

Caractérisation pompe-sonde des matériaux laser solides à base d'ions de terres-rares ou ions de transition

Centre Interdisciplinaire de Recherches Ions Lasers
Equipe « Matériaux, Laser et Instrumentation »

UMR 6637 CEA-CNRS-ENSICAen, Université de Caen

Correspondants : J.-L. Doualan, R. Moncorge

Tél. 02 31 45 25 58/61, Fax. 02 31 45 25 57, E-mail :

richard.moncorge@ensicaen.fr, jean-louis.doualan@ensicaen.fr

L'équipe MIL (Matériaux et Instrumentation Laser) du laboratoire CIRIL de Caen s'est spécialisée, entre autres, dans la détermination précise des paramètres de fonctionnement laser des matériaux (cristaux et verres) dopés par des ions de terres rares (Ce^{3+} , Nd^{3+} , Er^{3+} , ...) ou des ions de transition du groupe du fer (Cr^{4+} , Cr^{2+} , ...). Leur pompage optique comme leur émission laser ayant lieu dans des domaines de longueurs d'onde très divers, allant de l'UV au moyen-infrarouge, les sections efficaces mises en jeu pouvant être très réduites (10^{-21} cm^2) ou très grandes (10^{-17} cm^2) et les temps de vie d'émission (quelques ns à quelques ms) très différents, il a fallu développer deux types de montage.

Ces montages reposent tous les deux sur la technique pompe-sonde, la source de pompage étant un laser à fréquence fixe ou accordable et la sonde une lampe à spectre large associée à un monochromateur. **Un premier montage** fonctionne exclusivement à partir de sources de lumière continue et la mesure est effectuée à travers deux détections synchrones disposées en série. Ce montage est plus particulièrement adapté à la **caractérisation de transitions optiques dans les états fondamental et excités des ions**, se caractérisant par de faibles sections efficaces et étant associées à des niveaux d'énergie de durées de vie longues, telles que les transitions optiques infrarouges des systèmes laser à ions de terres rares. **Le deuxième montage** développé à l'origine pour étudier les systèmes laser accordables dans l'ultraviolet à base d'ions de terres rares tels que l'ion Ce^{3+} fonctionne à partir d'une source laser à impulsions (impulsions de quelques ns à quelques dizaines de μs) et d'une lampe continue ou à impulsions. Ce montage est bien adapté à l'étude des systèmes laser dopés terres rares ou ions de transition associés à des sections efficaces moyennes (quelques 10^{-20} cm^2) et des durées de vie courtes (inférieures à quelques dizaines de μs). Il est également bien adapté à l'étude et à la **mesure de phénomènes d'absorption transitoires ou quasi-permanents** (formation de centres colorés) intervenant par exemple à la suite d'une irradiation UV intense (phénomènes de solarisation dans les cristaux pour laser à base d'ions Ce^{3+} , « grey-tracking » dans les cristaux non-linéaires tels que KTP).

Ces deux montages sont généralement fixes et peuvent être mis à la disposition de quiconque désirant mesurer de façon précise toutes les sections efficaces d'absorption et d'émission des ions de terres rares ou des ions de transition dans leurs états fondamental et excités dans un matériau donné. Il ne s'agit pas, néanmoins, d'expériences « presse-bouton » car de nombreux réglages sont nécessaires et doivent être optimisés en fonction du système étudié. En particulier, l'équipe MIL dispose d'un vaste éventail de sources laser, souvent fabriquées « maison » pouvant servir de sources de pompage optique et leur installation comme leur mise en œuvre nécessitent non seulement du temps mais aussi du savoir faire.

Les sources laser de pompage disponibles sont

1) pour les sources laser à fonctionnement continu :

- un laser Argon (8W) associé à un laser Titane-Saphir
- un laser Krypton (5W)
- un laser Nd :YAG émettant à 1.064 ou 1.32 μm
- un laser à centres colorés KCl :Tl (pompé par Nd :YAG) émettant entre 1400 et 1700 nm (500 mW)
- une diode laser fibrée (15 W) émettant à 790 nm
- une diode laser collimatée (4 W) émettant à 980 nm
- un laser YLF :Tm (pompé par diode laser) émettant à 1850-1900 nm (1 W)

2) pour les sources laser à impulsions :

