

Les matériaux laser et pour l'optique non linéaire

Jean-Paul Pocholle et Daniel Vivien

Summary

Solid state laser for non-linear optics

At first this paper describes semiconductor lasers which are the breakthrough of the last ten years in the field of solid-state lasers. Laser diodes allow optical pumping of laser crystals which are discussed in the second part of this paper. Solid-state crystalline lasers produce fixed or tunable laser beams with wavelengths ranging from UV to infrared. The last sections of this paper deal with non-linear optics which allows to modify the wavelength of an incident laser beam. Several inserts deal with the scientific bases of laser and non-linear-optics (laser operating principles, non-linear polarization, frequency conversion efficiency and phase matching), recent developments (quantum-well lasers, up-conversion lasers) and order of magnitude of the parameters involved.

Mots-clés

Matériau laser, optique non linéaire, laser à semi-conducteur, puits quantiques, pompage des laser par diode.

Key-words

Solid state laser, non-linear optics, semiconductor laser, quantum wells, laser diode pumping.

Au cours des dernières années, la percée la plus remarquable dans le domaine des lasers à l'état solide a incontestablement été celle des lasers à semi-conducteurs. Les diodes laser, qui seront présentées en première partie de cet article, ont permis de gagner au moins un ordre de grandeur sur le rendement électrique-optique des systèmes, sur leur durée de fonctionnement sans maintenance, ainsi que sur leur miniaturisation.

L'une des utilisations des lasers à semi-conducteurs est le pompage des lasers ioniques (monocristallins notamment) activés aux ions de transition ou des lanthanides, qui ont ainsi trouvé une seconde jeunesse. Dans ces systèmes, le cristal laser se comporte comme un convertisseur de faisceau, délivrant un rayonnement laser de haute qualité (proche de la limite imposée par la diffraction), avec un rendement de l'ordre de 50 %. Nous verrons dans la deuxième partie de ce document quelles sont les tendances actuelles dans le domaine des lasers à l'état solide massif, le lecteur étant renvoyé à l'article de J.-L. Adam pour les lasers en guide d'onde.

Nous concluons cet exposé en montrant le parti que l'on peut tirer de l'exploitation des phénomènes d'optique non linéaire – là encore une révolution de ces dix dernières années en matière d'optique cohérente – pour changer la fréquence d'un faisceau laser incident. Nous verrons ainsi, par exemple, comment on peut transformer un rayonnement

infrarouge en un rayonnement visible ou un faisceau laser UV en deux faisceaux cohérents (d'énergie complémentaire) accordables sur de très larges plages spectrales.

Les lasers à semi-conducteurs

Bien que la physique de ces sources de lumière cohérente entre dans le champ de la physique du solide, on doit les remarquables avancées observées à l'étroite collaboration menée avec les spécialistes de la chimie du solide et de l'optique physique. Ces développements ont donné naissance à l'optoélectronique. Les composants réalisés sont de loin ceux qui couvrent les plus larges domaines d'applications et à grande diffusion (stockage optique de l'information, imprimante laser, lecteurs de code-barre, télécommunications, micro-usinage, médical, pompage optique des lasers à l'état solide...). Cette spécificité est liée au haut rendement de conversion optique/électrique qui est voisin de 50 %. L'aspect miniature et la grande diversité des alliages de composés semi-conducteurs permettant de couvrir un large domaine spectral à l'émission (de l'UV à l'IR) expliquent ces développements. Le *tableau I* illustre ces propriétés.

On doit noter que ces évolutions sont à mettre au crédit des avancées technologiques menées dans le domaine de la croissance par épitaxie de couches de matériaux semi-

Tableau I - Principaux alliages utilisés dans les lasers à semi-conducteurs, domaines de longueurs d'onde d'émission et principaux ions activateurs susceptibles d'être pompés par ces diodes lasers.

Composition de l'alliage	GaN/AlN	AlGaInP/GaAs	GaAlAs/GaAs	InGaAs/GaAs	InGaAsP/InP	GaAsSb
Domaine spectral d'émission (nm)	300-450	630-680	780-840	960-1 000	1 300-1 600	2 000-2 200
Ions activateurs pompés		Cr ³⁺	Nd ³⁺ , Ho ³⁺ , Tm ³⁺	Yb ³⁺ , Er ³⁺	Er ³⁺	

Encadré 1 : Principe de fonctionnement d'un laser à l'état solide

L'effet laser (acronyme de « light amplification by stimulated emission of radiation ») utilise l'émission stimulée pour réaliser l'amplification de photons. Dans ce processus (*figure I*), un photon incident d'énergie égale à $E_2 - E_1$ déclenche l'émission d'un deuxième photon qui lui est identique en tout point (énergie, phase, direction de propagation). Le phénomène peut se répéter un grand nombre de fois dans le milieu à gain, produisant ainsi un flux très intense de photons tous identiques. Cependant, lorsque les espèces actives du milieu amplificateur sont dans l'état E_2 , le système peut également revenir à l'état E_1 par émission spontanée (*figure I*). Les photons sont alors émis dans n'importe quelle direction (émission incohérente).

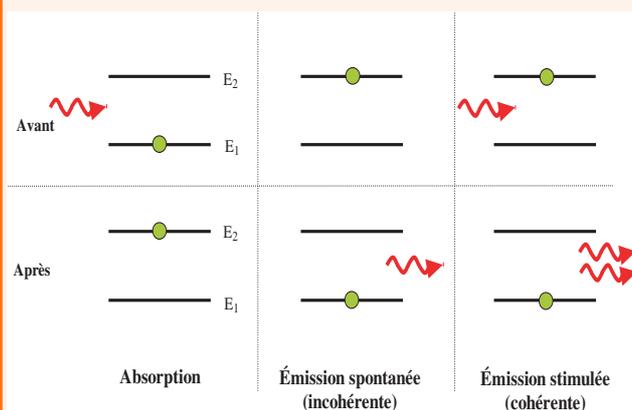


Figure I.

Pour s'affranchir de cette émission spontanée, on confine les photons dans une cavité laser constituée (dans son principe) de deux miroirs plans perpendiculaires à l'axe de propagation de la lumière (*figure II*). Dans ces conditions, seule l'émission stimulée, dont la probabilité croît avec la densité de photons dans la cavité, est favorisée. Une partie de l'énergie lumineuse stockée dans la cavité laser est extraite à travers le miroir de sortie M_s (*figure II*) dont la transmission est de quelques %. C'est cette fraction de photons qui constitue le faisceau laser.

A l'équilibre thermodynamique, la quasi-totalité des espèces actives du milieu sont dans l'état E_1 et le processus dominant est l'absorption optique (*figure I*). Il faut donc réaliser une inversion de populations pour les porter dans l'état E_2 , ce que l'on effectue grâce au pompage optique. Dans $Y_3Al_5O_{12}$ dopé néodyme

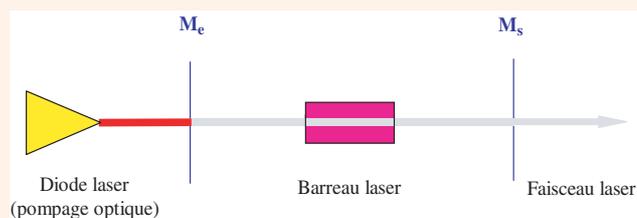


Figure II.

(YAG:Nd), matériau laser le plus utilisé actuellement, le pompage optique s'effectue selon un schéma d'énergie dit à quatre niveaux (*figure III*).

Par absorption d'un rayonnement convenable issu d'une lampe à décharge, ou mieux d'une diode laser (*figure II*), un grand nombre d'ions Nd^{3+} sont portés de l'état fondamental E_0 dans des états excités tels que E_3 , d'où ils subissent une désexcitation non radiative (multiphonons) qui les amènent à l'état E_2 . L'émission laser a lieu entre l'état E_2 , sur lequel s'effectue l'inversion de populations et l'état E_1 , puis les ions néodyme reviennent à l'état fondamental par désexcitation non radiative rapide. Avec Nd^{3+} , il est aisé d'obtenir une population d'ions dans l'état E_2 très supérieure à celle dans l'état E_1 et de produire un faisceau laser de puissance élevée.

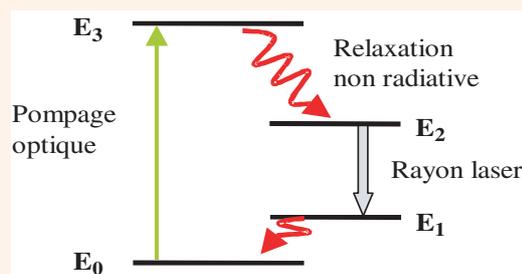


Figure III.

Les systèmes dans lesquels les niveaux E_0 et E_1 sont proches ou confondus sont dits respectivement de type pseudo-quatre niveaux ou trois niveaux. Dans ce dernier cas, il faut porter plus de la moitié des espèces actives dans l'état E_3 pour obtenir l'effet laser. Le rubis ($Al_2O_3:Cr^{3+}$), laser à 3 niveaux, donne des impulsions laser dont la puissance est de plusieurs ordres de grandeur inférieure à celle du laser YAG:Nd.

conducteurs ainsi qu'à l'ingénierie des structures réalisées. Ainsi, la technique d'épitaxie par jets moléculaires (EJM ou MBE : molecular beam epitaxy) a permis de réaliser des structures à puits quantiques, et ce sont ces avancées qui ont largement contribué aux développements spectaculaires des diodes lasers avec des puissances optiques à l'émission qui vont du mW à quelques 100 kW par assemblage de barrettes.

Les mécanismes qui gouvernent l'émission de photons dans les semi-conducteurs diffèrent de ceux mis en œuvre dans les milieux gazeux, liquides (colorants) ou solides ioniques. En effet, dans ces matériaux, les transitions rayonnantes (radiatives), sources d'une émission optique, ont lieu entre deux niveaux discrets (voir *encadré 1*). En revanche, dans les matériaux semi-conducteurs, la transition se développe

entre un ensemble de niveaux de la bande de conduction et un ensemble de niveaux de la bande de valence. La différence d'énergie entre ces bandes est appelée énergie de bande interdite (« band gap energy »).

