Intérêts et problématiques d'un laser à 501,7 nm.

Ce premier chapitre va nous servir à poser les briques de base utiles à la compréhension des travaux menés au cours de cette thèse. On essaiera en particulier de montrer au lecteur les choix auxquels nous avons été confrontés et les solutions que nous avons retenues.

Nous commencerons par exposer les principales applications et les intérêts d'un laser émettant un rayonnement monofréquence (monomode longitudinal) dans le bleu-vert, et principalement autour de 501,7 nm. Cette longueur d'onde particulière n'a bien évidemment pas été choisie par hasard mais est issue des besoins d'un certains nombre de chercheurs dans des domaines différents, bien que connexes, que sont la spectroscopie de l'iode moléculaire (127l₂) et la métrologie des longueurs.

Les mesures spectroscopiques à haute résolution des interactions hyperfines dans les molécules d'iode sont précieuses pour étudier la structure électronique de ces molécules. Elles permettent en outre de déterminer la largeur de raie des transitions hyperfines qui sont ensuite appliquées à la stabilisation de lasers en fréquence et, par là même, au développement d'étalons secondaires de fréquences optiques. Pour cela, on asservit la fréquence d'émission d'un laser sur une transition d'absorption des molécules, placées dans une cuve contrôlée en pression et en température. Une fois la fréquence du laser stabilisée, sa valeur est mesurée par comparaison avec une référence absolue de fréquence du laser stabilisé, et donc la fréquence de la transition utilisée, sont alors connues avec une grande exactitude. En utilisant des transitions ayant des largeurs de raie les plus faibles possibles, on obtient ainsi des références de fréquence secondaires¹ de grande exactitude ($\Delta v/v$) et de grande stabilité. Nous montrerons de plus quels avantages les lasers utilisant un milieu amplificateur solide pompé par diode laser peuvent apporter pour ces applications.

Nous dresserons ensuite, dans une deuxième partie, un état de l'art aussi complet que possible des sources émettant dans le bleu-vert entre, approximativement, 450 et 550 nm.

Ceci nous conduira à présenter ensuite les diverses solutions possibles pour une émission spécifique à 500 nm. Nous expliciterons alors nos choix quant aux types de milieux amplificateurs utilisés lors de cette thèse, à savoir des cristaux massifs dopés par l'ion ytterbium et des structures semiconductrices à puits quantiques, émettant tout deux à 1 µm. Pour chacune des solutions, nous essayerons de faire ressortir clairement au lecteur les différentes problématiques auxquelles nous avons été confrontées. Enfin, en tenant compte du cahier des charges que nous nous sommes fixés, et des différentes possibilités architecturales pour convertir le rayonnement infrarouge en rayonnement visible par processus non linéaire, nous expliciterons notre choix du doublement de fréquence intracavité.

¹ Puisque la valeur absolue de fréquence est donnée par l'horloge atomique.

A-I Intérêts d'une source monofréquence à 500 nm :

A-I.1 Pourquoi l'iode moléculaire (12712)?

L'iode moléculaire (¹²⁷I₂) possède un spectre d'absorption très riche dans le domaine visible et proche infrarouge entre 500 et 900 nm. Ce spectre est constitué de dizaines de milliers de transitions rovibroniques, c'est-à-dire de rotation-vibration, entre l'état électronique fondamental $X({}^{1}\Sigma_{0+g})$ et l'état excité $B({}^{3}\Pi_{0+u})$ (Figure A-1). A cause du moment de spin nucléaire non nul de la molécule d'iode, les interactions électromagnétiques, entre les charges nucléaires et le nuage électronique, créent une sous-structure hyperfine complexe pour chacune des transitions rovibroniques. Cette structure hyperfine est, de manière générale, la plus petite échelle d'énergie des molécules. Les largeurs de ces transitions hyperfines sont de l'ordre de quelques dizaines à quelques centaines de kHz. En comparaison, les transitions rovibroniques des molécules libres de l'iode à l'équilibre sont élargies par effet Doppler avec une largeur $\Delta \omega_D/2\pi \approx 460$ MHz à 500 nm et à 15°C. Les transitions hyperfines d'une transition rovibronique sont donc "noyées" dans un spectre élargi par effet Doppler.



Figure A-1 : Niveaux électroniques de la molécule d'iode [http://www.tau.ac.il/~phchlab/experiments/iodine_spectroscopy/#Introduction].

Cependant, plusieurs techniques permettent de s'affranchir de l'élargissement Doppler et sont appliquées pour la spectroscopie à haute résolution et la stabilisation de lasers en fréquence. Elles sont très largement appliquées à l'iode moléculaire à l'état gazeux dans des cuves scellées. En effet, les propriétés de l'iode sont tout à fait adaptées à ce genre de techniques. L'iode moléculaire est une molécule lourde, sa vitesse est alors relativement faible à température ambiante ce qui limite l'élargissement Doppler [Hall, 99]. Sa pression de vapeur est facilement et précisément contrôlée par le doigt froid de la cuve d'absorption.

Enfin, les déplacements et élargissements de ses transitions par la pression sont relativement faibles. Tout ceci en fait une molécule tout à fait adaptée pour la métrologie et très utilisée.

Plusieurs de ces transitions sont ainsi recommandées par le Comité International des Poids et Mesures (C.I.P.M.) pour la mise en pratique du mètre [CIPM, 03]. Plus précisément, sur les dix-sept longueurs d'ondes de lasers asservis en fréquence sur des molécules absorbantes, recommandées par le C.I.P.M pour la mise en pratique du mètre en 2002, sept de ces longueurs d'ondes font référence à une stabilisation sur l'iode, notamment à 514 nm avec un laser à argon ionisé et à 532 nm avec un laser Nd:YAG doublé en fréquence.

Le choix des transitions de l'iode pour la stabilisation de lasers en fréquence et la mise en pratique du mètre étaient dictés, jusqu'à il y a quelques années, par l'existence de sources lasers ayant des propriétés acceptables aux bonnes longueurs d'ondes. Le laser He-Ne stabilisé sur l'iode à 633 nm a ainsi longtemps été la source la plus recommandée par le C.I.P.M [Yoon, 01]. Mais, avec les rapides progrès dans les domaines des diodes laser, des matériaux laser (notamment avec les cristaux dopés Néodyme et Ytterbium) et de l'optique non-linéaire, de nombreuses sources tout solide à des longueurs d'ondes couvrant une large gamme, du visible au proche infrarouge, ont fait leur apparition. Cette souplesse sur la source laser permet alors de tester et de choisir les transitions de l'iode les plus prometteuses.

D'autre part, les transitions de l'iode voient leur largeur naturelle décroître avec la longueur d'onde. Plus on s'approche de sa limite de dissociation, correspondant à une longueur d'onde de 499,5 nm, et plus la largeur naturelle des transitions diminue. Ainsi, la largeur d'une raie à 532 nm a été mesurée autour de 230 kHz, alors que les largeurs des transitions inférieures à 510 nm ont été mesurées à moins de 100 kHz avec notamment une largeur de 43 kHz à 508 nm [Cheng, 02]. En 1973, J.-C. Keller et al. mesurent, par déclin de fluorescence, la durée de vie du niveau excité ${}^{3}\Pi_{0+u}$, v' = 62, J' = 27 correspondant à la transition à 501,7 nm. Ils obtiennent une valeur de 14 ± 3 µs ce qui donne une largeur naturelle théorique du niveau de $\Delta v = (2.\pi.\tau)^{-1} = 11, 4\pm 2, 4 kHz$ [Keller, 73]. Cette faible valeur confère à ces transitions particulières un fort intérêt. Ainsi, des mesures de largeur de raie, utilisant un laser à argon ionisé, ont été effectuées au Laboratoire de Physique des Lasers (L.P.L.) à cette longueur d'onde, tout d'abord sur jet moléculaire, puis en cellule. Des largeurs de l'ordre de 30 kHz ont ainsi été obtenues [Du Burck, 04].

