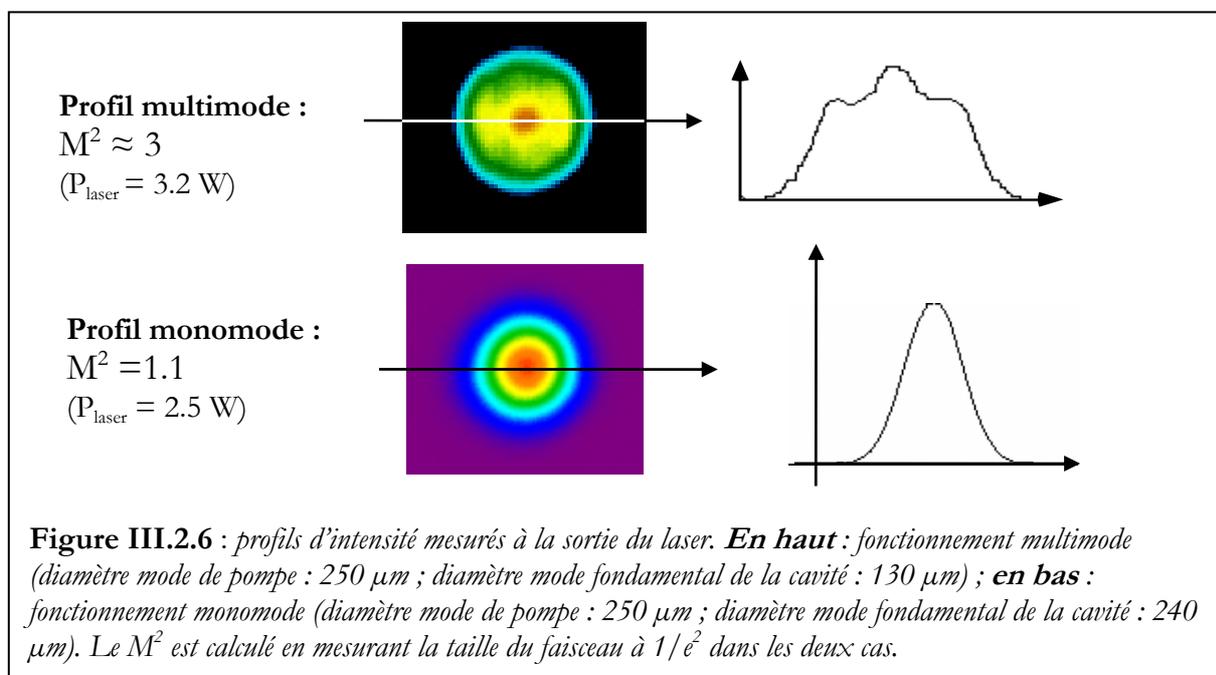


Figure III.2.5 : Accordabilité du laser Yb:GdCOB (miroir de sortie $T = 4\%$, prisme en SF10 dans la cavité).

Nous avons alors obtenu, avec les mêmes conditions de pompage, 2.5 Watts de rayonnement laser dans un faisceau limité par diffraction ($M^2 = 1.1$ dans les deux directions). Les profils spatiaux correspondants sont représentés à la figure III.2.6.



III.2.3. Performances avec la diode LIMO®

Nous signalons brièvement, pour finir, les meilleures performances obtenues avec ce cristal grâce à la diode LIMO (voir §I.1.1), qui est plus puissante et plus brillante que la diode Optopower précédemment utilisée. Pour cette expérience, 13.5 Watts de pompe à 976 nm étaient focalisés sur une surface de 200 μm de diamètre dans le cristal. Le cristal absorbait alors 9.6 W. La puissance laser atteint alors 4.7 Watts, pour une pente d'efficacité de 56 % (voir figure III.2.7). La qualité de faisceau était à peu près identique à celle du laser générant 3.2 Watts que nous

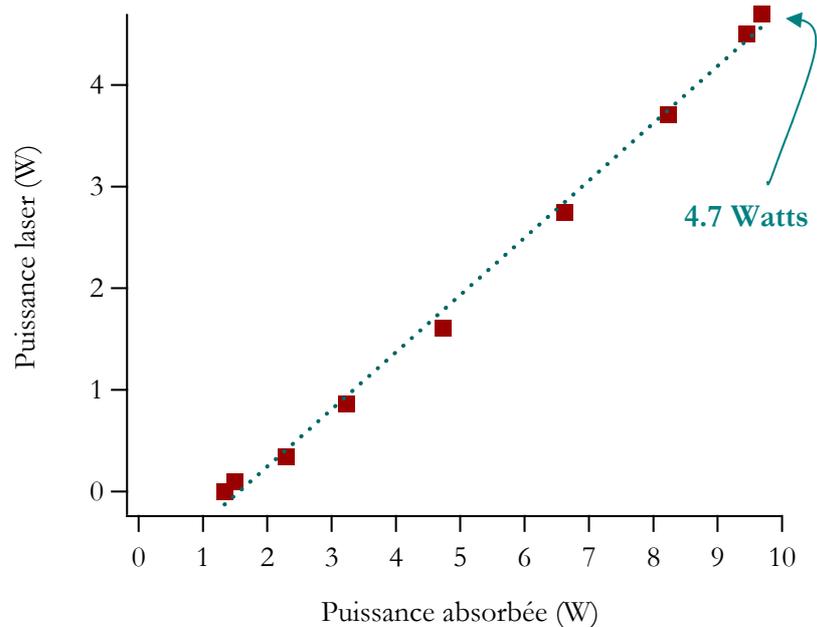


Figure III.2.7 : Performances de l'Yb:GdCOB pompé par la diode LIMO.

venons de décrire ($M^2 = 3.3$ dans la direction horizontale, et $M^2 = 4$ dans la direction verticale), ce qui permet la comparaison. Il est probable que la plus faible efficacité (56 % contre 81 %) soit en partie liée à un moins bon recouvrement spectral — la largeur spectrale de la diode LIMO est de l'ordre de 6 nm à mi-hauteur, alors que le pic d'absorption à 976 nm de l'Yb:GdCOB a une largeur de 3 nm.

III.2.4. Conclusion

Nous avons étudié les performances du cristal d'Yb:GdCOB en pompage par diode « de forte puissance » (10 W puis 13.5 W). Les performances obtenues sont très bonnes : 3.2 W ont pu être obtenus pour 5.2 W de puissance absorbée, ce qui représente un rendement électrique/optique de 11 %. Avec une diode de pompe plus brillante, nous avons obtenu jusqu'à 4.7 Watts de puissance laser. Les effets thermiques n'ont pas d'influence sur les performances laser, comme le prouve une expérience comparative en régime continu et quasi-continu.

Ces bonnes propriétés thermiques, alliées à un spectre large garantissant une large accordabilité (sur plus de 30 nm à mi-hauteur), permettent d'envisager la réalisation d'amplificateurs d'impulsions ultracourtes fonctionnant à puissance moyenne élevée.

Après le développement du GdCOB, les efforts du LCAES se sont portés sur des nouveaux cristaux capables d'avoir des spectres encore plus larges que celui du GdCOB : c'est le cas notamment du BOYS et du SYS, que nous allons étudier dans les sections suivantes.

III.3. Un nouveau cristal au spectre aussi large que celui d'un verre : le BOYS. Comparaison avec le GdCOB et le verre. Tentative d'amélioration avec le CaBOYS.

Si les garçons naissent dans les choux, les BOYS, eux, naissent dans les fours Czochralski.

Le premier cristal de $\text{Sr}_3\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ (**BO**rate d'**Y**ttrium et de **S**trontium) a en effet été conçu dans le courant de l'année 2000, par la méthode de Czochralski, au LCAES de Chimie Paris. C'est un matériau qui a été développé dans le but d'exalter le caractère multisite de l'ytterbium, car c'est une condition indispensable, on l'a vu, pour obtenir des spectres larges, et donc des matériaux pour les lasers femtoseconde.

La perspective de disposer de matériaux au spectre *encore plus large que celui du GdCOB* est en effet très intéressante, en particulier pour la génération d'impulsions ultrabrèves³.

Dans le BOYS, l'ytterbium peut venir se placer dans les deux sites de l'yttrium (sites « réguliers »), ainsi que dans le site du strontium Sr^{2+} , ce qui s'accompagne dans ce dernier cas d'une compensation de charge et donc d'une profonde modification locale de la structure (voir l'encadré du § I.1.1.).

Dans ce chapitre nous étudierons les performances, en régime continu et quasi-continu, de l' $\text{Yb}:\text{BOYS}$ en pompage par diode. Nous comparerons ces performances avec celles du GdCOB précédemment étudié, mais aussi avec celles d'un verre (le « QX phosphate » de Kigre Inc.) qui présente un spectre d'émission semblable. Nous évoquerons également quelques résultats obtenus en régime femtoseconde. Nous verrons enfin que les problèmes thermiques limitent l'usage du BOYS à des puissances modérées : un composé dérivé du BOYS, le CaBOYS ($(\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x)_3\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ avec $x=0.3$) a été développé au LCAES dans le but de rigidifier la structure du BOYS. Nous finirons ce chapitre par un examen des performances de ce dernier matériau.

III.3.1 Spectroscopie de l' $\text{Yb}^{3+}:\text{Sr}_3\text{Y}(\text{BO}_3)_3$

Le BOYS a fait l'objet d'une étude spectroscopique détaillée, que l'on trouvera dans [Haumesser 02]. Le BOYS fond de manière congruente à basse température (1400 °C), ce qui rend relativement aisée sa croissance par la méthode Czochralski. Le LCAES a ainsi pu obtenir des canons de grandes dimensions (30 mm de diamètre) et d'excellente qualité optique (voir photo III.3.1). De plus, le BOYS s'avère facile à découper et à polir.

³ Et pas seulement pour obtenir des durées d'impulsion plus courtes. En effet, à cause du phénomène de « rétrécissement par le gain », une impulsion ultrabrève traversant un milieu amplificateur dont le spectre de gain n'est pas parfaitement plat (sur l'intervalle spectral que couvre l'impulsion) voit son spectre rétrécir, et donc sa durée augmenter. Pour obtenir à la fin d'une chaîne femtoseconde des impulsions de 100 fs, il faut disposer d'un matériau capable de supporter des impulsions plus courtes que cela.

Il s'agit d'un cristal appartenant au système rhomboédrique : il est donc uniaxe.

Nous utiliserons des cristaux taillés perpendiculairement à l'axe optique, *i.e.* tels que le vecteur d'onde est parallèle à l'axe optique ($k//c$).

Ils sont dopés à 20 at.% en ions ytterbium, ce qui correspond à une concentration de 9.6×10^{20} ions/cm³.

Les spectres d'absorption et d'émission sont donnés à la figure III.3.1 pour une polarisation π . Les spectres pour la polarisation σ ne sont pas donnés car il n'y a aucune différence notable entre les deux. Nous

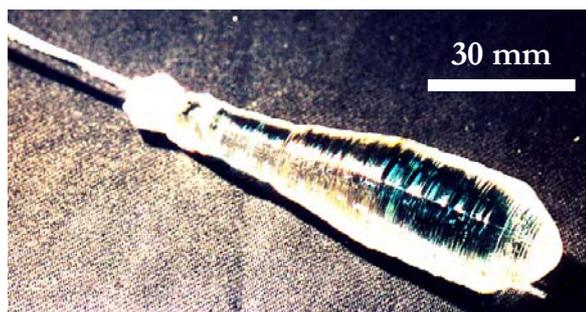


Photo III.3.1 : un monocristal d'Yb:BOYS (photo LCAES).

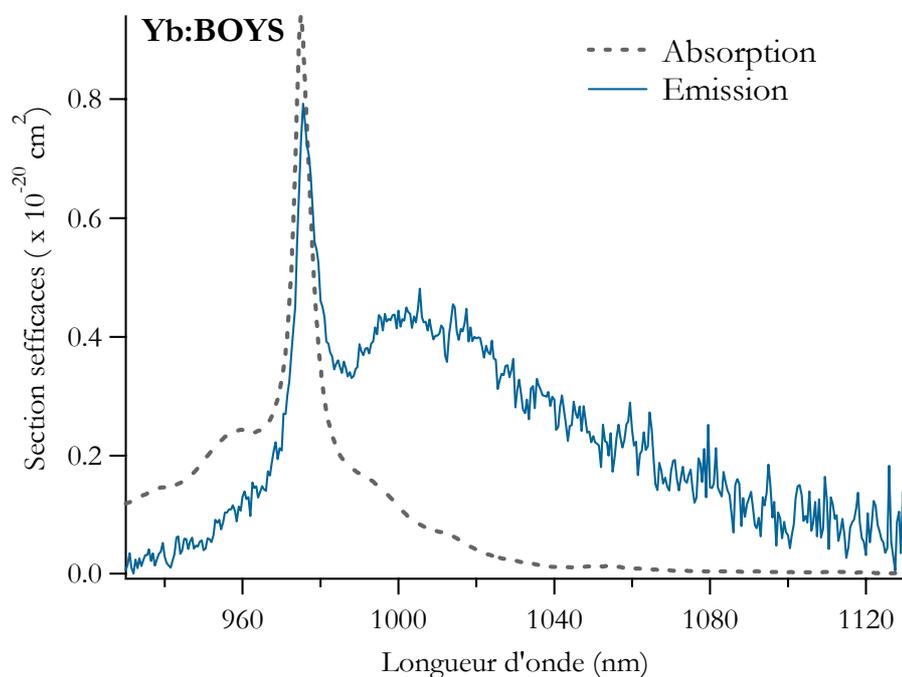


Figure III.3.1 : spectres d'absorption/émission de l'Yb:BOYS, dopé à 20 at. % en ions ytterbium, pour une polarisation π (*i.e.* propagation selon l'axe optique). D'après [Haumesser 02].

avons représenté à la figure III.3.2. les spectres du verre phosphate « QX » que nous utiliserons pour la comparaison. On note une très forte ressemblance d'allure entre les deux spectres, le BOYS ayant même un spectre plus large que le verre (60 nm contre 35 nm⁴). Nous avons choisi le verre phosphate QX plutôt qu'un autre en nous appuyant sur les travaux de Hönninger *et al.* [Hönninger 99], qui ont montré que ce verre permettait d'obtenir de meilleures efficacités et des

⁴ Notons qu'à cause précisément de la très grande largeur des spectres d'émission, ceux-ci se recouvrent très nettement avec les spectres d'absorption, de sorte qu'il devient difficile de mesurer la largeur avec le critère habituel de « la largeur à mi-hauteur ». Pour lever cette ambiguïté nous avons mesuré ces largeurs (à mi-hauteur) sur les spectres de section efficace de gain (voir définition dans § I.2.1), en prenant une fraction de population excitée $\beta = 0.5$. Les spectres de section efficace de gain sont représentés (pour un propos qui est tout autre) dans l'annexe C de ce mémoire, pour le GdCOB et le BOYS. On trouvera également ces spectres de gain (pour d'autres matériaux) dans [Haumesser 02].

durées d'impulsions plus courtes (en régime femtoseconde) que d'autres verres comme le silicate Q-246 ou les fluorophosphates.

