

GÉNÉRALITÉS SUR LES LASERS YTTERBIUM

I.1. Propriétés des cristaux dopés à l'ytterbium

I.2. Propriétés laser en pompage par diode : coup de projecteur sur la *réabsorption* et la *saturation de l'absorption*

Démarrer par une « introduction générale » qui pose les fondations d'un domaine précis (en l'occurrence ici les lasers ytterbium) est forcément un exercice qui devient, au fil des années, de plus en plus périlleux : comment en effet ne pas répéter ce que d'autres ont déjà (mieux) écrit avant vous ? Mais c'est aussi, pour la même raison, un « passage obligé » qui le devient de moins en moins.

Le chapitre de généralités qui suit n'a donc aucune prétention à l'exhaustivité, et encore moins à l'originalité.

Les principales propriétés des systèmes laser à base de matériaux dopés à l'ytterbium ont d'ailleurs été signalées dans l'introduction qui précède cette première partie.

Pour une approche générale du sujet, j'invite le lecteur à se reporter à l'un des nombreux articles de synthèse publiés par les « grands noms » du domaine. Citons par exemple [DeLoach 93], [Fan 96], [Hanna 99], [Sumida 99] et [Krupke 00].

Le lecteur qui souhaitera aller davantage dans le détail lira avec beaucoup de profit les thèses de Romain Gaumé [Gaumé 02] et d'Antoine Courjaud [Courjaud 01]. À elles deux (ce choix n'engage bien sûr que moi), ces thèses brossent un tableau vraiment complet, et en français, des propriétés des lasers ytterbium : celle de R. Gaumé insiste sur le côté « matériaux », en expliquant l'origine physique des niveaux d'énergie et les problèmes que pose la substitution d'ions lanthanide par l'ytterbium. Elle vient compléter la discussion très nourrie d'A. Courjaud sur les propriétés laser en pompage par diode. Les références à ces deux thèses sont nombreuses dans ce manuscrit, et sont là pour inciter le lecteur désirant approfondir le sujet à se plonger dans ces thèses *avant* d'aller chercher des articles plus spécialisés sur chaque sujet.

Nous approfondirons dans ce chapitre certains aspects qui se retrouveront au cœur de toute cette étude. Nous nous pencherons d'abord sur les matériaux dopés à l'ytterbium, en expliquant en particulier pourquoi certains d'entre eux ont des spectres larges, et en quoi consistent exactement les phénomènes parasites qui peuvent se manifester. C'est un problème qui nous intéresse particulièrement parce qu'il est en relation avec les effets thermiques, comme on le verra dans la deuxième partie de ce mémoire. Nous verrons ensuite deux propriétés originales des lasers ytterbium : la réabsorption et la saturation de l'absorption.

I.1. Les matériaux dopés à l'ytterbium.

Nous allons évoquer ici quelques propriétés des cristaux dopés à l'ytterbium, avec un regard orienté « matériaux ». L'aspect « système » (en fonctionnement laser) fera l'objet du paragraphe suivant. Cette partie est volontairement extrêmement simplifiée, à la limite de la vulgarisation : c'est de la chimie du solide telle que je l'ai comprise en tant que « physicien » partant d'un faible niveau de connaissances sur le sujet.

I.1.1. Niveaux d'énergie

L'ion Yb^{3+} , lorsqu'il est isolé, possède seulement deux niveaux d'énergie accessibles dans le domaine optique, attribuables à l'interaction spin-orbite¹. Ces deux niveaux sont séparés

¹ Cela est dû au fait que la couche 4f se comporte comme si elle ne comptait qu'un seul électron ($4f^3 \equiv 4f^1$). Utilisons une image *classique*, donc fautive et réductrice, mais parlante : on peut imaginer l'ion Yb^{3+} comme un ensemble formé du noyau atomique + 66 électrons liés, un ensemble autour duquel « tourne » l'électron périphérique de la couche 4f (là, encore une approximation : la couche 4f est en fait interne, recouverte par la couche 5d). Avec cette image simpliste, l'état fondamental $^2F_{7/2}$ correspond à un état où le spin de l'électron (assimilé au moment cinétique de rotation de l'électron sur lui-même) est aligné avec le moment orbital. Lorsqu'un photon (à 980 nm par

d'environ $10\,000\text{ cm}^{-1}$. *A priori*, rien ne destine l'ytterbium à servir d'ion actif pour des applications laser car 1) on n'a jamais fait de laser à deux niveaux... et 2) les deux niveaux en question étant de même parité, la transition est interdite !

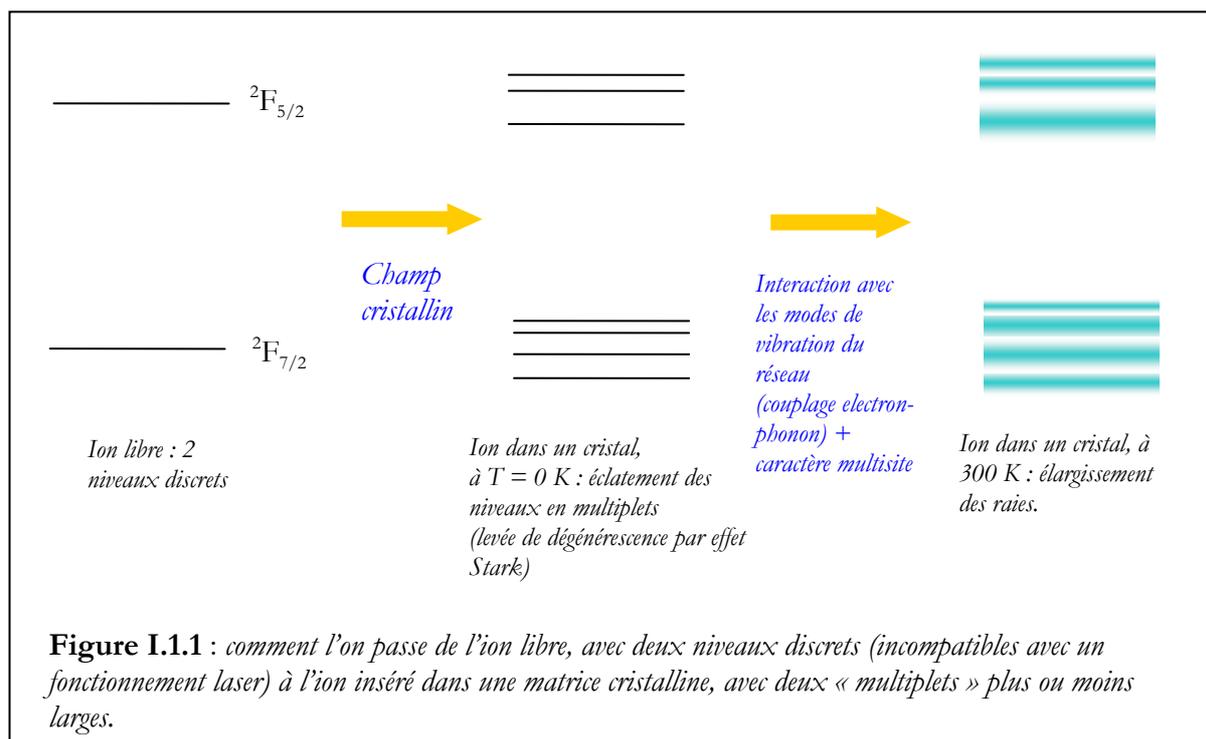
Pour aller plus loin, il faut examiner ce qui se passe quand l'ion est inséré dans une matrice cristalline.

Pour obtenir un solide dopé à l'ytterbium, on choisit un cristal qui comporte un ou plusieurs cations dont la taille est voisine de celle de l'ytterbium : les ions facilement « substituables » sont Lu^{3+} , Y^{3+} , Gd^{3+} , Sc^{3+} , La^{3+} , Tl^{3+} ; Bi^{3+} , Cd^{2+} , Ca^{2+} , Sr^{2+} , Th^{4+} [Gaumé 02]. On ne peut donc pas mettre de l'ytterbium dans n'importe quel cristal.

