Etude du laser accordable MgF2: Ni²⁺

Jean-Marc Breteau, D. Meichenin, F. Auzel

► To cite this version:

Jean-Marc Breteau, D. Meichenin, F. Auzel. Etude du laser accordable MgF2: Ni²⁺. Revue de Physique Appliquée, 1987, 22 (11), pp.1419-1429. 10.1051/rphysap:0198700220110141900 . jpa-00245692

HAL Id: jpa-00245692

<https://hal.science/jpa-00245692>

Submitted on 1 Jan 1987

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Classification

Physics Abstracts

42.55R — 42.60B — 42.80C — 63.20K — 78.45

Etude du laser accordable $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$

J. M. Breteau, D. Meichenin et F. Auzel

Laboratoire de Bagnex, CNET, 196, avenue Henri Ravera, 92220 Bagnex, France

(Reçu le 2 mars 1987, révisé le 30 juin 1987, accepté le 29 juillet 1987)

Résumé. — Le laser accordable $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$ fait l'objet d'une investigation détaillée. On présente des cavités optiques à deux et trois miroirs ainsi que leurs dispositifs d'injection du faisceau d'excitation et le filtre de Lyot servant à l'accord en fréquence de l'émission laser infrarouge. On compare l'excitation optique du cristal laser par un laser à krypton ionisé émettant à $0,7525 \mu\text{m}$ et $0,7993 \mu\text{m}$ et par un laser solide YAG : Nd^{3+} émettant à $1,32 \mu\text{m}$. L'émission laser obtenue à 80 K se caractérise dans les conditions optimales par une puissance maximale émise de 185 mW pour un rendement de conversion de 10 % et une gamme d'accord s'étendant de $1,608 \mu\text{m}$ à $1,73 \mu\text{m}$. La structure de cette dernière est discutée par rapport aux modes de vibration du réseau cristallin.

Abstract. — A detailed analysis of the $\text{Ni}^{2+} : \text{MgF}_2$ tunable laser is made. The two and three mirrors folded optical cavities which were used are described. We also present the beam injection devices and Lyot's filter used for the frequency tunability. The lasing action of the $0,7525 \mu\text{m}$ - $0,7993 \mu\text{m}$ krypton pumped $\text{Ni} : \text{MgF}_2$ system is compared with the lasing action of the $1,32 \mu\text{m}$ Nd : YAG pumped system. In the best conditions, a maximum emitting power of 185 mW has been obtained with a laser conversion ratio of about 10 %. The IR laser emission is tuned between $1,608 \mu\text{m}$ and $1,73 \mu\text{m}$. The part of the vibration modes in the tuning curves structure is discussed.

1. Introduction.

L'existence d'un fort couplage entre les niveaux d'énergie électroniques et les vibrations du réseau dans les cristaux dopés avec des métaux de transition a permis le développement de lasers accordables sur une large gamme de fréquences dans le proche infrarouge. La première observation de l'effet laser dans de tels matériaux eut lieu en 1963 dans $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$ en régime pulsé par Johnson, Dietz et Guggenheim [1]. Dans ce composé l'émission laser continue fut obtenue en 1978 par Moulton, Mooradian et Reed [2]. Enfin, c'est en 1979 que ces mêmes auteurs mesurèrent précisément la gamme d'accord en fréquence du matériau [3]. Depuis l'éventail de ce genre de matériaux s'est agrandi suivant le développement des recherches.

En France l'étude sur les lasers accordables à ions de transition a débuté en 1982 au CNET par la mise en route du programme d'étude concernant $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$. La motivation d'une telle étude était alors double, tout d'abord se familiariser avec la cavité optique particulière et le genre de composés et ensuite développer dans la mesure du possible de

nouvelles sources adaptées plus particulièrement à la caractérisation de semi-conducteurs III-V étudiées au laboratoire CNET de Bagnex.

Cet article présente les résultats d'une investigation détaillée du laser accordable continu $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$. A partir d'une cavité laser à configuration variable construite au CNET en 1983 [4] nous avons pu tester des barreaux avec des dopages en nickel différents, des qualités optiques plus ou moins bonnes, sous deux excitations optiques différentes à savoir soit un laser à solide YAG : Nd^{3+} continu émettant à $1,32 \mu\text{m}$ soit un laser à krypton ionisé continu, émettant à $0,7525 \mu\text{m}$ et $0,7993 \mu\text{m}$.

Après optimisation du pompage optique du matériau nous avons pu accorder la fréquence d'émission entre $1,608 \mu\text{m}$ et $1,72 \mu\text{m}$ et obtenir une puissance maximale de 185 mW avec un rendement de conversion d'environ 10 %.

2. Le laser $\text{MgF}_2 : \text{Ni}$.

2.1 GÉOMÉTRIE DES BARREAUX LASER. — La synthèse de MgF_2 dopé nickel fut effectuée au LETI, sous contrat (Laboratoire d'Electronique et de Tech-

nologie de l'Informatique du Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble (CENG)) CNET 83-6B-061. La croissance fut réalisée par reprise sur germe orienté de MgF_2 , selon la direction cristallographique [100] et suivant la méthode de tirage Bridgman-Stockbarger. Les barreaux laser utilisés possédaient une teneur en nickel de 1 % et 2 % atomiques. Une fois taillés et polis les barreaux avaient la forme présentée en figure 1.