Pour faciliter la comparaison des spectres, on a représenté sur le même graphe (figure III.3.3.) les spectres d'émission du BOYS, du verre phosphate QX, et du GdCOB. On voit alors très bien que non seulement le BOYS a un spectre plus large, mais également de plus grandes sections efficaces d'émission que le verre phosphate QX.

Par ailleurs les données spectroscopiques utiles du BOYS sont rassemblées dans le tableau III.3.1..

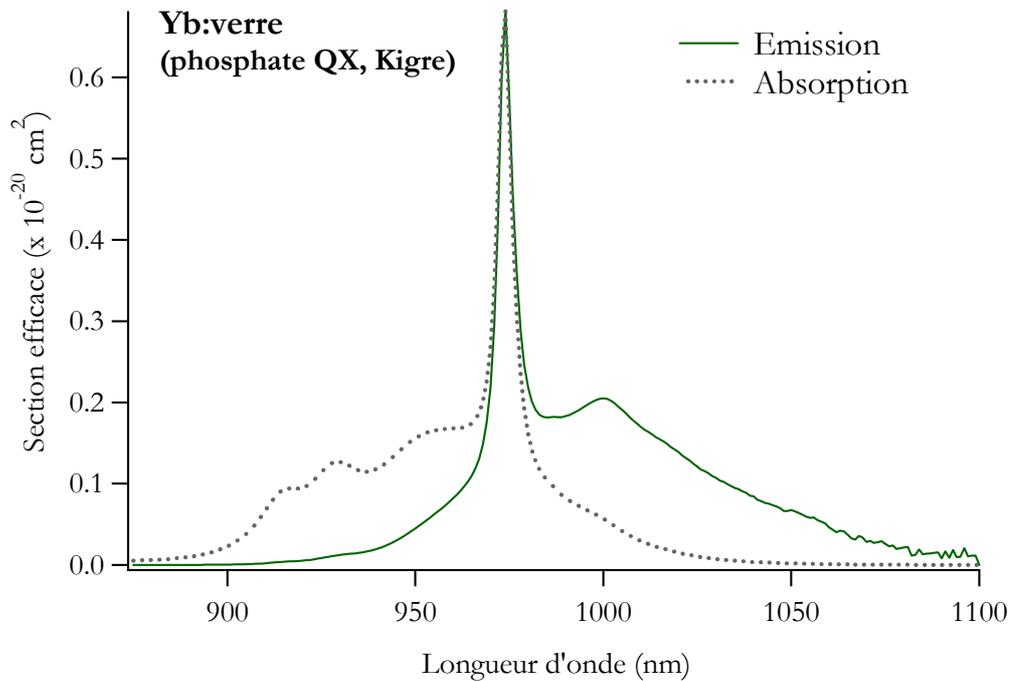


Figure III.3.2 : spectres d'absorption/émission du verre phosphate QX (Kigre Inc.) dopé à 15 % en ions ytterbium. D'après [Jiang 97].

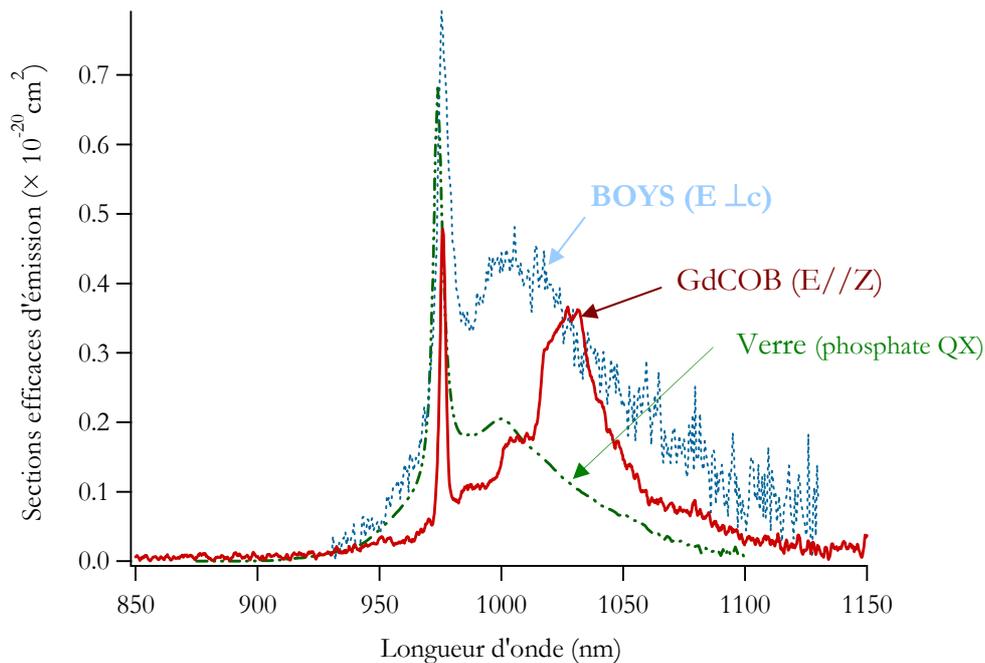


Figure III.3.3 : comparaison des spectres d'émission (polarisés s'il y a lieu) des cristaux de BOYS et de GdCOB, ainsi que du verre phosphate QX.

	Yb:BOYS	Yb:verre Phosphate QX (Kigre)	Yb:GdCOB
Longueur d'onde d'absorption λ_{ZL} (« <i>zero line</i> »)	975 nm	975 nm	976 nm
Largeur (à mi-hauteur) du spectre d'absorption $\Delta\lambda_{abs}$ à λ_{ZL}	6 nm	7 nm	3 nm
Temps de vie radiatif (ms)	1.2	1.3	2.7
Longueur d'onde d'oscillation laser λ_{laser} (dans les conditions du §III.3.2)	1066	1054	1043
Section efficace d'émission stimulée à la longueur d'onde λ_{laser} ($\times 10^{-20}$ cm ²)	0.2	0.05	0.35
Largeur du spectre d'émission * (nm)	60	35	44
Conductivité thermique (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	1.5 (non dopé) 1.3 (20 at.% Yb ³⁺)	0.85	2.1
<i>références</i>	[Haumesser 02]	[Hönninger 99]	[Mougel 99]

* : mesurée à mi-hauteur sur le spectre de gain, pour $\beta = 0.5$.

** : calculée en supposant des impulsions limitées par transformée de Fourier, avec un profil temporel en sécante hyperbolique.

Tableau III.3.1 : Propriétés spectroscopiques et thermiques de l'Yb:BOYS, ainsi que du verre phosphate QX et du GdCOB.

Une propriété intéressante du BOYS est la largeur spécialement élevée de la raie d'absorption autour de 975 nm — environ 6 nm à mi-hauteur — ce qui a pour conséquence de rendre moins exigeantes les spécifications concernant la largeur spectrale des diodes laser.

En effet, dans les matériaux dopés à l'ytterbium, la *zero line* est habituellement intense, certes, mais également étroite, typiquement moins de 3 nm de largeur (à mi-hauteur). Etant donné que le spectre d'une diode laser est large d'environ 3 nm — et même davantage pour les diodes émettant plus de 10 Watts — c'est un inconvénient certain pour l'efficacité du pompage par diode. Le large spectre d'absorption du BOYS signifie aussi que la puissance en sortie du laser est *a priori* moins sensible à des variations de la longueur d'onde de pompe, qui peuvent survenir suite à un changement de température ou simplement suite au vieillissement de la diode. Cela rend également plus simple l'utilisation de diodes de pompe modulées en courant (pompage quasi-continu), car cette modulation est toujours accompagnée d'un glissement dans le spectre et donc d'une baisse de l'efficacité d'absorption.

Nous avons vérifié cela en comparant la sensibilité du BOYS et du GdCOB à une dérive de la température (et donc de la longueur d'onde) de la diode : nous avons mesuré dans les deux cas le coefficient d'absorption *non saturé* (c'est-à-dire que le faisceau n'était pas focalisé dans le cristal) pour une puissance incidente d'environ 10 Watts. À ce niveau de pompage la largeur spectrale de la diode est de 3 nm, mesuré à mi-hauteur. Les résultats sont présentés à la figure III.3.4. Il apparaît que l'intervalle de température au-delà duquel le coefficient d'absorption est réduit d'un facteur 2 (par rapport au coefficient d'absorption maximum) est proche de 13°C dans l'Yb:BOYS, contre 7°C dans l'Yb:GdCOB. Étant donné que la longueur d'onde centrale d'émission de la diode varie linéairement avec sa température, avec une pente (mesurée expérimentalement) de 0.5 nm/°C, ces intervalles de températures correspondent, en termes de décalage en longueur d'onde, à 6.8 nm et 3.4 nm respectivement. Ces paramètres mesurés sont en adéquation avec les données spectroscopiques, puisque la largeur spectrale à mi-hauteur mesurée sur le spectre d'absorption ($\Delta\lambda_{\text{abs}}$) vaut 6 nm pour le BOYS et 3 nm pour le GdCOB.

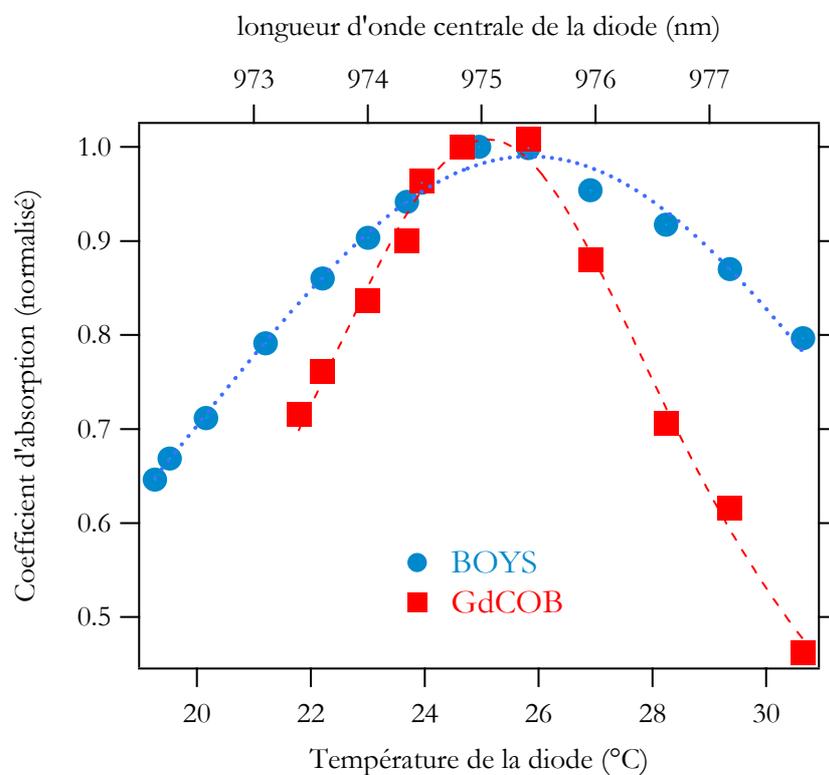


Figure III.3.4 : coefficient d'absorption (normalisé) des cristaux d'Yb:BOYS et d'Yb:GdCOB en fonction de la température de la diode. La largeur à mi-hauteur mesurée sur ces courbes est de 13.6°C (=6.8 nm) pour le BOYS et de 6.8°C (= 3.4 nm) pour le GdCOB.

III.3.2. Performances en régime quasi-continu : comparaison avec l'Yb:GdCOB et l'Yb:verre dans les mêmes conditions.

Nous allons dans cette section examiner les performances du BOYS en régime quasi-continu (c'est-à-dire avec un hacheur mécanique sur le chemin du faisceau de pompe, dont le rapport cyclique est fixé à 1/17).

La diode de pompage est encore différente des deux systèmes présentés jusqu'à présent. Il s'agit de la diode OptoPower (10 W sur un diamètre de cœur de 250 μm) utilisée *sans la fibre*, cette dernière ayant été détruite. Le profil spatial du faisceau n'est donc plus tout à fait circulaire, et ressemble davantage à une gaussienne elliptique (voir figure III.3.5). Au niveau du cristal (donc après traversée du système optique de grandissement -1 : cf. § II.1.1), le faisceau de pompe mesure 180 μm \times 235 μm (diamètre à $1/e^2$) : le facteur M^2 de la diode (mesuré uniquement au voisinage du waist, car le profil s'éloigne ensuite trop d'un profil gaussienne) vaut environ 40, contre environ 80 pour la diode fibrée initiale. La diode privée de sa fibre est donc, comme on pouvait s'y attendre, plus brillante que la diode fibrée de départ, même si le recouvrement avec le mode fondamental sera ici moins bon.