Le champ cristallin (le champ électrique « vu » par l'ion Ytterbium lorsqu'il occupe la place d'un ion dans la matrice cristalline) provoque une levée de dégénérescence des niveaux, en vertu de l'effet Stark : le niveau fondamental $^2\text{F}_{7/2}$ se scinde en 4 sous-niveaux, et le niveau excité $^2\text{F}_{5/2}$ en trois sous-niveaux.

Le fonctionnement laser devient alors possible : la transition optique perd partiellement son caractère interdit. Le laser fonctionne alors selon un schéma de type « quasi-trois niveaux »². La position de ces niveaux d'énergie est représentée, pour le cristal d' $\text{Yb}:\text{Ca}_4\text{GdO}(\text{BO}_3)_3$ (Yb:GdCOB) dans l'encadré intitulé « Le peuplement thermique ».

Mais l'existence de sept niveaux discrets — comme représentés à la figure I.1.1 (schéma du milieu) — n'est une réalité qu'à très basse température. À température ambiante, il faut tenir compte des modes de vibration du réseau cristallin, qui rendent le champ cristallin dont nous venons de



exemple) est absorbé, cela signifie que le spin de l'électron est retourné et pointe désormais dans la direction opposée : c'est l'état « excité » $^2\text{F}_{5/2}$.

² Nous l'appelons comme cela, en suivant [Fan 87], parce que le laser fonctionne « presque » comme un système laser à trois niveaux, toute la subtilité étant dans le « presque ». En toute rigueur il faudrait distinguer le fonctionnement de type « quasi-trois niveaux » quand l'ion est excité sur le niveau le plus bas du multiplet excité (sur la « raie à zéro phonon »), et le fonctionnement de type « quasi-quatre niveaux » quand l'ion est excité sur un niveau supérieur, auquel cas on peut dénombrer quatre niveaux d'énergie distincts intervenant dans le processus laser. L'usage a cependant consacré le terme « quasi-trois niveaux » pour les deux situations.

Le peuplement thermique

Au sein d'un multiplet ($^2F_{7/2}$ ou $^2F_{5/2}$) les sous-niveaux sont écartés d'à peine quelques centaines de cm^{-1} , ce qui est du même ordre de grandeur que kT ($\approx 200 \text{ cm}^{-1}$ à 300 K). La population de chaque sous niveau d'adapte donc instantanément (avec un temps caractéristique $\sim 10 \text{ ps}$ [Krupke 00]) pour obéir à une *statistique de Boltzmann*.

La population N_a d'un sous-niveau a du multiplet fondamental, par exemple, peut donc s'écrire :

$$N_a = f_a N_1$$

où N_1 est la population totale (en ions/ m^3) du multiplet fondamental, et :

$$f_a = \frac{g_a \exp(-E_a/kT)}{\sum_{i \in ^2F_{7/2}} g_i \exp(-E_i/kT)}$$

avec E_i : énergie ; g_i : dégénérescence des états i ($= 2$ pour tous les sous-niveaux Stark dans l'ytterbium).

Cette approche a des limites pour des spectres larges car on ne peut alors pas définir de niveaux discrets.

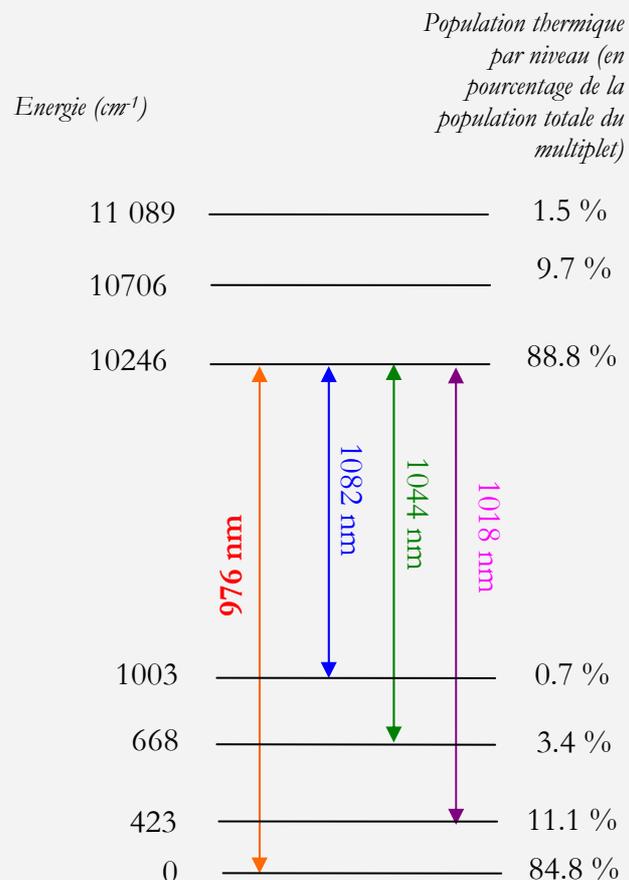


Diagramme énergétique de l'Yb:GdCOB
(d'après [Mougel 99] et [Courjaud 01])

parler dépendant du temps [Gaumé 02]. Les niveaux électroniques se couplent alors à des niveaux vibrationnels, ce qui a notamment pour effet d'élargir les raies.

L'élargissement peut devenir encore plus grand si plusieurs sites sont accessibles à l'ion ytterbium : voir l'encadré « Pourquoi certains cristaux dopés Yb ont-ils des spectres larges ? ».

De façon générale, la largeur du spectre d'émission, les sections efficaces, et le temps de vie, sont autant de grandeurs qui dépendent énormément de la structure de la matrice d'accueil de l'ion Yb^{3+} .

En particulier, comme on l'a souligné dans l'introduction générale, le « spectre large » est incompatible avec des bonnes propriétés thermomécaniques, dans les lasers à base d'ions de terres rares. Si un fort désordre cristallin est souhaitable pour avoir des spectres larges (voir encadré), c'est exactement le contraire que l'on veut (c'est-à-dire un cristal « bien ordonné ») pour obtenir une matrice avec une conductivité thermique élevée. Plus le cristal s'éloigne de cet « ordre », plus les phonons ont la possibilité d'être diffusés par des ions de masses différentes : la propagation des phonons dans le cristal est donc moins aisée, ce qui rend plus difficile la conduction de la chaleur. Pour un traitement complet des relations existant entre la structure cristalline et la conductivité thermique, on se référera à [Gaumé 02].

Pourquoi certains matériaux dopés à l'ytterbium ont-ils des spectres LARGES ?

Les cristaux dopés à l'ytterbium étudiés dans cette thèse ont pour la plupart été développés (par le LCAES) dans le but de présenter un *large spectre de fluorescence*, ce qui leur permet d'amplifier des impulsions femtoseconde. C'est le cas des cristaux de GdCOB, d'YCOB, de BOYS, de CaBOYS, de SYS, dans une moindre mesure d'YSO. C'est aussi le cas des verres.

Comment expliquer que selon la matrice d'accueil le spectre soit plus ou moins large ?