Dans les matériaux semi-conducteurs, le processus d'émission lumineuse résulte d'une recombinaison entre une paire électron-trou. Le mécanisme d'excitation s'effectue au travers du passage d'un courant dans une jonction PN polarisée en direct. Cette jonction est obtenue en dopant les matériaux semi-conducteurs par des composés donneurs ou accepteurs d'électrons. C'est donc le processus de recombinaison qui génère des photons, lesquels sous certaines conditions vont exploiter le mécanisme d'émission stimulée, ouvrant la voie à l'émission laser (voir *encadré 1*).

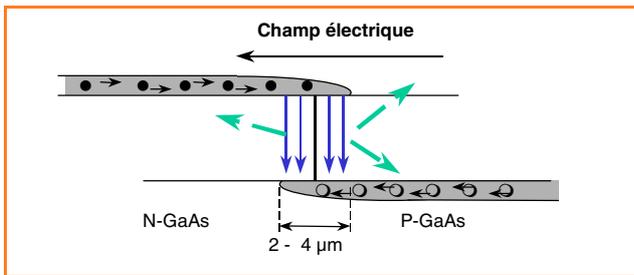


Figure 1 - Homojonction PN. Par application d'une tension en sens direct, les électrons sont injectés dans la région P et les trous dans la région N. Le processus de recombinaison radiative s'accompagne d'une émission de photons dont l'énergie correspond à l'énergie de bande interdite du matériau.

Les premières diodes laser étaient réalisées à partir d'une **homojonction** P-N (jonction entre deux matériaux de même nature au niveau des alliages, mais avec des dopages N et P). La *figure 1* illustre le mécanisme d'émission à partir d'une homojonction P-N polarisée en direct. Le courant injecté se traduit par un déplacement de charges (électrons et trous) qui se recombinent de manière « radiative » dans la zone active, définie par la longueur de diffusion (~ 100 μm). A la fin des années 60 et au début des années 70, Alferov et Hayashi ont démontré l'intérêt que présentait la **double hétérostructure**. Elle consiste à insérer entre les matériaux dopés P et N une fine couche de matériau semi-conducteur qui présente une énergie de bande interdite plus faible (*figure 2a*). Cette configuration permet de confiner spatialement les porteurs dans la zone de recombinaison. C'est cette idée qui fut le prélude au développement des diodes laser et à leur large diffusion, ainsi qu'à l'attribution du Prix Nobel de physique à Alferov en 2000.

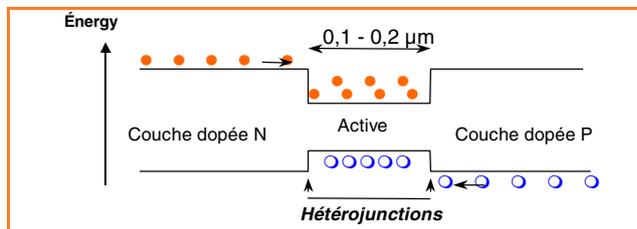


Figure 2a - Représentation schématique d'une double hétérostructure. Les porteurs électrons et trous sont confinés dans la zone active qui est le siège du processus de recombinaison.

Elle présente également l'avantage de pouvoir confiner l'onde optique en réalisant un guide d'onde, sachant que l'indice de réfraction de la zone de confinement (faible énergie de bande interdite) est supérieur à celui des zones dopées à énergie de bande interdite plus élevée (*figure 2b*).

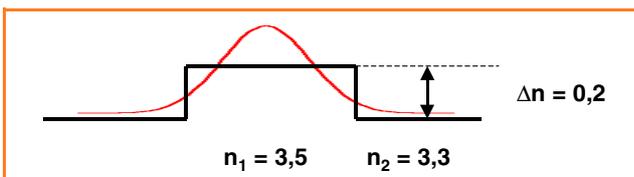


Figure 2b - Illustration de l'effet de guidage lié à la réalisation d'une double hétérostructure. On bénéficie ainsi d'un recouvrement spatial entre la zone à gain (recombinaison des porteurs) et la distribution du champ optique (mode transverse) représentée en rouge.

Par la suite, on a inséré dans la couche de confinement des structures à puits quantiques (voir *encadré 2*) qui ont permis d'ajuster spectralement la longueur d'onde d'émission tout en bénéficiant de rendements électro-optiques élevés et d'un coefficient de gain important.

Finalement, une diode laser peut être représentée par une structure où une zone sert à ce que le processus de recombinaison puisse s'effectuer de manière efficace, celle-ci étant prise en sandwich entre deux couches dopées respectivement P et N qui permettent l'injection de trous et d'électrons (*figure 3*).

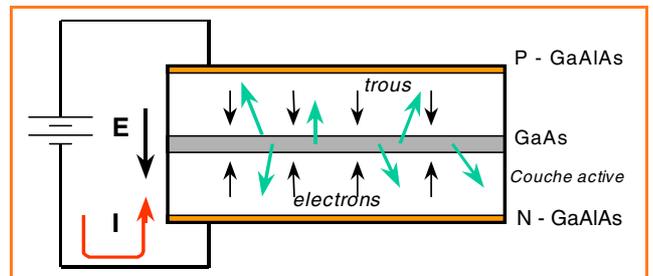


Figure 3 - Schéma d'injection et de polarisation d'une diode laser. Le champ E appliqué à la jonction est typiquement V/d, où V correspond à l'énergie de bande interdite de la couche active.

L'observation d'une émission cohérente de lumière (oscillateur optique) nécessite de disposer d'un milieu à gain optique (amplificateur) et d'une cavité résonnante (faisant office de boucle de contre-réaction). Généralement, dans les sources laser conventionnelles, la cavité est constituée de deux miroirs à fort pouvoir réflecteur (voir *encadré 1*). La forte valeur de l'indice de réfraction optique ($n > 3$) qui caractérise les composés semi-conducteurs fait que la réflectivité d'interface matériau-air est suffisante pour réaliser la fonction miroir ($R \sim 30\%$ par face). Par ailleurs, la valeur élevée du coefficient de gain rend suffisante ce coefficient de réflexion naturel pour obtenir une émission laser.

Afin d'obtenir un confinement bidimensionnel sur l'injection de courant, il est nécessaire d'accroître la résistivité autour de la zone où l'on souhaite que le processus de recombinaison puisse se développer. Pour cela, on peut utiliser la méthode d'implantation (*figure 4*) qui rend isolant latéralement une partie de la structure. Cette opération canalise le courant d'injection réalisant ainsi une émission laser localisée. La *figure 4* définit les grandeurs caractéristiques d'une section droite de diode laser GaAs.

La longueur de cavité est de quelques centaines de μm à quelques mm. *In fine*, une diode laser est géométriquement

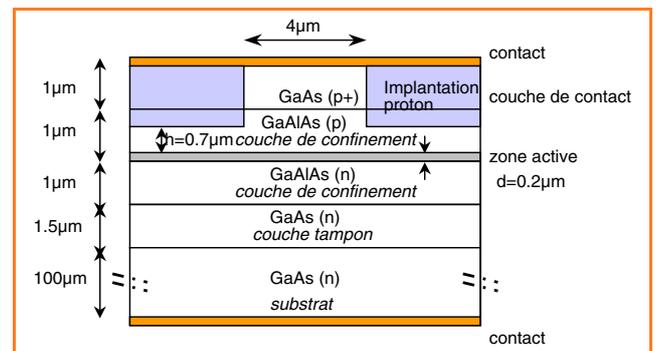


Figure 4 - Structure type d'une diode laser GaAs à puits quantique.

équivalente à un guide optique bidimensionnel d'une épaisseur de l'ordre de $1 \mu\text{m}$, d'une largeur de quelques μm et d'une longueur de quelques centaines de μm .

Encadré 2 : Structure à puits quantique

Sans qu'on le sache généralement, l'application la plus diffusée des principes élémentaires de la mécanique quantique est représentée par les diodes laser que l'on utilise quotidiennement dans la lecture de disques laser (CD, CD-Rom ou DVD) et de codes barres.

Une structure à puits quantique (*figure 1*) est obtenue par insertion entre deux couches épaisses d'un matériau B à large bande d'énergie interdite (matériaux de barrière) d'une couche plus mince d'un matériau A à plus faible bande d'énergie interdite (puits quantique). En jouant sur les alliages (i.e. sur la différence entre ces bandes interdites) et sur l'épaisseur L_z du matériau de puits A, on impose aux porteurs (électrons et trous) d'avoir des niveaux d'énergie discrets. Ces effets de quantification se manifestent dès que la largeur du matériau A est de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde de de Broglie ($\lambda_B = h/m^*v$), avec h constante de Planck, m^* et v respectivement masse effective et vitesse de l'électron dans le semi-conducteur considéré. Pour l'arséniure de gallium (GaAs), λ_B est de l'ordre de 300 \AA . Il faut donc réaliser des épaisseurs de couches L_z égales ou inférieures à cette valeur pour que des effets de quantification puissent se manifester.

Les techniques de dépôt de monocouches atomiques de composés semi-conducteurs représentées par l'épitaxie par jet moléculaire (EJM ou MBE pour molecular beam epitaxy), ou par l'épitaxie en phase vapeur MOCVD (metal organic chemical vapour deposition), permettent de réaliser des structures à multiples puits quantiques (MPQ) telles que celle présentée sur la *figure 1*.

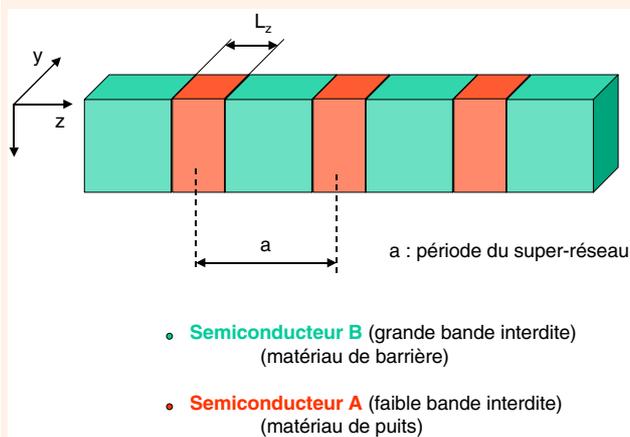


Figure 1 - Structure à multi-puits quantiques (MPQ ou MQW, multiple quantum wells).