Des lasers à argon ionisés ont donc déjà été stabilisés sur des transitions de l'iode à 514,6 nm [Goncharov, 04] ou à 501,7 nm [Du Burck, 04]. Les lasers solides à base d'oscillateurs Nd:YAG doublés en fréquence à 532 nm et stabilisés sont aussi largement répandus et comparés entre eux [Picard, 03]. Sur quatre lasers asservis par rapport à la même transition, la dispersion des fréquences mesurées est de 3,5 kHz avec une reproductibilité moyenne de 400 Hz chacun.

En asservissant un laser sur ce type de transitions, dont la fréquence est mesurée de façon absolue, on peut ainsi développer des étalons secondaires de fréquences optiques utilisés pour la mise en pratique du mètre, mais aussi pour de nombreuses applications. Comme nous l'avons vu, les longueurs d'ondes les plus intéressantes se situent dans la gamme 501-514 nm puisqu'on y trouve les largeurs naturelles les plus faibles, avec un avantage tout particulier à cibler les longueurs d'ondes les plus basses. Notons que si la fréquence du laser stabilisé sur une raie moléculaire n'est pas mesurée, on a alors une référence de fréquences optiques.

A-I.2 La spectroscopie de l'iode moléculaire (127I2) :

A-I.2.a Généralités :

Afin de scruter précisément les transitions hyperfines, il est donc nécessaire d'avoir à sa disposition des sources de lumière émettant dans la gamme de longueurs d'ondes des raies étudiées et dont la largeur de raie doit être plus petite que la largeur de la transition. Ces sources doivent être cohérentes, stables en fréquence et de faible largeur spectrale, donc monomodes longitudinales (ou monofréquences). La lumière issue d'un laser est alors l'outil adéquat. Associé à des systèmes de mesures et de détection performants, le laser permet de sonder précisément ces transitions hyperfines.

C'est l'apparition de techniques de spectroscopie sub-Doppler (s'affranchissant de l'effet Doppler) à la fin des années 1960 qui a permis d'avoir accès à ces structures énergétiques ultimes des molécules [Bordé, 81]. Pour une transition rovibronique donnée, les structures hyperfines de ¹²⁷l₂ s'étendent sur une largeur de l'ordre de la largeur Doppler. La figure A-2 montre une raie élargie par effet et contenant plusieurs transitions hyperfines.

Avant la spectroscopie sub-Doppler, les spectroscopistes ne pouvaient alors détecter que des élargissements ou des asymétries de ces raies rovibroniques. Les nouvelles techniques sub-Doppler ont alors excité l'intérêt des spectroscopistes pour les transitions hyperfines. Des techniques de plus en plus précises avec des résolutions de plus en plus grandes sont peu à peu apparues. L'amélioration des techniques expérimentales et des mesures a alors fortement stimulé l'intérêt des chercheurs pour la compréhension théorique des interactions hyperfines à travers des calculs d'Hamiltoniens de plus en plus complets. Ces Hamiltoniens hyperfins ont ensuite été confrontés aux mesures expérimentales les plus précises. Comme nous le verrons dans le paragraphe suivant, ces développements expérimentaux et théoriques ont, de plus, été motivés par l'utilisation métrologique des transitions hyperfines de l¹²⁷l₂ à travers le développement de lasers asservis sur ce type de raies.



Figure A-2 : Transitions hyperfines dans une raie rovibronique élargie par effet Doppler.Pour les transitions B-X de l'iode moléculaire, une raie élargie par effet Doppler est composée de 15 ou 21 transitions hyperfines.

Le principe de base pour s'affranchir de l'effet Doppler est de sélectionner les atomes appartenant à la même classe de vitesses. Cette condition est réalisée soit par sélection mécanique (excitation transverse à un jet moléculaire, par exemple) soit par des méthodes non-linéaires (spectroscopie d'absorption saturée).

Les techniques de spectroscopie laser sub-Doppler sont donc largement utilisées et en particulier la méthode de spectroscopie non-linéaire d'absorption saturée. De nombreuses

techniques de spectroscopie, s'affranchissant de l'effet Doppler ou non, existent bien sûr suivant le type de molécules à étudier, le type de structure ou la précision voulue, mais il ne s'agit pas ici d'en faire une liste complète. Le lecteur pourra se référer à [Hollas, 82] et [Demtröder, 81]. Attardons-nous juste un instant sur une description simple de la spectroscopie laser d'absorption saturée, à travers un exemple type de montage.

A-I.2.b Spectroscopie laser d'absorption saturée :

Cette méthode exploite l'effet de "Lamb dip" prédit par Lamb en 1964 dans le cadre de la théorie du Maser optique [Lamb, 64]. Ce phénomène apparaît, dans les lasers à gaz monomodes en cavité linéaire (onde stationnaire), sous forme d'une perte de puissance lorsque la fréquence du mode de cavité devient égale à la fréquence de la classe d'atomes de vitesse axiale nulle. Ce phénomène correspond à du "hole burning" spectral, c'est-à-dire à une "surconsommation" de l'inversion de population d'une classe d'atomes particulière (correspondant donc à une fréquence particulière). Un trou est alors creusé dans le profil spectral de l'inversion de population (*i.e.* le profil de gain), d'où le terme anglo-saxon "hole burning".

On utilise un laser monomode longitudinal, accordable et modulé en fréquence, une cellule contenant le gaz à analyser, des détecteurs (photodiodes) et un système électronique de détection et de traitement des données. Le laser bénéficie d'abord d'une pré-stabilisation à court terme ($\Delta t \ll 1$ s), souvent sur une cavité Fabry-Perot externe stable. De manière générale, le faisceau issu du laser est séparé en deux. L'un des faisceaux est plus puissant et joue le rôle de faisceau pompe ou saturant. Le second, moins puissant, sert à sonder les molécules, c'est le faisceau sonde. Un exemple de montage est donné sur la figure A-3.



Figure A-3 : Exemple de montage de spectroscopie d'absorption saturée utilisant des faisceaux sonde et saturant contrapropagatifs (C. S. P. Cube séparateur de polarisation - P.D. Photodétecteur).

Le faisceau laser est envoyé dans la cellule d'iode. Lors du premier passage, il joue le rôle de faisceau pompe (saturant) et sélectionne les molécules de classe de vitesses $V_Z = \frac{c(\omega_L - \omega_0)}{\omega_0}$ dans le profil Doppler. Le faisceau pompe sature l'absorption de l'iode à la

fréquence ω_L . Le faisceau transmis puis réfléchi par le miroir de renvoi joue, lui, le rôle de faisceau sonde. Il est possible de rajouter un atténuateur entre la cellule et le miroir de renvoi pour ajuster la puissance du faisceau sonde. Le faisceau sonde est absorbé de façon non saturée par les molécules d'iode. Le faisceau sonde va donc sélectionner les molécules de classe de vitesses -V_Z. Le signal du faisceau sonde transmis est observé avec le photodétecteur. En balayant la fréquence du laser, la condition de résonance (obtenue lorsque les deux ondes pompe et sonde excitent la même classe d'atome) est vérifiée pour $\omega_L = \omega_0$ et V_Z = 0. A cette fréquence, le faisceau sonde interagit avec moins de molécules d'iode, puisque l'absorption des molécules de classe V_Z = 0 a été saturée par le faisceau pompe. Le signal d'absorption détecté est donc moins creusé à $\omega_L = \omega_0$ (signal (1) figure A-3). Le trou creusé dans la raie Doppler a une largeur à mi-hauteur approximativement égale à la largeur homogène de la transition hyperfine excitée.