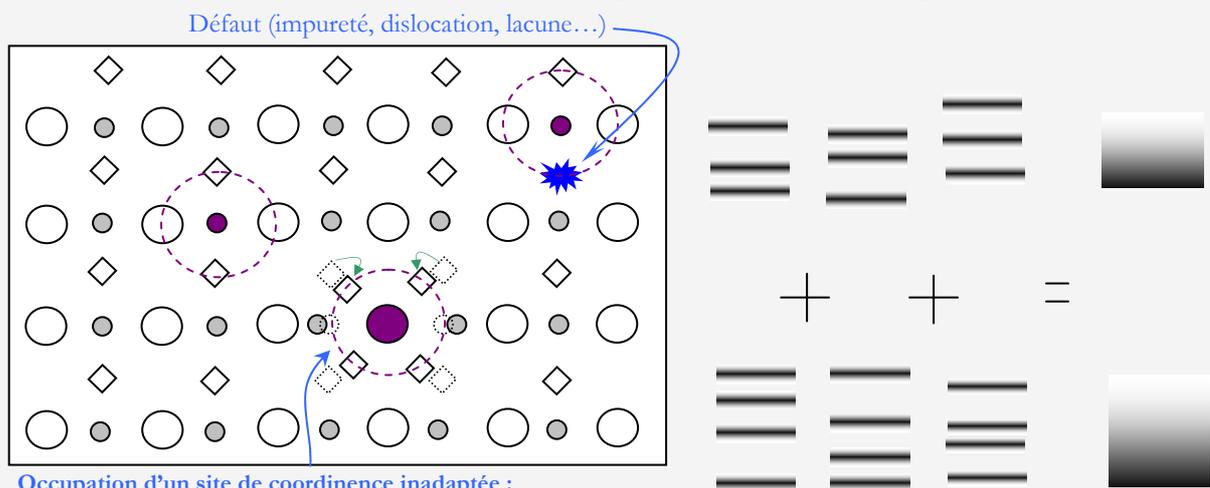
Interaction électron-phonon

Cette interaction est responsable de l'élargissement des raies associées aux sous-niveaux Stark. Selon les matrices, le couplage entre les modes de vibrations du réseau et les niveaux électroniques est variable. Physiquement, on peut imaginer l'ion Yb^{3+} comme prisonnier d'une cage composée de ses plus proches voisins. En première approximation ce sont ces ions qui imposent à l'ion Yb^{3+} un champ cristallin donné. Plus le couplage électron/phonon est fort, plus les vibrations du réseau, qui font « vibrer la cage », se répercutent sur le champ cristallin et donc sur les niveaux d'énergie de l'ion... d'où ce brouillage, ou élargissement, des raies.

Désordre des sites

C'est la contribution principale à l'élargissement, la seule qui permette d'expliquer les spectres exceptionnellement larges obtenus par exemple dans le BOYS ou le SYS.

La figure ci-dessous schématise de façon extrêmement simplifiée cette notion. Dans beaucoup de cristaux en effet, l'ion Yb^{3+} a le choix entre plusieurs sites lorsqu'il vient substituer les ions lanthanide de la structure cristalline hôte. Par exemple dans le GdCOB, où l'ytterbium vient substituer le gadolinium, il peut occuper les deux sites qu'occupe le gadolinium dans cette structure. Mais il peut aussi venir prendre la place d'un ion calcium. Ces ions n'ayant pas la même coordination (i.e. nombre de plus proches voisins) et surtout pas la même charge (Ca^{2+}), l'ytterbium ne peut pas s'installer dans ce site sans que tous les ions autour de lui ne se redispotent en conséquence, afin d'assurer la neutralité électrique locale (c'est la « compensation de charge ») : cela modifie (localement) complètement la structure du cristal, et donc le champ cristallin que « voit » l'ytterbium depuis son site. Or à chaque champ cristallin correspond une disposition des niveaux d'énergie différente. À cet aspect « multisite » il faut rajouter l'effet de désordre apporté par la présence de lacunes ou d'impuretés : au voisinage de ces défauts règne un champ cristallin différent qui est aussi à l'origine d'un autre arrangement des niveaux d'énergie (ce dernier aspect est tout de même marginal, et n'est pas une spécificité des matériaux dopés à l'ytterbium). *In fine*, l'addition de toutes ces petites contributions fait un spectre large.



Occupation d'un site de coordination inadaptée : modification de l'environnement de l'ion.

Représentation très schématique d'un « cristal désordonné ». Les petits ronds gris représentent un site d'accueil naturel (régulier) de l'ytterbium. Les ions Yb^{3+} sont figurés en foncé (violet). On a ici représenté trois cas un peu extrêmes : 1) l'ion Yb^{3+} est dans un site régulier (à gauche) ; 2) l' Yb^{3+} prend la place d'un ion qui n'a pas la même charge (par ex. le Ca^{2+} dans GdCOB ou Sr^{2+} dans le BOYS) ; au centre) et 3) l' Yb^{3+} occupe un site au voisinage duquel se trouve un défaut (à droite).

Addition des « spectres » individuels de chaque ion ytterbium, dépendant de l'entourage de l'ion considéré. Chaque sous-niveau Stark est déjà plus ou moins large en vertu de l'interaction électron-phonon.

I.1.2. Quelques mots sur la spectroscopie de l'ion Ytterbium

Pour décrire le fonctionnement laser, on ne considère que trois types d'interaction lumière/matière : l'absorption, l'émission spontanée et l'émission stimulée. On associe à ces phénomènes trois grandeurs : la section efficace d'absorption, la section efficace d'émission stimulée et le temps de vie radiatif.

La détermination de ces trois paramètres essentiels (en fonction de la longueur d'onde pour les deux premiers) est la tâche du spectroscopiste, nous n'en parlerons donc pas ici. Nous renvoyons le lecteur à la référence [Haumesser 00].

Nous souhaitons attirer l'attention sur ce que l'on appelle la section efficace *effective* (d'après une expression de Fan, cf. [Fan 95])

Section efficace effective

La section efficace *spectroscopique* est celle qui est définie entre deux sous-niveaux Stark (voir fig. I.1.1). D'après le principe de réciprocité, la section efficace d'absorption ainsi définie est rigoureusement égale à la section efficace d'émission stimulée à la même longueur d'onde, à la dégénérescence des niveaux près. Mais les sections efficaces auxquelles on a accès expérimentalement, et que l'on utilisera partout dans la suite de ce mémoire, sont des grandeurs *effectives* qui font intervenir la fraction de population du sous-niveau considéré (voir encadré « le peuplement thermique »). Entre deux sous-niveaux, l'un situé dans le multiplet fondamental (caractérisé par sa fraction de population f_a), et l'autre situé dans le multiplet excité (caractérisé par sa fraction de population f_b), les sections efficaces (effectives) sont définies par :

$$\begin{cases} \sigma_{abs}(\lambda) = f_a \sigma(\lambda) \\ \sigma_{em}(\lambda) = f_b \sigma(\lambda) \end{cases} \quad (\text{I.1.1})$$

À une même longueur d'onde, la section efficace d'émission peut donc être différente de la section efficace d'absorption. Notons que cette approche faisant intervenir des fractions de population est très discutable pour les matériaux à spectre large (les sous-niveaux Stark n'étant plus décelables) : dans ces cas-là on ne considère que les sections efficaces mesurées (donc effectives) sans chercher à calculer la fraction de population correspondante.

La zero line

Notons que dans tous les matériaux dopés à l'ytterbium, il existe un fort pic d'absorption *et* d'émission vers 980 nm (entre 968 et 981 nm pour les matériaux étudiés ici), ce qui correspond à une transition entre le sous-niveau le plus bas du multiplet fondamental $^2F_{7/2}$ et le sous-niveau le plus bas du multiplet excité $^2F_{5/2}$. Pour cette raie, appelée *zero line*³, la section efficace d'absorption (effective) est généralement très proche de la section efficace d'émission stimulée (effective). C'est sur cette raie d'absorption que nous exciterons tous nos cristaux⁴.

³ Peut-être pourrait-on dire « raie zéro » en français. Notons que le terme « raie à zéro phonon », bien que fréquemment employé, est ici incorrect.

⁴ Pour une comparaison (théorique) des performances en fonction de la longueur d'onde de pompe, on se référera à [Courjaud 01]. On y montre en particulier que pour certains matériaux, comme l'Yb:YAG, le pompage à 940 nm permet d'accéder à de plus grandes inversions de population quelle que soit l'intensité de pompage, alors que dans le GdCOB par exemple, cette inversion maximale dépend de façon critique de l'intensité de pompe incidente.