- un laser Nd :YAG pompé par flash émettant à 1.064 μm , 532 nm(350 mJ), 355 nm (60 mJ) ou à 266 nm (35 mJ) associé soit à un OPO large bande (400-1700 nm), soit à une cuve Raman à CH_4 ou à H_2 , pour des rayonnements UV (par exemple 288, 315 nm, ...) comme des rayonnements IR de plusieurs mJ par impulsion
- un laser Nd :YAG pompé par diodes émettant à 1.064 μm (40 mJ), 532 nm(20 mJ), 355 nm, à 266 nm (6 mJ) ou à 213 nm (5 mJ) associé à laser Ce :LiSAF (1.5 mJ) accordable entre 280 et 310 nm)
- plusieurs chambres de pompage flash associées à une alimentation de forte énergie (500J) délivrant des impulsions de cadence et durée variable (50 μs à 5 ms en régime relaxée, quelques dizaines de ns en régime déclenchés) et des barreaux lasers pouvant émettre
 - autour de 850 nm (Ti :Sa, Cr :LiSAF)
 - autour de 1 μm (Nd :YAG, Nd :YAP, Nd :KGW)
 - autour de 1.54 μm (Er :phosphate)
 - autour de 1.9 μm (Cr,Tm,Ho :YAG)

La **figure 1** ci-dessous représente le schéma du montage pompe-sonde associé aux deux détections synchrones mentionnées plus haut. Il montre le cas d'un pompage par laser Titane-Saphir pompé par laser argon et d'une sonde constituée d'une lampe au Xénon à fonctionnement continu.

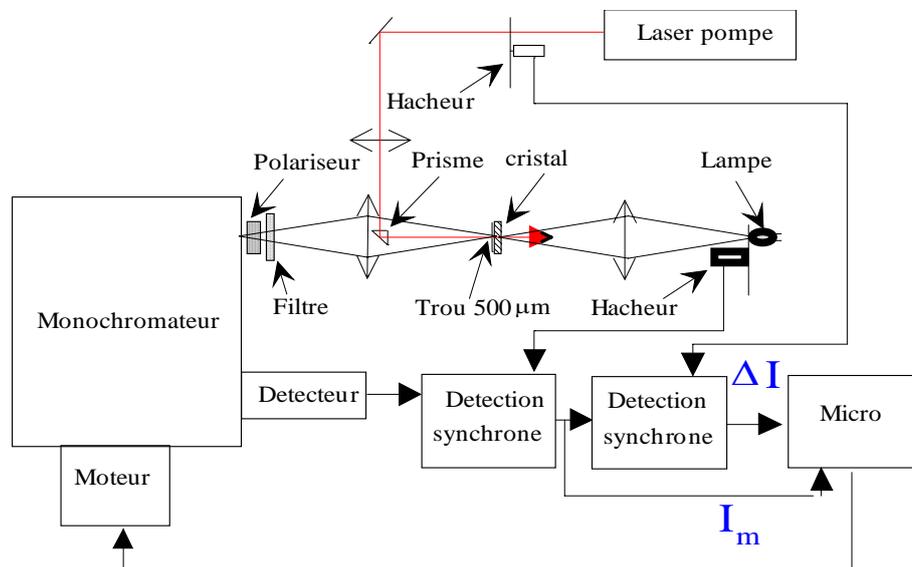


Figure 1 : Montage d'enregistrement de spectres d'absorption dans les états fondamental et excités des ions

Les faisceaux pompe et sonde se propagent en sens inverse, le faisceau pompe étant injecté à l'aide d'un petit prisme lequel sert également à stopper la lumière de pompe réfléctée par le cristal. Ce dernier est placé entre deux diaphragmes de façon à obtenir le meilleur recouvrement possible entre les deux