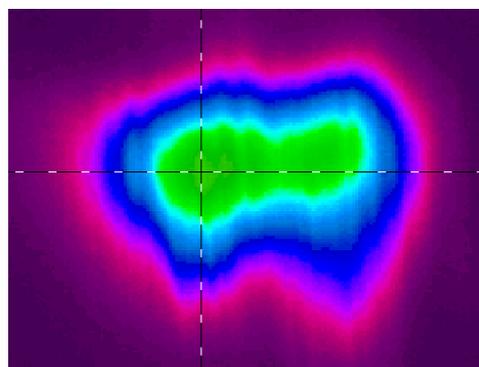


Figure III.3.5 : Profil du faisceau de pompe (diode Optopower sans sa fibre) au niveau du cristal.

Nous avons comparé le BOYS, le GdCOB, et le verre phosphate QX dans les « mêmes conditions », le sens de cette démarche ayant été explicitée au § II.2.6. Les propriétés (dopage, longueur, orientation...) des échantillons utilisés pour ces expériences sont indiquées dans le tableau III.3.2. Tous ces matériaux étaient traités anti-reflet sur leurs deux faces.

	Yb:BOYS	Yb:glass (Phosphate QX)	Yb:GdCOB
Dopage (en pourcentage atomique, at. %)	20	15	15
Concentration correspondante ($\times 10^{20}$ ions/cm ³)	9.6	≈ 20	6.6
Indice de réfraction à 1 μm	1.74	1.535 [Hönninger 99]	1.70
longueur (mm)	2.38	2.52	2.89
Orientation	k//c (propagation colinéaire à l'axe optique)	isotrope	k//Y ^b

Tableau III.3.2 : Propriétés des matériaux utilisés dans la comparaison BOYS/GdCOB/Verre.

III.3.2.1 Courbes d'efficacité comparées

Les courbes d'efficacité en régime quasi-continu sont représentées à figure III.3.6. Les performances sont par ailleurs résumées dans le tableau III.3.3.

matériau	Yb:BOYS	Yb:GdCOB	Yb:verre phosphate QX
Puissance crête maximale	3.4 W	3.4 W	2.7 W
Pente d'efficacité (par rapport à la puissance absorbée)	56.1 %	58.3 %	50.4 %
Puissance de pompe (crête) absorbée au seuil	550 mW	700 mW	1.8 W
Transmission optimale du miroir de sortie	2 %	4 %	4 %
Longueur d'onde laser	1066 nm	1043 nm	1054 nm
Largeur à mi-hauteur de la plage d'accordabilité	50 nm	30 nm	34 nm

Tableau III.3.3 : Comparaison des performances de l'Yb:BOYS, Yb:GdCOB et Yb:verre (phosphate QX) en régime quasi-continu (rapport cyclique : 1/17).

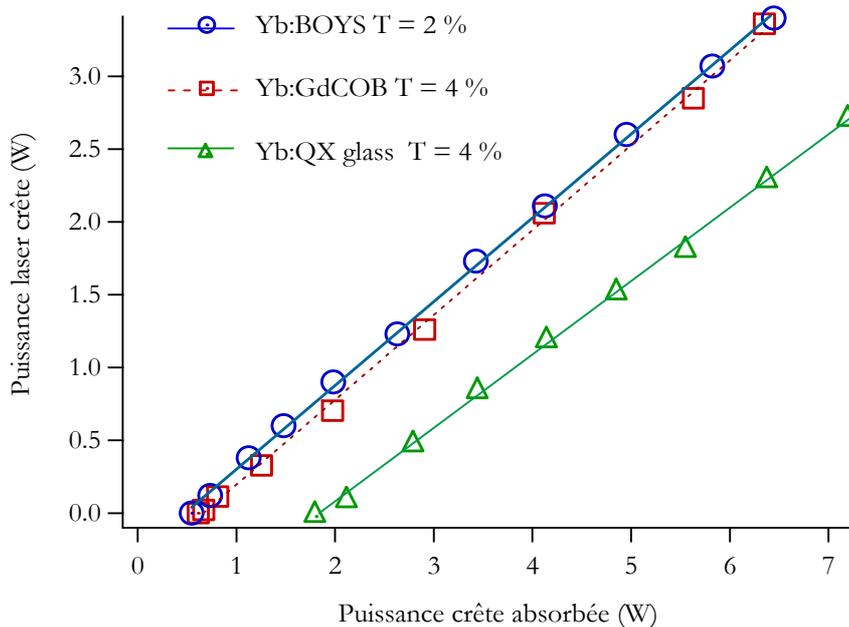


Figure III.3.6 : Courbes d'efficacité de l'Yb:BOYS, de l'Yb:GdCOB et de l'Yb:verre en régime quasi-continu (rapport cyclique : 1/17). T désigne la transmission du miroir de sortie qui optimise les performances.

Puisque le cristal de BOYS, qui est uniaxe, était taillé pour une propagation colinéaire à l'axe optique ($k//c$), et puisque le verre est un matériau isotrope, le faisceau en sortie de ces lasers n'était, comme on peut s'y attendre, pas polarisé.

Avec le cristal d'Yb:BOYS nous avons obtenu 3.4 W de puissance crête pour 6.4 W de puissance (crête) absorbée, avec un seuil de 550 mW (absorbés) et une pente d'efficacité de 56 %. Avec un miroir de sortie de transmission 2 % (correspondant à l'optimum), la longueur d'onde laser était de 1066 nm. Les performances du GdCOB dans les mêmes conditions sont en tous points identiques. En revanche, celles du verre sont clairement moins bonnes, avec un seuil plus haut (1.8 W) et une efficacité légèrement inférieure (50 %). À ce stade de la comparaison, sans tenir compte des problèmes thermiques, il est donc clair que le BOYS est aussi efficace que le GdCOB, et meilleur que le verre.

III.3.2.2. Courbes d'accordabilité

L'accordabilité du laser en longueur d'onde a été étudiée en insérant un prisme en SF6 dans la cavité (cf. § II.2.4). Les courbes obtenues (en régime quasi-continu) avec le BOYS et le verre sont reproduites à la figure III.3.7., sur laquelle nous avons également superposé la courbe d'accordabilité du GdCOB commentée précédemment.

Pour les trois matériaux, l'accordabilité est limitée aux basses longueurs d'onde (à 1018 nm) par les traitements dichroïques sur les miroirs, ainsi bien sûr que par le phénomène de réabsorption (cf. § I.2.1). En revanche, elle est limitée aux grandes longueurs d'onde par le gain disponible dans le milieu amplificateur. La largeur totale de l'intervalle d'accordabilité n'est donc pas le paramètre le plus pertinent que l'on puisse donner pour caractériser un matériau accordable (on l'a vu avec l'Yb:GGG, qui présentait une large plage d'accordabilité avec pourtant un spectre d'émission

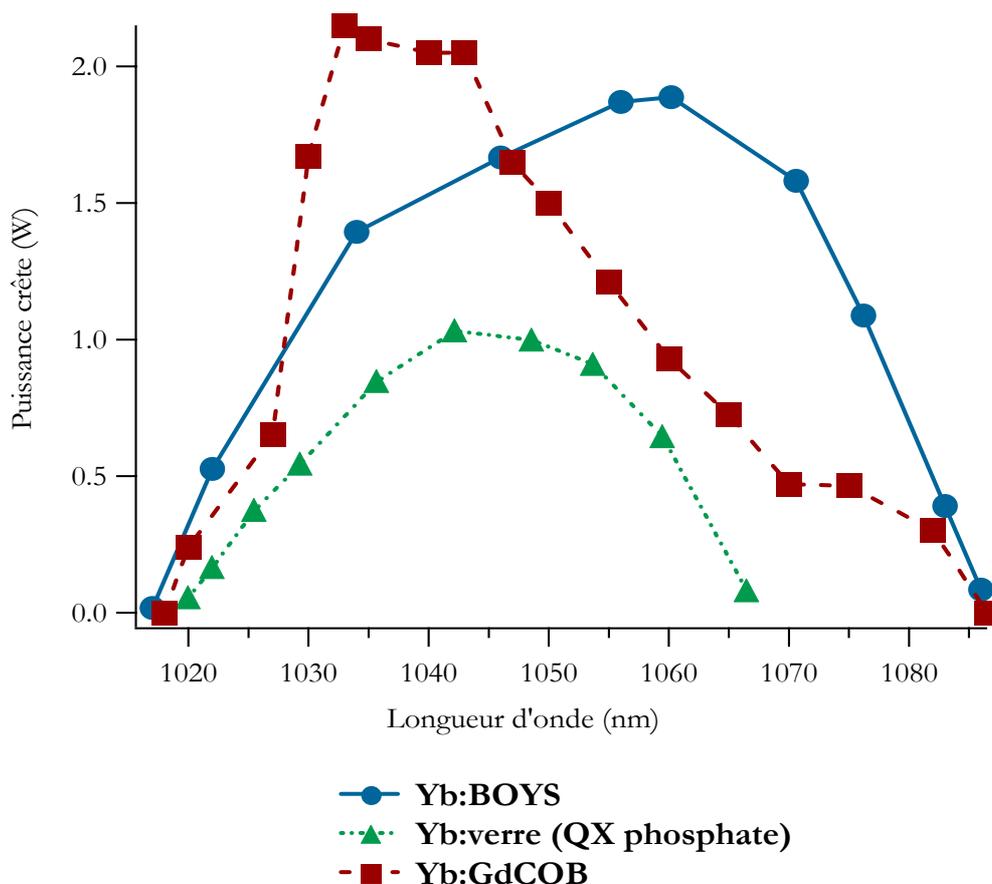


Figure III.3.7 : courbe d'accordabilité du BOYS. Pour la comparaison, les courbes d'accordabilité du verre et du GdCOB sont représentées.

relativement étroit). Il faut donc plutôt ici chercher à comparer la forme des différentes courbes. On notera que l'Yb:BOYS est continûment accordable (de 1017 à 1086 nm) et présente une courbe d'accordabilité « en cloche » particulièrement lisse et régulière. Le même type de profil est obtenu avec le verre phosphate QX, ce qui corrobore les ressemblances déjà notées entre les spectres d'émission de ces deux matériaux. Le profil obtenu avec le verre est de plus tout à fait similaire à ceux rapportés par Danger *et al.* [Danger 96] avec différents verres. En revanche, même si l'accordabilité du GdCOB est possible sur la même gamme que le BOYS (entre 1018 et 1086 nm), on remarquera que le profil n'est pas aussi régulier. On peut donc s'attendre à obtenir avec l'Yb:BOYS des impulsions plus courtes qu'avec l'Yb:GdCOB, lorsqu'il est utilisé dans un oscillateur femtoseconde. Nous reviendrons là-dessus au § III.3.4.

III.3.3. Limitations d'origine thermique

Pour étudier l'influence qu'ont les effets thermiques sur les performances nous avons effectué les mêmes expériences comparatives en réduisant le rapport cyclique, d'abord de 1/17 à 1/5, puis de 1/5 à 1 (régime continu).

Les résultats sont représentés à la figure III.3.8. (voir page suivante)

Pour l'Yb:BOYS, on constate que la pente d'efficacité décroît légèrement (de 13 %) lorsque l'on passe d'un rapport cyclique de 1/17 à 1/5. En régime continu, une inflexion apparaît à partir de 2.2 W de puissance absorbée (soit 5 W de puissance incidente). La puissance laser se met alors à décroître et la fracture du cristal survient au-delà de ce point⁵.

Dans les mêmes conditions, en revanche, aucune limitation d'origine thermique n'est décelable dans l'Yb:GdCOB. Les pentes d'efficacité restent les mêmes, quel que soit le rapport cyclique.

La situation est en revanche bien différente pour le verre : la pente d'efficacité diminue (de 18 %) lorsque l'on passe d'un rapport cyclique de 1/17 à 1/5. Mais en régime continu, aucune oscillation laser n'a jamais pu être observée. Et au-delà de 4.8 W de puissance absorbée, le verre *fond* localement à l'endroit où était focalisée la pompe, comme le montre la photo insérée dans la figure III.3.8.

À la lumière des calculs qui seront exposés dans la seconde partie (voir § I.2), il est en effet tout à fait probable que la température au centre de la zone pompée ait excédé 450 °C (à cause en particulier de la faible conductivité thermique de ce matériau : $0.85 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$), ce qui correspond à la température de transition vitreuse T_g du verre phosphate QX [Jiang 97].

En conclusion, il apparaît qu'en ce qui concerne la tenue au flux, le BOYS est moins performant que le GdCOB, mais est meilleur que le verre.

⁵ Les valeurs de puissance lisibles sur la courbe au-delà de 2.2 W absorbés sont rapportées à titre indicatif seulement. Il est très probable, au vu de l'expérience acquise sur ce cristal (et sur d'autres), que la fracture aurait pu intervenir *avant* (pour une puissance absorbée tout juste supérieure à 2.2 W) si davantage de temps s'était écoulé entre deux acquisitions par exemple. Cela signifie que ces données ont été acquises dans un régime qui n'était plus un régime permanent pour le cristal. Les phénomènes intervenant dans la fracture sont complexes et ne sont pas tous bien connus : on y reviendra longuement dans la seconde partie, au § I.3.