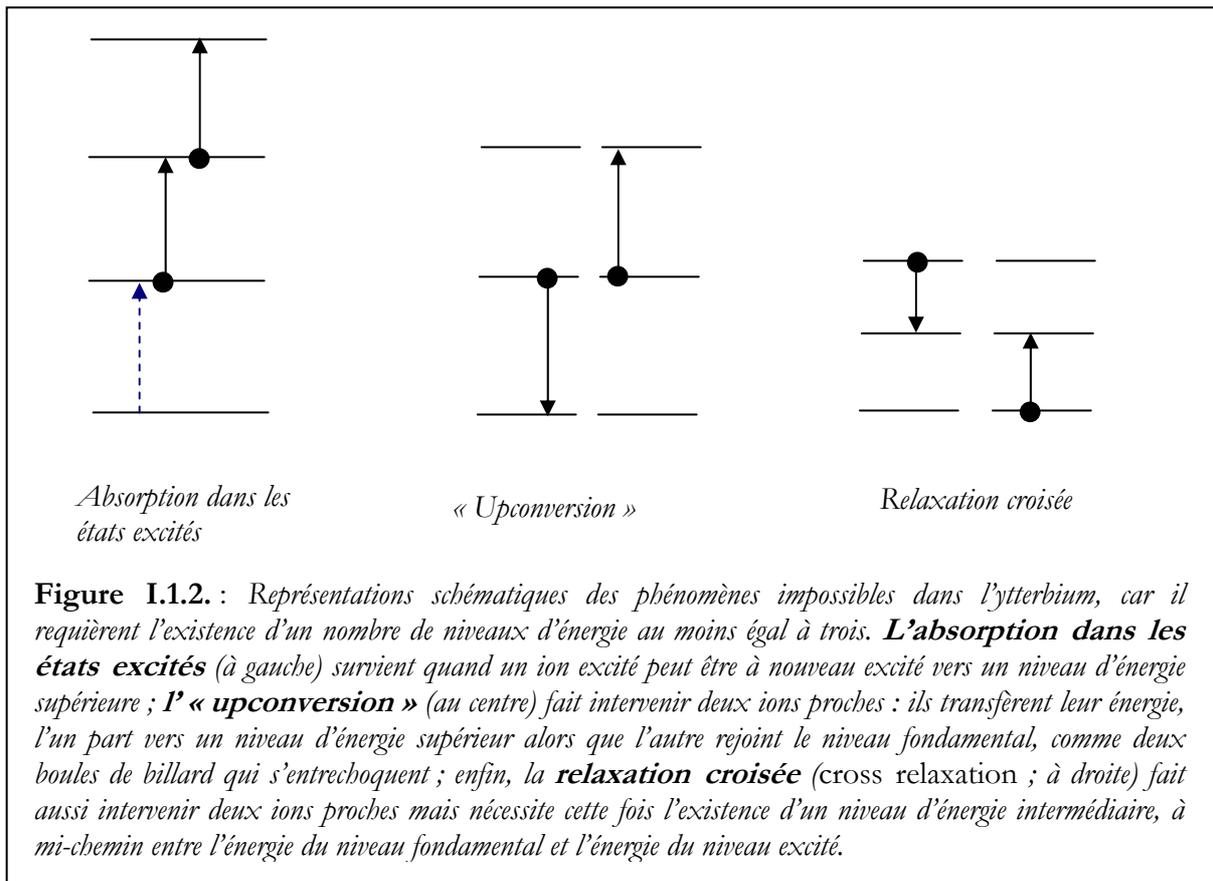
I.1.3. Phénomènes parasites dans l'ytterbium

Outre les phénomènes classiques (absorption, émission spontanée et stimulée), d'autres phénomènes plus « exotiques », faisant intervenir un ou plusieurs ions, sont susceptibles de se produire. Ils sont responsables d'une baisse de l'efficacité – car ils réduisent la population de l'état excité – et d'un échauffement du matériau, car certaines transitions sont non radiatives.

I.1.3.1. Les phénomènes absents

Ce sont tout simplement ceux qui font intervenir des niveaux d'énergie (réels) autres que le niveau fondamental et le niveau excité, car il n'y en a pas dans l'ytterbium (du moins dans le spectre optique).

Ces effets sont représentés schématiquement à la figure I.1.2.



Notons que si des impuretés sont présentes dans le cristal (par exemple des ions erbium ou thulium), il peut se produire des phénomènes comparables à ceux de la figure I.1.2., mais qui au lieu de faire intervenir deux ions Yb^{3+} proches, font intervenir un ion Yb^{3+} et un ion d'impureté, qui transfèrent leur énergie. C'est comme cela que l'on explique la présence d'une luminescence bleue et rouge dans certains des cristaux, qui peut être attribuée à la présence d'un autre ion luminescent (le rouge résultant d'un processus à deux photons, et le bleu d'un processus à trois photons). C'est le thulium par exemple qui a été identifié comme responsable de cette luminescence colorée dans notre échantillon d'YSO (voir [Gaumé 02]) , et c'est sûrement également le thulium qui est responsable de la même couleur dans l'Yb:SYS (voir photo⁵ I.1).

⁵ Je m'excuse ici auprès des lecteurs qui n'ont pas la couleur...

Notons que la présence d'holmium et d'erbium dans un échantillon d' Yb:YAG a donné naissance à une luminescence verte/rouge (voir [Yin 98]).

Dans tous les autres cristaux qui ont été étudiés (l'Yb:YAG, l'Yb:GGG, l'Yb:BOYS, l'Yb:CaBOYS, l'Yb:YCOB, l'Yb:GdCOB, l'Yb:KGW), il y a aussi de la luminescence visible, mais elle est toujours de couleur verte (voir photo I.2).

Elle pourrait être attribuée à l'erbium, mais il est plus probable — et cela a été démontré dans le cas de l'YCOB [Gaumé 02] — qu'il s'agisse d'un phénomène de **luminescence coopérative** [Nakazawa 70]. Il s'agit de deux ions très proches qui se désexcitent ensemble en produisant un seul photon, dont l'énergie vaut deux fois celle d'un photon de fluorescence⁶. À la différence des phénomènes parasites de la fig. I.1.2., le niveau d'énergie qui intervient est virtuel, ce qui signifie que cet effet peut se produire dans l'ytterbium.

Bien que très visibles à l'œil, ces effets sont négligeables d'un point de vue quantitatif : en

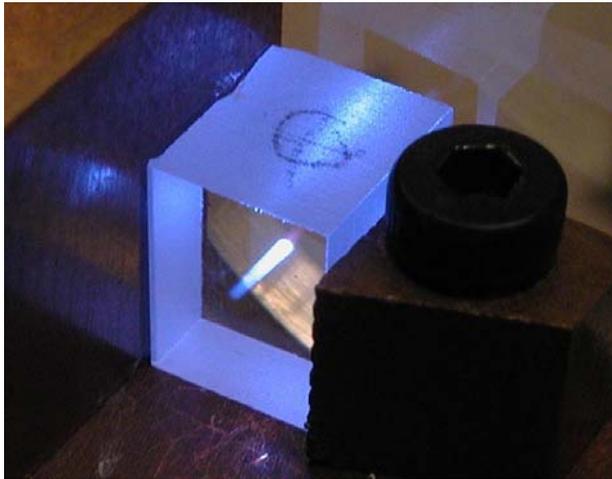


Photo I.1 : *luminescence visible observée dans un cristal d'Yb:SYS, attribuée à la présence de thulium. À l'œil on voit du bleu et du rouge mais la caméra utilisée ici n'est pas suffisamment sensible pour rendre le rouge.*

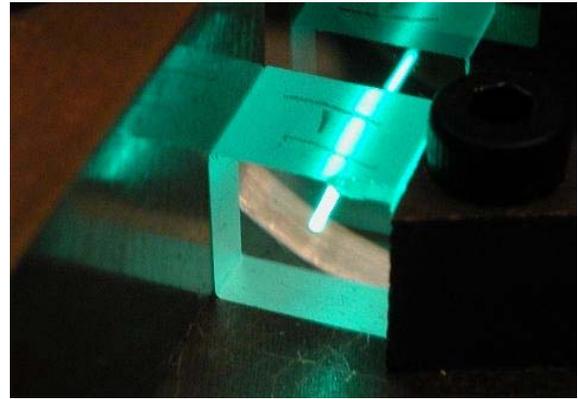


Photo I.2 : *Luminescence coopérative (verte), ici dans un cristal d'Yb:GdCOB dopé à 15 %.*

particulier la luminescence coopérative est typiquement 10^6 fois moins intense que la luminescence infrarouge [Nakazawa 70, Magne 94].

I.1.3.2. Les effets non radiatifs

Les effets parasites qui nous concerneront particulièrement (dans la seconde partie) sont les effets non radiatifs, c'est-à-dire ceux qui induisent une transformation de l'énergie lumineuse de la pompe en chaleur. Les deux seuls effets *a priori* susceptibles de survenir dans l'ytterbium sont les relaxations multiphonons et l'extinction de fluorescence par effet de concentration.