Les faces hachurées sont les faces « laser » placées sous incidence de Brewster, leur parallélisme doit être excellent ainsi que leur poli optique à $\lambda/4$. Les petites dimensions du barreau (5×5 mm) sont imposées par des exigences d'encombrement du doigt froid sur lequel est collé le cristal laser. Quant à la longueur de 12 mm, elle fut choisie pour faire un compromis entre une absorption suffisante du laser de pompe et une homogénéité satisfaisante de la concentration en ions dopants nickel le long de l'axe du barreau laser. Les faces de sortie du barreau étant sous incidence de Brewster, l'angle de taille α de celui-ci est choisi de telle manière que le faisceau réfracté dans le cristal soit parallèle aux faces latérales c'est-à-dire que la distance parcourue dans le cristal par celui-ci soit $l \approx 12$ mm ($\alpha = \text{Arc tg } n$)

où n est l'indice moyen du matériau dans l'I.R. ($n \approx 1,38$).

2.2 CAVITÉS OPTIQUES UTILISÉES. — De par l'importance des processus non radiatifs dans $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$ pour des températures supérieures à 150 K, le cristal est refroidi à la température de l'azote liquide (≈ 80 K). A cette température la section efficace laser du matériau $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$ reste faible ($\sigma_e = 5 \times 10^{-21} \text{ cm}^2$); aussi les densités d'excitation doivent être importantes et le mode de cavité assez resserré ($100 \mu\text{m}$ à $200 \mu\text{m}$ de diamètre) à cause de la faiblesse de la section efficace laser du matériau actif et par là même de son gain. L'usage de lentilles internes au résonateur pour réduire la taille du mode de cavité est impossible, aussi est-il nécessaire d'utiliser soit une cavité repliée à trois miroirs dont le principe est dû à Kogelik [5] soit une cavité classique à deux miroirs placés en positions concentriques en limite de stabilité du résonateur. La figure 1 montre le plan de la cavité laser réglable sous vide, réalisée au CNET [4]. On utilise un cryostat muni d'un doigt froid lequel est situé à l'intérieur de la cavité optique sous vide. Cette

Fig. 1. — Vue de dessus de la cavité laser CNET d'après [4] et géométrie des barreaux lasers.
[Upper sight of the CNET three-mirror laser cavity from [4] and geometry of the laser rods.]

Fig. 2. — Injection du faisceau de pompe et cavité optique utilisée avec une excitation du matériau $\text{MgF}_2 : \text{Ni}$ par laser à krypton ($\lambda_{\text{exc}} = 0,7525 \mu\text{m} - 0,7993 \mu\text{m}$), (R_c = rayon de courbure).

[Pumping beam injection device and optical cavity used with the $0.7525 \mu\text{m} - 0.7993 \mu\text{m}$ krypton excited $\text{Ni} : \text{MgF}_2$ system. (R_c = curvature radius).]

cavité permet d'utiliser des cristaux très variés, de 10 à 20 mm de long et d'indice « n » compris entre 1,2 et 2. Le cristal est orienté sous incidence de Brewster à température ambiante, il est désolidarisé du plot sur lequel il repose initialement à cette température sous l'effet de la rétraction thermique du doigt froid auquel il adhère lorsqu'on remplit le réservoir du cryostat situé au-dessus. Le réglage du miroir dichroïque d'entrée, des miroirs de repli et de sortie se fait à l'aide de mouvements Microcontrôle θ , X , Y . Un préréglage de ces miroirs est réalisé à température ambiante ; un réglage d'appoint est effectué à basse température grâce à la fenêtre d'observation latérale.

Lorsqu'on désire utiliser la cavité en configuration à deux miroirs il suffit de remplacer la collerette en forme de coin du miroir de repli par une collerette torique, placer la fenêtre sous incidence de Brewster à la place du miroir de repli et finalement reculer celui-ci de la distance nécessaire pour assurer une taille correcte du mode de cavité et une bonne stabilité du résonateur optique.

Les résultats expérimentaux présentés dans le paragraphe 2.3 sont obtenus à partir des cavités optiques ayant les caractéristiques suivantes.

— Cavité linéaire à 2 miroirs

miroir dichroïque d'entrée :

$$R_c = 10 \text{ cm} ; \quad R = 100 \% \text{ à } 1,63 \mu\text{m} ; \\ T = 90 \% \text{ à } 1,32 \mu\text{m et } 0,8 \mu\text{m}$$

miroir de sortie :

$$R_c = 24 \text{ cm} ; \quad R = 100 \% \text{ à } 96 \%$$

Distance entre miroirs : $d \approx 35 \text{ cm}$ (configuration concentrique).

— Cavité repliée à 3 miroirs

miroir dichroïque d'entrée :

$$R_c = 10 \text{ cm} ; \quad R = 100 \% \text{ à } 1,63 \mu\text{m} ; \\ T = 90 \% \text{ à } 1,32 \mu\text{m et } 0,8 \mu\text{m}$$

miroir de repli :

$$R_c = 25 \text{ cm} ; \quad R = 100 \% \text{ à } 1,63 \mu\text{m}$$

miroir de sortie :

$$R_c = 4 \text{ m} ; \quad R = 100 \% \text{ à } 96 \%$$

Distance miroir de sortie-miroir de repli : $d_2 \approx 85 \text{ cm}$
Distance miroir de repli-miroir d'entrée : $d_1 \approx 25 \text{ cm}$

- R_c = rayon de courbure
- R = coefficient de réflexion
- T = coefficient de transmission

Si l'alignement optique est plus aisé avec le système à deux miroirs en revanche la fréquence d'émission laser a pu être accordée seulement avec la configuration à 3 miroirs à cause des pertes optiques sur l'élément sélectif. En effet ces dernières sont plus importantes dans la configuration à deux miroirs où toutes les composantes du faisceau laser ne sont pas à l'incidence de Brewster sur l'élément sélectif du fait de l'importante divergence du mode de cavité dans ce cas.