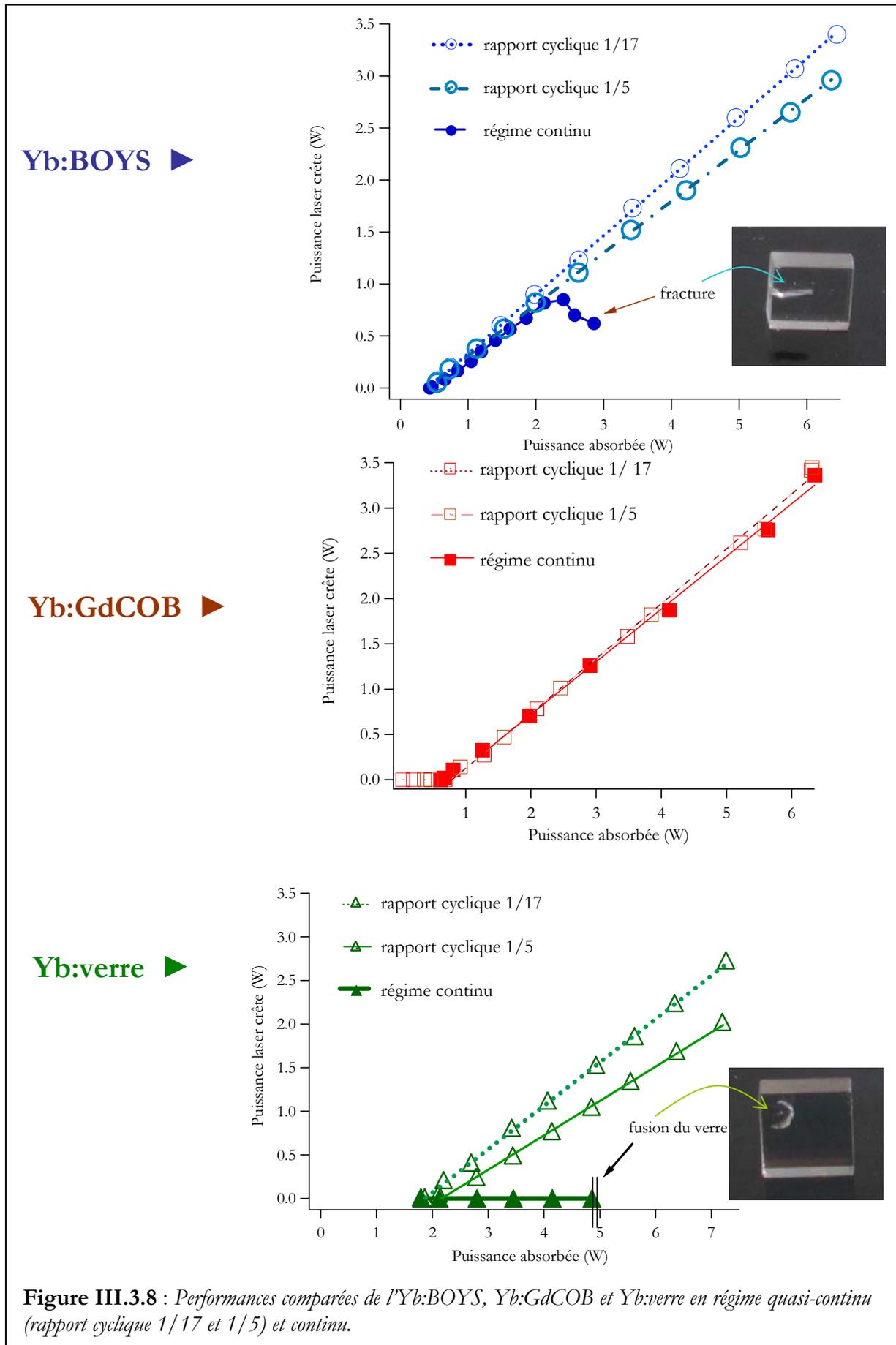


Figure III.3.8 : Performances comparées de l'Yb:BOYS, Yb:GdCOB et Yb:verre en régime quasi-continu (rapport cyclique 1/17 et 1/5) et continu.

III.3.4. Résultats obtenus avec l'Yb:BOYS dans un oscillateur femtoseconde

À ce stade, il est clair que le BOYS est un cristal performant à des puissances de pompe modérées, qu'il est aussi efficace que le GdCOB tout en présentant une plus large plage d'accordabilité. Les problèmes thermiques sont par contre un obstacle pour ce cristal, qui semble donc destiné (dans le cadre d'architectures de pompage « classiques ») à trouver sa place au sein d'un oscillateur produisant des impulsions ultracourtes et de faible puissance moyenne, plutôt qu'au sein d'un amplificateur de forte énergie⁶.

Nous évoquons dans ce paragraphe les résultats obtenus par Frédéric Druon avec le cristal d'Yb:BOYS, utilisé comme milieu à gain dans un oscillateur femtoseconde [Druon 02-1]. Le schéma de l'oscillateur est reproduit à la figure III.3.9.

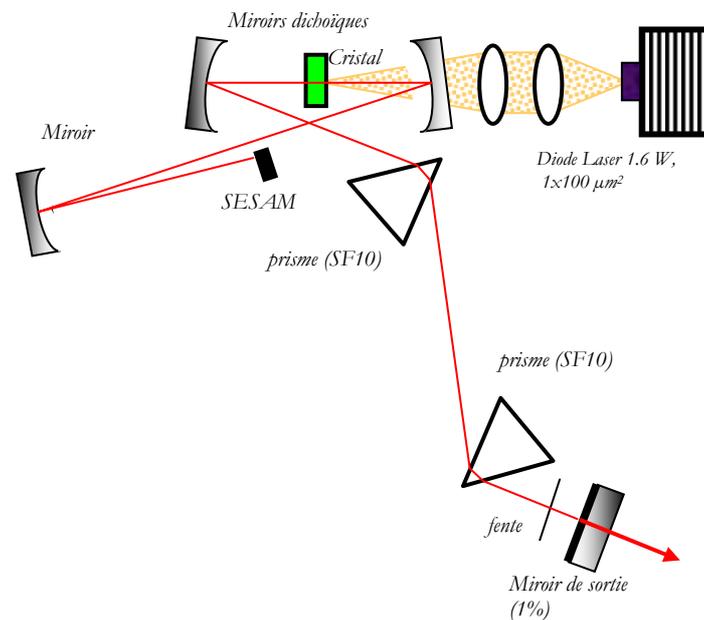


Figure III.3.9 : schéma de l'oscillateur femtoseconde

On notera la présence de deux prismes en SF10 (pour compenser la dispersion de vitesse de groupe) ainsi que celle d'un SESAM (**SE**miconductor **S**aturable **A**bsorber **M**irror), qui permet le blocage passif des modes en phase. L'utilisation d'un SESAM permet d'obtenir un train d'impulsions très stable, ce qui n'est pas possible en utilisant la technique de blocage de modes par lentille de Kerr, qui est la technique utilisée dans la plupart des lasers titane-saphir opérant en régime femtoseconde.

C'est ainsi que furent obtenues des impulsions de **69 fs** de durée, centrées à 1062 nm, avec une puissance moyenne de 80 mW et un taux de répétition de 113 MHz. C'est à notre connaissance, et à l'heure actuelle, les plus courtes impulsions jamais obtenues avec un *cristal* dopé à l'ytterbium pompé par diode⁷.

⁶ Notons qu'un amplificateur régénératif a toutefois été fabriqué à base d'Yb:verre (phosphate QX) : il produit des impulsions de 240 fs, 1 mJ, à un taux de répétition de 150 Hz [Liu 99], mais a nécessité l'emploi d'une architecture de pompage très complexe à mettre en œuvre.

⁷ Des performances équivalentes (71 fs) ont été obtenues avec un cristal d'Yb:KYW [Liu 01], en se basant sur la technique de blocage de modes par lentille de Kerr (*Kerr Lens Mode-locking, KLM*). Mais dans ces conditions, le laser n'est stable que pendant quelques minutes. À titre indicatif, le même matériau, dans une cavité avec SESAM, produit un train d'impulsions stables mais de 112 fs de durée [Brunner 00].

III.3.5. Remplacer le BOYS par le CaBOYS : une solution pour les problèmes thermiques ?

Face aux problèmes thermiques rencontrés avec le BOYS, qui se manifestent aussi bien lors de la croissance [Gaumé 02] que lors du fonctionnement laser (comme on vient de le voir), le LCAES de Chimie Paris a mis en oeuvre une approche originale, en prenant le problème de la gestion de la thermique *à la source*, c'est-à-dire en intervenant directement sur la formule chimique du cristal pour en améliorer ses propriétés thermomécaniques.

Ici, cela consiste à remplacer certains ions Strontium Sr^{2+} par des ions Calcium Ca^{2+} , dans le but de rigidifier la structure et de diminuer l'anisotropie de dilatation. Ce travail a fait l'objet d'une partie de la thèse de Romain Gaumé [Gaumé 02]. Nous renvoyons donc le lecteur intéressé à cette thèse pour plus de détails.

Nous allons simplement ici présenter les performances laser en pompage par diode de ce nouveau cristal. Des études avec plusieurs taux de substitution en ions Ca^{2+} ont montré que le composé le plus intéressant était le $(\text{Sr}_{0.7}\text{Ca}_{0.3})\text{Y}(\text{BO}_3)_3$, et c'est lui que nous désignerons dans la suite par l'acronyme de CaBOYS. Il est dopé à 15 at.% en ions ytterbium.

Ses propriétés spectroscopiques sont comparables à celles du BOYS, sa dureté est plus grande, l'anisotropie de ses coefficients de dilatation plus faible, mais sa conductivité thermique est en revanche plus faible : elle vaut $1.1 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ dans un échantillon de CaBOYS dopé à 15 % en ytterbium, contre $1.3 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ dans le BOYS pareillement dopé [Gaumé 02].

Le point important à noter est que la qualité cristalline du CaBOYS est finalement améliorée par rapport à celle du BOYS, ce qui diminue nettement les risques de fracture pendant la croissance. Mais les performances laser du CaBOYS sont-elles identiques, voire meilleures, que celles du BOYS ?

III.3.5.1. Performances du CaBOYS en pompage par diode continu

Plusieurs cristaux ont été découpés, polis, puis traités anti-reflet à partir du canon monocristallin de CaBOYS, obtenu par tirage Czochralski au LCAES. Ces expériences visent aussi à identifier la meilleure orientation ($k//c$ ou $k \perp c$?) et la meilleure longueur, pour une diode de pompe fixée.

Ici, nous utilisons la diode LIMO émettant une puissance de 12.5 W à 975 nm à la sortie d'une fibre de 200 μm de diamètre de cœur. Nous avons eu à notre disposition des cristaux d'épaisseurs 2.12, 2.51 et 2.96 mm, orientés $k//c$ et $k \perp c$. Tout comme pour le BOYS, l'analyse spectroscopique montre très peu de différences entre ces deux orientations.

Les performances comparées de ces différents cristaux sont données à la figure III.3.10. On constate que le cristal de 2.51 mm présente une pente d'efficacité plus grande que les cristaux de dimensions 2.12 et 2.96 mm, ce qui permet de dire que 2.5 mm est proche de la longueur optimale du cristal pour cette diode de pompe. L'influence de l'orientation a été étudiée sur le cristal de 2.51 mm et montre que le seuil est légèrement plus bas (1 W contre 1.5 W) avec le cristal orienté $k \perp c$, mais que ce dernier absorbe un peu moins que le cristal $k//c$, à longueurs identiques, ce qui peut s'expliquer par une petite différence dans les sections efficaces d'absorption à 975 nm [Gaumé 02].

Mais nous remarquons aussi qu'au-delà de 6.2 W absorbés, les cristaux de 2.51 mm ($k//c$) et de 2.96 mm ($k//c$) se fracturent. Il subsiste donc des problèmes thermiques.

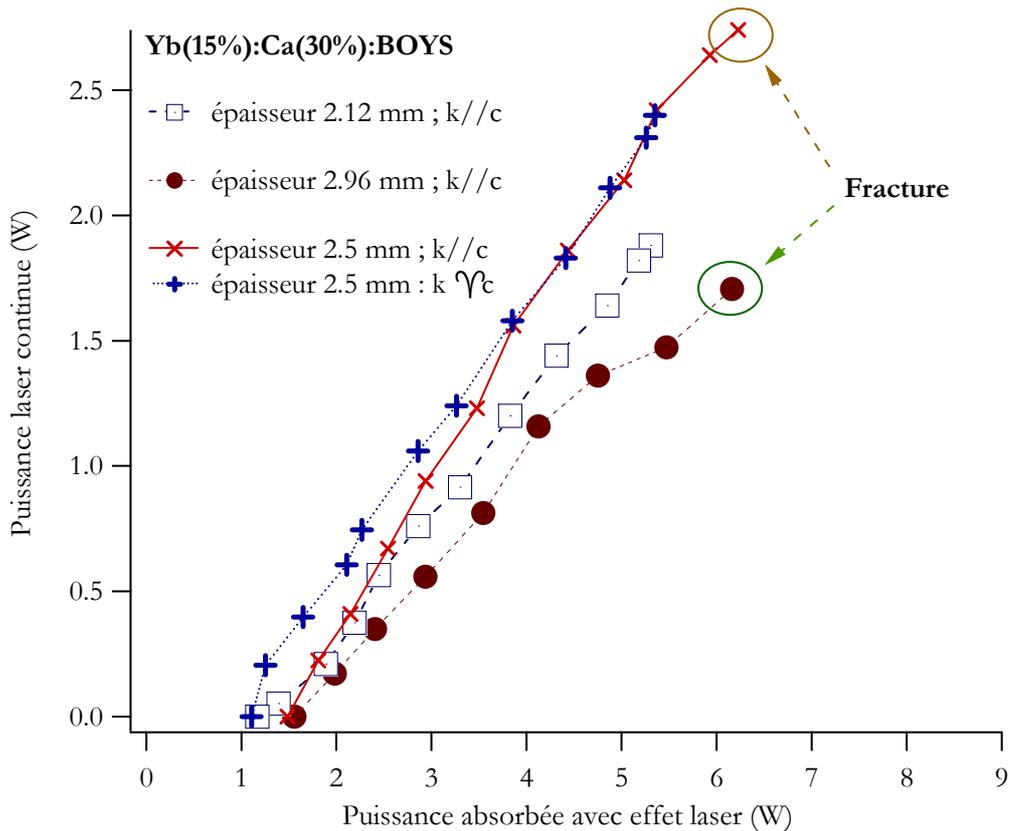


Figure III.3.10 : Performances en régime continu du CaBOYS : influence de la longueur du cristal et de l'orientation.