Les relaxations multiphonons sont des désexcitations purement non radiatives entre le multiplet excité $^2F_{5/2}$ et le multiplet fondamental $^2F_{7/2}$, selon le schéma de la figure I.1.3. Elles sont d'autant moins probables qu'il faut beaucoup de phonons pour descendre les quelques $10\,000\text{ cm}^{-1}$ qui séparent le niveau excité du niveau fondamental. Pour fixer les idées, dans une matrice comme l'YSO, l'énergie la plus élevée du spectre de phonons est de 1100 cm^{-1} [Li 92], ce

⁶ ce qui rend aisée l'identification d'un processus coopératif puisque le spectre obtenu dans le visible est l'autoconvolution du spectre d'émission infrarouge.

qui nécessite la présence de 8 phonons pour accomplir le processus : cela rend ce dernier *très improbable*.

L'extinction de la fluorescence par effet de concentration (en anglais : *concentration quenching of fluorescence*) est un phénomène qui n'a été mis en évidence de façon claire dans l'ytterbium que très récemment [Yang 02]. À l'origine de cet effet, on trouve le transfert de l'énergie d'excitation entre deux ions ytterbium proches, qui se fait soit de manière non radiative, soit par absorption/émission de photons. Ce dernier mécanisme est important dans l'ytterbium puisqu'il y a recouvrement des spectres d'absorption et d'émission. Un photon spontané émis par un ion excité au sein du solide peut donc statistiquement connaître plusieurs cycles successifs de réabsorption/émission. Cela a pour conséquence, à des concentrations élevées en ions ytterbium, d'augmenter la probabilité de tomber sur un « piège » de la fluorescence, une véritable trappe qui absorbe le photon et transforme toute son énergie en chaleur. Ces pièges peuvent être par

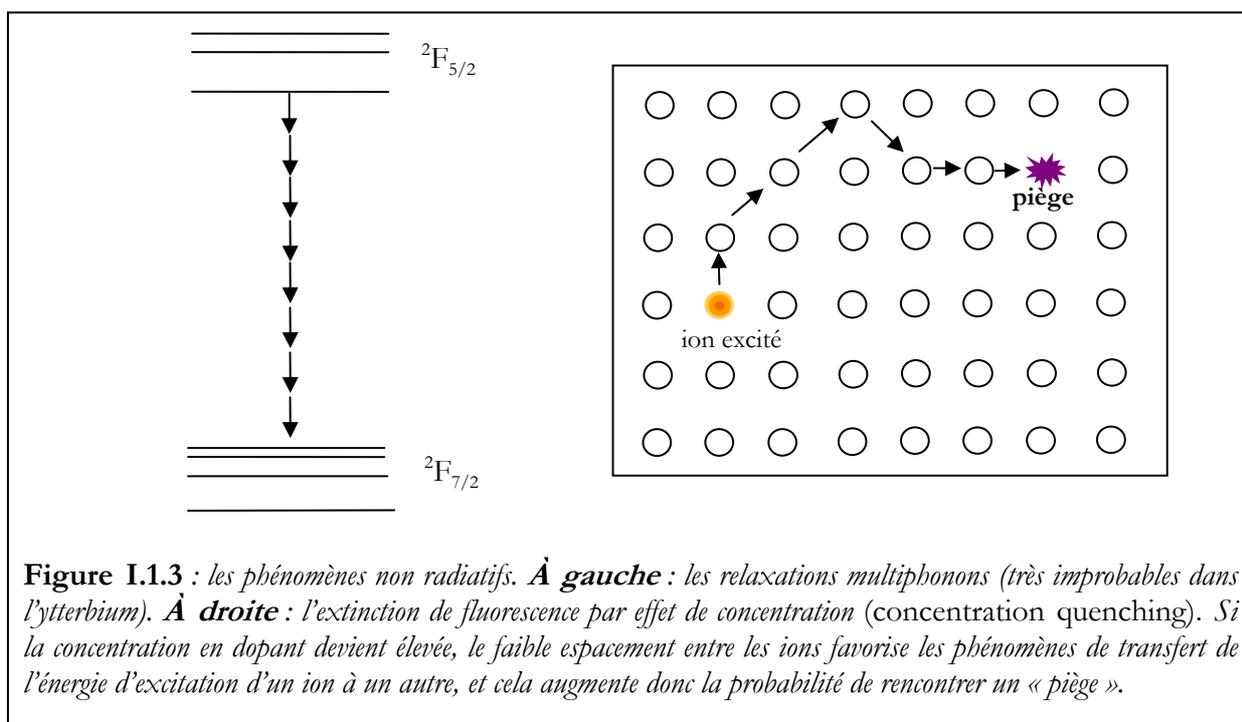


Figure I.1.3 : les phénomènes non radiatifs. **À gauche :** les relaxations multiphonons (très improbables dans l'ytterbium). **À droite :** l'extinction de fluorescence par effet de concentration (concentration quenching). Si la concentration en dopant devient élevée, le faible espacement entre les ions favorise les phénomènes de transfert de l'énergie d'excitation d'un ion à un autre, et cela augmente donc la probabilité de rencontrer un « piège ».

exemple des impuretés (erbium, holmium...) ou bien des ions OH^- et Yb^{2+} jouant le rôle de centres colorés⁷. Ce phénomène modifie également le temps de vie effectivement mesuré (voir [Gaumé 02] pour une étude sur le cristal d' Yb:BOYS).

⁷ Un centre coloré est un défaut ponctuel chargé : la charge en question se comporte donc vis-à-vis de son entourage comme si elle était dans une boîte quantique, avec des niveaux quantifiés. Quand l'énergie d'excitation est transférée vers un tel centre coloré, elle peut être perdue, par exemple, par cascades non radiatives et donc générer de la chaleur.

I.2. Les matériaux dopés à l'ytterbium pompés par diode : coup de projecteur sur la réabsorption et la saturation de l'absorption

Le *pompage par diode* de matériaux solides possède quelques particularités que nous ne pouvons pas décrire dans le détail ici. On se reportera en particulier à [Fan 96], [Hanna 99], ainsi qu'à [Druon 99] ou [Courjaud 91].

Nous insisterons ici sur deux aspects que l'on ne peut pas ignorer lorsque l'on s'intéresse aux matériaux dopés à l'ytterbium : ce sont les phénomènes de réabsorption et de saturation de l'absorption.

I.2.1. La réabsorption

La réabsorption à la longueur d'onde laser tire son origine du peuplement thermique du niveau bas de l'oscillation laser, lequel est situé à seulement quelques centaines de cm^{-1} du niveau fondamental (voir encadré « le peuplement thermique »). Sur les spectres, cela se traduit par un recouvrement des spectres d'absorption et d'émission aux courtes longueurs d'onde d'émission (comme le montrent tous les spectres qui illustrent le chapitre I.3 de ce mémoire).

La question naturelle qui se pose est la suivante : quelle est la proportion des ions ytterbium qui doit être portée dans l'état excité pour que le cristal devienne *transparent* à une longueur d'onde λ donnée ?

C'est bien de transparence dont il s'agit car, en l'absence de pompage, le milieu est absorbant à n'importe quelle longueur d'onde (comprise entre ≈ 970 et 1100 nm).

On appelle fraction de population excitée β le rapport :

$$\beta = \frac{N_2}{N} = \frac{\text{densité d'ions excités (dans le multiplet } ^2F_{5/2})}{\text{densité totale d'ions } Yb^{3+}} \quad (\text{I.2.1.})$$

où N_2 et N sont des densités de population, qui s'expriment en m^{-3} .