2.3 INJECTION DU FAISCEAU D'EXCITATION. —

Quel que soit le type de cavités résonnantes utilisé, le cristal placé sous incidence de Brewster déformera la structure du faisceau lumineux. C'est-à-dire que dans le cristal la section du faisceau sera elliptique et non pas circulaire avec un comportement différent de la propagation lumineuse suivant que l'on se situe dans le plan d'incidence (plan tangentiel) ou dans le plan qui lui est perpendiculaire (plan sagittal). A cause de l'astigmatisme ainsi introduit les points du cristal où les valeurs de rayons principaux de l'ellipse seront minimales diffèrent d'un plan à l'autre d'où une section minimale non perpendiculaire à l'axe de propagation de la lumière [5]. La forme du mode de cavité est donc loin d'être symétrique par rapport à l'axe de propagation, d'où la difficulté d'adaptation du mode de pompage à ce dernier au sein du cristal, d'autant plus que le faisceau d'excitation subit lui aussi, en pénétrant dans le cristal, une déformation différente de celle du mode de cavité de par la différence des longueurs d'onde de chacun des rayons lumineux.

De plus, suivant les sources laser utilisées pour l'excitation du milieu actif, autrement dit suivant la structure du faisceau de pompage le système optique placé à l'entrée de la cavité sera différent. Enfin le miroir dichroïque d'entrée (miroir plan-concave) constitue une lentille divergente dont il faut tenir compte dans la détermination du système d'injection du faisceau d'excitation dans la cavité optique.

D'une façon générale, pour avoir le meilleur rendement possible, il est souhaitable que le mode

Fig. 3. — Injection du faisceau de pompe avec une excitation du matériau $\text{MgF}_2:\text{Ni}$ par laser YAG : Nd ($\lambda_{\text{exc}} = 1,32 \mu\text{m}$).

[Pumping beam injection device used with the $1.32 \mu\text{m}$ Nd : YAG excited Ni : MgF_2 system.]

de cavité soit un peu plus grand que le mode de pompe sur toute la longueur du cristal [6].

Lorsqu'un laser à krypton ionisé émettant à $0,75 \mu\text{m}$ et $0,79 \mu\text{m}$ est utilisé pour exciter le cristal laser, la focalisation et le positionnement du faisceau d'excitation dans le cristal sont assurés grâce à deux lentilles de focales $f_2 = 15 \text{ cm}$ et $f_1 = -f_2/2$ placées en avant du miroir dichroïque d'entrée suivant les positions indiquées sur la figure 2 [4]. Le rayon du mode de pompe ainsi obtenu sera supérieur ou égal à 90μ . L'imprécision sur la taille de celui-ci provient du fait que pour les premiers essais laser menés avec ce type de pompage optique, nous avons omis de tenir compte du caractère divergent du miroir dichroïque d'entrée (miroir plan-concave), ce qui fut fait lors des essais laser utilisant un laser YAG : Nd comme pompe.

Dans ce cas pour compenser la divergence créée par le miroir dichroïque d'entrée et satisfaire les conditions de focalisation du faisceau d'excitation dans le cristal nous avons utilisé deux lentilles convergentes placées dans la configuration décrite en figure 3. La lentille L_1 a pour rôle de focaliser le faisceau lumineux issu du YAG : Nd^{3+} à une taille de 200μ au point I. La lentille L_2 associée au miroir dichroïque d'entrée M_1 est placée de telle manière

que le système $IL_2 M_1 C$ ait un agrandissement compris entre 0,5 et 1 (vérifié expérimentalement). La focalisation du rayon excitateur se fait ainsi à une distance de $9,5 \text{ cm}$ à partir de la surface interne du miroir d'entrée, la taille du mode de pompe étant alors de 130 à 140μ de diamètre, sensiblement égal au mode de cavité. L'ajustement des deux modes est affiné en cours de manipulation en jouant sur la position des lentilles L_1 et L_2 de façon à obtenir le signal laser maximal en sortie.

2.4 ACCORD EN FRÉQUENCE. — Pour des milieux actifs à faible gain comme $\text{MgF}_2:\text{Ni}^{2+}$, on a intérêt à utiliser un filtre de Lyot pour accorder la fréquence d'émission laser plutôt qu'un réseau de diffraction qui présente des pertes par absorption trop grandes (de l'ordre de 20 % d'après [7]) et surtout un coefficient de couplage avec l'extérieur trop important.

Pour le système présenté ici, le filtre de Lyot utilisé était constitué d'une seule lame de quartz d'épaisseur 1 mm , contenant l'axe optique dans son plan et placée sous incidence de Brewster avec une vibration incidente polarisée suivant l'axe Oz.