La règle de quantification affecte le mouvement des porteurs sur l'axe perpendiculaire au plan des couches. Dans les deux autres directions, le mouvement des porteurs est libre, ce qui correspond à un gaz d'électrons (ou de trous) bidimensionnel (2D). On réalise ainsi un confinement des porteurs dans la zone de matériau A, ce qui revient à modifier sa structure de bandes. Avec cette dénomination, les porteurs dans un matériau massif sont décrits comme un gaz 3D.

Le matériau « artificiel » ainsi synthétisé possède des propriétés électronique et optique remarquables en termes

de mobilité des porteurs ou de définition spectrale du domaine de transparence. Ainsi, la bande interdite qui initialement correspondait à celle du matériau de puits massif, correspond désormais à la transition inter-bande entre deux niveaux d'énergie.

On est alors à même de contrôler spectralement le domaine de transparence (ou d'émission optique) en jouant sur l'épaisseur du matériau de puits, ou sur la différence d'énergie de bande interdite (gap) entre les alliages des matériaux semi-conducteurs A et B ; ce qui a pour conséquence de modifier la position de ces états quantiques.

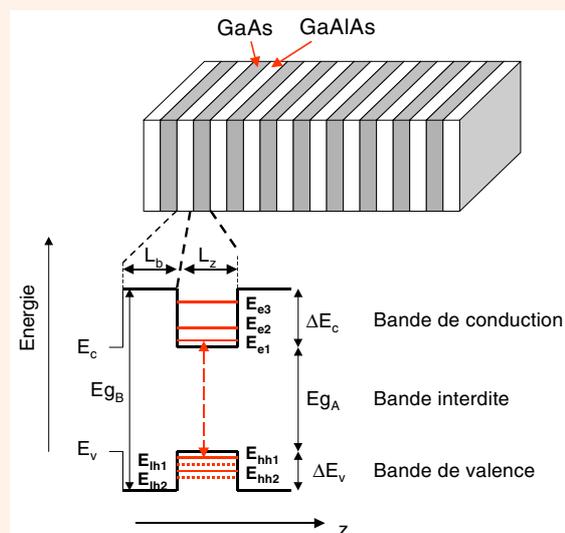


Figure 2 - Structure de bande et niveaux d'énergie occupés par les électrons (bande de conduction) et les trous (bande de valence) dans une structure à puits quantique. On notera l'existence de deux types de trous (lourd (hh) et léger (lh)).

La *figure 2* illustre les puits de potentiel associés à l'empilement de multicouches qui satisfont aux critères de puits quantiques.

Les propriétés optiques et électroniques initialement validées sur GaAs/GaAlAs ont contribué à ce que ces structures soient réalisées dans d'autres composés semi-conducteurs (III-V et II-VI) qui entrent dans la conception de diodes laser émettant sur divers domaines spectraux.

Des fils quantiques sont obtenus en fabriquant des motifs nanométriques dans deux directions. Dans ce cas, le gaz d'électrons présente un seul degré de liberté dans son mouvement et est de type unidimensionnel (1D). Enfin, les techniques d'usinage par faisceaux d'ions, d'attaque chimique ou de croissance sélectives permettent de réaliser des boîtes quantiques dans lesquelles les porteurs sont traités comme des systèmes à basse dimensionnalité de type 0D. Ces matériaux artificiels présentent des propriétés spécifiques de gain (plus d'un ordre de grandeur supérieur à celui obtenu avec des structures à MPQ) et des non-linéarités optiques géantes. Avec les avancées technologiques qui ne manqueront pas d'être au rendez-vous au cours du nouveau siècle, de telles structures contribueront certainement au développement des composants optoélectroniques du futur.

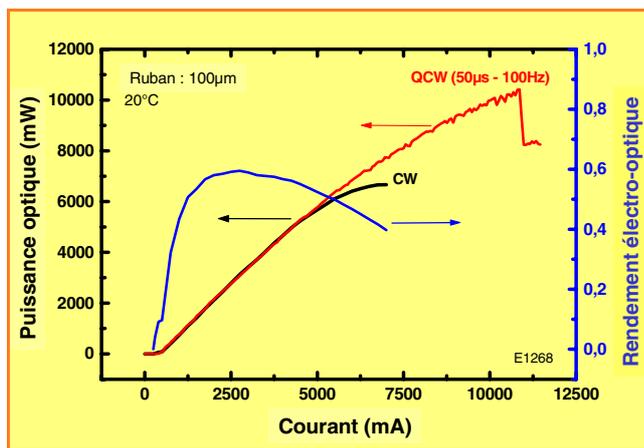


Figure 5 - Caractéristique électro-optique d'une diode laser GaAs mono-ruban de largeur 100 µm. (Thales Research & Technology).

qui sont employées dans les systèmes de transmission par fibres optiques.

Les améliorations observées au niveau de la qualité des matériaux épitaxiés ont également permis de développer des diodes laser de puissance. Ces composants ont largement contribué à donner une seconde jeunesse aux sources laser état-solide et à dynamiser les travaux de recherche et de cristallogénèse de nouveaux matériaux dopés par des terres rares ou par des ions métalliques de transitions adaptés à ce mode de pompage.

Ces diodes peuvent opérer en mode continu ou en mode quasi-continu avec des niveaux de puissance spécifiques. A titre indicatif, nous présentons sur la *figure 5* les caractéristiques d'émission d'une diode laser mono-ruban de largeur 100 µm. La puissance optique délivrée est de 6 W en continu et supérieure à 10 W en régime quasi-continu (durée 50 µs à la cadence de 100 Hz). Le rendement de conversion optique/électrique présente une valeur maximale proche de 60 %.

La réalisation d'une structure multi-rubans, qui consiste à multiplier le nombre de rubans élémentaires sur un même substrat, permet d'accroître la puissance émise en régime continu sur une barrette unique. La puissance optique délivrée par une barrette de 1 cm de large en régime continu est de l'ordre de 50 W. C'est ce type de composant qui peut être couplé à des milieux laser solide pour faire office de source d'excitation (pompage optique) et qui se substitue efficacement aux sources de pompage conventionnelles (flash, lampe).

La *figure 6* représente ce type de composant inséré dans son embase qui a pour fonction, outre celle d'alimenter la diode, de gérer la thermique. En effet, si la diode émet une puissance de 50 W en continu avec un rendement de 50 %, la puissance thermique à dissiper est du même ordre de grandeur que celle qui est émise. La forte dérive de l'énergie de bande interdite des matériaux semi-conducteurs avec la température et donc de la longueur d'onde émise impose de savoir gérer efficacement les effets thermiques. Par ailleurs, pour son utilisation en qualité de pompe optique, il est nécessaire d'ajuster et de contrôler la longueur d'onde sur une bande d'absorption de l'espèce (ions) que l'on cherche à exciter.

Il est également possible d'accroître la puissance délivrée en disposant côte à côte des émetteurs unitaires et en les associant à un système de refroidissement actif. De tels assemblages permettent d'obtenir des puissances optiques de plusieurs centaines de watts en continu.



Figure 6 - Barrette de diode laser émettant en continu. (Thales Laser Diodes).

Enfin, en régime quasi-continu, les niveaux de puissance crête délivrés peuvent être plus importants. Typiquement, la puissance délivrée par une barrette de 1 cm de large est de l'ordre de 120 W et l'assemblage sous forme d'empilement de barrettes permet de réaliser des sources de pompage de la classe de plusieurs kW crête. La *figure 7* illustre un tel montage incluant son système de refroidissement.



Figure 7 - Structure de diodes laser de puissance à empilement de barrettes opérant en régime quasi-continu (200 µs, 100 Hz). (Thales Laser Diodes).

Pour en savoir plus

- Yariv A., *Optical Electronics*, Holt, Rinehart and Winston, New York, **1985**.
- Botez D., Scifres D.R., *Diode laser arrays*, Cambridge studies in modern optics, Cambridge University Press, **1994**, 14.
- Rosencher E., Vinter B., *Optoélectronique*, Masson, **1998**.
- Casey Jr H.C., Panish M.B., *Heterostructure Lasers. Part A: Fundamental principles ; part B: Materials and operating characteristics*, Academic Press, **1978**.

Les matériaux pour laser à l'état solide

Depuis la première mise en évidence expérimentale de l'effet laser par Théodore Maiman en 1960, dans le rubis (monocristal d'alumine dopée chrome, $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{3+}$), les matériaux pour laser n'ont cessé de se diversifier. L'évolution

la plus marquante de ces dernières années est le remplacement des lampes utilisées pour le pompage optique des lasers à l'état solide par des diodes laser. Ces dernières permettent d'accroître la fiabilité, la stabilité, la miniaturisation des systèmes. En outre, les opérations de maintenance régulières (changement des lampes) sont supprimées. Quant au rendement électrique-optique de tels lasers pompés par diodes, il est multiplié par un facteur 5 à 10.

Dans ces systèmes, le matériau laser peut être considéré comme un convertisseur de faisceau. En effet, celui des

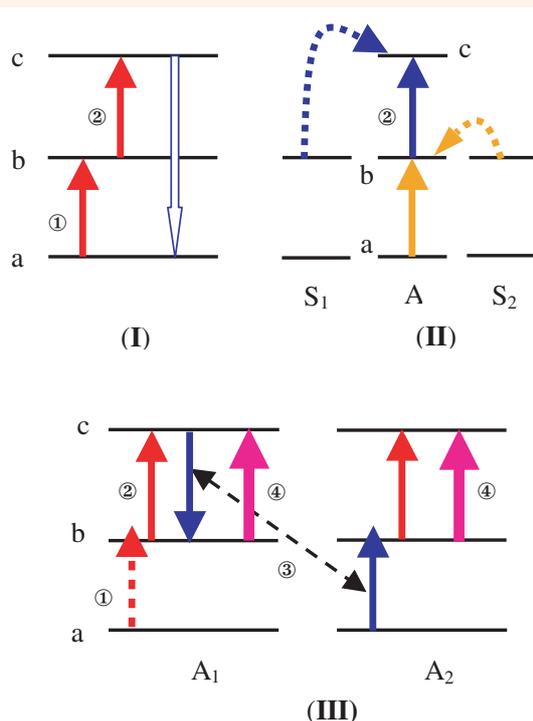
diodes est divergent alors que les matériaux laser peuvent produire des faisceaux à faible divergence (limités par la diffraction). De plus, la longueur d'onde du laser solide peut être différente de celle des diodes de pompage et adaptée à l'application considérée. Elle est en général plus grande, mais on sait depuis une dizaine d'années qu'il existe aussi des lasers dits à « up conversion » (voir encadré 3) qui émettent à une longueur d'onde plus courte que celle d'excitation.