faisceaux. Un petit cache est également interposé sur le trajet du faisceau pompe en sortie du cristal pour éviter qu'il n'atteigne le filament de la lampe. Chacun des faisceaux est modulé à l'aide d'un hacheur mécanique sans aucune relation de phase entre eux. Dans la mesure des sections efficaces à partir du niveau $^4I_{13/2}$ de l'ion Er^{3+} par exemple (temps de vie radiatif de l'ordre de 10 ms), la fréquence de modulation du faisceau pompe ν_{pump} était de 10Hz tandis que celle du faisceau sonde ν_{probe} était de 1kHz. Dans ces conditions, si on suppose, en première approximation, une modulation sinusoïdale des faisceaux, le spectre de fréquence montre un fort signal à la fréquence ν_{pump} dû à la fluorescence du cristal induite par le faisceau pompe et un autre signal intense à la fréquence ν_{probe} (voir schéma 1). Mais deux signaux peu intenses apparaissent également aux fréquences $\nu_{probe} \pm \nu_{pump}$ dus à la variation du faisceau sonde transmis par le cristal lorsqu'il est soumis au faisceau pompe, cette variation étant généralement de l'ordre de 10^{-3} à 10^{-5} . La première DS est synchronisée à la fréquence ν_{probe} avec une faible constante de temps et fournit l'intensité transmise moyenne I_m . Le signal à la fréquence ν_{pump} est éliminée et les signaux aux fréquences $\nu_{probe} \pm \nu_{pump}$ sont décalés en fréquence de la quantité $-\nu_{probe}$. La deuxième DS, synchronisée à la fréquence ν_{pump} mesure alors la variation de transmission du faisceau sonde induite par le faisceau pompe ΔI . A chaque longueur d'onde, le micro-ordinateur enregistre ainsi deux valeurs ΔI et I_m à partir desquels on peut reconstruire les spectres de sections efficaces recherchés. Cette technique permet d'enregistrer des spectres de sections efficaces de gain ou d'absorption dans l'état excité de quelques 10^{-21} cm^2 avec une excellente résolution spectrale. Un exemple est donné sur la figure 2 (pour plus de détails, consulter la référence : [P. Le Boulanger, J.L. Doualan et al, Phys. Rev. B 60 \(1999\) pp11380-11390](#)).

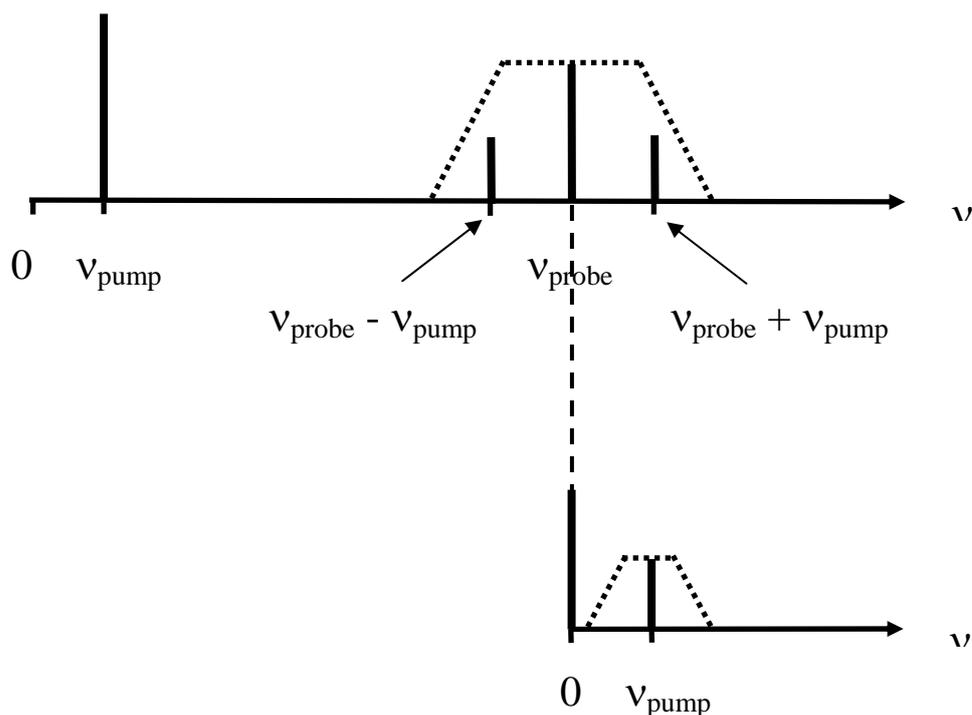


Schéma 1 : spectres de fréquence intervenant dans les mesures pompe-sonde à deux détections synchrones

La figure 2 représente le schéma du montage pompe-sonde utilisant un laser de pompage optique à impulsions et une lampe sonde au xénon à fonctionnement continu ou impulsionnel. Le schéma montre le cas d'un laser Nd:YAG quadruplé en fréquence pompant une cuve Raman. Des spectres d'absorption transitoires résolus en temps (à partir de quelques

ns) peuvent être ainsi enregistrés en lumière polarisée dans l'UV, le visible et le proche infrarouge en déclenchant la lampe et le laser extérieurement à l'aide d'un boîtier électronique. Une trace obtenue à l'oscilloscope dans le cas d'un pompage laser à 10Hz et d'une lampe au xénon à fonctionnement continu est représenté sur le schéma 2. Ce type de trace permet de mettre en évidence simultanément des absorptions de temps de vie très différents.

