

Absorptions UV dans le fonctionnement des sources lasers solides à ions de terres rares

R. Moncorgé¹, J. Margerie¹, J.L. Doualan¹, P. Nagtegale¹, Y. Guyot²
et M.F. Joubert²

¹ Centre Interdisciplinaire de Recherches Ions Lasers (CIRIL), Équipe « Matériaux et Instrumentation Laser » UMR 6637 CEA-CNRS-ENSICAEN, Université de Caen, 6 Bd. Maréchal Juin, 14050 Caen, France
e-mail : richard.moncorge@ensicaen.fr

² Laboratoire de Physico-Chimie des Matériaux Luminescents, UMR 5620 CNRS, Université Claude Bernard de Lyon 1, 43 Bd. 11 Novembre 1918, 69622 Villeurbanne, France

Résumé. L'article donne une description et analyse les phénomènes d'absorption UV à l'origine des mécanismes de solarisation et de variation d'indice de réfraction observés dans certains matériaux dopés terres rares étudiés pour leurs propriétés laser UV ou infrarouge lorsqu'ils sont soumis à de fortes densités d'excitation optique.

1. INTRODUCTION

De nombreux travaux ont été consacrés durant cette décennie à l'étude des mécanismes de pompage optique par étapes et aux mécanismes d'absorption dans les états excités (ESA) des ions de terres rares dans les matériaux solides pour les scintillateurs et les lasers [1-3]. Les résultats de ces recherches théoriques et expérimentales nous permettent aujourd'hui de mieux comprendre pourquoi il est si difficile de trouver un bon système laser solide fonctionnant dans le domaine UV et pourquoi, parmi ceux qui sont dopés par les ions Ce^{3+} , Pr^{3+} et Nd^{3+} , seuls quelques fluorures dopés par les ions Ce^{3+} ont conduit à des systèmes laser accordables et des amplificateurs réellement efficaces [4-6], pourquoi aucun matériau dopé Pr^{3+} n'a jamais fonctionné et pourquoi quelque espoir existe encore de voir fonctionner un cristal dopé Nd^{3+} dans le VUV suite à une excitation à deux photons.

D'un autre côté, la caractérisation et la compréhension de ces mécanismes de pompage optique multiphotonique et d'absorption dans les états excités aident grandement pour rendre compte des différences de polarisabilités des ions actifs dans leurs états fondamental et excités, différences qui semblent à l'origine du comportement auto-déclenché et de la formation des réseaux de diffraction transitoires observés dans des systèmes lasers fortement pompés tels que LiCAF:Cr [7-9] et YAG:Nd [10, 11].

Après une brève description des systèmes laser mentionnés plus haut et de leurs modes de fonctionnement particuliers, l'article portera sur les résultats spectroscopiques obtenus le plus récemment pour rendre compte par exemple des variations d'indice de réfraction spectaculaires de 5 à 7×10^{-6} observés dans le YAG :Nd en présence d'un pompage diode intense et d'une excitation laser simultanée à 266 nm [11].

2. ABSORPTION DANS L'ÉTAT EXCITÉ DES IONS DANS LES MATÉRIAUX ÉMETTEURS DE RAYONNEMENT UV

Les matériaux solides susceptibles d'émettre un rayonnement laser dans l'ultraviolet sont essentiellement des cristaux à base de fluor (des fluorures) dont le domaine de transparence est typiquement d'une dizaine d'eV, dopés par les ions terres rares trivalents Ce^{3+} , Pr^{3+} ou Nd^{3+} .

Les transitions optiques mis en jeu sont des transitions très intenses (dipolaires électriques) entre configurations électronique fondamentale et excitée $4f^n$ et $4f^{n-1}5d$ (voir Figure 1). Ce sont des transitions optiques de type vibronique, ce qui en fait potentiellement des systèmes lasers UV, voire VUV, très largement accordables au même titre que les autres systèmes laser vibroniques tels que les lasers à colorants, le Ti:Saphir ou plus récemment le Cr:ZnSe.

De fait, on est maintenant capable de fabriquer des systèmes laser solides à base d'ions Ce^{3+} que l'on peut pomper à l'aide de différentes sources, très largement accordables sur plusieurs dizaines de nm et très efficaces, le record ayant été obtenu avec le cristal $LiLuF_4 :Ce^{3+}$ avec un rendement optique de l'ordre de 60% [4, 5, 12]. Ces cristaux, notamment le $LiCAF :Ce^{3+}$, ont également servi d'amplificateurs pour des lasers UV nanosecondes de haute énergie [13, 14] et même pour des impulsions laser UV d'une centaine de femtosecondes et de quelques mJ [6].