$\beta_{\min}(\lambda)$ est la fraction minimale d'ions à porter dans l'état excité pour assurer la transparence à la longueur d'onde λ . D'après l'encadré « Notations et équations de base des systèmes laser à quasi-trois niveaux » son expression est :

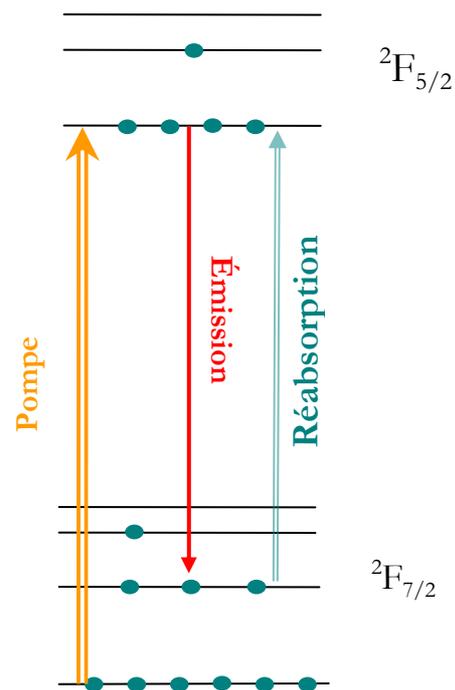


Figure I.2.1. : Réabsorption dans l'ytterbium.

$$\beta_{min}(\lambda) = \frac{\sigma_{abs}(\lambda)}{\sigma_{em}(\lambda) + \sigma_{abs}(\lambda)} \quad (I.2.2.)$$

Notations et équations de base des systèmes laser à quasi-trois niveaux

Plusieurs formalismes peuvent être utilisés pour décrire le fonctionnement laser de systèmes à quasi-trois niveaux. Sans rentrer dans le détail de ces différents formalismes (voir [Gaumé 02]), nous donnons ici les équations qui nous seront utiles. Elles s'appuient sur un modèle très simple mais très général, qui ne fait intervenir que des sections efficaces effectives (voir § I.1.2.) [Augé 00]. Cet encadré-formulaire donne les équations principales que nous serons amenées à utiliser (voir ce chapitre, et dans la 2^{ème} partie, § I.2 et annexe C).

Notations

I : intensité laser intracavité, en unités photoniques (en nombre de photons/m²/s) ;
 I_p : intensité de pompe incidente (en nombre de photons/m²/s) ;
 $\sigma_{em}(\lambda_l)$: section efficace (effective) d'émission stimulée à la longueur d'onde laser λ_l ;
 $\sigma_{abs}(\lambda_l)$: section efficace (effective) d'absorption à la longueur d'onde laser λ_l ;
 $\sigma_{abs}(\lambda_p)$: section efficace (effective) d'absorption à la longueur d'onde de pompe λ_p ;
 $\sigma_{em}(\lambda_p)$: section efficace (effective) d'émission stimulée à la longueur d'onde de pompe λ_p ;
 τ : temps de vie du multiplet ²F_{5/2} ;
 N : densité d'ions Ytterbium (déterminé par le dopage), en ions/m³ ($N = N_1 + N_2$) ;
 N_1 : densité d'ions dans le multiplet fondamental ²F_{7/2} ;
 N_2 : densité d'ions dans le multiplet excité ²F_{5/2}.

Expression de N_2 et de la section efficace de gain

L'équation de population s'écrit :

$$\frac{dN_1}{dt} = \frac{N_2}{\tau} + \sigma_{em}(\lambda_l) I N_2 + \sigma_{em}(\lambda_p) I_p N_2 - \sigma_{abs}(\lambda_l) I N_1 - \sigma_{abs}(\lambda_p) I_p N_1$$

d'où l'on déduit la population du multiplet excité à l'état stationnaire :

$$\beta = \frac{N_2}{N} = \frac{\sigma_{abs}(\lambda_p) I_p + \sigma_{abs}(\lambda_l) I}{(\sigma_{abs}(\lambda_p) + \sigma_{em}(\lambda_p)) I_p + (\sigma_{abs}(\lambda_l) + \sigma_{em}(\lambda_l)) I + 1/\tau}$$

Le **GAIN** linéique (tel que, par définition, $\frac{dI}{dz} = g I$) est défini par

$$g = \sigma_{em}(\lambda_l) N_2 - \sigma_{abs}(\lambda_l) N_1$$

On utilise souvent la **section efficace de gain** σ_g telle que $g = \sigma_g N$ qui vaut donc :

$$\sigma_g = \beta \sigma_{em}(\lambda_l) - (1 - \beta) \sigma_{abs}(\lambda_l)$$

Si $\sigma_g > 0$ il y a du gain à la longueur λ_l ; si $\sigma_g < 0$ le milieu est absorbant à λ_l .

L'intensité⁸ de pompe qui est nécessaire pour rendre le matériau transparent s'appelle *l'intensité de pompe de transparence*. Elle reçoit aussi quelquefois le nom *d'intensité de seuil sans pertes* mais tout le monde la note I_{\min} ⁹. C'est bien en effet du seuil d'oscillation laser dont il s'agit ici, mais en l'absence de toute autre perte dans la cavité. Dans un système laser de type 4 niveaux, cette « intensité de seuil dans pertes » est naturellement nulle puisque le niveau « du bas » n'est pas peuplé thermiquement, autrement dit le cristal est déjà transparent à la longueur d'onde laser quand il n'y a pas de pompage.

D'après les équations de base de population (rappelées dans l'encadré ci-dessus) cette intensité a pour expression (en unités photoniques, i.e. en nombre de photons/m²/s) :

$$I_{\min}(\lambda_l, \lambda_p) = \frac{1}{\left[\sigma_{\text{abs}}(\lambda_p) \times \frac{\sigma_{\text{em}}(\lambda_l)}{\sigma_{\text{abs}}(\lambda_l)} - \sigma_{\text{em}}(\lambda_p) \right] \tau_{\text{rad}}} \quad (\text{I.2.3.})$$

Quelles sont les conséquences de la réabsorption sur le fonctionnement laser ?

- Un seuil plus élevé que dans un laser à quatre niveaux puisqu'il faut d'abord franchir le seuil de transparence avant d'atteindre le seuil imposé par les pertes intracavité (et parmi ces dernières, nous comptons naturellement la transmission non nulle du miroir de sortie...). Les diodes laser permettent maintenant de disposer d'intensités de pompage qui sont bien supérieures aux valeurs typiques de I_{\min} ¹⁰, ce qui fait de cet inconvénient des lasers à quasi-trois niveaux un problème relativement mineur.
- Un comportement laser qui dépend de la température car la population du niveau bas (comme du niveau haut) de la transition laser est déterminée par le facteur de Boltzmann (voir encadré « le peuplement thermique »). La température qui règne dans le cristal est donc un paramètre fondamental dans ce type de laser, et nous consacrerons un chapitre entier à son calcul (dans la seconde partie, § I.2).
- Une longueur d'onde d'émission qui dépend des pertes intracavité (et donc de la transmission du miroir de sortie). La longueur d'onde d'oscillation, dans n'importe quel laser plus ou moins accordable, est celle qui « voit » le moins de pertes dans la cavité. Dans un laser ytterbium, cette condition n'est pas uniquement fixée par le spectre d'émission mais aussi par le spectre d'absorption en vertu de ce phénomène de réabsorption. On trouvera une explication détaillée de cet aspect dans [Courjaud 01].

⁸ L'intensité n'est pas à considérer ici avec son sens radiométrique strict [Meyzonnette & Lepine]. En toute rigueur, c'est d'un éclaircissement dont on devrait parler puisque c'est un flux par unité de surface. L'usage a cela dit largement consacré ce terme d'intensité.

⁹ À ce propos, signalons que la relation $I_{\min} = \beta_{\min} I_{p_{\text{sat}}}$ (voir déf. de $I_{p_{\text{sat}}}$ au § I.2.2) énoncée dans [DeLoach 93] (et reprise dans beaucoup de publications) n'est qu'approximative, et n'est vraie que pour un pompage à une faible longueur d'onde (par ex. à 940 nm pour l'Yb:YAG), et qui plus est quand la longueur d'onde laser est élevée (elle est établie avec l'hypothèse qu'il n'y a pas d'émission stimulée à la longueur d'onde de pompe ($\sigma_{\text{em}}(\lambda_p) = 0$), et aussi avec l'hypothèse que $\sigma_{\text{em}}(\lambda_l) \ll \sigma_{\text{abs}}(\lambda_l)$). Elle est donc à manipuler avec précautions, et devient franchement fautive lorsque le pompage se fait sur la raie à zéro phonon.

¹⁰ Par exemple, pour le GdCOB, à la longueur d'onde de 1032 nm (maximum du spectre d'émission), on a $I_{\min} \approx 3 \text{ kW/cm}^2$. En comparaison, l'intensité de pompe obtenue en focalisant 10 W sur une surface circulaire de 200 μm de diamètre est de 31 kW/cm².