Les lasers solides peuvent fonctionner selon divers modes : continu, relaxé (trains d'impulsion de quelques dizaines de

Encadré 3 : Les phénomènes d'addition de photons (« up conversion »)

En général, la fluorescence d'un composé s'effectue à une longueur d'onde plus grande (une énergie plus faible) ou à la limite identique à celle de l'absorption qui l'excite.

Il existe cependant des cas où c'est l'inverse. Une excitation dans l'infrarouge engendre une fluorescence visible par exemple. On parle alors de fluorescence anti-Stokes, de phénomène de « up conversion », d'addition de n photons. Ces phénomènes s'observent principalement sous excitation laser. L'intensité de l'émission qu'ils engendrent croît approximativement comme la puissance $n^{\text{ième}}$ du rayonnement excitateur. Il existe plusieurs mécanismes de « up conversion » qui sont présentés schématiquement sur la figure.



(I) Absorption successive de deux photons

Ce mécanisme est observé par exemple dans le verre fluorozirconate ZBLAN dopé Ho³⁺. Dans un premier temps, l'absorption de photons fait passer des ions Ho³⁺ de l'état a à l'état b. Comme b a une durée de vie longue (d'autant plus que dans une matrice fluorée, les fréquences de phonons sont faibles de sorte que les processus de désexcitation non radiative des niveaux d'énergie sont peu

probables), la population d'ions holmium dans cet état devient significative. Si la séparation entre les états c et b est identique à celle des états b et a (en pratique, c'est aisément réalisé car les niveaux d'énergie ont une certaine « largeur » par suite de leur éclatement en plusieurs sous-niveaux sous l'action du champ cristallin), une absorption de photons à partir de l'état excité b peut se produire. Une fraction des ions Ho³⁺ passe alors dans l'état c.

La lumière émise par les ions qui transitent de c vers a a une énergie double (une longueur d'onde moitié) de celle utilisée pour l'excitation.

(II) Addition de photons par transfert d'énergie (APTE)

C'est le phénomène responsable de l'émission verte de l'erbium sensibilisée par l'ytterbium dans une grande variété de matrices cristallines ou vitreuses. Les ions Yb³⁺ sensibilisateurs absorbent le rayonnement d'excitation à ~ 960 nm. Deux ions Yb excités dans leur niveau ²F_{5/2} transfèrent leur énergie à un ion Er³⁺ qui se trouve ainsi porté dans l'état c (ici ⁴S_{3/2}) à partir duquel se produit la fluorescence vers 550 nm.

(III) Avalanche de photons

Ce phénomène, surtout étudié depuis une dizaine d'années, est observé par exemple dans LiYF₄ dopé Tm³⁺. Sous excitation dans le rouge à 630 nm, on observe une émission du thulium dans le bleu à 483 nm. L'excitation lumineuse est effectuée au moyen d'un faisceau laser d'énergie correspondant à la transition b → c. Dans un premier temps, celle-ci n'a pas lieu puisque l'état excité b n'est pas peuplé. Toutefois, il suffit que l'un des ions activateurs, dénommé A₁ ici, absorbe le rayonnement incident pour passer de son état fondamental a à b, dans un processus non résonnant assisté par phonons par exemple, pour enclencher le mécanisme. A₁ passe à l'état c par absorption du rayonnement excitateur, puis interagit avec un voisin A₂ initialement dans l'état fondamental. Après relaxation croisée entre A₁ et A₂, ces deux ions se retrouvent dans l'état b à partir duquel ils peuvent réabsorber l'excitation pour passer en c puis interagir chacun avec un ion voisin donnant alors 4 ions dans l'état b et ainsi de suite. Au-delà d'un certain seuil de puissance d'excitation, on observe une fluorescence correspondant au retour des ions A à l'état fondamental à partir de leur état d'énergie excité c.

Le premier effet laser à « up conversion » à température ambiante a été obtenu en 1990 dans LiYF₄:Tm. Depuis, de nombreux systèmes laser, utilisant les trois processus décrits précédemment, ont été observés notamment dans des fibres optiques dopées dans lesquelles on tire parti du confinement des photons d'excitation et de la grande longueur d'interaction photons-matière.

Encadré 4 : Femtosecondes, giga-volts et peta-watts

Rappelons que l'éclairement optique (W/m^2) est relié à l'amplitude du champ électrique E (V/m) associé à l'onde optique par la relation :

$$I = \frac{c\epsilon_0 n}{2} |E|^2$$

où n est l'indice de réfraction du milieu dans lequel se propage le faisceau laser, c la célérité de la lumière et ϵ_0 la constante diélectrique du vide.

Ainsi, à un éclairement de $1 \text{ GW}/m^2$ correspond une amplitude du champ électrique de $\sim 8,6 \text{ MV}/m$. On conçoit dès lors que cette forte valeur du champ puisse interagir avec les électrons de valence du milieu de propagation. C'est l'origine des phénomènes d'optique non linéaire.

On peut relier une durée temporelle $\Delta\tau$ à une grandeur spatiale via la relation :

$$\Delta z = c \times \Delta\tau$$

Ainsi, la propagation d'une impulsion de durée 10 fs ($10 \cdot 10^{-15} \text{ s}$) dans l'atmosphère revient à représenter l'impulsion par une feuille de $3 \mu\text{m}$ d'épaisseur qui se déplacerait à la vitesse de la lumière.

La relation entre la durée $\Delta\tau$ et la plage spectrale $\Delta\nu$ d'une impulsion s'exprime au travers de la condition (relation d'Heisenberg) :

$$\Delta\nu\Delta\tau = 1$$

ce qui peut encore s'exprimer en fonction de la longueur d'onde λ et de sa largeur spectrale $\Delta\lambda$ par la relation :

$$\Delta\lambda = \left| \frac{\lambda^2}{c\Delta\tau} \right|$$

Ainsi, si l'on cherche à réaliser une source laser qui délivre des impulsions de durée 10 fs , il faudra disposer d'un milieu à gain qui devra présenter une largeur spectrale d'émission de 333 nm au voisinage de $1 \mu\text{m}$.

Si cette source délivre une énergie W par impulsion de 10 mJ , la puissance crête P_c peut être estimée au travers

de la relation simplifiée :

$$P_c \sim \frac{W}{\Delta\tau}$$

On obtient donc une puissance crête instantanée de 1 PW (peta-watt : 10^{15} W). Cette impulsion focalisée sur une surface de 1 mm^2 donnera un éclairement pour lequel la composante champ électrique sera de $27 \text{ GV}/m$.

On doit cependant rappeler qu'à cette énorme puissance crête n'est associée qu'une faible puissance moyenne :

$$P_{\text{moy}} = W \times F = P_c \frac{\Delta\tau}{T}$$

où F est la fréquence de récurrence des impulsions, T la période. Le rapport $\Delta\tau/T$ est encore dénommé taux de remplissage. Dans l'exemple pris, à une cadence de 100 Hz , la puissance moyenne est de 1 W .

Compte tenu de ces caractéristiques extrêmes, on conçoit qu'une nouvelle physique de l'interaction lumière-matière puisse voir le jour (ionisation multi-photonique, création de particules et d'antiparticules, accélération de particules par faisceau laser...).

Par ailleurs, à cette échelle temporelle (sub-ps), les phénomènes de diffusion de la chaleur ne peuvent affecter l'interaction lumière-matière et une ablation de type athermique se développe. Ce mode de couplage permet de réaliser la gravure de micromotifs ou de réaliser le micro-usinage de matériaux ou de composants électroniques avec des motifs de grande précision et des flancs abrupts. Ceci explique pourquoi les sources femtosecondes font l'objet d'intenses travaux de recherche au niveau international.

Pour en savoir plus

- Gauduel Y., coordinateur, Les femtosecondes, *L'Act. Chim.*, numéro spécial, février 2001.

microsecondes, à une fréquence de 10 Hz) ou déclenché (impulsions de quelques nanosecondes à une fréquence pouvant atteindre le kHz). De plus, lorsque l'espèce active du matériau laser donne une bande d'émission large (cas de certains ions de transition comme Ti^{3+} par exemple), le matériau se prête à la production d'impulsions laser ultracourtes (voir encadré 4) dont la durée peut descendre à quelques femtosecondes (10^{-15} s).

Les matériaux à large bande d'émission permettent la réalisation de sources laser accordables, tandis que les ions émetteurs à raies fines (ions lanthanides, tels que Nd^{3+} ou Yb^{3+} ...) produisent des faisceaux laser à longueur d'onde fixe, mais qui peuvent atteindre des puissances de plusieurs kW .

Un domaine d'application de haute technologie pour les terres rares

L'ion activateur Nd^{3+} , dans des matrices telles que le grenat d'yttrium aluminium $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (YAG) où il se substitue à l'ion yttrium à une teneur de 1% environ, est de très loin le plus utilisé pour la réalisation de lasers à l'état solide à longueur d'onde fixe. Il peut être pompé par diodes laser à 808 nm et émet dans l'infrarouge à 1064 nm (figure 8).

Les lasers YAG:Nd ont un grand nombre d'applications, notamment dans l'industrie : découpe et perçage des matériaux les plus divers, soudure et traitements de surface des métaux..., mais aussi en thérapie médicale et microchirurgie, pour la recherche scientifique etc.

Pour les très fortes puissances (chaîne laser mégajoules pour l'étude de la fusion thermonucléaire contrôlée par exemple), la taille des cristaux laser disponible n'est plus suffisante. On est alors conduit à utiliser des verres phosphates ou fluorophosphates dopés néodyme pour les étages d'amplification de ces lasers. Le problème vient alors des mauvaises caractéristiques thermomécaniques des verres, d'où une cadence d'impulsions réduite (une toute les 10 minutes au minimum). C'est ce qui empêche actuellement l'obtention de la fusion thermonucléaire contrôlée par la méthode du confinement inertiel. L'énergie requise par impulsion laser pour ce faire serait réalisable avec les technologies disponibles, mais c'est le taux de répétition des tirs (il faudrait atteindre 10 Hz) qui est inaccessible à l'heure actuelle.