Dans cette configuration, l'intensité transmise I_T par le filtre de Lyot est d'après [8] :

$$I_T(\lambda, A) = 1 - \frac{n_0^4 - n_0^2 \sin^2 \theta_B}{(n_0^2 - \cos^2 A \sin^2 \theta_B)^2} \sin^2 (2A) \times \\ \times \sin^2 \left\{ \frac{\pi' n_e [1 + (\sin^2 \theta_B \cos^2 A)/n_e^2 - (\sin^2 \theta_B \cos^2 A)/n_0^2]}{\lambda \left[1 - \frac{\sin^2 \theta_B \sin^2 A}{n_e^2} - \frac{\sin^2 \theta_B \cos^2 A}{n_0^2} \right]^{1/2}} - \frac{\pi'}{\lambda} \frac{n_0}{\left[1 - \frac{\sin^2 \theta_B}{n_0^2} \right]^{1/2}} \right\} \quad (1)$$

où $I_T(\lambda, A)$ est normalisée par rapport à l'intensité incidente.

Avec :

t = épaisseur de la lame cristalline (μm)

λ = longueur d'onde laser (μm)

θ_B = angle d'incidence de Brewster

A = angle de rotation du filtre entre l'axe optique et la verticale

n_e = indice extraordinaire

n_0 = indice ordinaire.

Nous voyons ainsi que le filtre une fois placé dans la cavité optique laser va imposer des pertes à différentes longueurs d'onde suivant l'orientation A de la lame de quartz, sauf pour une longueur d'onde λ_T (à A fixé) telle que (règle de sélection en λ du filtre de Lyot) :

$$\lambda_T = \frac{t}{m} \left\{ \frac{n_e [1 + (\sin^2 \theta_B \cos^2 A)/n_e^2 - (\sin^2 \theta_B \cos^2 A)/n_0^2]}{\left[1 - \frac{\sin^2 \theta_B \sin^2 A}{n_e^2} - \frac{\sin^2 \theta_B \cos^2 A}{n_0^2} \right]^{1/2}} - \frac{n_0}{\left[1 - \frac{\sin^2 \theta_B}{n_0^2} \right]^{1/2}} \right\} \quad (2)$$

où m est un entier positif.

Pour cette longueur d'onde l'intensité transmise est maximale et égale à l'unité, de plus le déphasage entre les vibrations ordinaires et extraordinaires après traversée de la lame est égale à un multiple entier de 2π ($2\pi m$) c'est-à-dire que la polarisation de la vibration transmise λ_T est identique à celle de l'incidente. Pour toutes les autres longueurs d'onde la polarisation en sortie du filtre est elliptique.

L'autre cas pour lequel $I_T(\lambda, A)$ est égale à l'unité se produit lorsque $A = m \frac{\pi}{2}$, qui ne présente pas d'intérêt puisqu'alors $I_T(\lambda, A)$ est égale à l'unité quelle que soit la longueur d'onde.

Pour analyser les caractéristiques d'accord en fréquence d'une lame biréfringence, orientée sous incidence de Brewster, l'équation (2) peut être résolue pour obtenir une famille de courbes $\lambda_{T,m}(A)$ avec $m = 1, 2, 3 \dots$

En figure 4 sont tracées les solutions de l'équation (2) pour une lame de quartz d'épaisseur $t = 1 \text{ mm}$. Les différents indices pour une longueur d'onde voisine de $1,5 \mu\text{m}$ sont :

$$\begin{aligned} n_e &= 1,53646 \\ n_0 &= 1,528 \\ n &= 1,53223 \text{ (indice moyen)} \\ \theta &= 56,87^\circ. \end{aligned}$$

Pour le composé $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$ la gamme de longueur d'onde à balayer est $1,6 \mu\text{m} - 1,75 \mu\text{m}$, la solution $m = 3$ peut donc convenir. D'après le graphique 4 la variation d'angle de rotation du filtre ΔA sera d'une douzaine de degrés pour pouvoir couvrir cette gamme. La lame biréfringente est donc montée dans une monture permettant d'apprécier le $1/10^\circ$ de degré pour assurer le mouvement de rotation du filtre. La précision sur la longueur d'onde sélectionnée sera alors de l'ordre de $10^{-3} \mu\text{m}$.

La figure 5 présente l'allure et la position en λ de la transmission du filtre de Lyot pour différentes valeurs de l'angle de rotation A . Nous voyons ainsi que la courbe de luminescence I.R. de $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$ est entièrement incluse dans le domaine de transmission correspondant à un angle donné.

En fait comme le milieu actif est à faible gain la

Fig. 4. — Longueur d'onde transmise par le filtre de Lyot en fonction de son orientation A pour différents ordres m .

[Transmitted wavelength through the Lyot's filter as a function of its angular position A for different orders m .]

longueur d'onde transmise par ce filtre pour une position angulaire donnée, se limite à celle du maximum de transmission avec une largeur de l'ordre du cm^{-1} .

Enfin, le filtre de Lyot ainsi constitué ne fut utilisé que dans la cavité repliée à 3 miroirs pour les raisons évoquées en 2.2 et placé dans ce cas à mi-distance entre le miroir de sortie et le miroir de repli (Fig. 1).

3. Résultats.

Le choix des caractéristiques du rayonnement excita-t-eur, longueur d'onde et puissance, intervient de manière significative dans l'obtention de l'effet laser.