Ceci étant, dans les domaines de longueur d'onde considérés, seuls les cristaux $LiCaAlF_6$ et $LiLuF_4$ dopés Ce^{3+} ont réellement donné des résultats intéressants. De plus, il n'a jamais été possible de « faire laser » un cristal dopé Pr^{3+} , ce qui est regrettable car les domaines d'émission correspondants (220-300 nm) sont très intéressants. Enfin, seuls les systèmes LaF_3 et $LiYF_4$ dopés Nd^{3+} semblent avoir conduits à un effet laser, les résultats en question ayant été obtenus jusqu'à présent, dans chaque cas, par un seul groupe [15, 16].

Les possibilités offertes sont finalement assez restreintes. Les rendements très modestes voire l'absence de gain laser constatés dans la plupart de ces matériaux sont en fait la conséquence de deux types de pertes optiques : (i) la formation de centres pièges (absorbants) que l'on nomme parfois centres colorés résultant de défauts ou d'impuretés toujours plus ou moins présents dans les cristaux selon leur nature et leur méthode de fabrication, (ii) l'absorption dans l'état excité émetteur $5d$ du rayonnement de pompage optique comme du rayonnement laser vers la bande de conduction du matériau hôte (voir flèches vers le haut de la Figure 1). Si il est toujours difficile de répondre à la question des défauts à l'origine des centres pièges, de gros efforts ont été entrepris ces dernières années pour mieux comprendre les mécanismes à l'origine des pertes dans les états excités des ions, en particulier en déterminant de manière théorique et expérimentale la position relative de leurs niveaux $4f$ et $5d$ par rapport aux bandes de valence et de conduction des cristaux hôtes.

Cette dernière question est maintenant bien comprise dans le cas du cristal $LiYF_4$ qui est l'une des matrices laser les plus importantes. Un modèle semi-empirique [17] permet en effet de positionner le niveau fondamental de la configuration $4f^n$ et le niveau le plus bas de la configuration excitée $4f^{n-1}5d$ de tous les ions de terres rares trivalents par rapport aux bandes de valence et de conduction du réseau hôte. Selon ce modèle, il est possible de calculer l'énergie de liaison de la configuration $4f$ pour un ion de terre rare trivalent X^{3+} en utilisant l'expression :

$$E(4f, X^{3+}) = I_{4f} - E_L + \alpha_R(R_X - R_Y)$$

où I_{4f} est le potentiel d'ionisation de la terre rare [18] considérée et E_L représente l'effet électrostatique intrinsèque du réseau environnant au site de la terre rare (énergie liée à l'énergie de Madelung). Le troisième terme représente en fait une correction de E_L due à la distorsion induite par l'introduction de l'ion dopant X^{3+} . R_X et R_Y sont les rayons ioniques [19] des ions X^{3+} et Y^{3+} (l'ion auquel se substitue l'ion dopant X^{3+} dans $LiYF_4$) et α_R mesure la variation d'énergie de liaison par unité de variation de rayon ionique. On détermine ainsi la position du niveau fondamental de la configuration $4f^n$ de tous les ions de terres rares trivalents à partir des quelques données disponibles dans la littérature [20-22] et en traitant E_L et α_R comme des paramètres ajustables. Dans le cas de $LiYF_4$, comme le montre la Figure 2, le meilleur ajustement des données expérimentales est obtenu pour $E_L = 29.87$ eV et $\alpha_R = 13.98$ eV/ug es positions des niveaux d'énergie les plus bas de la première configuration électronique excitée $4f^{n-1}5d$ sont déduits des spectres expérimentaux reportés dans les références [1-3, 23]. Ces positions peuvent être également obtenues de manière approximative en utilisant un formalisme semi-empirique développé récemment [24]. Ce formalisme tend à prouver que les positions en question restent à peu près constantes

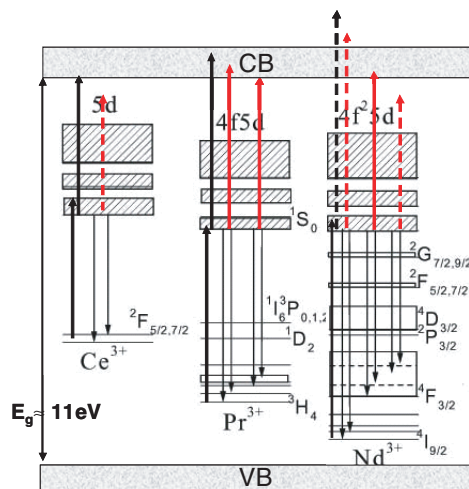


Figure 1. Niveaux d'énergie des ions Ce^{3+} , Pr^{3+} et Nd^{3+} dans LiYF_4 par rapport aux bandes de conduction et de valence du réseau hôte.