Les techniques sont sans cesse en évolution pour s'affranchir de tous les bruits de fréquences et perturbations possibles, surtout pour la mesure de raies peu intenses. Actuellement, de nombreuses expériences utilisent des montages de spectroscopie par modulation de fréquence du laser à une fréquence élevée comparée à la largeur de la transition [Bjorklund, 80].

D'autres types de mesures sont complémentaires aux mesures de spectroscopie d'absorption saturée. La spectroscopie Raman stimulée, par exemple, permet de mesurer des écarts d'énergie entre niveaux hyperfins, ce qui donne des informations complémentaires sur la structure hyperfine de l'iode [Wallerand, 99].

La spectroscopie laser à haute résolution permet donc de sonder de façon très précise et sensible les transitions optiques des molécules ou autres ions ou atomes. Les transitions hyperfines de faibles largeurs spectrales peuvent ensuite être appliquées à l'asservissement et la stabilisation de lasers en fréquence. Ces lasers stabilisés deviennent de potentiels étalons secondaires de fréquences (ou de longueurs d'ondes).

A-I.3 Asservissement de lasers en fréquence-référence de fréquence :

Pour développer une référence de fréquences optiques, on utilise un montage de spectroscopie d'absorption saturée, dont le signal détecté et traité est utilisé pour asservir la fréquence du laser. Un schéma de principe est représenté sur la figure A-4 suivante.

La référence de fréquence utilisée pour l'asservissement est une transition optique d'un atome, d'un ion ou d'une molécule, puisque ces propriétés physiques sont invariantes dans le temps à pression et température données.



Figure A-4 : Schéma de principe d'un étalon de fréquences optiques. La fréquence du laser asservi correspond à la fréquence v_0 de la transition des molécules absorbantes utilisées comme référence.

Les absorbants peuvent être contenus dans une cuve (comme souvent pour l'iode moléculaire), dans un jet, stockés dans un piège électromagnétique (ions) ou relâchés d'un piège magnéto-optique. Comme pour la spectroscopie d'absorption, si la fréquence du laser est accordée sur une résonance atomique ou moléculaire, une partie de la puissance est transférée du laser à l'absorbant et une raie d'absorption est détectée. Le système de détection convertit le signal d'absorption en un signal d'erreur utilisé par le système d'asservissement pour asservir la fréquence du laser au centre de la raie d'absorption.

Les raies de référence avec un facteur de qualité $Q=v/\delta v$ important (δv est la largeur de la transition à la fréquence v), ainsi qu'avec la plus faible dépendance possible de leur fréquence avec des champs extérieurs ou avec les collisions sont les plus avantageuses.

Historiquement, seuls quelques lasers à gaz (He-Ne, argon, ou CO₂) étaient disponibles, et donc utilisés, pour les applications d'étalons de fréquence. Seules les transitions d'absorption de molécules coïncidant avec le spectre d'émission de ces sources pouvaient alors être sélectionnées comme raies de référence pour la stabilisation. Ces raies étaient fournies par le spectre dense de la molécule d'iode dans le visible et le proche infrarouge et par les raies des composés CH₄, CO₂, SF₆ ou OsO₄ dans l'infrarouge. Les développements dans les domaines des diodes lasers, des matériaux laser et non linéaire ont contribué l'apparition de sources accordables à de nombreuses longueurs d'ondes permettant un choix plus souple de transitions de référence. Les nombreux progrès et développements dans le domaine des lasers solides pompés par diode couplés à la génération d'harmoniques par optique non linéaire y ont notamment fortement contribué [Picard, 03], [Hall, 99], tout comme nous le verrons pour la mesure absolue de fréquences.

A-I.4 Mesures absolues de fréquences-étalon de fréquences :

La fréquence d'une transition détectée dans les mesures spectroscopiques ou utilisée comme référence dans un laser asservi est mesurée par rapport à une référence absolue. Cette référence de fréquence est prise par rapport à une horloge à fontaine atomique de ¹³³Cs, étalon primaire de temps-fréquence. A partir de cette référence à 9,192 GHz, de nombreux étages de conversions de fréquences étaient jusqu'alors nécessaires pour atteindre le domaine optique [Schnatz, 96], comme on peut le voir sur la figure A-5a.



Figure A-5a : Mesure de fréquence d'un laser asservi sur le Ca à 658 nm par une chaîne de fréquences optique cohérentes en phase [Schnatz, 96] - En haut (encadré gras), le laser asservi sur une transition du Ca dont la fréquence est à mesurer, en bas à droite (encadré gras), l'horloge atomique à Cs, référence de temps-fréquence.

Depuis quelques années, grâce aux développements des oscillateurs lasers femtoseconde qui délivrent un peigne d'impulsions identiques et équidistantes², la mesure de fréquences optiques par rapport à cette référence est devenue beaucoup plus simple [Udem, 99] (figure A-5b). Le rayonnement d'un oscillateur saphir dopé au titane (Ti:Sa), émettant des impulsions femtoseconde autour de 800 nm est stabilisé sur une horloge atomique, puis injecté dans une fibre microstructurée (fibres photoniques). La fibre microstructurée élargi fortement le spectre injecté et permet la génération d'un continuum de lumière de 500 à 1100 nm [Diddams, 00]. Le peigne de fréquences obtenu joue alors le rôle d'une règle très précise graduée en fréquence.

² Le taux de répétition est fixé par la longueur de l'oscillateur.



Figure A-5b : Chaînes de mesures de fréquences de lasers stabilisés à 532, et 633 ou 778 nm par peigne de fréquences d'un oscillateur femtoseconde [Diddams, 00] - A gauche(encadré gras) les lasers dont les fréquences sont à mesurer, à droite (encadré gras) l'horloge atomique à Cs de référence.

On peut citer, par exemple, la chaîne de fréquences du Laboratoire de Physique des Lasers (L.P.L.) de Villetaneuse (Université Paris 13), qui prend comme référence la fontaine atomique du B.N.M.-S.Y.R.T.E. basée à l'Observatoire de Paris. Le signal de référence primaire est transporté de l'Observatoire de Paris vers le L.P.L., via une liaison par fibre optique de 43 km (aller-retour), où il est utilisé comme référence pour étalonner le peigne de fréquence synthétisé par un oscillateur saphir dopé au titane (Ti:Sa) [Amy-Klein, 04].

A-I.5 Applications des lasers asservis :

Les lasers asservis en fréquence trouvent de nombreuses applications dans tous les domaines qui requièrent une grande précision de mesure. Donnons-en ici quelques exemples généraux qui ne sont pas forcément spécifiques aux transitions à 500 nm.