Fig. 5. — Transmission du filtre de Lyot en fonction de la longueur d'onde pour différentes orientations.

[Lyot's filter transmission as a function of the wavelength for different angular positions.]

Comme le montre la figure 6 dans le cas de $\text{MgF}_2:\text{Ni}^{2+}$ le pompage optique peut se faire à diverses fréquences ce qui permet d'envisager l'emploi de nombreuses sources d'excitation. Les premiers essais d'oscillation furent réalisés en pompant à l'aide de lampes xénon ou tungstène dans le niveau $^3\text{T}_1(^3\text{P})$ autour de $0,4 \mu\text{m}$ [9].

Pour notre part nous avons utilisé deux types d'excitation : d'une part un laser à krypton ionisé

Fig. 6. — Niveaux d'énergie du système $\text{MgF}_2:\text{Ni}$ d'après [4].

[Energy levels scheme of $\text{Ni}:\text{MgF}_2$ system from [4].]

émettant à $0,7525 \mu\text{m}$ et $0,7993 \mu\text{m}$, excitant les ions nickel dans le niveau $^3\text{T}_1(^3\text{F})$, et d'autre part un laser solide YAG : Nd^{3+} émettant à $1,32 \mu\text{m}$, excitant les ions nickel dans le niveau $^3\text{T}_2(^3\text{F})$. Dans le premier cas on observe en plus de l'émission infrarouge souhaitée, une fluorescence verte d'autant plus forte que la température de l'échantillon est élevée. Ce phénomène étudié par ailleurs [10] nuit certainement à l'inversion de population dans le niveau $^3\text{T}_2(^3\text{F})$. Par contre lorsque ce niveau est directement excité par le rayonnement à $1,32 \mu\text{m}$ aucune autre émission en dehors de l'émission infrarouge n'est observée. La dynamique de l'état excité sera ainsi bien différente selon que le pompage optique s'effectue dans le niveau $^3\text{T}_1(^3\text{F})$ ou dans le niveau $^3\text{T}_2(^3\text{F})$.

3.1 POMPAGE OPTIQUE PAR LASER KRYPTON. —

Contrairement à l'étude présentée en [4] nous avons utilisé avec ce type de pompage une cavité linéaire à deux miroirs plus simple à régler et qui permet une approche plus facile des phénomènes d'absorption dans l'état excité et d'oscillations de relaxation du signal laser et de comparer deux géométries de cavité pour une même excitation. Les performances sont dans ce cas inférieures à ce qu'elles étaient lorsqu'on utilisait une cavité repliée à 3 miroirs, en particulier l'accord en fréquence de l'émission laser n'est pas réalisée.

Avec un rayonnement d'excitation polarisé suivant la direction C du cristal laser de longueur 12 mm (Fig. 1) nous avons pour $\text{MgF}_2: 2\% \text{ Ni}$ 79 % de l'intensité incidente d'excitation absorbée et 54 % pour $\text{MgF}_2: 1\% \text{ Ni}$.

Le signal d'émission laser ($\lambda = 1,6293 \mu\text{m}$, $\Delta\nu = 0,5 \text{ cm}^{-1}$) en régime pseudo-continu (excitation hachée à basse fréquence 70 Hz) présente d'importantes oscillations de relaxation amorties dans le temps (Fig. 7a) comme dans le cas de la cavité à 3 miroirs. Ceci est à rapprocher de la saturation de la courbe de puissance à fort niveau de pompage (Fig. 8) identique pour les deux cristaux utilisés et de la faiblesse du rendement maximum de conversion ρ_c ($\leq 0,1\%$; Tab. I).

Il semble que la saturation observée ait des origines multiples dues d'un côté à un échauffement du matériau à cause de l'excitation optique et produisant un effet de lentille thermique et d'un autre côté dues à la dynamique de l'état excité $^3\text{T}_1(^3\text{F})$ défavorable dans ces conditions d'excitation [10]. Cette hypothèse est confirmée par le fait que le couplage de sortie de la cavité optique n'a pu être augmenté au-delà de 0,1 % comme cela fut effectué lorsque le cristal est excité à $1,32 \mu\text{m}$.

3.2 POMPAGE OPTIQUE PAR LASER YAG : Nd^{3+} . —

A cause de la dynamique de l'état excité $^3\text{T}_1(^3\text{F})$, l'utilisation d'un laser krypton émettant autour de $0,8 \mu\text{m}$ pour le pompage optique de $\text{MgF}_2:\text{Ni}$ n'est

Fig. 7a. — Oscillations de relaxation dans l'émission laser I.R. continue de $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$ excité par un laser krypton (0,7525-0,7993 μm).

[Relaxation oscillations in CW I.R. laser emission $\text{Ni}^{2+} : \text{MgF}_2$ pumped with 0.7525-0.7993 μm krypton laser.]

Fig. 7b. — Signal laser continu dans $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$ excité par un laser $\text{YAG} : \text{Nd}^{3+}$ (1,32 μm).

[CW laser signal from $\text{Ni}^{2+} : \text{MgF}_2$ pumped with a 1.32 μm $\text{Nd}^{3+} : \text{YAG}$ laser.]

pas la solution la plus appropriée pour obtenir un bon effet laser. C'est pourquoi il est préférable d'utiliser un laser $\text{YAG} : \text{Nd}$ émettant à 1,32 μm et excitant directement le niveau d'émission infrarouge

Fig. 8. — Puissance d'émission laser à 1,624 μm en fonction de la puissance absorbée à 0,7525 μm -0,7993 μm dans $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$.