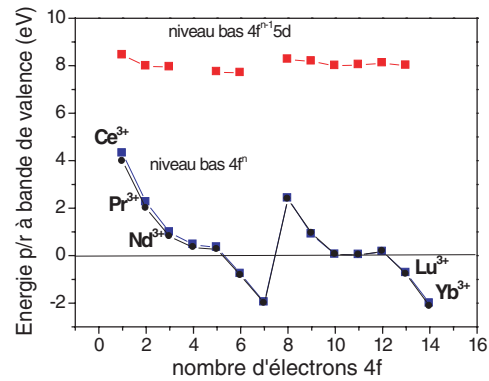


Figure 2. Niveaux d'énergie les plus bas des configurations électroniques $4f^n$ et $4f^{n-1} 5d$ des ions de terres rares dans LiYE_4 .

par rapport aux bandes de valence et de conduction pour tous les ions de terres rares, ce qui est effectivement observé, à 0.5 eV près.

Ceci étant, on peut ainsi positionner plus précisément l'ensemble des niveaux d'énergie des ions Ce^{3+} , Pr^{3+} et Nd^{3+} par rapport aux bandes de valence et de conduction du matériau hôte LiYF_4 , ce qui est représenté sur la Figure 1, et comprendre un peu mieux ce qu'il advient lorsqu'on tente de pomper ces systèmes dans le proche UV voire dans l'UV du vide. Cela permet de constater que seuls les rayonnements émis par les ions Ce^{3+} et Nd^{3+} peuvent ne pas être absorbés dans l'état excité émetteur vers le bas de la bande de conduction. Ceci fournit donc une première explication au fait que seuls ces ions (jamais l'ion Pr^{3+}) aient conduit à un effet laser. Ceci est renforcé par le fait que l'absorption du rayonnement de pompage optique dans l'état excité émetteur est également plus importante pour l'ion Pr^{3+} que pour les autres ions. On remarque aussi dans le cas de l'ion Nd^{3+} que seul le rayonnement de longueur d'onde intermédiaire semble être absorbé vers le bas de la bande de conduction et que le rayonnement de pompage optique pourrait ne pas l'être faute de niveaux disponibles, ce dernier aspect semblant confirmé par un calcul de bandes utilisant la méthode DFT [25] et montrant effectivement un minimum de densité d'état entre 2.5 et 6 eV au dessus du plus bas niveau de la bande de conduction. Ces constatations ouvrent donc la possibilité d'observer un effet laser dans $\text{LiYF}_4:\text{Nd}$ aux plus grandes longueurs d'onde, soit aux environs de 262 nm – ce qui a déjà été observé en pompant avec un laser moléculaire F2 à 157 nm [15], comme aux plus courtes, soit aux environs de 185 nm, ce qui reste à prouver (mais qui a déjà été observé dans le cas du cristal $\text{LaF}_3:\text{Nd}^{3+}$ à une longueur d'onde de 172 nm [16]).

A partir de là nous nous sommes intéressés à la possibilité de limiter les effets de pertes par absorption dans l'état excité, en particulier à la longueur d'onde de pompage optique, en étudiant des pompages par étapes à l'aide de photons de plus courtes longueurs d'onde, a priori moins néfastes du point de vue formation de centres colorés (solarisation). La question a été examinée plus particulièrement dans le cas des ions Pr^{3+} et Nd^{3+} en utilisant certains niveaux excités de la configuration électronique fondamentale $4f^n$ comme niveaux intermédiaires. Deux photons bleus ou un photon rouge plus un photon bleu ont été considérés par exemple dans le cas de l'ion Pr^{3+} [26] en utilisant les niveaux $^3P_{0,1,2}$ ou le niveau 1D_2 comme niveaux intermédiaires, et deux photons bleus ou un photon rouge plus un photon violet ont été considérés dans le cas de Nd^{3+} [3] en passant par les niveaux $^4D_{3/2}$ et $^4F_{3/2}$.

Ces mécanismes ont d'abord été étudiés expérimentalement, en enregistrant des spectres d'absorption dans les différents états excités considérés, ceci à l'aide d'un montage pompe-sonde approprié [27], pour déterminer les longueurs d'onde et les polarisations des rayonnements présentant les sections efficaces d'absorption les plus favorables, puis d'un point de vue théorique, à l'aide de calculs de niveaux d'énergie et de simulations de spectres d'absorption, à partir de tous les niveaux métastables intéressants de la configuration $4f^n$ [1-3]. Parmi les nombreux résultats importants obtenus dans ce cadre, il a été ainsi constaté, en accord avec l'expérience, une sorte d'effet mémoire de l'état de départ des transitions optiques. Cette effet mémoire, que nous avons mis en évidence dans le cas des ions Pr^{3+} et Nd^{3+} mais qui peut être généralisé à tous les autres ions de terres rares, se traduit en effet par un décalage vers le bleu du barycentre des bandes d'absorption avec l'énergie du niveau de départ [3]. Ce résultat nous a permis d'expliquer par exemple pourquoi il était préférable d'utiliser des photons rouge et violet et l'état intermédiaire $^4F_{3/2}$ plutôt que deux photons bleus pour atteindre le bas de la bande $4f^25d$ de l'ion Nd^{3+} dans LiYF_4 , un schéma d'excitation que nous tentons actuellement de mettre en œuvre à l'aide d'un montage où le même laser, un laser YAG :Nd (DIVA, Thales) doublé et quintuplé en fréquence associé à une cavité Ti :Sa, est utilisé pour pomper l'ion Nd^{3+} à 795 et à 213 nm. Un premier essai a déjà été effectué, sans succès néanmoins en raison du dommage optique subis par le miroir dichroïque d'entrée et en raison de problèmes d'étanchéité, l'effet laser recherché se situant vers 185 nm, donc à la limite du VUV.