Nous voyons toutefois que le CaBOYS est ici capable de fournir plus de 2 Watts de puissance continue sans se fracturer, une performance que nous n'avions pas pu obtenir avec le BOYS et la précédente diode (Optopower sans fibre). Reste à voir si le cristal de BOYS précédemment étudié, pompé dans les mêmes conditions avec la même diode LIMO, a des performances différentes.

III.3.5.2. Comparaison des performances avec le BOYS, en régime quasi-continu et continu

Nous avons comparé, dans les mêmes conditions, un cristal de CaBOYS dopé à 15 at.% en ions ytterbium, d'épaisseur $e = 2.51$ mm, orienté k//c, avec un cristal de BOYS dopé à 20 at.% en ions ytterbium, d'épaisseur $e = 2.38$ mm, et orienté k//c également. Notons que le cristal de BOYS utilisé pour cette comparaison était « neuf », c'est-à-dire exempt de toute fracture consécutive aux tests laser précédents (une fracture aurait fragilisé le cristal et aurait de ce fait faussé la comparaison). Les cristaux ayant également les mêmes sections transverses (4×5 mm²), le point d'impact du faisceau de pompe par rapport à la monture de cuivre était le même dans les deux cas.

Le coupleur de sortie optimal avait une transmission de 4 % dans les deux cas. Par un hasard bienvenu, les deux cristaux absorbent exactement la même puissance. On est donc dans un cas « idéal » où la comparaison des performances a tout son sens.

Les résultats sont reportés à la figure III.3.11, aussi bien en régime quasi-continu (rapport cyclique 1/5) qu'en régime continu. On remarquera les bonnes performances en régime quasi-continu avec la diode LIMO, puisque 4.1 Watts de puissance crête ont été obtenus pour 7.3 W de puissance absorbée. Mais le plus remarquable est qu'on ne peut déceler aucune différence de

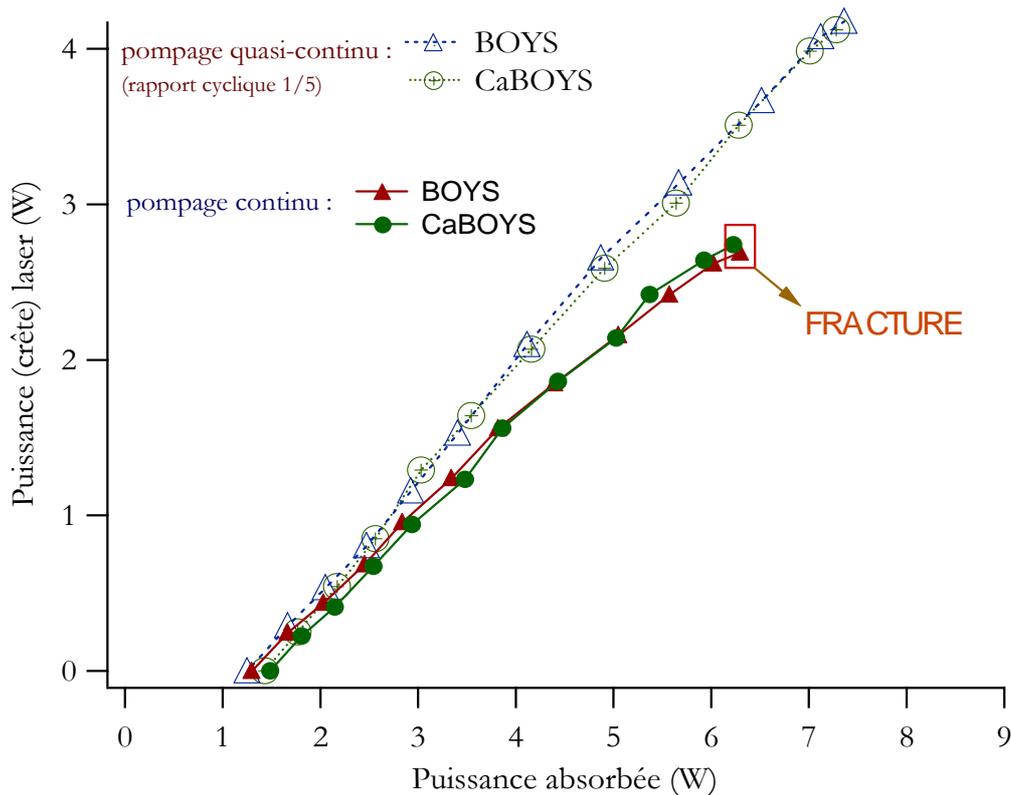


Figure III.3.11 : Comparaison des performances de l'Yb:CaBOYS (dopé 15 at.% Yb, $e = 2.51$ mm, k_l/c) et de l'Yb:BOYS (dopé 20 at.% Yb, $e = 2.38$ mm, k_l/c) en pompage par diode LIMO (12.5 W incidents à 975 nm).

comportement entre les deux cristaux, qui partagent le même seuil et la même pente d'efficacité (que ce soit en régime continu ou quasi-continu), et qui se fracturent de la même façon pour la même puissance absorbée (6.2 W).

III.3.5.3. Comparaison des lentilles thermiques dans le BOYS et le CaBOYS, en régime continu (sans effet laser)

Nous avons mesuré, dans les deux cristaux précédemment évoqués, la distance focale de la lentille thermique. La description du dispositif expérimental fera l'objet du chapitre III de la seconde partie. Nous donnons ici simplement les résultats obtenus **sans effet laser**, car dans ces conditions le cristal ne casse pas *même à la puissance de pompe maximale*, alors qu'il casse à une puissance de pompe inférieure dès que l'oscillation laser est permise. Nous attribuons ce phénomène à la saturation de l'absorption, qui réduit la puissance effectivement absorbée en l'absence d'oscillation laser (nous y reviendrons dans le § I.3.3.2 de la seconde partie).

La puissance dioptrique de la lentille thermique (l'inverse de sa distance focale, en m^{-1}) est représentée à la figure III.3.12. en fonction de la puissance absorbée.

On note que la lentille thermique est légèrement plus faible (sa focale est plus longue) dans l'Yb:CaBOYS : pour 3.6 W de pompe absorbée, la focale thermique est de 6.3 cm dans le BOYS et de 7.3 cm dans le CaBOYS. La conductivité thermique étant 25% plus basse dans le CaBOYS que dans le BOYS, on pouvait s'attendre à la tendance inverse. Il est probable ici que la diminution de la lentille thermique soit attribuable aux meilleures propriétés mécaniques du CaBOYS (voir § I.3 et § I.4, seconde partie). Ce résultat confirme qualitativement les mesures de dureté et l'amélioration de la qualité cristalline constatée à la sortie du four [Gaumé 02].

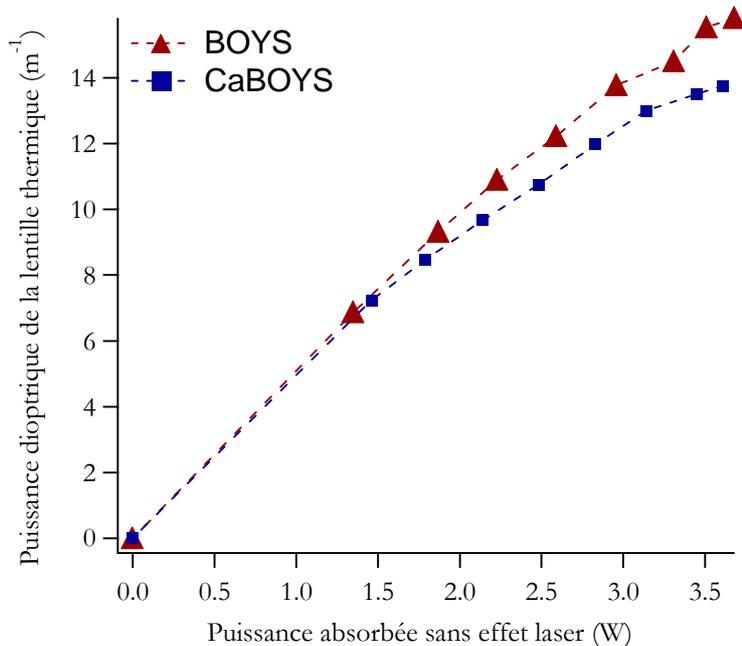


Figure III.3.12 : Puissance dioptrique de la lentille thermique mesurée sans effet laser dans l'Yb:BOYS et l'Yb:CaBOYS.

III.3.6. Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre les performances d'un nouveau cristal, le borate d'yttrium et de strontium (BOYS) dopé à l'ytterbium. Il présente un spectre extraordinairement large (60 nm à mi-hauteur), plus large que la plupart des verres tout en présentant les avantages habituels qu'ont les cristaux par rapport aux verres (meilleure conductivité thermique, plus grandes sections efficaces). L'Yb:BOYS est donc un candidat de choix pour fabriquer des sources laser accordables dans le proche IR, et particulièrement des sources capables de générer des impulsions de quelques dizaines de femtosecondes (des impulsions de 69 fs ont pu être obtenues). De plus, son spectre d'absorption très large autour de 975 nm (6 nm à mi-hauteur) rend le pompage par diode plus efficace et moins sensible à des dérives de température.

Nous avons comparé les performances du BOYS avec celles du GdCOB et du verre phosphate QX, en pompage quasi-continu par diode. Il s'avère que le BOYS a une efficacité comparable à celle du GdCOB, et meilleure que celle du verre. Une accordabilité très large et surtout très régulière a été obtenue avec le BOYS, prenant la forme d'une cloche de 50 nm de largeur à mi-hauteur. On obtient ainsi avec le BOYS le même type de courbe d'accordabilité qu'avec le verre, ce qui s'explique par la similitude des spectres. En revanche, le GdCOB, au spectre plus étroit, n'est pas accordable sur une plage aussi grande (30 nm à mi-hauteur).

En régime de pompage continu, le cristal s'est fracturé au-delà de 5 W de pompe incidente, ce qui prouve que les effets thermiques jouent ici un rôle essentiel. En revanche, en passant du régime quasi-continu au régime continu, aucune diminution des performances n'a été notée avec le GdCOB. Mais le comportement du verre est en revanche pire que celui du BOYS, l'oscillation laser n'ayant même pas pu être obtenue en pompage continu.

Enfin, nous avons comparé le BOYS avec le CaBOYS, un composé dérivé du BOYS dans lequel 30 % des ions strontium ont été remplacés par du calcium. Ce faisant, la croissance cristalline a été améliorée, les propriétés mécaniques du cristal renforcées. Les tests comparatifs en pompage par diode ne mettent en revanche en évidence aucune différence entre l'efficacité du BOYS et celle du CaBOYS. Le résultat de la comparaison est donc en faveur du CaBOYS.

Le (Ca)BOYS réunit donc beaucoup de qualités, il ne lui manque qu'un bon comportement thermique pour s'imposer complètement, en particulier face au GdCOB. Mais des pistes restent à explorer, comme la mise en place d'architectures de pompage plus adaptées à la gestion de la thermique (du type « disque mince » par exemple), ou bien la réalisation de cristaux composites. Des tentatives de réaliser de tels matériaux composites (BOYS soudé sur du BOYS non dopé, et BOYS soudé sur du YAG) ont été menées par R. Gaumé mais n'ont hélas rien donné [Gaumé 02].

Nous allons maintenant examiner les performances d'un cristal au spectre pareillement large : le SYS.

III.4. Performances laser de l'Yb:SYS, une apatite au spectre large.

Parmi tous les matériaux dopés à l'ytterbium étudiés depuis maintenant plus de 10 ans, les cristaux appartenant à la famille des apatites ont suscité beaucoup d'intérêt [DeLoach 93]. Les fluoroapatites en particulier — $\text{Sr}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}$ (*S-FAP*), $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}$ (*C-FAP*), $\text{Sr}_5(\text{VO}_4)_3\text{F}$ (*S-VAP*) — possèdent des sections efficaces remarquablement élevées : jusqu'à $13.5 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^2$ dans le *S-VAP* [Payne 94-1], soit 7 fois plus que le YAG !⁸

Si les propriétés laser des fluoroapatites sont bonnes, ce sont des matériaux particulièrement difficiles à faire croître par la méthode de Czochralski. Les spectres d'émission sont parmi les plus étroits que l'on puisse rencontrer avec des matériaux dopés à l'ytterbium (à peine quelques nanomètres de large). Et la conductivité thermique de ces matériaux est plutôt médiocre ($2 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ pour le *S-FAP*).

Le cristal de $\text{SrY}_4(\text{SiO}_4)_3\text{O}$ (SYS) est une oxyapatite. Il a déjà été étudié avec un codopage erbium-ytterbium [Souriau 94] mais jamais, jusqu'à maintenant, avec un dopage à l'ytterbium. Ici, l'ytterbium peut occuper plusieurs sites, l'un d'eux (celui du strontium, comme dans le BOYS) étant accompagné d'une compensation de charge favorable à l'élargissement des spectres (voir § I.1.1). Les oxyapatites présentent de plus la propriété (généralement constatée) d'être plus faciles à faire croître que les fluoroapatites [Haumesser 00].

Les cristaux étudiés ici sont été élaborés par la méthode de Czochralski au LCAES.



Photo III.4.1 : Quelques cristaux de SYS (dopé 5.5at. % Yb). Photo LCAES.

⁸ C'est pour cette raison qu'une apatite, le S-FAP, a été choisi pour le laser *Mercury*, dans le cadre du projet américain de fusion inertielle par laser (voir introduction générale).

Nous allons, dans ce chapitre, étudier les performances en pompage par diode de ce matériau. Nous retrouverons beaucoup de points communs avec le BOYS, mais nous verrons ici comment l'utilisation d'un matériau composite (un cristal d'Yb:SYS soudé par diffusion sur un cristal de YAG non dopé) a permis de surmonter les problèmes thermiques, et d'obtenir plusieurs Watts de rayonnement continûment accordable. Des résultats en régime femtoseconde seront également mentionnés.