Dans des domaines fondamentaux, ils sont l'outil adéquat pour la mesure de constantes fondamentales, tels que la constante de Rydberg ou la constante de Boltzmann k_B , et le test de leur variation dans le temps. La constante de Rydberg et le test de sa variation, par exemple, peuvent être déterminée par la spectroscopie hyperfine de l'hydrogène révélant les transitions de Balmer dans le visible. De tels travaux sont en court par exemple au L.P.L. de Villetaneuse. Ils sont aussi utilisés pour des tests de physique fondamentale, par exemple la validation du modèle de l'Electrodynamique Quantique ou encore des tests du modèle standard. Ces lasers sont aussi l'instrument de base pour les mesures du champ de gravité terrestre que ce soit sur des interféromètres spatiaux, tels que la mission LISA de l'Agence Spatiale Européenne, ou terrestres avec l'interféromètre VIRGO. Concernant l'iode et sa spectroscopie ultra précise, un laser asservi avec une faible largeur de raie (< 1 kHz) pourrait permettre de mesurer avec précision le doublet de recul de l'iode, apparaissant dans les expériences de spectroscopie d'absorption saturée. Dans ces expériences, la transition entre le niveau fondamental et le niveau excité satisfait à la conservation de l'énergie et de l'impulsion. Il apparaît alors deux fréquences de résonances décalées de $2.\delta v$, avec $\delta v = \hbar \omega_0^2 / 2Mc^2 \approx 3kHz$ (où ω_0 est la pulsation de la transition considérée et M la masse de la molécule d'iode). Ce décalage en fréquence de $\pm \delta v$ par rapport à la fréquence fondamentale correspond à l'effet de recul de la molécule, soit en absorption, soit en émission [Camy, 85]. Il serait intéressant de pouvoir résoudre ce doublet de recul avec un laser asservi ayant une largeur de raie inférieure au décalage.

Outre leur intérêt pour ce type de recherches fondamentales, de telles sources intéressent aussi les industriels des télécommunications optiques (lasers asservis autour de 1,5 µm) ou encore les spécialistes du système de positionnement terrestre G.P.S. (Global Positionning System).

A-I.6 Intérêts des lasers solides pompés par diode laser :

Comme nous l'avons vu, les intérêts des lasers monofréquences autour de 500 nm sont nombreux et en particulier pour le développement d'étalons secondaires de fréquences optiques. Ce type d'étalons peut être utilisé pour de nombreuses applications. Néanmoins, il doit y avoir une certaine adéquation entre l'outil (ici la source laser asservie et stabilisée), l'application et l'utilisateur. Ainsi, l'utilisateur n'est en général pas un spécialiste des lasers et demande donc une prise en main et une utilisation des plus simples ainsi qu'un entretien minimum. L'encombrement et la robustesse seront aussi deux points très importants dans le cas d'une source transportable par exemple, et encore plus pour une source spatialisable ! Enfin, il est évident que la consommation électrique doit être réduite au maximum tout en gardant des puissances de sortie de plusieurs dizaines de mW.

Jusqu'à présent, autour de 500 nm (501-515 nm), seuls les lasers à argon ionisés pouvaient être utilisés, puisque ce sont quasiment les seules³ sources émettant en régime continu à ces longueurs d'ondes. Ils ont ainsi permis d'étudier les transitions prometteuses de l'iode et de faire de nombreuses mesures de fréquences et de largeurs de raies. Néanmoins, comme le soulignent F. Du Burck et ses collègues du L.P.L. [Du Burck, 04], c'est le manque de stabilité intrinsèque des lasers à gaz qui limite la précision et la stabilité des sources asservies sur l'iode à 500 nm. La raie d'émission du laser à argon étant beaucoup plus faible à 501 nm qu'à 514 nm (rapport des puissances monofréquences \approx 17%), après stabilisations, il reste peu de puissance disponible à 501 nm, ce qui donne des rapports signal/bruit faibles limitant la précision des mesures.

L'utilisation de lasers solides pompés par diode permet un gain de stabilité, d'encombrement et une réduction de la puissance électrique consommée. Comme nous l'avons brièvement vu précédemment, de tels lasers sont déjà utilisés à 532 nm avec des lasers monolithiques Nd:YAG doublés en fréquence.

³ Je ne parlerais pas ici des lasers à colorants qui, bien que pouvant émettre à ces longueurs d'ondes, ne sont pas adaptés au problème ici posé, de sources compactes, stables et faciles d'utilisation et d'entretien.

A travers ces quelques considérations, on voit tout l'intérêt que peuvent apporter les lasers solides pompé par diode. Le premier⁴ intérêt des lasers solides est le faible encombrement du milieu amplificateur, comparé aux tubes de gaz de longueurs supérieures à la dizaine de centimètres. Si on considère tout d'abord les cristaux massifs, les tailles caractéristiques s'étalent de la centaine de micromètres pour la technologie du disque mince (dites du "thindisk") [Brauch, 95] au centimètre pour des barreaux de Nd:YAG⁵. Les fibres optiques dopées sont, en générale, longues, mais sont souples, ce qui laisse plus de liberté quant à leur agencement. Un autre type de milieu amplificateur de type solide sont les structures semiconductrices à puits quantiques et émission par la surface, souvent appelées VECSEL pour "Vertical External-Cavity Suface-Emitting Lasers". L'épaisseur de la structure, composée de puits quantiques et d'un miroir de Bragg, est alors de quelques micromètres [Tropper, 04].

Le deuxième intérêt des lasers solides est la possibilité de pomper ces milieux amplificateurs par des diodes laser. Cela permet un gain de place, mais surtout une meilleure conversion des photons de pompe vers les photons lasers, à travers un très bon recouvrement spectral et un recouvrement spatial optimum des faisceaux en pompage longitudinal. En outre, les diodes lasers ont des rendements électrique-optique excellents (>40%), de longues durées de vie et sont des composants robustes.

Les lasers solides présentent aussi des rendements de conversion élevés. Alors que les lasers à argon offrent des puissances optiques de l'ordre du watt pour une consommation électrique de l'ordre de 10 kW (rendement électrique-optique 0,01%), les lasers solides peuvent avoir des rendements optique-optique jusqu'à 50% soit une conversion électrique-optique de l'ordre de 20% en pompage par diode laser.

Enfin, ce qui est l'intérêt particulier des sources solides pour les applications visées, c'est leur propriété intrinsèque de stabilité comparée aux lasers à gaz. Ainsi, les lasers solides pompés par diode sont des sources compactes, stables, efficaces, simples d'utilisation et d'entretien et de longue durée de vie. De plus, ce type de laser ne nécessite pas forcément de système de refroidissement à eau ou à air comme c'est le cas pour les lasers à argon ionisé.

A-1.7 Puissances et types de lasers utilisés pour les applications sur ¹²⁷l₂ :

Afin de ne pas engendrer d'élargissements de raie supplémentaires dus à des puissances trop élevées, l'intensité du faisceau pompe doit être inférieure à l'intensité de saturation des transitions de l'iode, qui est de l'ordre de 15 W.cm⁻². En considérant un faisceau gaussien d'un mm de diamètre dans la cellule d'iode, une puissance de 10 mW correspond à une intensité de 2,5 W.cm⁻².

Au début des expériences de spectroscopie d'absorption saturée, les puissances nécessaires étaient de l'ordre de quelques mW, pour une taille de faisceau dans la cellule de 0,34 mm [Levenson, 72]. Avec les progrès technologiques, surtout en terme de détection, les faisceaux utilisés actuellement ont des diamètres de l'ordre de un à plusieurs centimètres tout en gardant des puissances de quelques mW. En outre, les pressions du gaz dans la cellule

⁴ Si tant est qu'un classement des avantages des lasers solides pompés par diode, par rapport à d'autres types de sources lasers, puisse être établi !