3. VARIATIONS D'INDICE DE RÉFRACTION ET DE POLARISABILITÉ DES IONS DANS LES MATÉRIAUX LASER SOUMIS À DE FORTES DENSITÉS D'EXCITATION

Des variations d'indice de réfraction, autres que thermiques, ont été récemment observées et mises à profit dans certains systèmes laser de forte puissance pour construire ce qu'on appelle aujourd'hui des systèmes laser auto-organisés [11, 28, 29]. Il s'agit d'une problématique à laquelle nous nous intéressons actuellement car nous pensons que ces variations d'indice de réfraction athermiques sont probablement dues à des variations de polarisabilités des ions lorsqu'on les porte de leur état fondamental dans leurs états excités, un phénomène le plus souvent complètement négligé par les « laséristes » concernés dans leur description des effets non-linéaires induits (effets lentille et réseaux dynamiques).

Il a été démontré par exemple dans le cas du YAG :Nd par le groupe d'Antipov [11] à l'aide d'une expérience d'interférométrie transitoire qu'on pouvait provoquer des variations d'indice de réfraction très importantes de plus de 10^{-6} en pompant par diodes laser à 808 nm ou par lampe flash et que ces variations étaient probablement dues à des variations de polarisabilités des ions Nd^{3+} lorsqu'on les porte dans leur état métastable $^4F_{3/2}$, dans le cas du pompage par diodes, mais aussi lorsqu'on les porte dans leurs autres états excités émetteurs $^4D_{3/2}$ et $^2P_{3/2}$ dans le domaine visible et $^2F(2)_{5/2}$ dans le domaine UV, dans le cas d'un pompage flash (voir Figure 3).

Il a été démontré en outre, toujours avec le même montage d'interférométrie transitoire, en pompant cette fois simultanément à 808 et à 266 nm avec un laser YAG :Nd quadruplé en fréquence ce qui correspond à une absorption dans l'état excité très efficace du niveau métastable $^4F_{3/2}$ vers la bande $4f^25d$, que cette variation d'indice augmentait très rapidement, ceci pour des énergies UV relativement faibles de quelques mJ/cm^2 [11].

Notre objectif a donc été d'examiner la validité de cette hypothèse, d'abord en enregistrant certains spectres d'absorption dans l'état excité (ESA) et surtout en confrontant les données expérimentales aux estimations théoriques qui peuvent être faites des variations de polarisabilité $\Delta\alpha_P$ et des variations d'indice de réfraction Δn , sachant que ces grandeurs peuvent être reliées entre elles, en faisant appel à la relation de Clausius-Mosotti, à l'aide de l'expression suivante :

$$\Delta n = \left(\frac{2\pi}{n} f_L^2 \Delta\alpha_P \right) N_{ex}$$

où $f_L = \frac{n^2+2}{3}$ représente le facteur de correction local de Lorentz habituel et N_{ex} la densité d'ions excités dans l'état considéré.

A partir de là, deux méthodes donnant des résultats quasiment identiques ont été utilisées. La première dite de l'oscillateur amorti permet d'obtenir la polarisabilité d'un ion dans un certain état électronique à une certaine fréquence à l'aide de la force d'oscillateur de la transition optique considérée, laquelle est déterminée théoriquement à partir des éléments de matrice dipolaires électriques correspondants. La deuxième méthode repose sur l'utilisation de la transformation de Kramers-Kronig qui permet de trouver l'expression de l'indice de réfraction à une certaine fréquence en fonction de la section efficace de la transition laquelle peut être également déterminée à partir des mêmes éléments de matrice que précédemment.

Cette étude nous a d'abord permis de vérifier le bon accord entre spectres expérimentaux et spectres théoriques mais aussi de trouver la relation de proportionnalité entre variations d'indice et population dans l'état excité. En supposant uniquement une excitation du niveau métastable émetteur $^4F_{3/2}$, nous trouvons par exemple qu'à 1064 nm (9398 cm^{-1}), la longueur d'onde laser principale du YAG :Nd, la variation d'indice de réfraction est donnée par $\Delta n \approx 1.7 \times 10^{-25} N_{ex}$ et que la variation de polarisabilité correspondante est donnée par $\Delta \alpha_p \approx 1.6 \times 10^{-26} \text{ cm}^3$.