Du point de vue de l'utilisateur, cela se traduit par le fait expérimental suivant : *la longueur d'onde laser diminue quand la transmission du coupleur de sortie augmente.*

Par exemple, dans le cristal d'Yb:GGG étudié (voir § I.4), la longueur d'onde d'oscillation observée expérimentalement est de 1038 nm avec un miroir de sortie dont la transmission est de 2 %, et elle devient 1022 nm avec un miroir de sortie dont la transmission est supérieure à 6 %.

- Une absorption optimale du cristal plus petite que 100 % (pour un pompage longitudinal par un seul côté). En général (dans les lasers néodyme par exemple), on cherche à maximiser le coefficient d'absorption pour absorber la plus grande fraction de la puissance de pompe disponible. Ce n'est pas le cas dans les lasers ytterbium. En effet, passée une certaine distance d'absorption dans le cristal, l'intensité de pompe passe *en dessous* de l'intensité de transparence, ce qui signifie que les dernières portions de cristal traversées sont absorbantes ! Il faut donc convenablement choisir la longueur du cristal pour que l'absorption soit largement inférieure à 100 %. Mais ce choix dépend de la puissance et de la qualité de faisceau de la diode de pompe, ainsi que de l'évolution de la puissance de pompe à l'intérieur du cristal. Ceci nous amène au problème particulièrement important de la saturation de l'absorption.

I.2.2. La saturation de l'absorption

Nous allons maintenant nous intéresser à l'absorption de la pompe dans le cristal. Nous nous contenterons de supposer ici que le faisceau de pompe ne diverge pas dans le cristal. L'influence de la divergence sera étudiée lorsque nous en aurons besoin, dans la seconde partie (au § I.2).

De façon générale, on a :

$$\frac{dI_p}{dz} = -(\sigma_{abs}(\lambda_p)N_1 - \sigma_{em}(\lambda_p)N_2)I_p \quad (I.2.4.)$$

Dans un laser à quatre niveaux, on considère généralement [Siegman] que toute la population est, à l'état stationnaire, concentrée dans le niveau fondamental. On dit souvent que le niveau fondamental n'est pas vidé, ou pour garder ce barbarisme courant, pas « déplété ». Dans ces conditions l'intensité de pompe suit la loi suivante dans le cristal :

$$\frac{dI_p}{dz} = -\alpha_{NS}^p I_p = -\sigma_{abs}(\lambda_p)N I_p \quad (I.2.5.)$$

où α_{NS}^p désigne le *coefficient d'absorption non saturé* à la longueur d'onde de pompe.

Saturation de l'absorption sans effet laser ($I = 0$)

Considérons ce qui se passe en l'absence d'effet laser. Pour que l'équation (I.2.5) reste valable, il ne faut pas que l'intensité de pompe soit trop forte, auquel cas l'absorption rentre en compétition avec les deux mécanismes qui tendent à faire revenir les atomes dans l'état fondamental : la fluorescence, et l'émission stimulée à la longueur d'onde de pompe. Dans les lasers à quatre niveaux ou, dans une moindre mesure, à quasi-quatre niveaux (par exemple l'Yb:YAG pompé à 940 nm ou l'Yb:GdCOB pompé à 902 nm), on peut dire que ce dernier phénomène est négligeable car le niveau haut de la transition de pompe n'est presque pas peuplé. Il en va tout autrement pour les matériaux ytterbium pompés sur la *zero line*, puisque la population du niveau

excité est alors significative. L'effet de saturation d'absorption est donc beaucoup plus fort dans ce dernier type de lasers.

Comparaison entre un absorbant saturable (= système à deux niveaux) et un matériau dopé Yb

En raison de l'existence de deux multiplets, il y a beaucoup de similitudes entre un matériau dopé Yb et un système à deux niveaux (autrement dit, un absorbant saturable). Il est alors intéressant de comparer les deux. En fait, les équations qui régissent ces deux milieux sont les mêmes (en l'absence d'effet laser). En particulier la population N_2 de l'état excité vaut dans les deux cas :

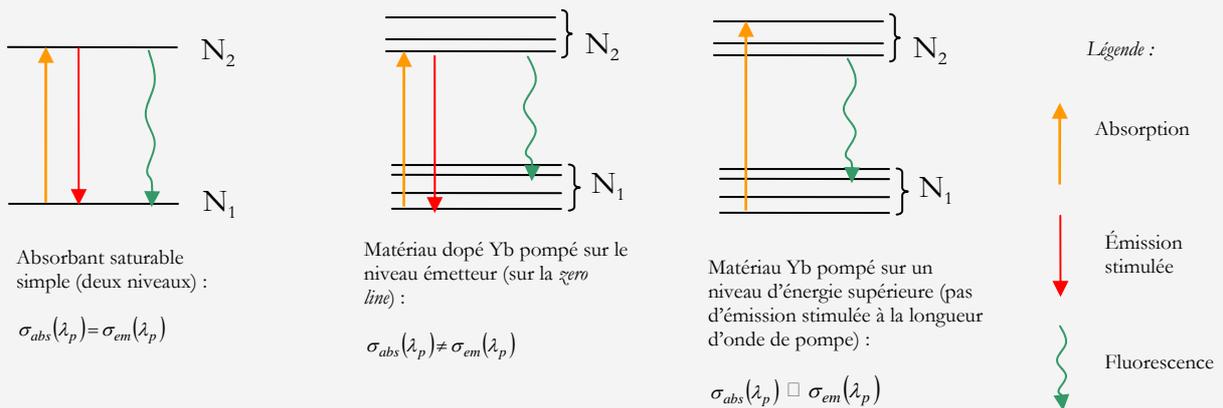
$$N_2 = \frac{\sigma_{abs}(\lambda_p) N \tau I_p}{1 + \frac{I_p}{I_{p_{sat}}}}$$

Lorsque le pompage est intense ($I_p \gg I_{p_{sat}}$) la population de l'état excité tend vers une limite :

$$N_2 \rightarrow N \frac{\sigma_{abs}(\lambda_p)}{\sigma_{abs}(\lambda_p) + \sigma_{em}(\lambda_p)}$$

ou bien : $\beta_{max} = \left(\frac{N_2}{N}\right)_{max} = \beta_{min}(\lambda_p)$.

Il faut alors distinguer trois cas, selon la valeur de la section efficace d'émission stimulée à la longueur d'onde de pompe (voir ci-dessous)



Dans l'absorbant saturable, $\sigma_{abs}(\lambda_p) = \sigma_{em}(\lambda_p)$, donc $\beta_{max} = \frac{1}{2}$: on peut mettre dans l'état excité au maximum la

moitié de la population totale. C'est un résultat bien connu, responsable du fait qu'il n'y a pas d'amplification possible dans un système à deux niveaux...

Dans le matériau dopé Yb **pompé sur le niveau émetteur**, la situation est presque identique, à la différence près que les sections efficaces d'absorption et d'émission ne sont pas forcément égales (voir § I.1.2). Par conséquent la fraction β_{max} d'ions « excitables » est toujours de l'ordre de $\frac{1}{2}$, mais peut être inférieure ou supérieure à cette valeur selon le matériau.

Dans le matériau dopé Yb **pompé sur un niveau d'énergie supérieur**, la section efficace d'émission stimulée à la longueur d'onde de pompe est très petite car le niveau « du haut » de la transition est très peu peuplé : l'intensité de saturation devient plus grande (voir éq. I.2.3) car il n'y a plus que la fluorescence pour faire « retomber » les ions excités vers le niveau fondamental. L'inversion maximale β_{max} peut dans ce cas être presque égale à 1.

Mais il n'est pas, pour autant, toujours plus intéressant de pomper un matériau dopé Yb à une longueur d'onde basse (voir à ce propos [Courjaud 01]), car les sections efficaces d'absorption sont souvent plus grandes vers 980 nm qu'à d'autres longueurs d'onde. De plus, pour les applications de puissance où les problèmes thermiques sont essentiels, il faut tout faire pour réduire le défaut quantique : pomper sur la raie à zéro phonon est alors un point très positif.