⁵ Ceci est vrai en pompage par diode, alors qu'en pompage par lampes flash, les barreaux peuvent atteindre plusieurs cm de long.

sont en général inférieures au Pascal pour limiter l'élargissement supplémentaire des transitions par collisions des molécules d'iode.

Actuellement, ce sont des lasers à argon ionisé qui sont utilisés pour étudier la spectroscopie de l'iode autour de 501,7 nm et de 514 nm [Bordé, 81]. Les lasers à argon peuvent émettre sur plusieurs raies discrètes, mais les puissances délivrées à chaque longueur d'onde dépendent bien sûr du gain de l'argon ionisé à la transition correspondante. Notamment, la raie à 501 nm est beaucoup plus faible que la raie à 514 nm. Par exemple, un laser argon émettant 1,5 W à 514 nm ne fournira qu'une cinquantaine de mW à 501 nm.

Les lasers à base de saphir dopé au titane (Ti:Sa) doublés en fréquence sont aussi utilisés dans la gamme 500-532 nm [Cheng, 02], mais ce type de laser solide doit être pompé par un laser argon multi-raies ou par un Nd:YAG doublé en fréquence à 532 nm et n'apporte pas d'avantages en terme de compacité et de simplicité. Autour de 532 nm, des lasers solides monolithiques à base de Nd:YAG doublés en fréquence sont très utilisés du fait de leur grande stabilité intrinsèque [Hong, 02]. C'est d'ailleurs ce type de source qui a permis d'obtenir la meilleure stabilité en fréquence pour un asservissement sur l'iode moléculaire [Hall, 99].

Les puissances utiles (après asservissements et stabilisation) sont de l'ordre de quelques mW, disons typiquement 10 mW, mais il est nécessaire de disposer de puissances supérieures avant asservissement, typiquement 50 mW. Cette dernière valeur dépend néanmoins de la stabilité intrinsèque de la source de départ non stabilisée. Une source peu stable au départ devra être plus puissante pour fournir une puissance utile correcte après asservissements et stabilisation.

A-II État de l'art des lasers solides bleu-vert [450-550 nm] pompés par diode :

Dans cette partie, nous allons dresser un état de l'art, aussi complet que possible, des lasers solides pompés par diode et émettant dans le spectre bleu-vert entre 450 et 550 nm. Nous aurons ainsi une idée globale des solutions possibles pour émettre dans cette gamme de longueurs d'ondes. Nous verrons dans la partie suivante lesquelles de ces solutions peuvent être appliquées spécifiquement à 501,7 nm.

Dans un premier temps, nous présentons ce qui se veut être la solution la plus simple de mise en oeuvre, à savoir les lasers émettant directement dans le bleu-vert, parmi lesquels les diodes lasers visibles ou les lasers solides pompés par diode émettant directement dans le visible. Nous terminerons par toute la diversité des lasers infrarouge dont le rayonnement est converti vers le visible par des processus non linéaires, tels que le doublement de fréquence ou la somme de fréquences. Les milieux amplificateurs peuvent alors être des semiconducteurs, des cristaux massifs ou des fibres.

A-II.1 Lasers émettant directement dans le bleu-vert :

A-II.1.a Les diodes laser visibles :

Le développement de diodes lasers émettant directement dans le bleu-vert est un énorme et attrayant challenge technologique, puisque ces produits visent à terme des marchés à gros volumes tels que le stockage de l'information (notamment avec les lecteurs/graveurs DVD) ou les imprimantes laser à haute résolution. Les matériaux semiconducteurs émettant à ces longueurs d'ondes sont de deux types. Du fait de leurs accords de mailles, les composés à base de ZnSe peuvent être épitaxiés sur des substrats de GaAs et les composés GaN dont la croissance peut être effectuée sur substrats SiC (figure A-6).



Figure A-6 : Énergie de gap (en eV) et paramètre de maille (Å) pour divers composés semiconducteurs binaires III-V (type GaAs) et II-VI (type ZnSe).

Les premières diodes laser bleues, apparues en 1991, fonctionnaient uniquement à basse température autour de 77 K et en régime impulsionnel. En utilisant des composés ZnCdSe plusieurs centaines de mW ont par exemple été obtenus autour de 500 nm à 77 K, mais les structures ne fonctionnaient à température ambiante uniquement avec des seuils très élevés et avec de très courtes durée de vie [Jeon, 91]. A température ambiante, les puissances sont bien moindres, autour de 1 à 2 mW et la durée de vie ne dépasse pas la centaine d'heures [Taniguchi, 96].

Pour les matériaux à base de GaN, peu à peu, avec les développements en physique des semiconducteurs et dans les techniques de croissance et de dopage, l'émission laser à température ambiante a été possible. La saga des diodes laser bleues à base de InGaN a notamment été contée par Shuji Nakamura, leur "inventeur" dans [Nakamura, 00]. Des produits commerciaux émettant plusieurs dizaines de mW sont actuellement sur le marché, développés par la société Nichia, mais seulement autour de 400-415 nm. Nichia propose aussi des échantillons à plus hautes longueurs d'ondes (≈ 475 nm) émettant quelques mW (http://www.nichia.com/fr/product/laser-main.html).

Ces diodes peuvent aussi être montées en cavité externe pour rendre leur rayonnement monomode longitudinal. Ainsi, il est possible d'obtenir plus de 20 mW d'une émission monomode longitudinale à 410 nm à partir d'une diode GaN [Hildebrandt, 03]. Cependant, il semble qu'actuellement, les longueurs d'ondes maximales accessibles à température ambiante se situent autour de 475 nm.

A-II.1.b Lasers à cristaux massifs et fibres :

Il existe peu de milieux amplificateurs solides qui puissent être pompés par diode et qui présentent des transitions d'émission laser dans le bleu-vert. Il en existe néanmoins de deux types, les lasers utilisant des cristaux dopés au praséodyme (Pr) directement pompés dans le bleu-violet et les lasers dits "à upconversion" pompés dans l'infrarouge proche et utilisant souvent des cristaux ou des fibres codopés par deux ions actifs différents.

Cristaux dopés Praséodyme directement pompés par diode :

Dans la série des lasers classiques avec des transitions à trois ou quatre niveaux selon un schéma de pompage "direct"⁶, le cristal de LiYF₄ (YLF) dopé au praséodyme Pr³⁺:YLF, peut être pompé par diode autour de 444 nm et émettre à plusieurs longueurs d'ondes du spectre visible dans le bleu, le vert, l'orange ou le rouge, selon un schéma à quasi-trois niveaux. La figure A-7 (d'après [Richter, 04]) montre le schéma des niveaux d'énergie mis en jeu. Jusqu'à présent, l'émission dans le bleu n'a pas encore été démontrée à cause de contraintes techniques.

La faible puissance des diodes bleues et leur faible variation de longueur d'onde par la température (≈0,07 nm.K⁻¹) ne permettent pas d'atteindre les densités de puissances de pompe nécessaires pour obtenir du gain dans le bleu, mais sont tout de même suffisantes pour que l'émission laser dans le rouge soit possible. De cette manière, près de 2 mW de rouge à 640 nm ont été obtenus avec une diode de pompe émettant 25 mW à 442 nm en utilisant un cristal de 7 mm de long [Richter, 04].