Dans la pratique, les matériaux lasers sont le plus souvent des monocristaux qui ont été découpés et usinés sous forme de barreaux, disques ou plaques. La figure 9 montre quelques cristaux lasers bruts d'élaboration ainsi qu'un barreau laser.

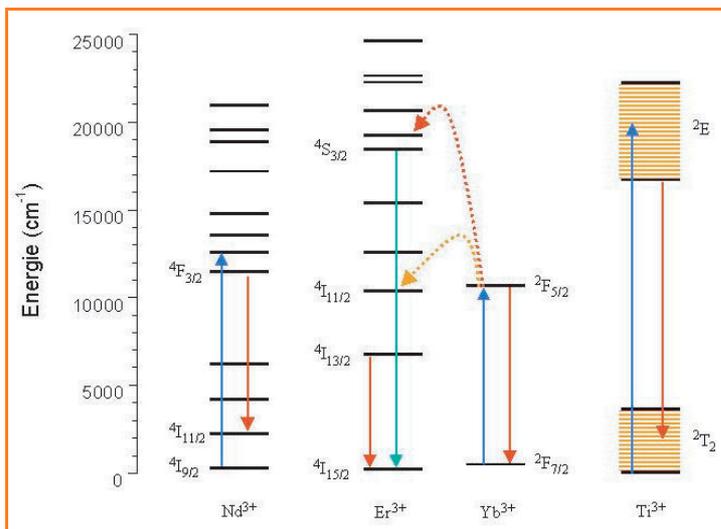


Figure 8 - Diagramme des niveaux d'énergie et transitions optiques (absorption ou émission) pour quelques ions lanthanides dans $Y_3Al_5O_{12}$ (YAG) et pour Ti^{3+} dans Al_2O_3 (« saphir-titane »). Pour Nd^{3+} et Yb^{3+} , le pompage optique s'effectue directement au moyen d'une diode laser. Le système $Al_2O_3:Ti^{3+}$ est en général pompé par un laser YAG :Nd doublé en fréquence (532 nm). Comme les deux niveaux d'énergie de Ti^{3+} sont larges, par suite d'un fort couplage électron-phonon, l'émission laser peut être accordée entre 700 et 1 050 nm environ.

Er^{3+} est le plus souvent excité par transfert d'énergie à partir de Yb^{3+} introduit comme co-dopant. Un premier transfert porte Er^{3+} dans l'état $4I_{11/2}$ qui se désexcite par un processus non radiatif sur l'état $4I_{13/2}$ d'où s'effectue l'émission laser vers 1,55 μm , longueur d'onde dite « à sécurité oculaire ». Er^{3+} peut aussi subir un deuxième transfert d'énergie à partir d'un autre ion Yb^{3+} excité. Il est alors porté dans un état de plus haute énergie (« up conversion » par processus APTE, voir encadré 3) d'où il émet un rayonnement vert à 540 nm.

Les lasers puces

Dans le domaine des faibles puissances, des microlasers (encore dénommés lasers puces ou « micro-chips ») au néodyme (tel que NdP_5O_{14}) ont été démontrés dès 1976, en vue de réaliser des sources pour télécommunications optiques. La technique a connu récemment un regain d'intérêt avec l'avènement des diodes laser fibrées pour les pomper.

Ces lasers, dont la taille est de l'ordre de 1 mm^3 , sont fabriqués par des techniques collectives, comme en micro-électronique, ce qui permet d'atteindre des coûts abordables et d'envisager des applications de masse : marquage des objets sur les chaînes de fabrication (par exemple les bouteilles d'eau minérale, les emballages alimentaires ou pour cosmétiques), réalisation de dispositifs anticollision pour automobile, etc.

Le processus de fabrication des lasers puces part d'une tranche de cristal du matériau actif de 1 mm d'épaisseur. On utilise principalement le YAG :Nd ou $YVO_4:Nd$, ce dernier présentant des sections efficaces d'absorption et d'émission plus élevées, ce qui est un avantage vu la faible épaisseur. On dépose sur une des faces du disque (par exemple au moyen de la technique d'épitaxie en phase liquide) une couche d'absorbant saturable (YAG : $Cr^{4+}:Ca^{2+}$) de quelques microns qui joue le rôle d'un « interrupteur de photons » lors du fonctionnement pulsé, puis les miroirs formant la cavité laser. Il n'y a plus qu'à découper l'ensemble qui fournira environ 200 microlasers pour un disque de 50 mm de diamètre. Ces microlasers, incorporés dans une



Figure 9 - Exemples de cristaux pour laser élaborés à partir de l'état fondu par la méthode Czochralski. Cristaux verts : $Ca_2Al_2SiO_7$ dopés Pr^{3+} ; cristal rose-violet : $Ca_4GdB_3O_{10}$ dopé Nd^{3+} . Au centre de la photo, barreau laser de $LaMgAl_{11}O_{19}$ dopé Nd^{3+} , usiné à partir d'un cristal tel que ceux présentés ici. (Document LCAES-ENSCP).

monture et reliés à la fibre optique qui transporte le faisceau de pompage émis par une diode laser de 1 à 2 W, sont alors prêts à émettre un faisceau laser infrarouge de 10 à 100 mW de puissance moyenne et d'excellente qualité optique (monomode longitudinal et monofréquence).

D'autres ions activateurs que le néodyme peuvent être utilisés dans les lasers. Yb^{3+} , dont l'émission se situe comme Nd^{3+} vers 1 μm , apparaît comme un challenger possible de ce dernier. La structure électronique très simple, à deux niveaux (figure 8), confère à Yb^{3+} un rendement quantique élevé et évite certains phénomènes parasites (auto-extinction de la fluorescence...) limitant dans le cas du Nd^{3+} . Cependant, ce n'est que récemment que l'on a pu s'intéresser à l'ytterbium, avec l'avènement des diodes laser InGaAs qui permettent d'effectuer son pompage optique entre 900 et 1 000 nm. Ces lasers sont activement étudiés actuellement.

De l'infrarouge à l'ultraviolet

Néodyme et ytterbium donnent des émissions laser à $\sim 1\mu m$. Mais certaines applications demandent des longueurs d'onde laser différentes. On s'adresse alors à d'autres ions activateurs. Notons cependant que le YAG:Nd lui-même peut également donner des émissions à 946 et 1 332 nm si l'on utilise des jeux de miroir de cavité laser propice à l'amplification de ces longueurs d'onde, et présentant des pertes à 1 064 nm. Toutefois, les rendements à 946 et 1 320 nm sont sensiblement moins bons qu'à 1 064 nm, transition de gain laser le plus élevé du néodyme. L'erbium, dans le YAG (figure 8) ou d'autres matrices, sera utilisé pour produire une émission laser voisine de 1,55 μm . Cette longueur d'onde est fortement absorbée par la cornée, ce qui évite l'endommagement irréversible de la rétine. Elle est dite « à sécurité oculaire » et est utilisée notamment dans les applications militaires (téléométrie, guidage d'engins...). C'est également la longueur d'onde du maximum de transparence des fibres optiques de silice. On utilise donc des faisceaux laser à $\sim 1,5\mu m$ pour le transport de l'information dans les fibres optiques, et des lasers constitués d'une fibre de silice dopée Er^{3+} pour l'amplification des signaux optiques dans les réseaux de télécommunications.

Une autre transition de l'erbium est mise à profit pour la réalisation de lasers à $\sim 3 \mu\text{m}$. Cette longueur d'onde est utilisée en microchirurgie car elle est très fortement absorbée par l'eau qui contiennent les tissus. L'holmium et le thulium (seuls, ou mieux, associés l'un à l'autre) dans des matrices cristallines telles que le YAG sont le siège d'une émission laser vers $2 \mu\text{m}$. On utilise de tels lasers pour la réalisation de LIDAR (light detection and ranging) ou « radar optique » pour sonder l'atmosphère et détecter ainsi l'éventuelle présence de polluants, mesurer le degré d'hygrométrie de l'air et la pression atmosphérique à distance, etc.

Les lasers accordables

Dans le domaine des longueurs d'ondes voisines de la frontière infrarouge-visible, on dispose de plusieurs matériaux donnant des émissions laser accordables. On peut citer notamment l'alexandrite ($\text{BeAl}_2\text{O}_4:\text{Cr}^{3+}$) pour son intérêt historique et plus récemment $\text{LiSrAlF}_6:\text{Cr}^{3+}$ (LiSAF : Cr^{3+}) et $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Ti}^{3+}$ (saphir-titane). Les ions activateurs de ces matrices, fortement couplés aux phonons du réseau cristallin, donnent des raies d'émission larges. Au moyen d'éléments sélectifs en longueur d'onde (prisme par exemple) insérés dans la cavité laser, on peut choisir la longueur d'onde à amplifier parmi celles qui sont présentes dans la bande d'émission et obtenir un faisceau laser accordable par simple rotation du prisme. Le laser saphir-titane permet ainsi de couvrir de manière continue la plage de longueurs d'onde s'étendant de 700 à 1 000 nm. Il est de ce fait très utilisé aussi bien en recherche scientifique (spectroscopie) que par exemple pour des applications médicales : accès aux longueurs d'ondes particulières nécessaires au photodiagnostic ou à la photothérapie des tumeurs. En outre, comme nous l'avons indiqué plus haut, le laser saphir-titane est utilisé pour la production d'impulsions ultracourtes (quelques dizaines de femtosecondes). En effet, plus la plage de fréquences couverte par l'émission est large, plus les impulsions laser peuvent être brèves. Les lasers « femtosecondes » dont la puissance crête est considérable (dizaines de gigawatts) sont utilisés pour sonder la structure de la matière et en photochimie, mais ils trouvent également des applications industrielles, en micro-électronique (microlithographie) notamment (voir encadré 4).