[Output power at 1.624 μm from a $\text{Ni}^{2+} : \text{MgF}_2$ laser as a function of the adsorbed 0.7525 μm -0.7993 μm krypton laser radiation.]

$^3\text{T}_2(^3\text{F})$. Avec un rayonnement incident d'excitation non polarisé et des cristaux de 12 mm de long nous aurons pour $\text{MgF}_2 : 2\%$ Ni 86 % de la puissance incidente absorbée et pour $\text{MgF}_2 : 1\%$ Ni 65 % de celle-ci.

Vu la stabilité du signal laser obtenu avec la cavité à deux miroirs, il fut très rapidement possible d'utiliser la cavité repliée à trois miroirs. Le signal laser a alors l'aspect donné en figure 7b où on remarque l'absence d'oscillations de relaxation confirmant que la dynamique de l'état $^3\text{T}_2(^3\text{F})$ est plus favorable à l'effet laser.

Tableau I.

	Seuil (mW)	P_{max} (mW)	$P_{\text{abs max}}$ (W)	$\rho_c = \frac{P_{\text{max}}}{P_{\text{abs max}}}$	Pente au seuil	Pente au Max
$\text{MgF}_2 : 2\% \text{ Ni}$	665	2,3	2,2	0,1 %	0,8 %	0,02 %
$\text{MgF}_2 : 1\% \text{ Ni}$	700	0,3	1,5	0,02 %	0,083 %	0,015 %

La figure 9 montre la courbe de puissance du cristal MgF_2 : 2 % Ni avec un couplage de sortie de la cavité minimal. Dans l'ensemble pour des transmissions identiques du miroir de sortie, les performances laser sont bien meilleures en excitant le niveau $^3\text{T}_2(^3\text{F})$ que le niveau $^3\text{T}_1(^3\text{F})$ (Tab. II). Le seuil laser est plus bas (10 à 100 fois plus faible), les puissances émises plus importantes (5 à 25 fois plus avec des rendements de conversion maximum évidemment plus forts ; pour MgF_2 : 1 % Ni avec $R_{\text{sortie}} = 100 \%$, le rendement passe de 0,02 % à 0,6 %), enfin les pentes des courbes de puissance sont améliorées surtout pour les excitations intenses (10 à 30 fois plus fortes). De plus la transparence du miroir de sortie a pu être augmentée jusqu'à 2 % qui

Fig. 9. — Puissance d'émission laser à 1,624 μm en fonction de la puissance absorbée à 1,32 μm dans MgF_2 : 2 % Ni.

[Output power at 1.624 μm from a 2 % Ni : MgF_2 laser as a function of the absorbed 1.32 μm Nd : YAG laser radiation.]

est la valeur pour laquelle la puissance maximale émise est la plus importante, au-delà de 4 % de transmission en sortie l'effet laser n'est plus observable.

Les pertes dans l'état excité sont donc très faibles dans le cas de l'excitation à 1,32 μm . Malgré tout la saturation des courbes de rendement en puissance bien que moins prononcée subsiste à forte excitation. Son origine est liée à des effets thermiques dans le cristal qui peuvent être compensés si les réglages de la cavité sont retouchés entre chaque mesure de puissance émise.

Il apparaît aussi que les performances laser sont meilleures (dans ce cas d'excitation à 1,32 μm) pour le cristal le moins dopé en nickel. Pour MgF_2 : 1 % Ni nous avons en effet obtenu une puissance maximale émise de 185 mW à 1,625 μm avec un rendement de conversion de 10,5 % pour un couplage en sortie de 2 %. Ces résultats n'ont pas pu être égalés avec le cristal dopé à 2 % en nickel. Il faut certainement y voir le rôle de la qualité optique des cristaux (meilleure pour MgF_2 : 1 % Ni) et aussi l'existence probable d'interactions entre les ions nickel plus importantes dans le composé le plus dopé.

La structure géométrique du faisceau en sortie de la cavité a pu être déterminée. Lorsque la cavité optique est bien réglée, le faisceau émis est monomode transverse avec un diamètre de 1,02 mm et une divergence de 0,3 milliradian. La raie laser présente une largeur à mi-hauteur d'environ $0,5 \text{ cm}^{-1}$.

3.3 PERTES INTRA-CAVITÉS. — Dans toute étude de lasers solides, il est important de connaître le taux de pertes internes à la cavité en mettant donc à part les pertes radiatives liées à la transparence du miroir de sortie.

Dans le cas où il est possible de varier la transparence en sortie l'estimation du taux de pertes β (cm^{-1}) s'effectue par la méthode de Findlay et Clay [11]. C'est ce qui a été fait dans le cas de l'excitation

Tableau II.

	Seuil (mW)	P_{max} (mW)	$P_{\text{abs max}}$ (W)	$\rho_c = \frac{P_{\text{max}}}{P_{\text{abs max}}}$	Pente au seuil	Pente au Max
MgF_2 : 2 % Ni R_{max}	Seuil YAG	11	2,3	0,48 %	0,98 %	0,32 %
$R = 0,98$	200	30	1,8	1,7 %	5,3 %	1,1 %
MgF_2 : 1 % Ni R_{max}	70	7,7	1,28	0,6 %	1,9 %	0,46 %
$R = 0,98$ (*)	188	183	1,75	10,5 %	—	—

(*) Courbe de gain non mesurée.