⁶ Pour lequel un photon de pompe peut générer un photon laser.



Figure A-7 : Schéma d'énergie du Pr:YLF dans le domaine visible.

Pour une émission dans le rouge, le laser fonctionne selon un schéma à 4 niveaux, alors que l'émission dans le bleu fonctionnerait selon un schéma à 3 niveaux. Or, pour atteindre les longueurs d'ondes bleues et vertes, il est nécessaire de saturer l'absorption du cristal et de dépeupler au maximum les niveaux de plus basses énergies⁷. Comme le précisent les auteurs, les résultats obtenus sont encore non optimisés puisque la longueur d'onde d'émission de la diode de pompe (442 nm) n'est pas tout à fait accordée sur le maximum d'absorption du Pr:YLF (444 nm). L'absorption ne peut pas alors être saturée suffisamment pour obtenir du gain aux faibles longueurs d'ondes et l'émission laser a alors lieu dans le rouge. Même si ces résultats ne rentrent pas dans la gamme de longueurs d'ondes répertoriées dans cet état de l'art, ils valent bien d'être notés puisqu'une optimisation des composants (longueur d'onde, puissance de la diode de pompe et dopage du cristal laser) permettrait sans doutes d'obtenir une émission dans le vert (530 nm) ou dans le bleu (490 nm). De plus, il semble que ce soit le premier laser solide continu visible pompé par une diode bleue.

Lasers à "upconversion" :

Dans la plupart des lasers, la longueur d'onde d'émission laser est plus grande que la longueur d'onde de pompage utilisée pour créer l'inversion de population. C'est le cas de tous les lasers qui utilisent un processus de pompage "direct" dans lequel un photon de pompe peut générer un photon laser, comme dans le paragraphe précédent. Mais d'autres schémas de pompage existent (figure A-8) dans lesquels deux ou plus de deux photons de pompe sont utilisés pour amener un ion actif dans un niveau excité, tel que l'émission laser se fasse à une longueur d'onde plus petite que la longueur d'onde de pompe (*i.e.* l'énergie d'un photon laser est supérieure à l'énergie d'un photon de pompe).

⁷ Nous reviendrons sur ces considérations dans la partie B dédiée aux cristaux dopés ytterbium.



Figure A-8 : Processus d'upconversion : a) absorption par les états excités dans un ion dopant seul - b) transfert d'énergie d'un ion codopant A vers l'ion actif B et absorption par les états excités.

C'est le cas des lasers dits à "upconversion" (conversion vers les états excités) qui, par des phénomènes de transferts d'énergie entre ions actifs voisins et/ou d'absorption par les états excités (ESA pour "Excited State Absorption") produisent une émission dans le spectre visible à partir d'une excitation dans le domaine infrarouge. Les processus d'upconversion peuvent avoir lieu dans des cristaux dopés par un seul type d'ions, mais nécessitent généralement d'être refroidis à des températures cryogéniques pour être efficaces et/ou d'utiliser deux longueurs d'ondes de pompe (figure A-8-a). En effet, le temps de vie des niveaux augmente quand la température diminue, l'absorption d'un photon de pompe par un ion déjà sur un niveau excité est alors plus probable à basse température. De plus, la quasi-totalité des résultats reportés dans la littérature sont obtenus en utilisant des sources de pompe fournissant un faisceau gaussien TEMoo et non pas en utilisant des diodes laser. Citons juste le cas du YAG dopé au thullium (Tm³⁺:YAG) ou du YLF (LiYF₄) dopé par des ions erbium (Er³⁺:YLF) opérant à des températures de quelques dizaines de Kelvin. Pour le Tm:YAG, le pompage était réalisé par deux lasers émettant à deux longueurs d'ondes (un oscillateur Ti:Sa à 785 nm et un laser à colorant à 638 nm) pour réaliser correctement les transferts d'énergie [Scott, 93]. L'émission avait alors lieu à 486 nm mais les puissances reportées sont de quelques µW pour plusieurs centaines de mW de pompe. Le cristal de Er:YLF, lui, a permis d'obtenir plusieurs centaines de mW à 550 nm à une température de 50 K [McFarlane, 91].

Quelques publications présentent quand même des résultats à température ambiante en utilisant des cristaux massifs dopés par un seul type d'ions et pompés par diode laser. Un cristal de Er³⁺:LiLuF₄ a été utilisé pour émettre à 552 nm et à température ambiante [Heumann, 02]. Un schéma de pompage multipassages est utilisé pour augmenter la densité de puissance de pompe. Des puissances de l'ordre de 200 mW ont été obtenues en pompage par un laser à saphir dopé au titane. La puissance laser chute à 8 mW en pompage par diode du fait du moins bon recouvrement spectral et de la divergence plus importante d'une telle source, ce qui diminue fortement la densité de puissance de pompe moyenne.

Les mêmes types de processus apparaissent de manière plus efficace en co-dopant les matériaux avec deux types d'ions (figure A-8-b). L'un des ions, le co-dopant, est utilisé pour absorber les photons de pompe. L'énergie acquise par ces ions est ensuite transférée vers les ions actifs ayant des propriétés laser et présentant aussi de l'absorption par les états excités. Pour que ces processus soient efficaces, il faut de grandes densités de puissances de pompes et des matériaux ayant de nombreux niveaux métastables, pour multiplier les interactions possibles. Ainsi, la plupart des solutions démontrées utilisent des fibres dopées plutôt que des cristaux massifs, puisque de grandes densités de puissances sur de grandes longueurs d'interaction sont alors obtenues. Citons quand même les résultats obtenus avec des cristaux massifs Yb-Tm:BaY₂F₈ en pompage par diode [Thrash, 94]. L'oscillation laser a été observée en régime impulsionnel à 456 et 512 nm en utilisant deux diodes de pompes de 100 mW chacune à 960 nm avec un seuil d'oscillation laser à 190 mW.

Dans la plupart des cas, les fibres utilisées sont des fibres en verres de fluorure et particulièrement les fibres de fluorozicornates ZBLAN (fluorures de zirconium, de baryum, de lanthane, d'aluminium et de sodium) ayant de nombreux niveaux métastables. Ce type de fibre présente notamment des énergies des modes fondamentaux de vibrations du réseau (phonons) de l'ordre de 580 cm⁻¹, contre 1100 cm⁻¹ dans la silice. Ces phonons permettent en particulier de coupler non radiativement les niveaux d'énergie métastables entre eux, c'est-àdire qu'ils permettent à un ion sur un niveau excité de "descendre" sur un niveaux moins excité. On comprend donc que plus cette énergie de phonons est petite et plus les transferts entre niveaux métastables pourront être nombreux et divers [Monerie, 02].

On peut noter en particulier les résultats obtenus à l'Université de Jena (Allemagne) dans des fibres de ZBLAN co-dopés par de l'Ytterbium et du Praséodyme [Zellmer, 99]. Une puissance de 165 mW a été obtenue dans le bleu à 491 nm pour une puissance de pompe de 1,6 W incidente à 850 nm. Néanmoins, la source de pompe utilisée ici est un laser à saphir dopé au titane (Ti:Sa) produisant un faisceau de pompe idéal (limité par la diffraction - M²=1) qui peut être facilement couplé dans la fibre. Les tests en pompage par diode ont permis d'obtenir 8 mW de bleu pour 200 mW de puissance de pompe. Le même genre de fibre a été utilisé pour émettre soit dans le bleu (490 nm), soit dans le vert (520 nm), soit dans le rouge (630 nm) suivant la longueur de la fibre ou la puissance de pompe [Xie, 95]. Plus récemment, on trouve aussi des résultats intéressants avec des fibres de ZBLAN dopées par des ions thulium. Le pompage se fait autour de 1,1 µm par l'intermédiaire d'un laser à fibre dopée ytterbium délivrant 15W en régime continu. Pour 3W de puissance de pompe absorbée, les auteurs rapportent un maximum de 240 mW de bleu à 480 nm [Faucher, 04].