En confrontant alors nos calculs avec les données de la littérature, les résultats d'interférométrie transitoire obtenus avec une pompe à 808 nm et une sonde à 633 nm [11] ou les résultats de mélange à 4 ondes obtenus à 514 nm [30], ce que nous avons reporté dans le Tableau suivant, nous constatons que ces résultats expérimentaux sont très proches de nos valeurs théoriques.

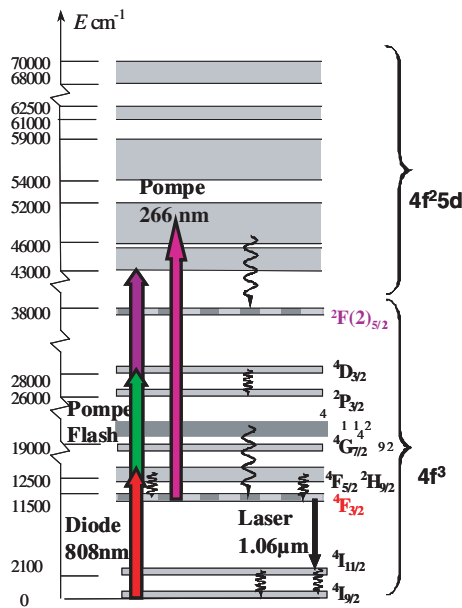


Figure 3. Niveaux d'énergie de l'ion Nd^{3+} dans YAG.

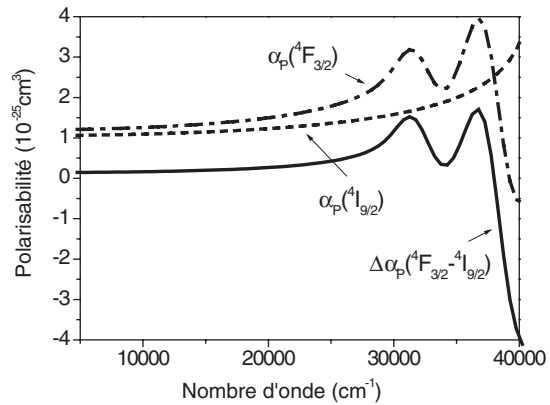


Figure 4. Courbes de polarisabilités associées aux niveaux fondamental et excité $^4I_{9/2}$ et $^4F_{3/2}$ et variations induites de l'infrarouge au proche UV.

Nous avons démontré que les variations de polarisabilité $\Delta \alpha_{2F(2)-4I}$ associées à la population du niveau métastable ultraviolet $^2F(2)_{5/2}$, en tenant compte de certains ajustements par rapport aux données reportées dans la référence [9] étaient vraiment d'un ordre de grandeur supérieures aux variations de polarisabilité $\Delta \alpha_{4F-4I}$ associées au niveau métastable émetteur laser $^4F_{3/2}$, ce qui explique, comme

Tableau 1. Comparaison entre valeurs expérimentales et théoriques des variations de polarisabilité de l'ion Nd^{3+} dans YAG lorsqu'on le porte de son état fondamental $^4\text{I}_{9/2}$ dans son état excité $^4\text{F}_{3/2}$ (i.e. $\Delta\alpha_{4\text{F}-4\text{I}}$) ou dans son état excité $^2\text{F}(2)_{5/2}$ (i.e. $\Delta\alpha_{2\text{F}(2)-4\text{I}}$).

Données expérimentales et estimations	Résultats des calculs
<p>Antipov 2003: Interférométrie transitoire (pompe à 808 nm, sonde at 633 nm)</p> <p>$\Delta\alpha_{4\text{F}-4\text{I}}(633 \text{ nm}) \approx 4.0 \times 10^{-26} \text{ cm}^3$</p> <p>Estimation à 1064 nm:</p> <p>$\Delta\alpha_{4\text{F}-4\text{I}}(1064 \text{ nm}) \approx 3.3 \times 10^{-26} \text{ cm}^3$</p> <p>$\Delta\alpha_{2\text{F}(2)-4\text{I}}(633 \text{ nm}) \approx 1.5 \times 10^{-26} \text{ cm}^3$</p> <p>(modifié en accord à l'aide de nos propres données)</p>	<p>$\Delta\alpha_{4\text{F}-4\text{I}}(633 \text{ nm}) \approx 2.0 \times 10^{-26} \text{ cm}^3$</p> <p>$\Delta\alpha_{4\text{F}-4\text{I}}(1064 \text{ nm}) \approx 2.0 \times 10^{-26} \text{ cm}^3$</p> <p>$\Delta\alpha_{4\text{F}(2)-4\text{I}}(633 \text{ nm}) \approx 2.0 \times 10^{-25} \text{ cm}^3$</p>
<p>Powell 1989: mélange 4-ondes à 514 nm</p> <p>$\Delta\alpha_{4\text{F}-4\text{I}}(514 \text{ nm}) \approx 4.9 \times 10^{-26} \text{ cm}^3$</p>	<p>$\Delta\alpha_{4\text{F}-4\text{I}}(514 \text{ nm}) \approx 2.0 \times 10^{-26} \text{ cm}^3$</p>

mentionnée plus haut, l'augmentation des variations d'indice observées en présence d'un pompage simultané à 808 et 266 nm.