Le domaine du visible

Entre 550 et 450 nm (du vert au bleu), on est plus démuné dans la mesure où il y a très peu d'ions activateurs présentant des transitions optiques dans ce domaine spectral. Pourtant, de nombreuses applications demandent de tels faisceaux laser (stockage optique de l'information à haute densité, projection laser, instrumentations scientifique et médicale...). Dans les dix dernières années, de nombreux systèmes fonctionnant selon le principe de « up conversion » (addition de photons) ont été proposés (voir encadré 3). Toutefois, à l'heure actuelle, on utilise plutôt des phénomènes d'optique non linéaire (doublement ou somme de fréquences) pour convertir un faisceau laser infrarouge en visible. Ainsi, par exemple, le doublement de fréquence du laser YAG :Nd à 1 064 nm conduit à un faisceau laser vert à 532 nm, tandis que le doublement de fréquence de l'émission laser de ce même matériau à 946 nm permet d'atteindre le bleu (474 nm).

Très récemment, sont apparus des matériaux laser auto-doubleurs de fréquence performants tels que le GdCOB :Nd

($\text{Ca}_4\text{GdB}_3\text{O}_{10}:\text{Nd}^{3+}$) qui combinent, au sein d'un même cristal, l'émission laser infrarouge (due au néodyme) et le doublement de fréquence grâce aux propriétés d'optique non linéaire de la matrice GdCOB. De tels matériaux fournissent directement un rayonnement laser vert, alors que le procédé habituel nécessite deux cristaux différents (qu'il faut orienter, tailler, polir et traiter anti-reflets) : l'un pour produire le rayonnement laser infrarouge et l'autre pour en doubler la fréquence.

Les lasers émettant dans l'ultraviolet

Les phénomènes d'optique non linéaire permettent d'obtenir des faisceaux laser à des longueurs d'onde encore plus courtes, et donc situées dans l'ultraviolet. Ainsi, en doublant la fréquence d'un rayonnement laser à 532 nm (second harmonique du laser YAG :Nd), on obtient un faisceau laser à 266 nm. Celui-ci peut être utilisé à son tour comme source de pompage pour des cristaux laser tels que $\text{LiLuF}_4:\text{Ce}^{3+}$ ou $\text{LiCaAlF}_6:\text{Ce}^{3+}$. Ces matériaux fluorés présentent une largeur de bande interdite de l'ordre de 10 eV (contre 6 à 7 seulement pour les oxydes) ; ils sont donc transparents dans l'ultraviolet. Quant au cérium, il absorbe fortement le rayonnement de pompage à 266 nm grâce à sa transition interconfigurationnelle permise $4f^1 \rightarrow 5d^1$ et donne une fluorescence de bande large propice à l'accordabilité de l'émission laser entre 300 et 330 nm environ. Ces lasers UV ont d'importantes applications environnementales (détection de l'ozone et d'autres molécules dans l'atmosphère). Ils sont également utilisés en ophtalmologie, notamment pour corriger la myopie et en microphotolithographie, compte tenu que la limite inférieure de la largeur des traits de gravure est proportionnelle à la longueur d'onde utilisée. Outre les travaux de mise au point de ces lasers à cérium, encore au stade de prototype, divers travaux récents visent à utiliser des sources de plus grandes longueurs d'onde pour leur pompage optique (grâce aux phénomènes de « up conversion » (voir encadré 3)). On cherche également à étendre le domaine spectral couvert par ces lasers grâce à l'utilisation d'autres ions activateurs (Pr^{3+} , Nd^{3+}). C'est d'ailleurs à un matériau dopé Nd^{3+} ($\text{LaF}_3:\text{Nd}^{3+}$) que l'on doit l'émission laser de plus courte longueur connue pour un laser à l'état solide : 157 nm.

Ainsi donc, les lasers à l'état solide pompés optiquement par des diodes laser et utilisés conjointement avec des matériaux à propriétés d'optique non linéaire ont un brillant avenir.

Pour en savoir plus

- Vivien D., Les matériaux laser solides : des principes de base aux développements les plus récents, *Annales de chimie*, **1995**, 20, p. 211. Voir aussi les articles plus spécialisés sur certains aspects des lasers à l'état solide dans le même numéro de cette revue p. 227 à 279.
- Boulon G., Les solides luminescents inorganiques : un dopage réussi, *L'Act. Chim.*, novembre **1999**, p. 96.
- Boulon G., Luminescence des ions activateurs dans les matériaux inorganiques et applications, *Revue de Physique Appliquée*, **1986**, 21, p. 689.
- Vivien D., Les matériaux pour lasers, *Revue de Physique Appliquée*, **1986**, 21, p. 709.
- Kaminskii A.A., *Laser crystals* (traduction américaine), Springer Verlag, Berlin-Heidelberg-New-York, **1981**.
- La revue professionnelle *Laser Focus World*, 98 Spit Brook Road, Nashua, NH 03062, États-Unis (en anglais).

Il est très vraisemblable que dans un proche avenir, ils auront remplacé les lasers pompés par lampes et les lasers à gaz (à argon ionisé par exemple), dont les rendements énergétiques sont incontestablement plus faibles tout en étant plus encombrants et plus coûteux à l'entretien.

L'optique non linéaire

Les phénomènes d'optique non linéaire (ONL) résultent d'une interaction entre la composante champ électrique associé à une onde lumineuse et le milieu de propagation (voir encadré 5). La mise en œuvre de ces interactions a grandement bénéficié des propriétés d'émission des sources laser solides pompés par diodes. En effet, l'efficacité de la conversion de fréquence que permet l'ONL dépend de la qualité du faisceau incident, de la stabilité de l'intensité optique ou de la reproductibilité à l'émission de la source primaire qui va engendrer l'effet non linéaire (voir encadré 6). Le pompage par diodes a permis de réaliser des sources qui satisfont à ces critères, ce qui a contribué à mobiliser les spécialistes de la science des matériaux pour trouver et valider de nouveaux cristaux plus performants et adaptés aux applications identifiées.

L'exploitation des phénomènes d'optique non linéaire est en constant développement.

Nous avons représenté de manière schématique sur la figure 10 les différentes interactions qui peuvent prendre naissance dans des matériaux non centro-symétriques.

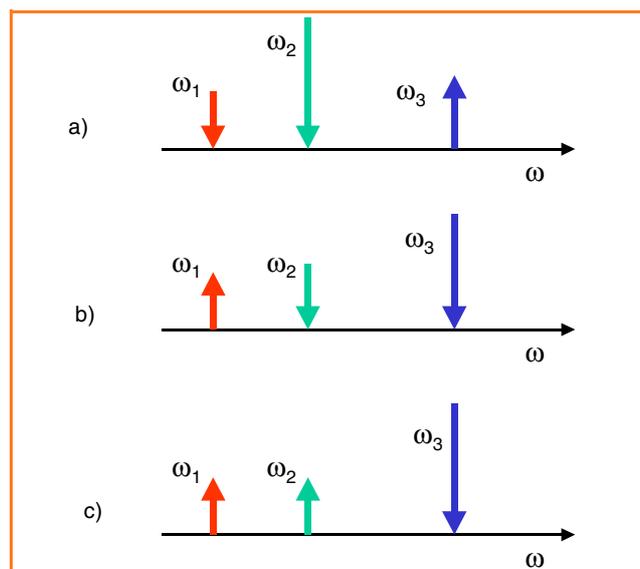


Figure 10 - Interactions non linéaires quadratiques pouvant se développer dans des cristaux.

Le schéma a correspond à une opération sommation de fréquences où deux ondes de pulsations ω_1 et ω_2 donnent naissance à une onde ω_3 . L'opération doublement de fréquences correspond au cas particulier où $\omega_1 = \omega_2$. Le processus b traduit une opération différence de fréquences entre les ondes ω_3 et ω_2 qui engendre une onde ω_1 . Enfin, le dernier schéma correspond à une interaction paramétrique où une onde de pulsation ω_3 se transforme en deux autres ondes ω_1 et ω_2 qui satisfont à la règle de conservation de l'énergie :

$$\hbar\omega_3 = \hbar\omega_2 + \hbar\omega_1$$

avec $\hbar = h/2\pi$, h étant la constante de Plank.

Une des ondes ainsi engendrée est dénommée signal (onde de longueur d'onde la plus proche de celle de pompe) et l'autre complémentaire (« idler » en anglais).

Les paramètres qui gouvernent le choix des matériaux pour l'optique non linéaire sont :

- la transparence sur le domaine spectral devant être couvert (au niveau de l'onde complémentaire notamment dans des interactions paramétriques),
- l'obtention d'un accord de phase en exploitant la dispersion de biréfringence, tout en conservant un coefficient non linéaire effectif important (voir encadré 6).
- un seuil de dommage optique élevé,
- la qualité optique (absence de défauts ou d'inclusions localisés),
- une possibilité de croissance cristalline en grand volume (dizaine de cm^3 au moins).

Ceci réduit singulièrement le nombre de cristaux pouvant satisfaire à tous ces critères. Si le niobate de lithium a été le matériau le plus employé dans les démonstrations en laboratoire de ces différentes interactions non linéaires, la dernière décennie a vu l'émergence de nouveaux cristaux aux propriétés requises pour leur insertion dans des sources commercialisées. Citons le KTP (KTiOPO_4) et ses dérivés, les borates (BBO ($\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$), LBO (LiB_3O_5) et GdCOB ($\text{Ca}_4\text{GdB}_3\text{O}_{10}$) pour l'UV et le visible, ainsi que les chalcopyrites AgGaSe_2 et ZnGeP_2 pour l'IR.

L'interaction paramétrique (figure 10c) est particulièrement adaptée pour réaliser des sources accordables sur de larges fenêtres spectrales. Pour que l'interaction soit efficace, il convient de réaliser la condition d'accord de phase (voir encadré 6) qui, dans le cas précis, s'écrit :

$$\vec{k}_3 = \vec{k}_2 + \vec{k}_1$$

avec $|k_j| = \frac{2\pi n_j}{\lambda_j}$, où k_j est le vecteur d'onde, n_j est l'indice

de réfraction effectif vu par l'onde de longueur d'onde λ_j (pulsation ω_j).

Un oscillateur paramétrique optique (OPO) se compose d'un cristal non linéaire inséré dans une cavité résonnante pompé optiquement par l'intermédiaire d'une source cohérente (laser). La cavité peut être à simple résonance. C'est-à-dire que l'un des champs acquiert une amplification par recyclage dans la cavité, l'autre étant libre. La structure élémentaire d'un tel montage est représentée sur la figure 11.