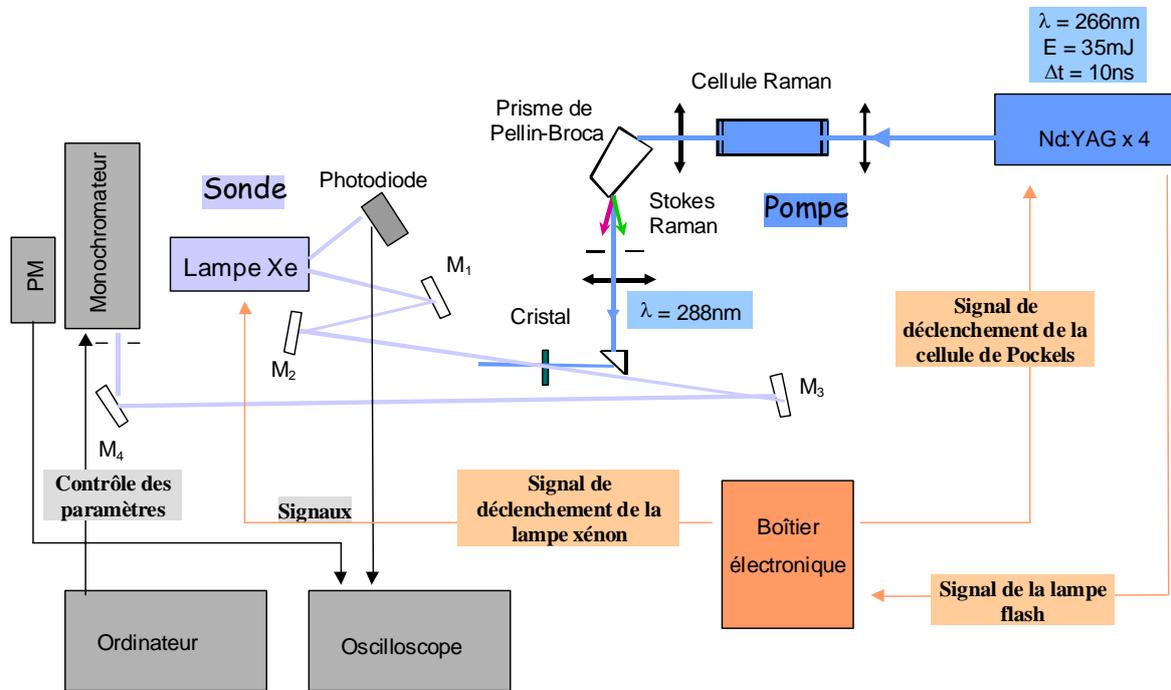


Figure 2 : Montage pompe sonde utilisant un laser de pompage optique à impulsion

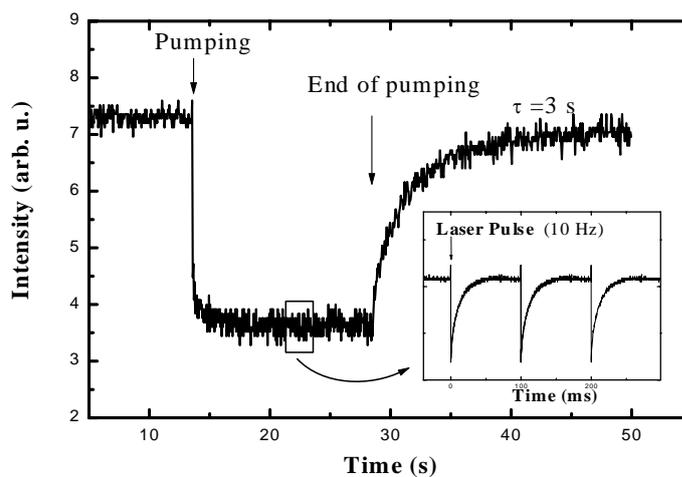


Schéma 2 : Exemple de trace obtenue à l'oscilloscope dans le cas d'une lampe sonde à fonctionnement continu montrant l'intervention de phénomènes d'absorption transitoires de temps de vie très différents.