En reprenant les équations de l'encadré précédent, toujours en l'absence d'effet laser, on peut écrire :

$$\frac{dI_p}{dz} = \frac{-\alpha_{NS}^p I_p}{1 + \frac{I_p}{I_{p_{sat}}}} \quad (I.2.6.)$$

où l'intensité de pompe de saturation, $I_{p_{sat}}$ vaut (en unités photoniques) :

$$I_{p_{sat}} = \frac{1}{[\sigma_{abs}(\lambda_p) + \sigma_{em}(\lambda_p)] \tau} \quad (I.2.7.)$$

Il est instructif d'examiner ce qui se passe, en comparaison, dans un absorbant saturable, c'est-à-dire un système à deux niveaux : voir l'encadré de la page précédente.

Saturation de l'absorption avec effet laser ($I \neq 0$)

En présence d'effet laser, tout se complique. L'extraction laser ajoute un débit (évidemment loin d'être négligeable !) qui ramène les ions dans l'état fondamental. De telle sorte que même si l'absorption est saturée sans effet laser, on peut quand même retrouver la majorité des ions dans l'état fondamental à l'état stationnaire.

L'équation d'évolution de l'intensité de la pompe dans le cristal en présence d'une intensité laser I est donnée par (d'après l'éq. I.2.4) :

$$\frac{dI_p}{dz} = - \frac{\alpha_{NS}^p + \alpha_{NS}^l \frac{I}{I_{min}}}{1 + \frac{I_p}{I_{p_{sat}}} + \frac{I}{I_{L_{sat}}}} I_p \quad (I.2.8.)$$

$$\text{avec : } \alpha_{NS}^l = \sigma_{abs}(\lambda_l) N ; I_{L_{sat}} = \frac{1}{[\sigma_{abs}(\lambda_l) + \sigma_{em}(\lambda_l)] \tau} .$$

Conséquence sur la puissance absorbée

L'intensité de pompe employée dans nos expériences (de l'ordre de 30 kW/cm²) dépasse en général largement l'intensité de saturation $I_{p_{sat}}$ (qui vaut quelques kW/cm², pour un pompage sur la *zero line*). L'absorption est donc généralement saturée en l'absence d'effet laser. Lorsque l'oscillation laser a lieu, comme le montre l'éq. I.2.8, le régime d'absorption est intermédiaire entre le régime « saturé » et le régime « non saturé ». Cela est illustré à la figure I.2.2., où nous avons représenté les puissances absorbées mesurées expérimentalement dans un cristal d'Yb:GdCOB dans les trois régimes. Dans le cas « non saturé », le faisceau de pompe est élargi au maximum de telle sorte que sa taille soit la plus proche possible de celle du cristal (≈ 4 mm de diamètre) : on a dans ce cas une intensité de pompe (≈ 0.8 kW/cm²) inférieure à l'intensité de saturation (≈ 5 kW/cm²). On a ensuite focalisé la pompe sur un diamètre de 250 μ m (ce qui représente ici une intensité de 20 kW/cm²), et mesuré la puissance absorbée avec ou sans l'effet laser.

On constate qu'il y a presque un rapport 2 sur la puissance absorbée selon que la pompe est focalisée ou pas dans le cristal. Comme attendu, la puissance absorbée *en présence d'effet laser* est intermédiaire entre les deux cas précédents. L'allure ascendante des courbes est due au décalage spectral entre l'émission de la diode et l'absorption du matériau. En effet, lorsque l'on augmente

le courant de diode (à température fixée), la longueur d'onde d'émission change continûment : elle n'est accordée sur le pic d'absorption que pour le courant maximal (voir aussi chapitre suivant, § II.2)

Cette expérience montre aussi qu'il faut prendre un soin particulier à la mesure de la puissance absorbée.

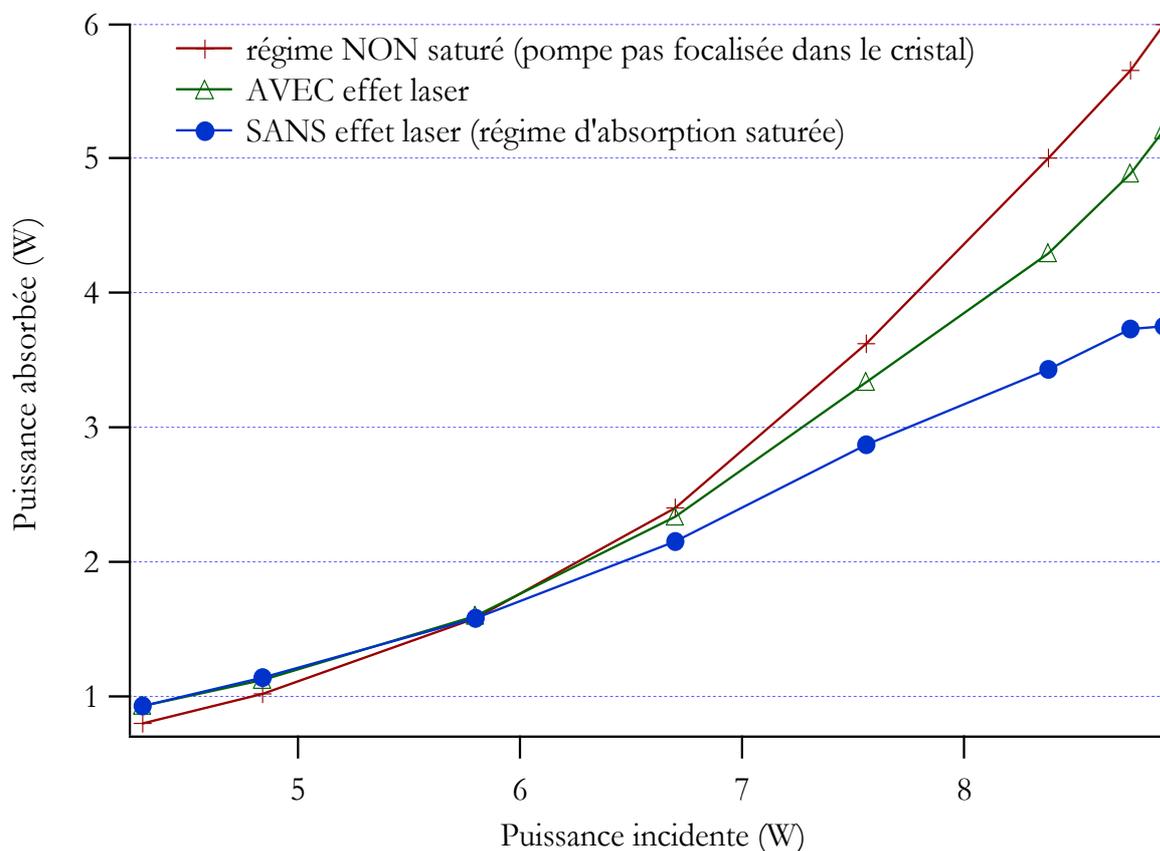


Figure I.2.2. : Puissance absorbée en fonction de la puissance incidente dans l'Yb:GdCOB. La longueur d'onde de pompe n'est pas fixe. Dans le cas dit « non saturé », le diamètre de pompe sur le cristal est de l'ordre de 4 mm ; pour les autres cas le faisceau est focalisé sur une tache de 250 μm de diamètre. Lorsque l'oscillation laser est permise, le cristal émet 2.7 Watts, pour 9 W de pompe incidente.

Conséquence sur le choix de la longueur optimale du cristal

Nous avons vu que la réabsorption à la longueur d'onde laser fixe une limite supérieure à la longueur du cristal, qui doit être telle que le cristal absorbe moins de 100 % de la puissance de pompe disponible, en fonctionnement laser. Le phénomène de saturation de l'absorption complique le problème de la détermination de la longueur optimale, car il est difficile de prévoir quel sera le « coefficient d'absorption » réel en présence d'oscillation laser, puisqu'on ne connaît pas (avant de faire l'expérience) la puissance laser obtenue en sortie. À ces deux aspects il faut rajouter celui du recouvrement entre le mode de pompe et le mode de cavité [Chen 96, Druon 99, Courjaud 01], puisque la pompe diverge de façon significative dans le cristal alors que le faisceau de cavité ne diverge pratiquement pas.

Il n'y a donc pas de calcul *simple* permettant de définir à l'avance quelle est la longueur optimale d'un cristal inconnu. Lorsqu'on peut le faire (c'est-à-dire si l'on dispose, avant de procéder à la