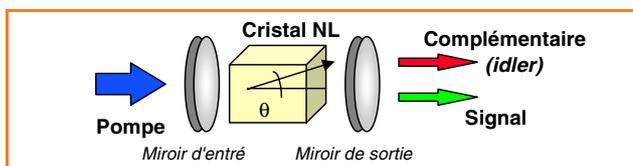


Figure 11 - Représentation schématique d'un oscillateur paramétrique optique (OPO).

En fonction de la longueur d'onde de pompe et/ou de l'angle que fait le faisceau de pompe par rapport à l'axe optique du cristal, on peut modifier le couple des longueurs d'onde signal et complémentaire émis. Sur la figure 12, nous avons tracé l'évolution des longueurs d'onde émises en fonction de l'angle d'excitation d'un cristal de LiNbO_3 , pour différentes longueurs d'onde de pompe.

Pour une onde de pompe $\lambda = 1,064 \text{ nm}$ (laser YAG:Nd), et $\theta = 45,7^\circ$, les longueurs d'onde des faisceaux signal et complémentaires sont respectivement de 1,74 et 2,738 μm .

Encadré 5 : Polarisation non linéaire

Un matériau soumis à un champ (électrique, optique...) voit les centres de gravité de ses charges positives et négatives se déplacer l'un par rapport à l'autre. Dans le cas d'un système non polaire tel qu'un atome, la réponse est représentée par le déplacement du nuage électronique par rapport au noyau (polarisation électronique).

En régime de faible intensité optique, le milieu répond de manière linéaire. C'est-à-dire que le mouvement des électrons de valence suit instantanément l'amplitude du champ électrique E^ω associé à l'onde optique de pulsation ω . Cette polarisation induite dans le milieu rayonne à son tour un champ en phase avec le champ exciteur (onde incidente) et de même fréquence (pulsation).

En régime de forte intensité, le mouvement des charges peut présenter un caractère non linéaire lié à l'amplitude du déplacement et à l'interaction avec les atomes voisins (potentiel de répulsion). En conséquence, on doit développer la polarisation macroscopique selon une loi :

$$P^\omega = \epsilon_0(\chi^{(1)}E^\omega + \chi^{(2)}E^\omega.E^\omega + \chi^{(3)}E^\omega.E^\omega + \dots)$$

où $\chi^{(1)}$ correspond à la susceptibilité linéaire du milieu. Cette grandeur est complexe et elle rend compte des propriétés dispersives du matériau (absorption, gain et indice de réfraction). On peut observer à partir de cette relation qu'en présence d'une faible intensité, la polarisation est directement proportionnelle à $\chi^{(1)}E^\omega$. En revanche, lorsque l'intensité augmente, les termes en $(E^\omega)^2$ et en $(E^\omega)^3$ peuvent devenir importants. Le matériau non linéaire est alors caractérisé par les paramètres $\chi^{(n)}$ (avec $n > 1$) qui sont appelés susceptibilités non linéaire du $n^{\text{ème}}$ ordre avec $\chi^{(1)} \gg \chi^{(2)} \gg \chi^{(3)}$.

Ainsi, en présence d'une forte intensité optique (obtenue par la focalisation d'un faisceau laser dans un matériau ou en couplant une onde optique de moyenne puissance dans un guide d'onde), la polarisation du milieu peut rayonner un champ à la pulsation double ou à la pulsation triple du champ incident (voir encadré 6). Si l'onde incidente présente plusieurs composantes spectrales, des rayonnements correspondant à des sommes ou à des différences de fréquences peuvent également être émis.

Ces rayonnements sont cependant étroitement dépendants de la structure du matériau. En particulier, les solides centro-symétriques présentent un coefficient $\chi^{(2)} = 0$. Cela veut dire qu'un matériau de cette classe ne pourra pas être le siège d'un rayonnement à la fréquence double. Il en va de même pour les matériaux qui microscopiquement peuvent être non centrosymétriques mais qui macroscopiquement ne le sont pas. Cette dernière classe de matériaux est représentée par les amorphes en général (verres, polymères). Ainsi, la dispersion dans un polymère de molécules qui présentent une polarisabilité non linéaire du second ordre maintient ce matériau macroscopiquement centro-symétrique. Cela traduit l'orientation aléatoire des moments dipolaires des molécules actives dans la matrice, ce qui revient à inhiber leurs propriétés intrinsèques. En revanche, l'application d'un champ électrique à une température supérieure à la température de transition vitreuse du polymère permet d'orienter leurs dipôles. En revenant à une température inférieure à cette température de transition, on gèle cette orientation rendant par là-même la matrice non linéaire. En revanche, tous les matériaux, quelle que soit leur nature (dont les amorphes), présentent une non linéarité du troisième ordre.

Un schéma simple permet de rendre compte de ces mécanismes. Il revient à considérer un électron lié comme un

système ressort. En régime dit « faible champ », l'électron sollicité par le champ électrique est animé d'un faible déplacement. Il rayonne par conséquent une onde de fréquence identique à l'onde incidente.

Considérons maintenant un atome dont l'électron lié subit un potentiel répulsif symétrique de part et d'autre de son déplacement (milieu centro-symétrique). En présence d'une forte amplitude du champ incident, son mouvement va subir un déplacement non linéaire et symétrique (figure I) qui entraîne l'apparition de composantes aux pulsations ω , 3ω , 5ω (décomposition du mouvement en série de Fourier).

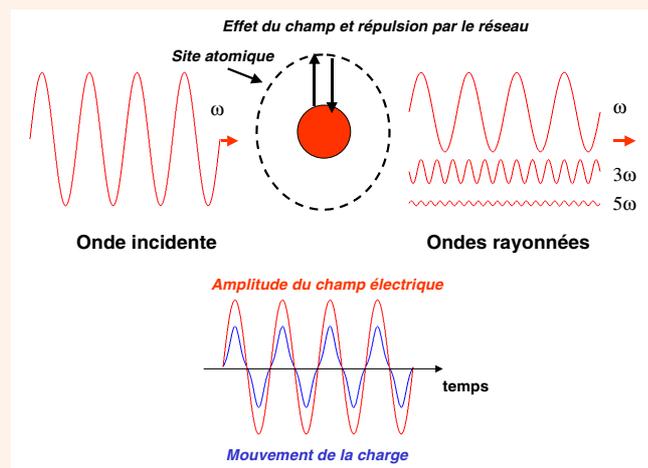


Figure I - Interaction entre un champ électromagnétique de forte amplitude et un système atomique à potentiel répulsif symétrique.

En présence d'un potentiel répulsif asymétrique (milieu non centro-symétrique), le déplacement des charges ne sera pas le même selon la direction de l'amplitude du champ. Dans ce cas, les composantes paires et impaires de la pulsation contribuent au rayonnement de la polarisation induite (figure II).

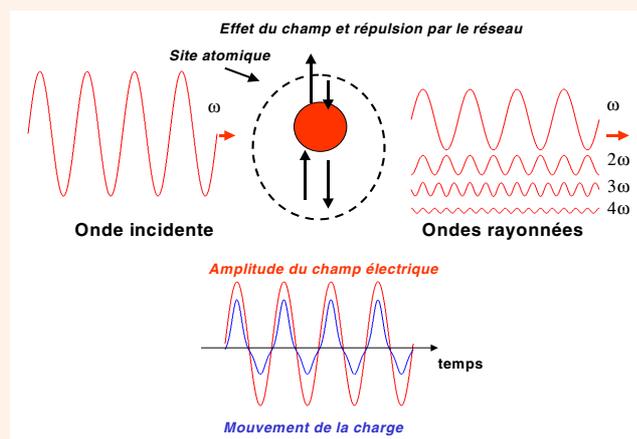


Figure II - Interaction entre un champ électromagnétique de forte amplitude et un système atomique à potentiel répulsif asymétrique.

C'est cette propriété qui est mise à profit dans les matériaux pour l'optique non linéaire quadratique.

Pour en savoir plus

• Yariv A., *Quantum Electronics*, 3rd ed., John Wiley & sons, 1988.

Encadré 6 : Efficacité de conversion de fréquences et accord de phase

Un matériau non centro-symétrique présente la particularité de pouvoir rayonner une onde harmonique lorsqu'il est soumis à un fort éclairage optique. En effet, l'onde incidente de pulsation ω peut être représentée par une fonction sinusoïdale (1) :

$$E^{\omega}(z, t) = \Re[E_0 \exp(i(\omega t - k^{\omega} z))] = E_0 \cos(\omega t - k^{\omega} z)$$

où $k^{\omega} = \frac{2\pi n^{\omega}}{\lambda^{\omega}}$ représente le vecteur d'onde attaché à la propagation du champ dans le milieu d'indice de réfraction n^{ω} . \Re signifie partie réelle de l'argument. La polarisation induite (voir encadré 5) à la pulsation double devient (2) :

$$\begin{aligned} P^{2\omega}(z, t) &= \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^{\omega}(z, t) E^{\omega}(z, t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_0^2 \exp(2i(\omega t - k^{\omega} z)) \\ &= \frac{\varepsilon_0 \chi^{(2)} E_0^2}{2} (1 + \cos(2\omega t - 2k^{\omega} z)) \end{aligned}$$

Cette polarisation rayonne une onde de pulsation 2ω qui s'écrit (3) :

$$\begin{aligned} E^{2\omega}(z, t) &\propto \Re[\varepsilon_0 \chi^{(2)} E_0^2 \exp(i(2\omega t - k^{2\omega} z))] = \\ &\varepsilon_0 \chi^{(2)} E_0^2 \cos(2\omega t - k^{2\omega} z) \end{aligned}$$

dont le vecteur d'onde $k^{2\omega}$ est déterminé par l'indice de réfraction à cette pulsation. La résolution des équations couplées entre les champs incidents et le champ harmonique conduit à définir l'efficacité (ou rendement) de conversion de fréquence sur les intensités optiques :

$$\eta = \frac{I^{2\omega}}{I^{\omega}} = \text{Coef} \times (\chi_{\text{eff}}^{(2)})^2 L^2 I^{\omega} \text{sinc}^2(\Delta k L / 2)$$

où $\text{sinc}(x) = \frac{\sin(x)}{x}$ (fonction sinus cardinal) vaut 1 pour $x = 0$ et est nulle pour x élevé. L est la longueur d'interaction, $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$ est la susceptibilité non linéaire quadratique effective (voir encadré 5), Δk représente le désaccord de phase entre la polarisation non linéaire induite par l'onde incidente et l'onde harmonique. On observe que l'intensité à 2ω varie de manière quadratique avec la distance d'interaction et l'intensité incidente. Ce dernier point explique l'importance que présente le pompage par diodes des lasers à l'état solide pour la mise en œuvre des phénomènes d'optique non linéaire. En effet, les faisceaux de ces lasers sont d'une haute qualité spatiale (proche de la limite de diffraction) et l'émission est reproductible d'une impulsion à l'autre et stable en régime continu.