Ces résultats théoriques et expérimentaux diffèrent néanmoins d'un facteur 1.5 à 2. Bien que nous n'ayons pas encore de certitude, il semblerait que les valeurs expérimentales obtenues pourraient être supérieures aux valeurs théoriques en raison d'une contribution supplémentaire provenant de bandes de transfert de charge métal-ligand, donc, dans le cas du YAG :Nd, de transfert de charge $\text{Nd}^{3+} \rightarrow \text{O}^{2-}$. Ce type de contribution a déjà été invoqué dans le passé dans le cas des matériaux dopés par l'ion Cr^{3+} , notamment dans le cas de $\text{LiCaAlF}_6:\text{Cr}$. Il est très difficile d'avancer dans cet hypothèse dans le cas de l'ion Nd^{3+} , les bandes d'absorption entre configurations électroniques fondamentale et excitée $4f^3$ et $4f^25d$ à l'origine des variations d'indice de réfraction invoquées précédemment se situant à plus basse énergie que les bandes de transfert de charge mentionnées plus haut.

Cette piste reste néanmoins très sérieuse car il semble bien par exemple que ce soit ce type de bande de transfert de charge qui soit à l'origine des fortes variations d'indice de réfraction observées récemment dans le cas du YAG :Yb [31], un autre matériau laser très important pour l'application laser de très forte puissance. Dans le cas du YAG :Yb, en effet, les bandes d'absorption entre configurations électroniques fondamentale et excitée $4f^{13}$ et $4f^{12}5d$ qui pourraient être à l'origine des variations d'indice de réfraction observées se situent à bien plus haute énergie que la bande de transfert de charge $\text{Yb}^{3+} \rightarrow \text{O}^{2-}$ (voir Figure 4). En effet, tandis que les premières se situent au delà de 150 nm (67000 cm^{-1}), il a été démontré expérimentalement [32] que la seconde commençait dès 230 nm, avec un premier maximum vers 210 nm. La position de cette bande de transfert de charge peut être d'ailleurs déterminée approximativement en utilisant la relation bien connue de K. Jorgensen [21], $E_{\text{gsa}}^{\text{LMCT}} \approx 30000.[\chi(\text{O}^{2-}) - \chi(\text{Yb}^{3+})]$, où les χ représentent l'électronégativité des ions considérés, donc Yb^{3+} et O^{2-} , ce qui conduit, avec $\chi(\text{Yb}^{3+}) = 1.68$ et $\chi(\text{O}^{2-}) = 3.2$, à $E_{\text{gsa}}^{\text{LMCT}} \approx 45600 \text{ cm}^{-1}$ soit 220 nm, donc très proche de la valeur expérimentale.

Partant de cette valeur, cela signifie que l'on doit s'attendre à l'existence d'une bande d'absorption entre état excité émetteur $^2\text{F}_{5/2}$ de l'ion Yb^{3+} (situé vers 10300 cm^{-1}) et ion O^{2-} aux alentours de $47600 - 10300 = 35300 \text{ cm}^{-1}$, donc vers 280 nm. Or c'est exactement ce que nous avons observé (voir Figure 5) en pompant dans le niveau $^2\text{F}_{5/2}$ du YAG :Yb avec un laser à impulsion à 980 nm et en sondant la transmission du matériau dans le proche UV entre 200 et 400 nm.

La contribution des bandes de transfert de charge dans les variations d'indice de réfraction observées dans les matériaux laser du type YAG :Yb et YAG :Nd ne fait donc aucun doute. Reste à savoir maintenant l'importance de cette nouvelle contribution. Des expériences complémentaires

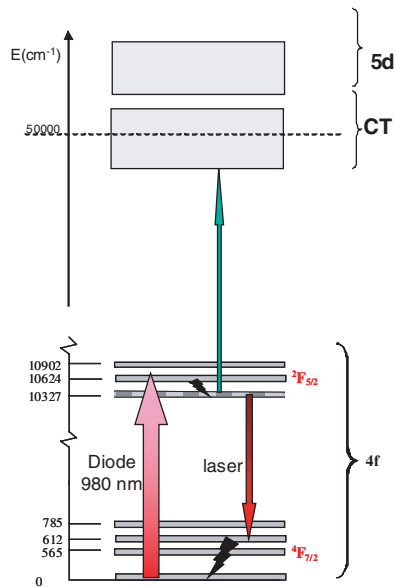


Figure 5. Niveaux d'énergie des l'ion Yb^{3+} dans YAG.