De tels systèmes laser peuvent donc se révéler performants si le faisceau de pompe peut être efficacement couplé dans la fibre. Toutefois, ces matériaux n'émettent pas dans le domaine de longueurs d'ondes qui nous intéresse (500-514 nm). Les fibres utilisant un dopage au thulium ou un codopage ytterbium/thulium émettent à 455 nm ou 480 nm, le dopage praséodyme ou ytterbium/ praséodyme donnent lieu à une émission à 490 nm ou supérieure à 520 nm, et le dopage erbium, ainsi que le dopage par des ions Holmium (Ho³⁺), produisent une émission dans le vert autour de 550 nm [Risk, 03]. Enfin, leur efficacité plutôt faible en pompage par diode laser rend difficile une émission monomode longitudinale, nécessitant l'insertion d'éléments introduisant des pertes.

A-II.2 Lasers solides infrarouge et processus non linéaires :

A-II.2.a Cristaux massifs émettant dans l'IR et doublés en fréquence :

De très nombreuses sources à base de cristaux massifs émettant dans le proche infrarouge et doublées en fréquence existent. Cette solution est d'ailleurs largement la plus répandue pour le développement des lasers commerciaux. Nous n'allons pas pouvoir ici faire une revue complète de toutes les solutions utilisées et de toutes longueurs d'ondes obtenues. Nous allons présenter ici les trois grandes familles permettant d'atteindre la plage de longueurs d'ondes visibles 450-550 nm. Nous avons tout d'abord l'inévitable cristal de saphir dopé au titane (Ti:Sa), puis la famille des cristaux dopés par l'ion néodyme avec notamment les Nd:YAG et Nd:YVO4 (ou encore le Nd:GdVO4) et enfin les cristaux dopés par l'ion ytterbium.

Le cristal de Ti:Sa :

Le cristal de Ti:Sa (Ti³⁺:Al₂O₃) est largement utilisé dans de nombreux domaines requérant soit une grande gamme d'accordabilité, soit la génération d'impulsion ultracourtes, puisque son spectre d'émission s'étale d'environ 700 nm à plus de 1000 nm. L'association d'un laser à argon ionisé pompant un oscillateur Ti:Sa est très largement répandue dans de nombreux laboratoires. Avec l'arrivée sur le marché de lasers pompés par diode émettant à 532 nm (Nd:YAG doublé en fréquence par exemple), le cristal de Ti:Sa devient un matériau que l'on peut pomper (indirectement) par diode laser permettant le développement de sources plus compactes et plus économiques. Le maximum du spectre d'émission du Ti:Sa se situant autour de 800 nm, nombre de publications relatent le doublement de fréquence de ces laser pour atteindre 400 nm, puis utilisent la génération de troisième harmonique pour atteindre le domaine UV [Sayama, 97]. Le même principe de doublement de fréquence peut facilement être appliqué autour de 1 µm pour obtenir une émission autour de 500 nm, comme dans l'expérience de spectroscopie de l'iode de Cheng et al. [Cheng, 02]. Son principal inconvénient est qu'il doit être pompé soit par un laser à Argon (encombrant, grand consommateur d'énergie, ...), soit par un laser commercial de type Nd:YAG doublé en fréquence à 532 nm qui reste coûteux face à une diode laser.

Les cristaux dopés au Nd :

Les cristaux dopés par des ions néodyme (Nd³⁺) sont très utilisés en pompage par diode depuis le début des années 1980 et l'apparition des diodes lasers autour de 808 nm. Leurs principales raies d'émissions se situent autour de 1300 nm, 1050-1060 nm et 910-940 nm. Ainsi, l'émission dans le bleu-vert est obtenue par doublement de fréquence des raies à 1064 nm ou 946 nm du Nd:YAG par exemple. De tels lasers peuvent fournir plus de 3W watts à 532 nm à partir de 14W de puissance de pompe à 808 nm [Martin, 96]⁸, alors que l'émission dans le bleu à 473 nm par doublement de la raie à 946 nm donne lieu à des puissances de 2,8 W pour 21 W de puissance de pompe [Czeranowsky, 03]. La différence de rendement peut s'expliquer par le caractère 3 niveaux de la raie à 946 nm face à un laser plus efficace à 4

⁸ Notons tout de même que de tels lasers existent commercialement et peuvent fournir des puissances bien plus élevées grâce à d'importants développements technologiques (Coherent Verdi 18W).

niveaux pour la transition à 1064 nm. Néanmoins, la plupart des cristaux dopés par l'ion néodyme présentent des raies d'émission plutôt étroites et à des longueurs d'ondes similaires.

Il est par contre possible de générer d'autres longueurs d'ondes visibles par mélange des fréquences de deux lasers dopés Nd émettant à deux longueurs d'ondes. En effectuant la somme de fréquence d'un laser bi-longueurs d'ondes utilisant un cristal de Nd:GdVO₄ émettant à 912 nm et un cristal de Nd:YVO₄ émettant à 1064 nm dans un cristal non linéaire de BiBO, 300 mW de bleu à 491 nm ont été obtenus pour 10W de pompe à 808 nm [Hérault, 05].

Les cristaux et fibres dopés Yb :

Les cristaux dopés par l'ion ytterbium (Yb³⁺), présentent eux des spectres d'émission de forme assez variable mais toujours dans la gamme 980-1080 nm environ. Ils sont généralement pompés par diode laser autour de 980 nm ou autour de 940 nm. Leurs propriétés spectroscopiques varient en fonction de la matrice cristalline hôte dans laquelle les ions ytterbium sont insérés. Ce sont des lasers efficaces dans l'infrarouge comme nous le verrons dans la suite de ce manuscrit, permettant, par doublement de fréquence, d'atteindre le bleu-vert. Ainsi une centaine de mW ont été obtenus avec un cristal de Yb:S-FAP [Peach, 96], appartenant à la famille des fluoroapatites, et choisi pour le projet Mercury de fusion inertielle aux États-Unis. En utilisant un cristal fin de Yb:YAG, 520 mW de vert à 526 nm ont été obtenu par doublement de fréquence intracavité dans un cristal de LBO [Saikawa, 02]. La puissance de pompe était alors de 10 W à 940 nm. Néanmoins, peu de publications relatent jusqu'à présent ce genre de développements dans des cristaux massifs.

Les fibres dopées ytterbium peuvent aussi être utilisées pour ce genre d'applications. Néanmoins, les spectres d'émission présentent un pic à 980 nm, un creux autour de 1000 nm puis une "bosse" autour de 1030 nm. Ces fibres peuvent alors émettre autour de 1030 nm, et jusqu'à 1100 nm, ou à 980 nm. La raie à 980 nm est utilisée pour atteindre les longueurs d'ondes spécifiques autour de 488 nm pour les applications biologiques. En doublant l'émission à 980 nm d'un laser à fibre dopée ytterbium préalablement amplifiée, une vingtaine de mW à 488 nm ont par exemple été obtenus [Soh, 04]. Dans ce cas, l'efficacité de conversion optique totale reste modeste puisqu'une puissance de pompe totale de 16 W à 915 nm est alors utilisée. Cette faible efficacité n'est pas due au matériau laser ytterbium utilisé, mais plutôt à un schéma de doublement de fréquence en simple passage peu efficace et à une largeur de raie du laser infrarouge supérieur à l'acceptance spectrale du cristal de ppKTP utilisé pour le doublement de fréquence.