III.4.1. Propriétés optiques et spectroscopiques de l'Yb:SYS

La température de fusion du SYS est élevée (~ 1900 °C), ce qui rend ce cristal plus difficile à faire croître que le BOYS ou le CaBOYS. Mais la qualité cristalline des pièces obtenues est excellente (voir photo III.4.1).

La figure III.4.1 et le tableau III.4.1 montrent les spectres d'absorption/émission et les principales propriétés de l'Yb:SYS. On constate que le spectre est aussi large que celui du BOYS, tout en étant décalé vers des longueurs d'onde plus grandes (à cause du fort éclatement du multiplet fondamental), ce qui est *a priori* favorable pour réduire la réabsorption. En revanche, la section efficace d'émission stimulée est considérablement réduite par rapport aux fluoroapatites (elle vaut $0.5 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^2$ à 1040 nm contre $7.3 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^2$ à 1047 nm dans le *S-FAP*). Le SYS est un cristal uniaxe.

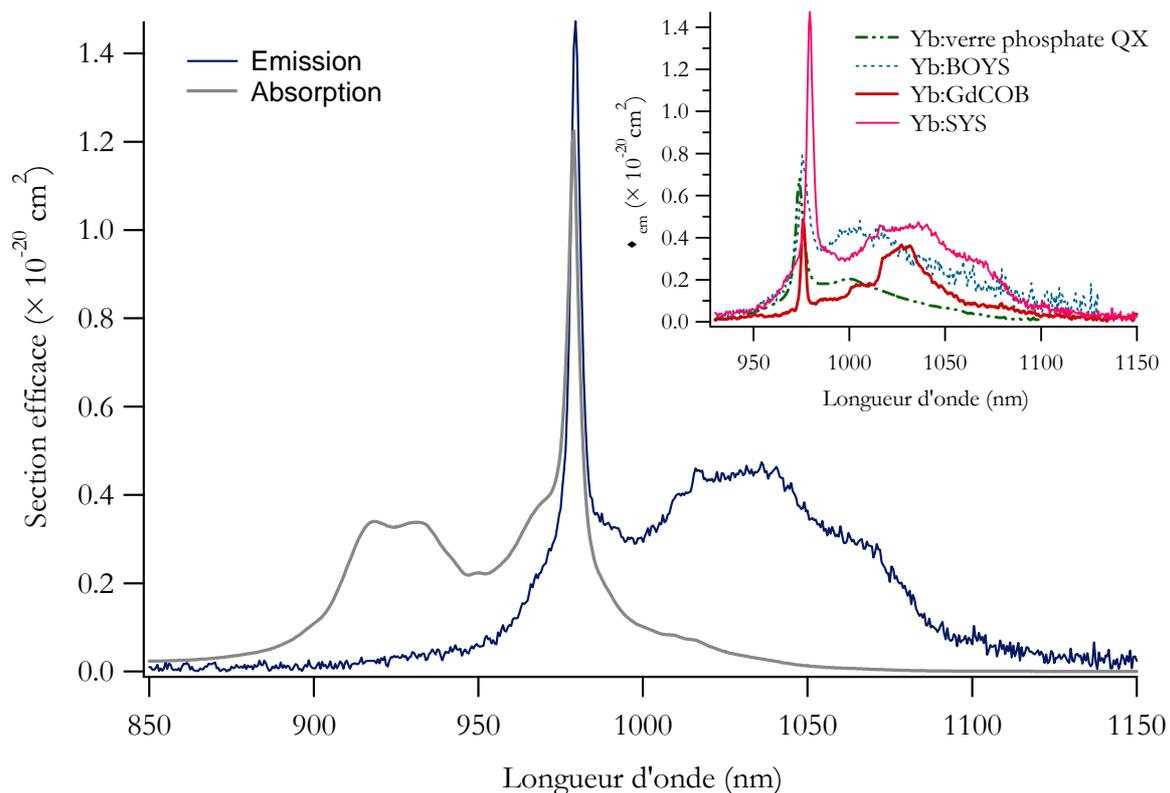


Figure III.4.1 : Spectres d'absorption/émission de l'Yb:SYS. En haut à droite : comparaison des spectres d'émission du SYS avec ceux des trois autres matériaux à très large bande étudiés jusqu'ici : le GdCOB, le BOYS et le verre.

	Yb:SYS
Longueur d'onde d'absorption λ_{ZL} (« zero line »)	979 nm
Section efficace d'absorption à λ_{ZL} (cm ²)	1.2 10 ⁻²⁰ (E//c) 0.87 10 ⁻²⁰ (E⊥c)
Largeur (à mi-hauteur) du spectre d'absorption $\Delta\lambda_{abs}$ à λ_{ZL}	4.3 nm (E//c) 5.4 nm (E⊥c)
Longueur d'onde λ_{pic} au pic de la courbe d'émission	1040 nm
Temps de vie radiatif (ms)	0.82
Section efficace d'émission à λ_{pic} (cm ²)	0.5 10 ⁻²⁰
Conductivité thermique (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	
- du cristal <i>non dopé</i>	2.85 (//c) ; 1.6 (⊥ c)
- du cristal dopé 5.5 at.% en ions Yb ³⁺	2.85 (//c) ; 1.3 (⊥ c)
Indice de réfraction à 1 μ m	1.77

Tableau III.4.1 : Propriétés de l'Yb:SYS. D'après [Haumesser 02].

III.4.2. Performances de l'Yb:SYS en pompage quasi-continu et continu.

Nous avons étudié les performances d'un cristal d'Yb:SYS dopé à 5.5 at. % en ions ytterbium (8.4×10^{-20} cm²), orienté k⊥c (c'est-à-dire que l'axe optique est contenu dans le plan des faces), de 2.8 mm de longueur, et traité anti-reflet sur ses deux faces.

La diode de pompe utilisée était ici la diode LIMO, émettant 13.2 Watts à 979 nm. Les conditions de pompage sont les mêmes que celles du test comparatif BOYS/CaBOYS exposé précédemment.

En régime quasi-continu (rapport cyclique 1/5), on obtient plus de 6 Watts de puissance crête (voir figure III.4.2) pour 11 W de puissance crête absorbée. Le miroir de sortie optimal a une transmission de 6%. La longueur d'onde laser est de 1071 nm, et le faisceau est naturellement polarisé perpendiculairement à l'axe optique (E⊥c), c'est-à-dire selon la polarisation ordinaire.

Nous avons également représenté à la figure III.4.2. la courbe d'efficacité de l'Yb:BOYS établie dans les mêmes conditions : on constate que l'efficacité de ces deux matériaux est très proche, le seuil du BOYS étant légèrement plus faible.

Et en régime continu ? Tout comme le BOYS et le CaBOYS, le cristal de SYS se fracture. Ici c'est après 8 Watts de puissance absorbée. Ce dernier résultat est à rapprocher des résultats obtenus avec le GdCOB en régime continu, avec la même diode (voir figure III.2.7) : avec ce dernier cristal aucune fracture n'a jamais été observée. Les deux cristaux ayant pourtant des conductivités thermiques comparables (environ 2 W.m⁻¹.K⁻¹ en moyenne sur les axes), les propriétés mécaniques semblent donc ici les premières responsables de ce comportement médiocre à fortes puissances.

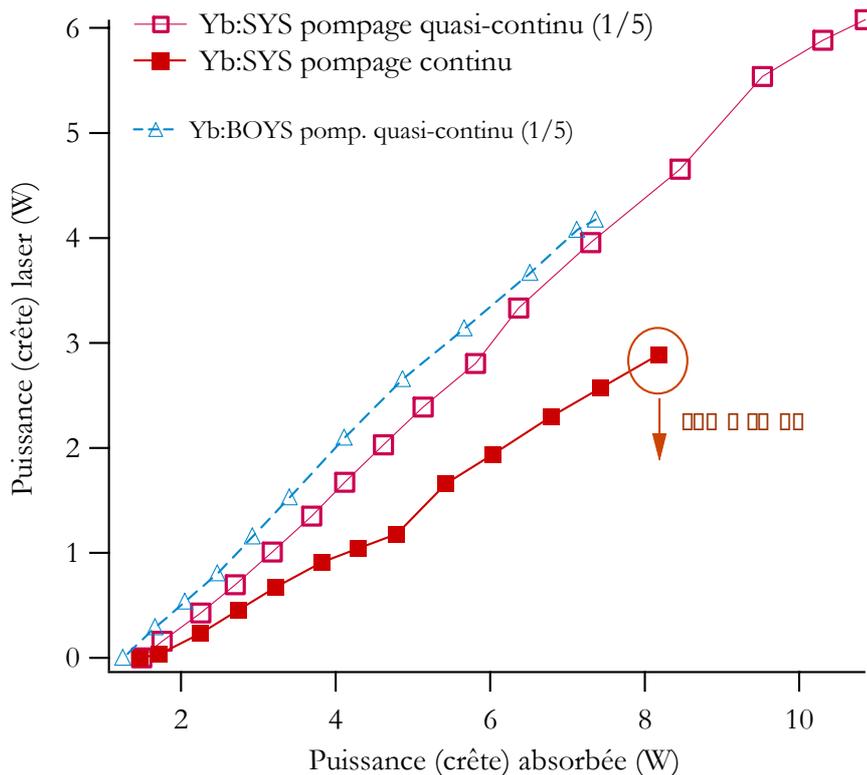


Figure III.4.2. : performances laser du SYS dopé 5.5 at.% Yb ($e = 2.8$ mm), en régime quasi-continu et continu. L'efficacité du BOYS (en régime quasi-continu), mesurée dans les mêmes conditions, est également représentée.

Après l'exemple du CaBOYS remplaçant le BOYS, nous aurions volontiers accepté, en tant que laséristes candides à l'affût d'acronymes idiots, que l'on nous proposât du CaSYS pour relever les performances du SYS. Mais à la place, le LCAES a réussi à fabriquer un *cristal composite* à base de SYS soudé sur du YAG non dopé, et c'est les performances de ce cristal que nous allons maintenant étudier.

III.4.3. Performances du cristal composite Yb:SYS||YAG

Parmi les solutions imaginées pour « gérer » les effets thermiques, l'idée de souder un cristal non dopé sur un cristal dopé, ce dernier jouant ainsi le rôle d'un radiateur transparent, s'est révélée particulièrement fructueuse [Tsunekane 98]. De tels cristaux composites ont été réalisés par R. Gaumé au cours de sa thèse [Gaumé 02] : on se référera donc à cette thèse, pour les détails concernant la réalisation, la caractérisation de ces matériaux, ainsi que sur les processus physiques mis en jeu dans le soudage.

Nous considérons ici un cristal de SYS dopé à 5.5 at.% en ions Yb^{3+} (comme l'échantillon précédent), de 1.48 mm de longueur, orienté k/c ($c = \text{axe optique}$), soudé par diffusion sur un cristal de YAG de 1.3 mm de longueur, orienté $\perp (111)$.

Ce cristal a une section de $4 \times 4 \text{ mm}^2$, et la partie utile (où il y a eu contact optique et soudure) est un cercle de 3 mm de diamètre environ.

Les performances, comparées à celle du cristal d'Yb:SYS simple étudié au paragraphe précédent, sont données à la figure III.4.3.

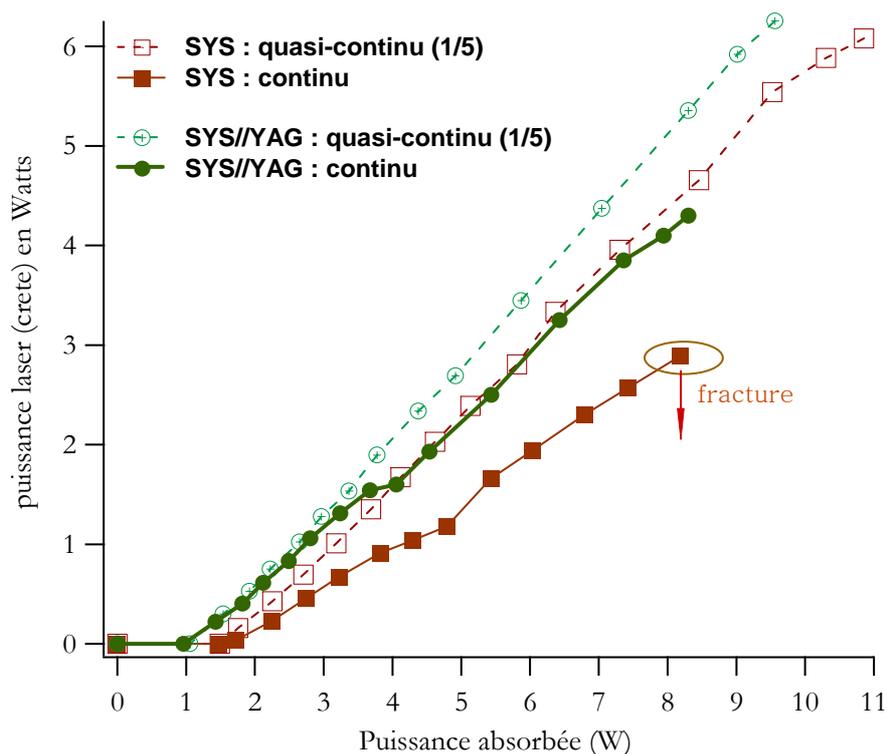


Figure III.4.3. : performances du cristal composite $Yb:SYS \parallel YAG$; comparaison avec le cristal d' $Yb:SYS$ simple (fig. III.4.2).

On constate tout d'abord, que la différence de pente d'efficacité lorsque l'on passe du régime quasi-continu au régime continu est réduite avec le matériau composite.