Une condition sur la phase, représentée par l'argument de la fonction sinc , doit cependant être respectée pour conserver à l'interaction son caractère d'interférence constructive. Ceci peut être observé en comparant l'évolution de la source de rayonnement (polarisation à 2ω) liée au champ incident (expression (2)), avec le champ harmonique se propageant (expression (3)).

On observe que l'accord de phase est réalisé si la condition $n^{\omega} = n^{2\omega}$ (soit $2k^{\omega} = k^{2\omega}$) est respectée (polarisation induite en phase avec le champ rayonné). Il s'avère qu'aucun matériau ou milieu solide isotrope ne satisfait à cette condition. En effet, les propriétés dispersives des milieux optiques, qui ne sont que le reflet de l'existence de bandes d'absorption (UV, IR, phonons...), font que cette égalité ne peut être naturellement remplie. Puisque les matériaux présentant un coefficient $\chi^{(2)} \neq 0$ doivent être non centro-symétriques, ils sont biréfringents, c'est-à-dire que l'on a deux indices optiques (ordinaire et extraordinaire pour un cristal uniaxe), liés à des orientations cristallographiques particulières.

En jouant sur les conditions d'excitation par rapport aux axes de symétrie du milieu et sur l'état de polarisation de l'onde incidente par rapport à l'axe optique du matériau, il est alors possible d'exploiter les propriétés de dispersion spectrale de ces deux indices de réfraction pour réaliser la condition d'accord de phase. Ce type d'interaction est appelé accord de phase par dispersion de biréfringence. L'accord de phase permet de définir la longueur sur laquelle l'interaction non linéaire se développe de manière constructive. C'est ce que l'on dénomme la longueur de cohérence L_c . La figure 1 illustre cet effet :

- tant que la distance parcourue dans le matériau non linéaire est inférieure à L_c , l'onde incidente induit une polarisation qui prélève une partie de son intensité pour rayonner une onde harmonique ;
- au-delà de L_c , l'onde harmonique engendrée restitue son intensité à l'onde primaire.

On doit donc au minimum ajuster la longueur de cohérence à celle du matériau non linéaire pour bénéficier d'une interaction de conversion de fréquence efficace.

Quasi-accord de phase

De manière générale, tous les matériaux non linéaires ne permettent pas d'obtenir un accord de phase par biréfringence sur un domaine spectral et pour un type d'interaction souhaitée. On peut alors envisager l'utilisation de la technique de quasi-accord de phase qui repose sur le fait que l'on a naturellement un désaccord résiduel sur les vecteurs d'ondes :

$$\Delta k = k^{2\omega} - 2k^{\omega}$$

La polarisation non linéaire s'écrit comme précédemment :

$$P^{2\omega}(z, t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_0^2 \exp(2i(\omega t - k^{\omega} z))$$

et le champ harmonique croît jusqu'à la longueur de cohérence. Supposons que l'on sache inverser le signe du coefficient non linéaire. Si à cette distance L_c , on effectue cette opération, cela revient à introduire un déphasage de π :

$$P^{2\omega}(z > L_c, t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_0^2 \exp(i(2\omega t - 2k^{\omega} z - \pi))$$

qui rétablit la condition d'accord de phase entre la polarisation induite et le champ harmonique créé. Il suffit de

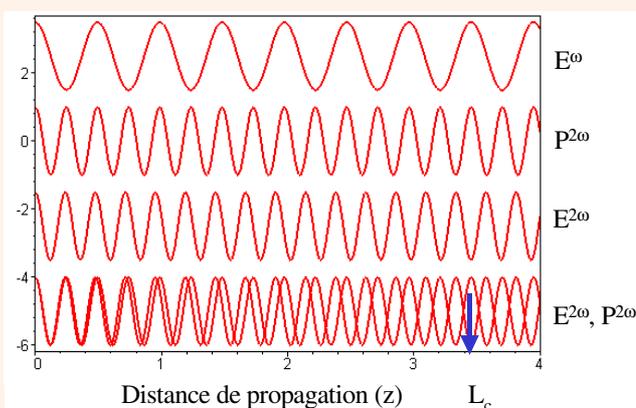


Figure 1 - Évolution de l'amplitude du champ incident instantané E^{ω} , de la polarisation induite $P^{2\omega}$ et du champ rayonné à la pulsation 2ω . La superposition de $P^{2\omega}$ et de $E^{2\omega}$ permet d'observer le désaccord de phase $\Delta\Phi = (k^{2\omega} - 2k^{\omega})L_c = \pi$, qui définit la longueur de cohérence.

maintenir cette inversion du signe sur une distance L_c pour que la condition d'accord de phase soit conservée. Ainsi, en réalisant une modulation périodique du signe du coefficient non linéaire pour toutes les longueurs de cohérence, on réalise une compensation du déphasage qui contribue à accroître les efficacités de conversion dans des opérations de doublement de fréquence.

Dans les matériaux ferroélectriques, et en particulier dans LiNbO_3 , on réalise cette inversion en appliquant localement et de manière alternée (au moyen d'un réseau d'électrodes déposé sur le cristal) un champ électrique qui a pour rôle de vaincre le champ coercitif et de modifier l'orientation des domaines ferroélectriques. Cette opération provoque la migration d'ions alternativement dans un sens et dans l'autre, d'où le déphasage de π . La longueur de cohérence dans une interaction de doublement de fréquence d'un laser Nd:YAG à $1,06 \mu\text{m}$ est de $3,42 \mu\text{m}$, ce qui donne la dimension des motifs à réaliser.

L'extension de ce principe d'accord de phase artificiel aux matériaux semi-conducteurs (GaAs et autres III-V...), en empilant des lames d'épaisseurs et d'orientations cristallographiques adaptées, permet d'exploiter les fortes

valeurs des coefficients non linéaires qui sont généralement inaccessibles avec l'accord de phase par biréfringence. La figure II illustre cet effet.

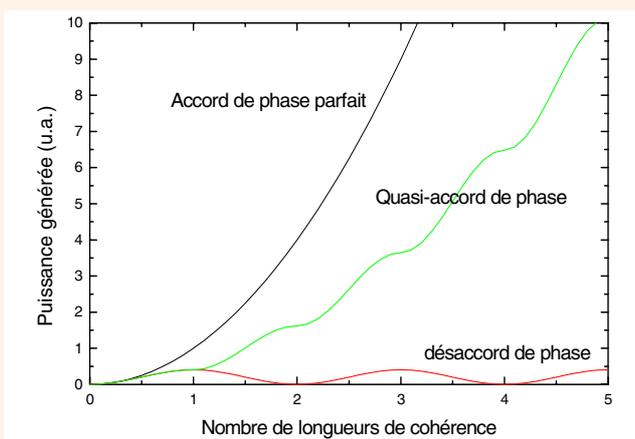


Figure II - Rôle de l'accord de phase sur l'évolution du signal harmonique engendré dans une interaction non linéaire.

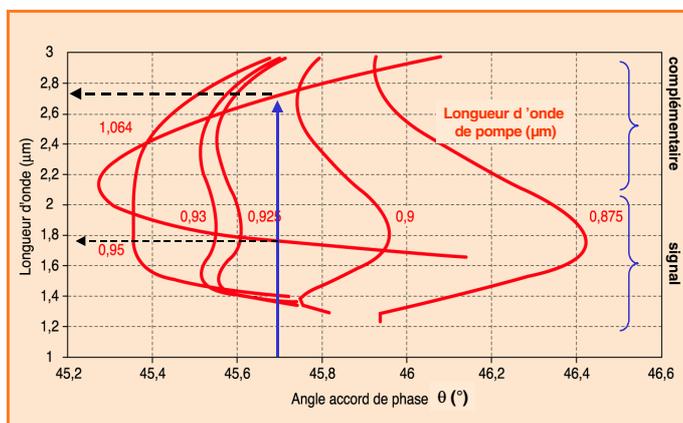


Figure 12 - Courbes d'accord de phase pour l'observation d'un effet paramétrique dans un cristal LiNbO_3 en fonction de l'angle d'excitation et de la longueur d'onde de pompe.

Pour en savoir plus

- Yariv A., *Optical Electronics*, Holt, Rinehart and Winston, New York, **1985**.
- Byer R.L., Herbst R.L., Parametric oscillation and mixing, Non-linear Infrared Generation, Y.R. Shen éd., *Topics Appl. Phys.*, **1977**, vol. 16, Springer, Berlin.
- Fabre C, Pocholle J.-P., *Les lasers et leurs applications scientifiques et médicales*, Collection de la Société Française d'Optique, EDP Sciences.
- Boyd R.W., *Non linear Optics*, Academic Press Inc., **1992**.
- Debuisschert T., Raffy J., Dupont J.-M., Pocholle J.-P., Nanosecond optical parametric oscillators, *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences*, **2000**, tome 1, série IV, p. 561.



J.-P. Pocholle

Jean-Paul Pocholle
est Senior expert à Thales*.



D. Vivien

Daniel Vivien
est professeur à l'ENSCP**.

* Thales Research & Technology, Domaine de Corbeville, 91404 Orsay Cedex.
Tél. : 01 69 33 91 77. Fax : 01 69 33 91 27.

E-mail : jean-paul.pocholle@thalesgroup.com

** Chimie appliquée de l'état solide (LCAES), ENSCP, 11 rue Pierre et Marie Curie, 75231 Paris Cedex 05.

Tél. : 01 44 27 67 06. Fax : 01 46 34 74 89.

E-mail : vivien@ext.jussieu.fr