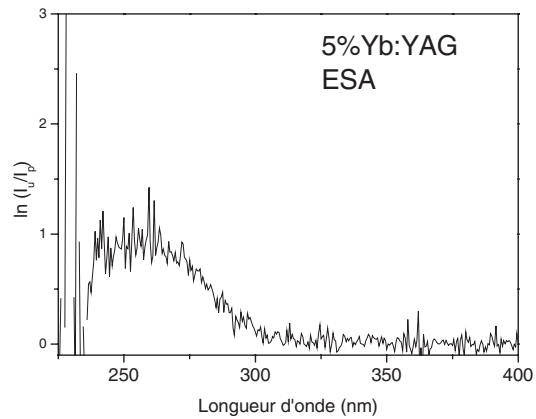


Figure 6. Spectre d'absorption dans l'état excité (ESA) de l'ion Yb^{3+} dans YAG enregistré dans le proche UV en pompant le matériau á 980 nm.

d'interférométrie transitoire sont d'ores et déjà mises en œuvre pour approfondir cette question dans le cas du YAG :Yb et du YAG :Nd mais aussi pour en explorer les effets dans d'autres types de matrices laser importantes tels que YVO_4 et KYW.

4. CONCLUSION

Dans cette présentation, nous avons montré qu'il est maintenant possible de comprendre, connaissant la position des niveaux d'énergie des ions de terre rare par rapport aux bandes de conduction et de valence des réseaux hôtes, dans quelles circonstances un système donné peut conduire ou non à un effet laser dans le proche UV. Il a été montré ensuite, dans le cas des matériaux dopés terres rares pour lasers UV, que la connaissance expérimentale et théorique des spectres d'absorption à partir des états fondamental et excités de ces ions dans leur configuration électronique fondamentale $4f^n$ vers des niveaux d'énergie supérieurs appartenant à leur première configuration électronique excitée $4f^{n-1}5d$ permettait d'envisager des schémas de pompage optique par étapes utilisant des photons moins énergétiques, donc moins agressifs en terme de solarisation, que dans le cas d'un pompage direct. Nous avons montré enfin que la connaissance de ces spectres permettait également d'expliquer les variations d'indice de réfraction athermiques observées dans certains matériaux lorsqu'ils sont soumis à de fortes densités d'excitation et qu'une partie de ces variations d'indice pourrait être associée à l'existence et la proximité de bandes de transfert de charge « ligand-métal » très intenses. Des travaux sont en cours pour examiner cette hypothèse dans le cas de l'ion Yb^{3+} dans différentes matrices cristallines.

Remerciements

La majeure partie de ce travail a été effectuée au sein de l'équipe "Matériaux et Instrumentation Laser" du laboratoire CIRIL, d'abord dans le cadre d'un contrat avec l' « European Research Office of the US Army » à

Londres, puis d'une « Action Coordonnée Optique » et d'un poste de chercheur invité du CNRS et enfin dans le cadre d'un contrat de collaboration INTAS, en particulier avec le Dr. O. Antipov de l'Institute of Applied Physics de Nizhny Novgorod (Russie). Une partie importante a été réalisée également en étroite collaboration avec le LPCML à Lyon. J'adresse donc tous mes remerciements aux thésards (M. Laroche, S. Nicolas, A. Collombet, P. Cordelier), post-doctorant (P. Nagtegale) et chercheurs (J. Margerie, Y. Guyot, M.F. Joubert, S. Girard, J.L. Doualan) et organismes (EOARD, CNRS, INTAS) concernés.