Mais surtout, **on n'observe plus de fracture et une puissance de 4.3 W a pu être obtenue pour 8.3 Watts de puissance absorbée.**

Le faisceau obtenu, à 1069 nm, est limité par diffraction ($M^2 = 1.1$ dans les deux directions).

Il est de plus polarisé linéairement, ce qui ne peut pas être expliqué par l'orientation du cristal, qui ne devrait favoriser aucune polarisation. Cela ne peut pas non plus être expliqué par la cavité qui ne contient aucun élément polarisant. On peut imaginer qu'il existe une biréfringence induite par les contraintes s'appliquant à l'interface entre les matériaux soudés, contraintes qui pourraient peut-être s'ajouter aux contraintes induites thermiquement au sein du cristal dopé ; des investigations plus poussées seraient nécessaires pour éclaircir ce point.

L'accordabilité du laser a pu être mesurée en régime continu (une mesure que nous n'avons pu faire dans ce régime qu'avec le GdCOB, jusqu'à maintenant), grâce à un filtre de Lyot (voir figure III.4.4). Le laser est continûment accordable entre 1018 et 1088 nm, avec plus d'1.5 Watts obtenues en sortie sur une plage de longueurs d'onde d'environ 55 nm de largeur.

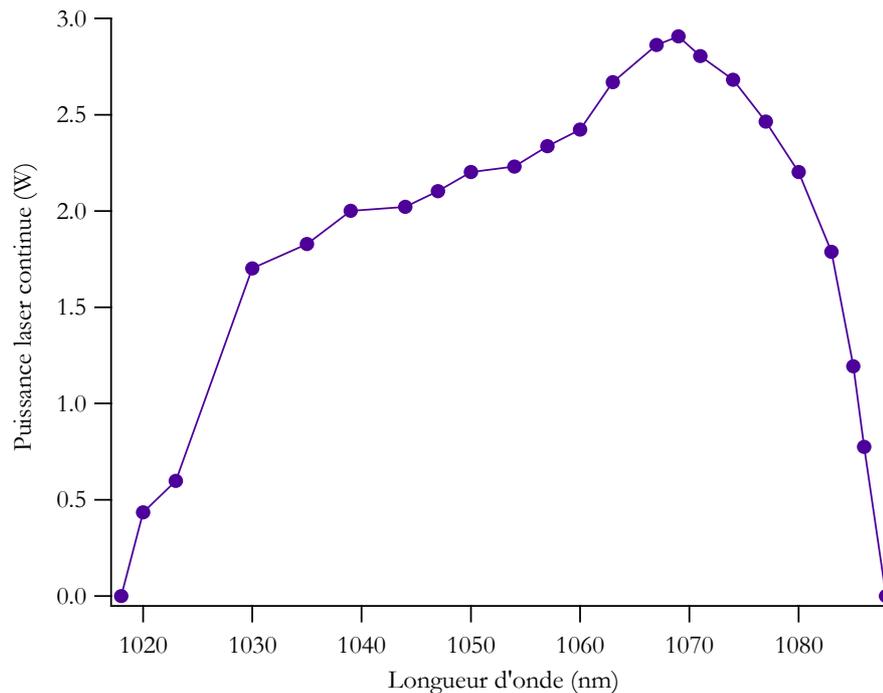


Figure III.4.4. : accordabilité du laser Yb:SYS||YAG en régime continu.

III.4.4. Conclusion et perspectives

L'Yb:SYS est une apatite à spectre très large et présente à ce titre beaucoup de points communs avec le BOYS. L'étude des performances en pompage par diode a d'ailleurs conduit au même type de conclusion : il s'agit d'un cristal efficace à des puissances de pompe modérées, mais souffrant de problèmes thermiques qui amènent à la fracture pour quelques Watts de pompe absorbés.

En utilisant un cristal composite (Yb:SYS||YAG) réalisé au LCAES, nous avons pu obtenir jusqu'à 4.3 Watts de rayonnement continu, dans un mode TEM₀₀, pour 8.3 W absorbés. De plus, le laser présente une accordabilité très large et très lisse sur un intervalle total de 70 nm.

C'est donc un matériau très prometteur pour la réalisation de lasers accordables ou de sources femtoseconde.

En utilisant le même dispositif expérimental décrit au § III.3.5, mais avec un cristal d'Yb:SYS de 5 mm de long, des impulsions de 94 fs ont été obtenues [Druon 02-2], centrées à 1070 nm. La puissance moyenne était de 110 mW, et le taux de répétition de 108 MHz. Le fait que les impulsions obtenues ici soient plus longues qu'avec le BOYS (69 fs) est relativement cohérent avec la forme de la courbe d'accordabilité (fig. III.4.4), qui dans le cas du SYS est moins symétrique que dans le cas du BOYS.

III.5. Un nouveau cristal silicate aux bonnes propriétés thermiques : l'Yb:YSO

Nous avons vu jusqu'à maintenant des cristaux destinés plutôt aux lasers de forte puissance (l'Yb:GGG), ou plutôt aux lasers accordables de faible puissance (BOYS, CaBOYS, SYS), et un autre, le GdCOB, dont les champs d'applications ne sont pas si marqués. C'est également le cas de l'YSO⁹, un cristal de la famille des silicates, tout comme le SYS.

À l'instar du SYS ou du GGG, l'YSO (Y_2SiO_5) est un cristal connu depuis longtemps. Il a déjà été dopé au néodyme [Beach 90] ou au chrome, dans ce dernier cas d'abord en tant que matériau laser [Deka 92] puis en tant qu'absorbant saturable [Kuo 01]. L'YSO a également été dopé au thulium [Li 93], et codopé à l'erbium et à l'ytterbium [Li 92, Li 94, Schweizer 95]. Nous présentons ici les premiers résultats obtenus en pompage par diode avec l'YSO dopé à l'ytterbium.

L'Yb:YSO a été développé conjointement par le LETI (CEA Grenoble) et le LCAES. L'échantillon étudié ici provient d'un canon élaboré au LETI.

III.5.1. Propriétés spectroscopiques de l'Yb:YSO

Le cristal d'YSO est un cristal biaxe (l'axe cristallographique b correspondant à la direction cristallographique Y) dont l'élaboration par la méthode de Czochralski est maintenant bien maîtrisée.

On trouvera une étude spectroscopique complète de l'Yb:YSO dans [Gaumé 00] et [Haumesser 02]. Les spectres d'absorption/émission sont reproduits aux figures III.5.1&2, et les principales données spectroscopiques rassemblées au tableau III.5.1.

Il y a deux sites pour l'yttrium dans l'YSO, et donc deux sites pour l'ytterbium. Mais il n'y a en revanche aucun site d'alcalino-terreux occupable par l'ytterbium, comme c'était le cas pour le GdCOB, le BOYS (et le CaBOYS), et le SYS. Par conséquent (voir encadré du § I.1.1) on ne sera pas étonné de constater que le spectre de l'YSO est moins large, et moins régulier, que ceux des cristaux précédemment cités. On distingue nettement quatre « raies » d'émission, centrées à 1003, 1042, 1058, et 1082 nm.

La raie à 1003 nm est inexploitable avec notre configuration de pompage (voir § II.1.2) en raison des traitements dichroïques sur les miroirs, qui ne permettent pas l'oscillation laser à des longueurs d'onde inférieures à 1020 nm. Mais en raison de l'intérêt que revêt cette longueur d'onde pour la métrologie¹⁰, c'est l'YSO que nous avons identifié comme le candidat le plus adapté pour réaliser ce type de source [Jacquemet 03].

⁹ On trouve aussi quelquefois YOS, qui est un acronyme pour Yttrium OrthoSilicate.

¹⁰ Un laser émettant à 1003.4 nm, après doublement de sa fréquence (501.7 nm), permet d'exciter l'une des plus fines transitions de l'iode, et représente donc un intérêt pour la réalisation d'étalons de fréquence optique.

	Yb:YSO
Longueur d'onde d'absorption λ_{ZL} (« zero line »)	977.5 nm
Section efficace d'absorption à λ_{ZL} (cm ²)	2.3 10 ⁻²⁰ (E//X) 0.86 10 ⁻²⁰ (E//Y) 1.97 10 ⁻²⁰ (E//Z)
Largeur (à mi-hauteur) du spectre d'absorption $\Delta\lambda_{abs}$ à λ_{ZL}	3.5 nm (E//X) 3.2 nm (E// Y et E//Z)
Temps de vie radiatif (ms)	0.67
Section efficace d'émission (cm ²) pour E//Y	0.52 10 ⁻²⁰ (1042 nm) 0.40 10 ⁻²⁰ (1058 nm) 0.22 10 ⁻²⁰ (1082 nm)
Conductivité thermique (W.m ⁻¹ .K ⁻¹) moyenne du cristal non dopé [Payne 94-2]	4.4
dn/dT (°C ⁻¹) [Payne 94-2]	9.1 10 ⁻⁶ (E//X) 5.7 10 ⁻⁶ (E//Y) 6.7 10 ⁻⁶ (E//Z)
Indice de réfraction moyen à 1 μ m	1.79

Tableau III.5.1. : Propriétés de l'Yb:YSO

Si l'YSO présente un spectre moins régulier que les cristaux « à large bande » présentés jusqu'ici, il « gagne » en revanche sur un autre tableau : sa conductivité thermique est en effet élevée (4.4 W.m⁻¹.K⁻¹). C'est approximativement plus de deux fois la conductivité du GdCOB ou du SYS, et la moitié de celle du YAG ou du GGG. Ce cristal rappelle par bien des égards les caractéristiques des tungstates KGW et KYW [Kuleshov 97, Brunner 00], des cristaux au spectre également discontinu, mais à la conductivité thermique assez bonne (3.3 W.m⁻¹.K⁻¹).

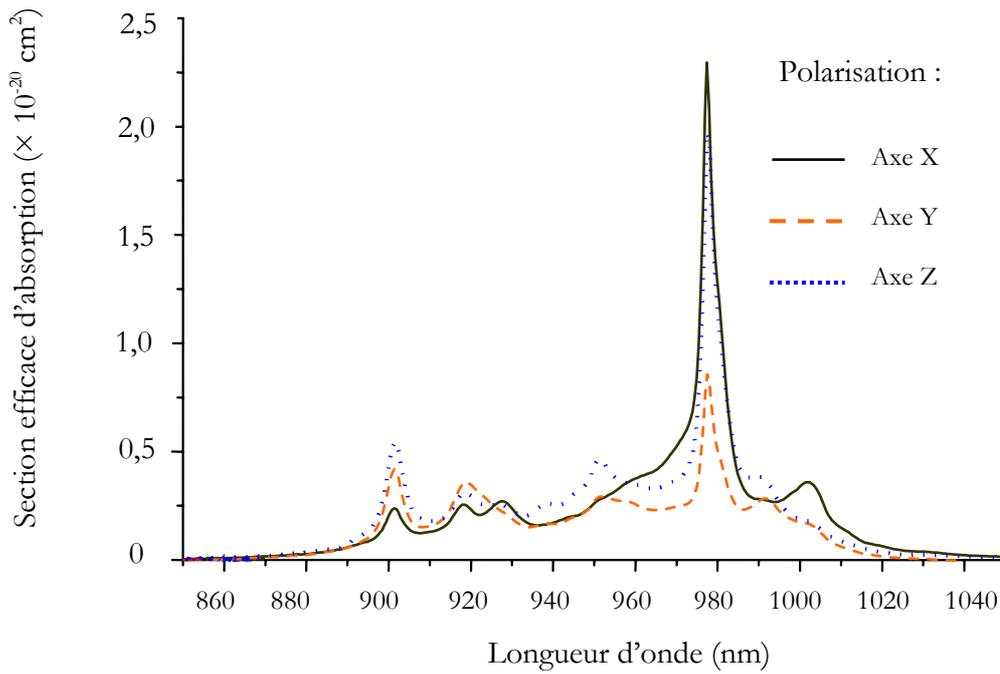


Figure III.5.1 : spectres d'absorption de l'Yb:YSO en lumière polarisée.

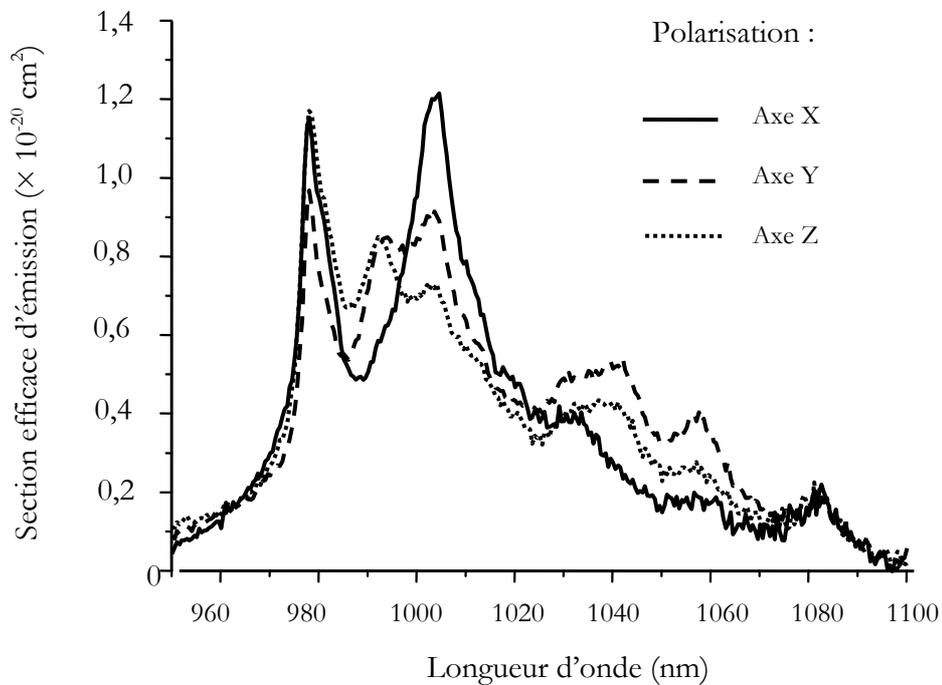


Figure III.5.2 : spectres d'émission de l'Yb:YSO en lumière polarisée.