à $1,32 \mu\text{m}$ où la transparence en sortie pouvait varier de 0 % à 4 %. On trouve alors un paramètre β (cm^{-1}) de $2 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$.

Pour le premier type d'excitation autour de $0,8 \mu\text{m}$, seules les oscillations de relaxation observées dans ce cas, permettent d'évaluer le taux de pertes internes. Pour cela diverses théories peuvent être utilisées notamment les travaux de D. Röss [12] et A. Yariv [13]. A partir de ces derniers on trouve un paramètre β (cm^{-1}) de $3,3 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$.

Bien que les deux valeurs obtenues soient faibles, il apparaît que les pertes internes sont plus importantes dans le cas de l'excitation à $0,75 \mu\text{m}$ que dans le cas de l'excitation à $1,32 \mu\text{m}$. Ces pertes intracavités sont essentiellement localisées dans le milieu actif, la différence des paramètres β (cm^{-1}) suivant le pompage optique traduit donc la dynamique différente des états excités concernés dans chaque cas d'excitation.

3.4 ACCORD EN FRÉQUENCE. — Les figures 10 et 11 présentent les courbes d'accord en fréquence de la puissance émise en sortie du laser pour les deux barreaux $\text{MgF}_2 : 1 \% \text{ Ni}$ et $2 \% \text{ Ni}$ avec des couplages de sortie différents et excités à $1,32 \mu\text{m}$.

Fig. 10. — Accord en fréquence de l'émission laser I.R. dans $\text{MgF}_2 : 2 \% \text{ Ni}$ à 80 K (miroir de sortie $R = 100 \%$).

[Tuning curve for a 2 % Ni : MgF_2 laser at 80 K (output mirror $R = 100 \%$).]

Fig. 11. — Accord en fréquence de l'émission laser I.R. dans $\text{MgF}_2 : 1 \% \text{ Ni}$ à 80 K (miroir de sortie $R = 98 \%$).

[Tuning curve for 1 % Ni : MgF_2 laser at 80 K (output mirror $R = 98 \%$).]

Avec une transparence minimale en sortie pour le barreau $\text{MgF}_2 : 2 \% \text{ Ni}$ (Fig. 10), on parcourt la gamme de longueur d'onde $1,608 \mu\text{m}$ à $1,73 \mu\text{m}$. Cet intervalle est inférieur à l'étendue du spectre de luminescence IR (Fig. 12). Diverses causes peuvent être à l'origine de cette réduction. Pour la limite inférieure l'absorption anti-stokes à des longueurs d'onde inférieures à $1,56 \mu\text{m}$ peut annuler l'émission stimulée dans cette zone en particulier pour la raie 0-phonons à $1,54 \mu\text{m}$, au-delà les pertes du miroir de sortie deviennent trop importantes, le coefficient de réflexion diminuant très rapidement pour des longueurs d'onde inférieures à $1,6 \mu\text{m}$.

Ces arguments sont compatibles avec la courbe de gain calculée à partir du spectre d'émission à 80 K [14] montrant l'influence du rapport entre les populations du niveau excité et du niveau fondamental sur la longueur d'onde inférieure de coupure.

La limite supérieure peut comme dans le cas précédent se justifier par une augmentation des pertes dues au miroir de sortie dans cette zone et par la valeur du rapport des populations entre état excité et fondamental. Une étude récente [15] propose une absorption dans l'état excité de l'émission laser entre le niveau d'émission $^3\text{T}_2(^3\text{F})$ et l'état excité supérieur $^3\text{T}_1(^3\text{F})$ ceci pour des longueurs d'onde supérieures à $1,7 \mu\text{m}$, valeur au-delà de laquelle l'émission laser cesserait donc.

L'autre caractéristique importante de ces courbes d'accord est leur aspect très accidenté, les formes

Fig. 12. — Structure de la courbe d'accord et spectre de luminescence I.R. dans $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$.

[Tuning curve and I.R. luminescence spectrum for $\text{Ni}^{2+} : \text{MgF}_2$.]

étant semblables dans la partie commune aux deux courbes. Déjà observées [2] ces fluctuations n'ont jusqu'à présent reçu aucune explication ; la structure plus prononcée sur la courbe d'accord que sur la courbe de luminescence (Fig. 12) indique que cette dernière est de nature inhomogène ; chaque élément spectral « lasant » indépendamment contrairement à ce qui est observé sur le laser à centre F, $\text{KCl} : \text{Tl}$, où la raie d'accord est moins structurée que la raie de fluorescence [16, 17]. Il apparaît donc plausible que les trois maximums de la courbe d'accord soient associés à un même mode de vibration du réseau d'énergie 163 cm^{-1} qui jouerait un rôle prépondérant dans l'émission laser. Ce mode est proche d'un maximum de la courbe de densité d'état de la matrice MgF_2 et posséderait un facteur de couplage de Huang et Rhys entre 0,5 et 2, valeurs courantes dans ce type de matériaux. Cependant l'étude des transitions radiatives conduit à des modes de vibration associés à l'état fondamental $^3\text{A}_2(^3\text{F})$ d'énergie bien différente de la valeur évoquée précédemment. Aussi actuellement l'approfondissement de l'étude de l'influence des phonons sur l'émission laser accordable est en cours d'investigation.