Un peu plus récemment, plus de 80 mW à 489 nm ont été produits à partir d'un laser à fibre monomode dopée ytterbium émettant 2W à 980 nm et doublé en fréquence dans un guide d'onde de ppLN [Bouchier, 05].

A-II.2.b Cristaux massifs lasers aux propriétés d'auto-doublement de fréquence :

Outre leurs propriétés laser, certains matériaux possèdent des propriétés non linéaires. Ils peuvent alors doubler en fréquence le rayonnement qu'ils émettent, ce sont des "autodoubleurs" de fréquence. Ils combinent ainsi les deux fonctions à la fois : l'amplification optique par émission stimulée et la conversion de fréquence. C'est le cas de cristaux dont la matrice hôte a, intrinsèquement, des propriétés non linéaires, et qui peuvent être dopés par un ion actif. On trouve par exemple le Nd:GdCOB [Lucas-Leclin, 00] qui a permis d'obtenir une puissance de 115 mW à 545 nm à partir de 2W de puissance de pompe produits par une diode à 810 nm.



Figure A-9 : Laser MicroCOB utilisant un cristal autodoubleur de fréquence (Nd:GdCOB).

Il est aussi à la base d'un laser prototype, le MicroCOB (figure A-9), à partir de travaux menés en collaboration par l'équipe ELSA du LCFIO, le Laboratoire de Chimie Appliquée à l'Etat Solide (LCAES) de l'école Chimie-Paris, le CEA-LETI, St-Gobain Recherche et la société JDS Uniphase-Nanolase.

Parmi les cristaux auto-doubleurs dopés ytterbium et avec la même puissance de pompe de 2W en diode laser à 980 nm, le Yb:YAB (Yb³⁺:YAl₃(BO₃)₄) se révèle efficace avec 145 mW émis à 530 nm [Wang, 00]. Pour une puissance de pompe plus élevée, de 12 W, 1,1W ont aussi été produit à 530 nm en opération multimode longitudinale [Dekker, 01].

Un autre matériau dopé ytterbium présentant des qualités d'autodoublement de fréquence est le Yb:MgO:LiNbO₃. Lorsqu'il n'est pas dopé par des ions ytterbium, ce cristal a des propriétés non linéaires et est largement utilisé pour le développement d'oscillateurs paramétriques optiques dans le domaine infrarouge surtout dans sa version périodiquement polarisé (ppLN) [Bosenberg, 96]. L'addition de MgO permet de diminuer le seuil de dommage photo-réfractif. En dopant le MgO:LiNbO₃ avec des ions ytterbium, ce cristal acquiert des propriétés lasers qui s'ajoutent à ses propriétés non-linéaires (ainsi qu'à ses propriétés électro-optiques, acousto-optiques, piezo-électriques et pyro-électriques). En utilisant un pompage par laser Ti:Sa, une trentaine de mW ont été obtenus à 530 nm par autodoublement de fréquence [Montoya, 99].

A-II.2.c Semiconducteurs doublés en fréquence :

La dernière classe de lasers solides pompés par diode et utilisant des processus de conversion non linéaires pour émettre dans le visible est la famille des lasers à semiconducteurs. Ils peuvent être de deux types : soit des diodes lasers infrarouge doublées en fréquence, soit des structures semiconductrices à puits quantiques pompés optiquement et doublées en fréquence.

Diodes laser infrarouge doublées en fréquence :

Bien que le faisceau émis classiquement par une diode laser soit de mauvaise qualité spatiale, la mise en cavité étendue de diode laser rend l'oscillation du mode transverse TEM₀₀ possible en régime monomode longitudinal [Harvey, 91]. En appliquant ce principe à une diode laser émettant dans le proche infrarouge et en doublant la fréquence du rayonnement monomode longitudinal résultant, près de 23 mW ont été obtenus à 540 nm à partir d'une diode émettant 50 mW [Hayasaka, 04]. La faiblesse de la puissance émise par la diode en cavité étendue rend nécessaire l'utilisation d'un doublement de fréquence dans une cavité externe résonnante⁹ pour augmenter l'efficacité de conversion. Pour améliorer encore les performances obtenues, il est aussi possible d'amplifier le faisceau monomode longitudinal, issu de la diode en cavité étendue, dans un amplificateur semiconducteur avant la conversion non linéaire ou d'utiliser une diode laser plus puissante de type évasée ("tapered") [Bhawalkar, 99] [Le Targat, 05].

Lasers à semiconducteurs pompés optiquement (OPSL) :

Ces structures ressemblent fortement aux lasers de type de VCSEL ("Vertical Cavity Surface Emitting Laser" : Laser à cavité verticale et émission par la surface) qui utilisent un milieu à gain à base de puits quantiques semiconducteurs, des miroirs de Bragg pour former la cavité et un pompage électrique. Ici, ce sont des structures composées d'un miroir de Bragg et du milieu à gain (plusieurs puits quantiques en AlGaAs-InGaAs¹⁰) mises en cavité externe et pompées par diode laser, généralement autour de 800 nm. On les trouve souvent sous les dénominations de "OPS Lasers" (Optically Pumped Semiconductor Lasers), "OP-VECSEL" (Optically Pumped-Vertical-External Cavity Surface-Emitting Lasers) ou "semiconductor disk Lasers". Le choix de la gamme de longueurs d'ondes d'émission laser se fait par la composition et l'ingénierie de la structure à gain à puits quantiques. En effet, l'épaisseur des puits quantiques et les proportions relatives entre l'indium, le gallium et l'arsenic composant ces puits permettent de contrôler la longueur d'onde centrale d'émission laser. L'épaisseur des couches de AlAs-GaAs formant les miroirs de Bragg contrôle, quant à elle, la longueur d'onde centrale de réflectivité du miroir. De tels lasers peuvent donc émettre autour de 1 µm et être aisément doublés en fréquence par insertion d'un cristal non linéaire dans la cavité. Les travaux sur ce type de sources sont très nombreux actuellement du fait de leur relative simplicité, de l'arrivée à maturité des structures à puits quantiques et de leur souplesse en termes de choix des longueurs d'ondes laser et de la source de pompe.

De nombreux travaux font états de sources bleues [Raymond, 99], vertes [Lutgen, 05], orange [Gerster, 03] ou rouges [Hastie, 04] ayant de multiples applications biologiques, médicales ou industrielles. Les sources bleues et vertes utilisent les mêmes types de structures VCSELs à base de InGaAs-AlGaAs, alors que la source orange utilise des puits quantiques en GaAsSb pour une émission autour de 1,2 µm. Ces trois solutions utilisent un pompage autour de 800 nm et le rayonnement infrarouge est doublé en fréquence intracavité. La source rouge récemment présentée par l'université de Strathclyde utilise d'autres combinaisons de semiconducteurs (GaInP/AlGaInP), émettant directement dans le rouge autour de 670 nm,

⁹ Que nous expliciterons par la suite.

 $^{^{\}rm 10}$ Pour une émission autour de 1 $\mu m.$