III.5.2. Performances laser en régime continu

Nous avons utilisé un cristal dopé à 5 at.% en ions ytterbium (soit $9.2 \cdot 10^{20}$ ions/cm³), orienté k//X (pour tirer parti de la forte section efficace d'absorption selon Z et surtout de la grande section efficace d'émission selon Y), de 1.95 mm de longueur, et traité anti-reflet sur ses deux faces.

La diode de pompe est la diode LIMO, émettant ici 13.6 Watts à 977 nm. Les performances obtenues, en régime continu, avec un miroir de sortie de transmission 6 %, sont données à la figure III.5.3.

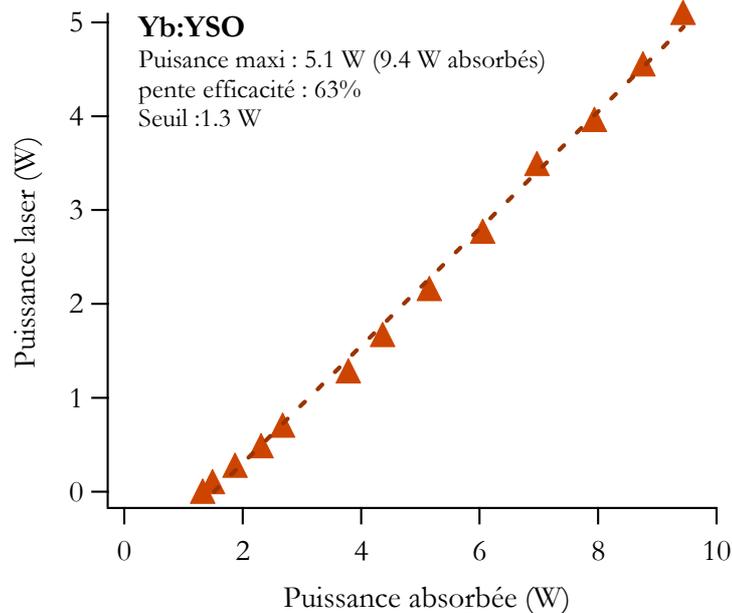


Figure III.5.3 : Performances de l'Yb:YSO en régime continu

On obtient une puissance de 5.1 Watts de rayonnement continu à 1042 nm, pour 9.4 W de puissance de pompe absorbés (soit 71 % de la puissance de pompe incidente). La pente d'efficacité est de 63 %, et le seuil de 1.3 Watts. Le rendement optique-optique du laser est donc de 37 %, et le rendement électrique/optique de l'ordre de 6.5 %.

Comme on peut s'y attendre, le faisceau est polarisé selon l'axe Y.

Le faisceau est de plus limité par diffraction : le profil est représenté à la figure III.5.4, superposé au profil d'une gaussienne parfaite. Cette excellente qualité spatiale est confirmée par une mesure de M^2 , qui est inférieur à 1.1 dans les deux directions.

L'accordabilité du laser a été mesurée en insérant un filtre de Lyot à deux lames dans le bras collimaté de la cavité. On obtient la courbe de la figure III.5.5, où l'on notera les pertes

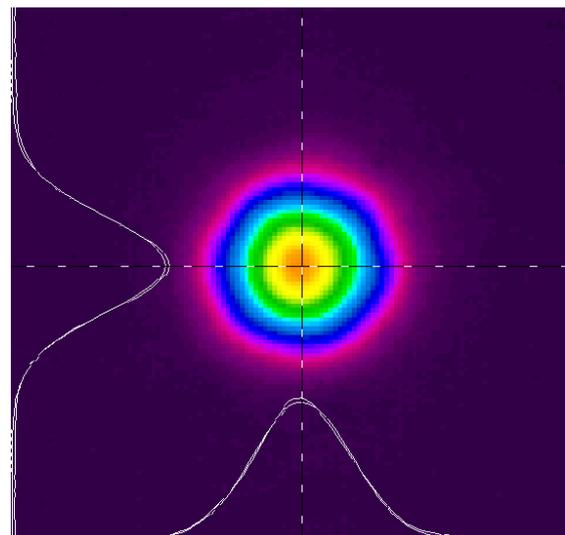


Figure III.5.4 : Profil spatial du faisceau obtenu en sortie du laser Yb:YSO ; Le profil réel est superposé à un profil gaussien. Image obtenue avec camera Spiricon® 10 bits.

extrêmement réduites qu'apporte le filtre de Lyot, puisqu'à 1042 nm on obtient encore 4.6 Watts. Le laser est continûment accordable de 1018 à 1086 nm, mais la courbe n'est absolument pas « lisse » comme l'étaient les courbes d'accordabilité du GdCOB, du BOYS ou du SYS. On retrouve d'ailleurs les caractéristiques particulières que nous avons notées dans le spectre d'émission de l'YSO, et en particulier les maxima qui se trouvent à 1042, 1058 et 1082 nm.

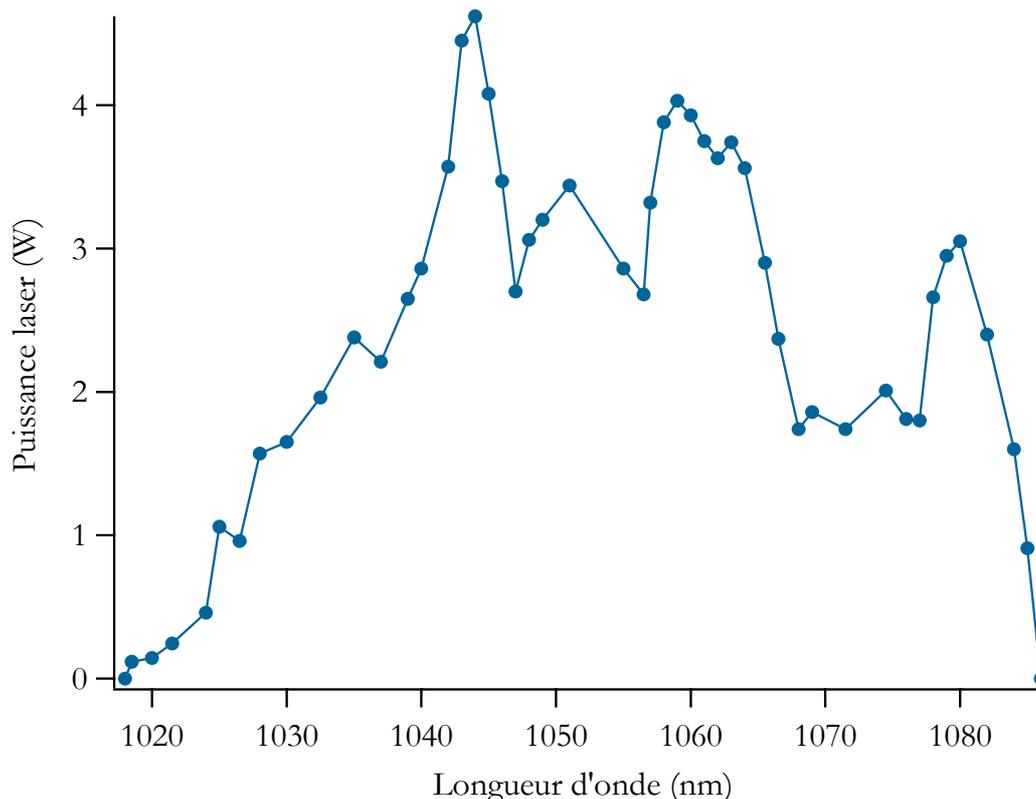


Figure III.5.5. : Accordabilité du laser Yb:YSO (en régime continu).

III.5. 3. Conclusion

Nous avons obtenu d'excellentes performances en régime continu avec l'Yb:YSO : jusqu'à 5.1 Watts de puissance laser, dans un faisceau limité par diffraction, pour 13.6 W de puissance de pompe incidente.

Les performances du YAG et du GGG (qui étaient semblables), sont également comparables à celles de l'YSO (même efficacité, seuil identique). Cela fait de l'YSO un cristal tout à fait intéressant, d'autant plus qu'il offre (peut-être) la possibilité de générer des impulsions ultracourtes, certainement plus longues que celles qu'on obtient dans le GCOB, le BOYS ou le SYS, mais qui pourraient suffire pour certaines applications.

De plus, même si la courbe d'accordabilité n'est pas régulière, ce peut être un inconvénient tout à fait mineur pour qui souhaiterait disposer d'une source capable d'émettre plusieurs watts de rayonnement continu à une longueur d'onde ajustable entre 1020 et 1090 nm. On pense à la spectroscopie en particulier.

III.6. Conclusion sur les nouveaux cristaux étudiés

Les principales performances obtenues sont résumées dans le tableau III.6.

<i>Cristal</i>	<i>Résumé des performances obtenues</i>	<i>Commentaires</i>
Yb:GGG	<ul style="list-style-type: none"> - 4.15 W (TEM₀₀) , efficacité 63 % - Performances identiques à celles du YAG dans les mêmes conditions de pompage. - Conductivité thermique supérieure à celle du YAG pour un dopage > 3.6 at.% (dans le YAG) 	<ul style="list-style-type: none"> * Très bon candidat pour des lasers de forte puissance moyenne * Cristal facile à croître en grandes dimensions. Pourrait avantageusement remplacer l'Yb:YAG dans des architectures nécessitant des cristaux fortement dopés et/ou de grande dimension.
Yb:GdCOB	<ul style="list-style-type: none"> - 3.2 W pour 5.3 W absorbés (11 % rendement électrique/optique) - accordabilité 30 nm à mi-hauteur - impulsions 90 fs sortie oscillateur 	<ul style="list-style-type: none"> Pas de limitations d'origine thermique constatées.
Yb:BOYS	<ul style="list-style-type: none"> - 4.1 W crête en régime quasi-continu pour 7.3 W de puissance absorbée - fracture en régime continu - très large accordabilité (50 nm à mi-hauteur) - oscillateur femtoseconde : 69 fs (plus courte durée obtenue avec un cristal) - comparaison BOYS/GdCOB/verre : le BOYS et le GdCOB sont supérieurs au verre en régime quasi-continu ; en régime continu : GdCOB > BOYS > Verre. 	<ul style="list-style-type: none"> Cristal au spectre plus large que celui d'un verre, le BOYS peut remplacer le verre très avantageusement (meilleur efficacité, meilleure tenue à la charge thermique). Les problèmes thermiques imposent de considérer de nouvelles architectures pour pleinement tirer parti de ce cristal.
Yb:CaBOYS	<ul style="list-style-type: none"> - Meilleures propriétés mécaniques que le BOYS (et croissance plus facile), et performances laser identiques. - Lentille thermique plus faible de 15 % dans le CaBOYS, malgré une conductivité thermique 25 % plus faible. 	<ul style="list-style-type: none"> Le choix BOYS/CaBOYS se fait avec des considérations liées à la croissance : le CaBOYS est alors favorable. Mais à des puissances de pompe élevées, la plus faible conductivité thermique du CaBOYS pourrait jouer en sa défaveur.
Yb:SYS	<ul style="list-style-type: none"> - Performances comparables à celles du BOYS. Spectre un peu moins large. - 4.3 W (TEM₀₀) continu, accordable sur 55 nm à mi-hauteur, avec cristal composite Yb:SYS YAG. 	<ul style="list-style-type: none"> Mêmes remarques que pour le BOYS. La possibilité de réaliser simplement des matériaux composites avec ce cristal a permis de résoudre les problèmes rencontrés avec le cristal simple.
Yb:YSO	<ul style="list-style-type: none"> - 5.1 W pour 9.4 W absorbés (TEM₀₀) - large accordabilité 1018 → 1086 nm 	<ul style="list-style-type: none"> Très bonnes performances laser sans aucun problème thermique. Application : lasers de puissance accordables ?

Tableau III.6 : résumé des performances obtenues.

Pour les lasers de puissance, on retiendra les excellentes performances du GGG et de l'YSO. Le GGG est un sérieux concurrent du YAG, et l'YSO offre de plus la possibilité de disposer d'une source efficace continûment accordable entre 1020 et 1090 nm.

Le GdCOB est également un cristal qui se comporte bien à des puissances de pompe de l'ordre de 10 Watts. Cela dit, sa plus faible conductivité thermique laisse présager des performances peut-être moins bonnes que l'YSO ou le GGG à des puissances de pompe supérieures.

Pour les lasers femtoseconde, on retiendra les bonnes performances du GdCOB, du BOYS (et du CaBOYS) ainsi que du SYS, et surtout les spectres extraordinairement larges de ces cristaux, qui ont permis la génération d'impulsions très courtes (90 fs avec le GdCOB, 69 fs avec le BOYS, 94 fs avec le SYS). Pour le BOYS et le SYS, les problèmes thermiques interviennent en revanche très vite, pour quelques Watts de puissance absorbée. La solution du matériau composite, expérimentée sur l'Yb:SYS, a donné des résultats probants. L'amélioration des systèmes de pompage est une autre voie à explorer.

L'étape suivante est le développement de chaînes laser femtoseconde de forte énergie (construites avec un oscillateur et un système d'amplification à dérive de fréquence) : ce travail est en cours au laboratoire.

On le voit, les problèmes thermiques sont centraux dans le développement des lasers ytterbium, et ils concernent tous les types de matériaux. Pour apporter des solutions efficaces à ces problèmes, il est important de bien connaître la nature des « effets thermiques ». Une étude théorique et expérimentale s'avère nécessaire pour tenter d'éclaircir les mécanismes créateurs de chaleur dans les matériaux dopés à l'ytterbium, mais aussi pour disposer de données utiles à l'optimisation des performances (distance focale de la lentille thermique, présence d'aberrations thermiques, etc.).

C'est une telle étude que nous nous proposons d'effectuer maintenant.