4. Discussion. Conclusion.

L'étude du laser $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$ a révélé l'importance de la dynamique de l'état excité dans ce genre de matériau. De par la nature des ions de transition, les interactions avec leur environnement sont primordiales. Elles sont bénéfiques dans le sens où elles sont à

l'origine de l'accordabilité en fréquence mais elles sont aussi nuisibles à l'émission laser dans la mesure où certains processus assistés de phonons pourront nuire à l'effet laser recherché comme c'est le cas dans $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$ excité autour de $0,8 \mu\text{m}$ où une addition de photons et un transfert d'énergie assistés de phonons [10] diminuent le rendement de conversion du laser. Ce problème d'absorption dans l'état excité est d'autant plus aigu pour les ions de transition que les niveaux d'énergie sont fortement élargis par les vibrations du réseau permettant aisément des résonances entre niveaux excités. Il apparaît alors intéressant de développer des systèmes avec l'ion Ti^{3+} comme ion dopant. Ce dernier, de configuration $3d^1$, ne comprend qu'un seul état excité et permet ainsi de s'affranchir de ces effets parasites d'où l'intérêt porté actuellement au composé $\text{Al}_2\text{O}_3 : \text{Ti}$ [18, 19].

Sous sa forme actuelle le laser $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$ peut encore être amélioré, notamment au niveau de la finesse de la raie laser en employant un filtre de Lyot à 3 lames d'épaisseurs multiples permettant comme dans $\text{MgF}_2 : \text{Co}^{2+}$ [20] d'obtenir une largeur de raie laser inférieure ou égale à $0,1 \text{ cm}^{-1}$, intéressante en spectroscopie. Le fonctionnement et la mise au point du laser $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$ peuvent être simplifiés en utilisant une cavité linéaire à deux miroirs ayant des rayons de courbure plus grands que ceux intervenant ici qui permettrait l'accord en fréquence avec cette configuration de cavité. Enfin il est envisageable de faire opérer ce laser en mode déclenché et de

produire des impulsions picoseconde utiles à la spectroscopie de certains matériaux semiconducteurs. Finalement l'étude du laser accordable $\text{MgF}_2 : \text{Ni}^{2+}$ peut aider à la mise au point d'autres systèmes tels que $\text{MgF}_2 : \text{Co}^{2+}$ dont la gamme d'émission laser (1,6 μm à 1,9 μm [20]) plus étendue que celle du nickel dans MgF_2 est intéressante d'autant

plus que la réabsorption dans l'état excité ne s'effectue pas au détriment de l'émission laser propre.

Remerciements.

Les auteurs remercient Mme A. Daniel qui a assuré avec expertise l'orientation, la découpe et le polissage des cristaux utilisés dans cette étude.

Bibliographie

- [1] JOHNSON, L. F., DIETZ, R. E. et GUGGENHEIM, H. J., *Phys. Rev. Lett.* **11** (1963) 318.
- [2] MOULTON, P. F., MOORADIAN, A. et REED, T. B., *Opt. Lett.* **3** (1978) 164.
- [3] MOULTON, P. F. et MOORADIAN, A., *Appl. Phys. Lett.* **35** (1979) 838.
- [4] AUZEL, F. et MONCORGÉ, R., *J. Opt. (Paris)* **15** (1984) 338.
- [5] KOGELNIK, H. W., IPPEN, E. R., DIENES, A. et SHANK, C. V., *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-8** (1972) 373.
- [6] MOULTON, P. F., *IEEE J. Quantum Electron* **QE-21** (1985) 1582.
- [7] BJORKHOLM, J. E., DAMEN, T. C. et SHAH, J., *Opt. Commun.* **4** (1971) 283.
- [8] PRESS, D. R. et GOLE, J. L., *Appl. Opt.* **19** (1980) 702.
- [9] JOHNSON, L. F., GUGGENHEIM, H. J. et THOMAS, R. A., *Phys. Rev.* **149** (1966).
- [10] MONCORGÉ, R., BRETEAU, J. M. et AUZEL, F., *Philos. Mag.* **B 51** (1985) 489.
- [11] FINDLAY, D. et CLAY, R. A., *Phys. Lett.* **20** (1966) 489.
- [12] RÖSS, D., *Lasers, light amplifiers and oscillators* (Academic Press) 1969.
- [13] YARIV, A., *Introduction to optical electronics* (Holt, Rinehart and Winston, inc.).
- [14] MC CUMBER, D. E., *Phys. Rev. A* **134** (1964) 299.
- [15] FEUERHELM, L. N. et SIBLEY, W. A., *J. Phys. C* **16** (1983) 799.
- [16] AUZEL, F. in *Spectroscopy of laser-type materials* ed. B. D'Artolo, to be published by plenum Press 1987.
- [17] HENDERSON, B., in *Spectroscopy of laser-type materials* ed. B. Di Bartolo, to be published Plenum Press 1987.
- [18] MOULTON, P. F., *J. Opt. Soc. Am.* **B 3** (1986) 125.
- [19] ALBERS, P., STARK, E. et HUBER, G., *J. Opt. Soc. Am.* **B 3** (1986) 134.
- [20] LOVOLD, S., MOULTON, P. E., KILLINGER, D. K. et MENYUK, N., *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-21** (1985) 202.