Références

- [1] M. Laroche, J.L. Doualan, S. Girard, J. Margerie, R. Moncorgé, *J. Opt. Soc. Am.* **B 17** (2000) 1291-1303
- [2] M.F. Reid, L. van Pieteron, R.T. Wegh, A. Meijerink, *Phys. Rev.* **B 62** (2000) 14744-14749
- [3] A. Collombet, Y. Guyot, M.F. Joubert, M. Laroche, J. Margerie, R. Moncorgé, *Phys. Rev.* **B 68** (2003) 035115(1-11)
- [4] A.J.S. McGonigle, D.W. Coutts, S. Girard, R. Moncorgé, *Opt. Comm.* **193** (2001) 232
- [5] A.J.S. McGonigle, R. Moncorgé, D.W. Coutts, *Appl. Opt.* **40** (2001) 4326-4333
- [6] Z. Liu, T. Koseki, Y. Suzuki, N. Sarukura, K. Shimamura, T. Fukuda, M. Hirano, H. Hosono, *Opt. Lett.* **26** (5) (2001) 301-303
- [7] B.C. Weber, A. Hirth, *Opt. Comm.* **128** (1996) 158-165
- [8] S. N. Passilly, M. Fromager, K. Ait-Ameur, R. Moncorgé, J. L. Doualan, A. Hirth, G. Quarles, *J. Opt. Soc. Am.* **B 21** (2004) 531-538
- [9] N. Passilly, E. Haouas, V. Ménard, R. Moncorgé, K. Aitameur, *Opt. Comm.* **260** (2006) 703-707
- [10] O.L. Antipov, A.S. Kuzhelev, D.V. Chausov, A.P. Zinov'ev, *J. Opt. Soc. Am.* **B16** (1999) 1072-1079
- [11] O.L. Antipov, O.N. Eremeykin, A.P. Savikin, V.A. Vorob'ev, D.V. Bredikhin, M.S. Kuznetsov, *IEEE J. Quant. Electr.* **39** (2003) 910
- [12] V.V. Semashko, M.A. Dubinskii, R. Yu. Abdulsabirov, S.L. Korableva, A.K. Naumov, A.S. Nizamutdinov, M.S. Zhuchkov, *SPIE Proceed. XI Int. Feofilov Symp.* (Kazan, Russia, sept. 24-28, 2001) vol. 4766 (2002)
- [13] Z. Liu, K. Shimamura, K. Nakano, N. Mujilatu, T. Fukuda, T. Koseki, H. Ohtake, N. Sarukura, *J. Appl. Phys.* **39** (2000) L466
- [14] N. Sarukura, Z. Liu, H. Ohtake, Y. Segawa, M.A. Dubinskii, R.Y. Abdulsabirov, S.L. Korableva, A.K. Naumov, V.V. Semashko, *Opt. Lett.* **22** (1997) 994
- [15] M.A. Dubinskii, A.C. Cefalas, *J. Opt. Soc. Am.* **B9** (1992) 1148
- [16] R.W. Waynant, Ph. H. Klein, *Appl. Phys. Lett.* **46** (1985) 14
- [17] C.W. Thiel, H. Crugel, H. Wu, Y. Sun, G.J. Lapeyre, R.L. Cone, R.W. Equall, R.M. MacFarlane, *Phys. Rev. B* **64** (2001) 085107-1-13
- [18] J. Sugar, *J. Chem. Phys.* **59** (1973) 2093-2089
- [19] R.D. Shannon, *Acta Cryst. A* **32** (1976) 751
- [20] O. Guillot-Noel, B. Bellamy, V. Viana, D. Gourier, *Phys. Rev.* **B60** (1999) 1668-1677
- [21] R. Moncorgé in « Ultraviolet Spectroscopy and UV lasers » Chap. 9, P. Misra, M.A. Dubinskii (eds) Marcel Dekker, New York, 2002
- [22] C.W. Thiel, H. Crugel, Y. Sun, G.J. Lapeyre, R.M. MacFarlane, R.W. Equall, R.L. Cone, *J. Lumin.* **94-95** (2001) 1-6
- [23] L. Pieteron, M.F. Reid, G.W. Burdick, A. Meijerink, *Phys. Rev.* **B 65** (2002) 045114-1-13
- [24] P. Dorenbos, *Phys. Rev.* **B 62** (2000) 15640, *J. Lumin.* **111** (2005) 89-104
- [25] S. Jobic (IMN Nantes) communication privée
- [26] M. Laroche, A. Braud, S. Girard, J.L. Doualan, R. Moncorgé, M. Thuau, L.D. Merkle ; *J. Opt. Soc. Am.* **B 16** (1999) pp 2269-2277

- [27] P. Segonds, B. Boulanger, B. Ménaert, J. Zaccaro, J.P. Salvestrini, M.D. Fontana, R. Moncorgé, F. Porée, G. Gadret, J. Mangin, A. Brenier, G. Boulon, G. Aka, D. Pelenc, *Opt. Mat.* (2006) sous presse
- [28] P. Sillard, A. Brignon, J.P. Huignard, *IEEE J. Quant. Electron.* **QE 34** (1998) 465
- [29] O. N. Eremeykin, O. L. Antipov, A. Minassian, M. J. Damzen, *Opt. Lett.* **29** (20) (2004) 2390-2392
- [30] R.C. Powell, S. A. Payne, L. L. Chase, G. D. Wilke, *Opt. Lett.* **14** (21) (1989) 1204-1206
- [31] O.L. Antipov, D.V. Bredikhin, O.N. Eremeykin, A.P. Savikin, E.V Ivakin, A.V. Sukhadolau, *Opt. Lett.* **31** (2006) 763-765
- [32] L. van Pieteron, M. Heeroma, E. de Heer and A. Meijerink, *J. Lumin.* 91 (2000) 177-193