

# **COLOQ - HORIZONS - JNCO - JNOG**

# Marseille,

# 4-7 juillet 2011

# **Recueil des communications**















#### TABLE DES MATIERES

### Sessions orales

## Lundi 4 juillet 2011

#### 13:30 - Plénière 1 Grand Amphi

14:00	L'utilisation de la lumière lente dans les capteurs à fibres	
	M. Digonnet	
	Stanford University	1
15:00	Microscopie tomographique diffractive : vers une imagerie quantitative tridimensionnelle haute résolution	
	<u>G. Maire</u>	
	Institut Fresnel	4
15:30	Lasers à fibres cristallines pompés par diodes	
	F. Balembois, I. Martial, D. Sangla, X. Délen, Y. Zaouter, E. Mottay, F. Druon, P. Georges, K. Lebbou, A. Brenier, O. Tillement,	
	N. Aubry, J. Didierjean, D. Perrodin et JM. Fourmigué	
	Laboratoire Charles Fabry	5

#### 16:30 - JNCO\_1 : Cristallogénèse Amphi Charve

16:30	Nanocristaux organiques fluorescents enrobés d'une coquille silicatée : vers un nouveau type de traceurs très lumineux pour l'imagerie médicale	
	C. Philippot, F. Dubois, M. Maurin, P. Baldeck, B. Van Den Sanden et <u>A. Ibanez</u> Institut Néel, CNRS, UJF, INPG	8
16:50	Crystal growth of cubic rare earth sesquioxides <u>P. Veber</u> , M. Velazquez, O. Viraphong, V. Jubera, R. Decourt et S. Pechev ICMCB-UPR 9048 Univ Bordeaux	10
17:10	<b>Recent Progress in the growth of large Ti-doped sapphire crystals for high power laser application</b> <u><i>K. Lebbou, A. Nehari, A. Brenier, J. Gofroy, S. Labor, H. Legal, G. Chériaux, J.P. Chambaret, T. Duffar et R. Moncorgé</i> <u>I PCML UMR 5620</u></u>	11
17:30	Croissance in situ de cristaux de KTiOPO4 à domaines périodiquement alternés <u>A. Pena</u> , B. Ménaert, B. Boulanger, F. Laurell, C. Canalias, V. Pasiskevicius, P. Segonds, C. Félix, J. Debray et S. Pairis Institut Néel CNRS/UJF	13
17:50	<b>Croissance et défauts de cristaux pour applications laser et optique non linéaire</b> S. Ilas, A. Jaffrès, PO. Petit, <u>P. Loiseau</u> , G. Aka, B. Viana, J. Lejay, A. Suganuma, D. Rytz et A. Maillard LCMCP	15
18:10	<b>Croissance rapide de cristaux convertisseurs de fréquence de KDP deutérés pour le laser mégajoule</b> <i>J. Leroudier, <u>J. Zaccaro</u> et A. Ibanez</i> Institut Néel, CNRS , UJF, INPG	17

### Mardi 5 juillet 2011

#### 8:30 - JNCO\_2 : Optique en milieux micro-nano-structurés - Endommagement laser Amphi Charve

8:50	Niobate de Lithium Périodiquement Polarisé à Courte Période et Perspectives d'Application <u>P. Baldi</u> , M. De Micheli, E. Quillier, L. Gilbert, J.P. Salvestrini et S. Tascu LPMC UMR 6622	19
9:10	L'endommagement laser des cristaux convertisseurs de fréquence : métrologie et compréhension du phénomène.	
9:30	CEA	21
	Laboratoire Hubert Curien	23

10:30 - Posters Patio

13:30 - Industrie Amphi Sciences Naturelles

#### 13:30 - Rencontres pédagogiques - Table ronde Amphi Charve

#### 16:00 - Plénière 2 + Lauréat(e)s des prix de la SFO Grand Amphi

16:00	Sonder le fonctionnement cellulaire à l'aide de l'imagerie de nanoparticules dopées aux terres rares	
	<u>A. Alexandrou</u>	
	Lab d'Optique et Biosciences	25

## Mercredi 6 juillet 2011

#### 8:20 - JNCO\_3 : Matériaux luminescents... Amphi Charve

8:20	Utilisation de cristaux scintillateurs pour la physique des particules : 15 ans de développement du tungstate de plomb	
	E. Auffray	
	CERN	27
8:40	Scintillateurs couches minces pour imagerie X haute-résolution	
	<u>T. Martin</u> , PA. Douissard et E. Mathieu	
	ESRF	29
9:00	Transferts d'énergie dans les fluorures dopés terres-rares pour convertisseurs solaires luminescents basse-fréquence	
	<u>D. Serrano</u> , A. Braud, J.L. Doualan, P. Camy et R. Moncorgé	
	CIMAP - ENSICAEN	31
9:20	Optimisation de scintillateurs denses pour l'imagerie médicale X et Gamma	
	<u>S. Blahuta,</u> B. Viana et A. Bessière	
	LCMCP Chimie ParisTech	33
9:40	'Up-Converters' nanostructurés pour cellules solaires de troisième génération	
	<u>AL. Joudrier</u> , C. Andriamiadamanana, A. Ferrier, F. Pellé et JF. Guillemoles	
	ENSCP - LCMCP - IRDEP	35

#### 10:30 - JNCO\_4 : Lasers à solides Amphi Charve

10:30	Compact and efficient diode-pumped and intracavity frequency-doubled ND:YAG AND ND:GGG lasers to pump RGBO Pr3+-doped fluoride laser crystals around 469 nm	
	<u>B. Xu</u> , P. Camy, R. Soulard, F. Starecki, G. Brasse, J.L. Doualan et R. Moncorgé CIMAP-ENSICAEN	37
10:50	Laser Yb:CaGdAlO4 en "thin-disk"	57
	<u>S. Ricaud</u> , B. Weichelt, P. Goldner, B. Viana, M. Abdou-Ahmed, D. Ritz, E. Mottay, P. Georges et F. Druon	
	Laboratoire Charles Fabry	39
11:10	Performances lasers en pompage par diodes lasers et étude des propriétés thermo-optiques à des températures	
	cryogéniques de matériaux lasers dopés à l'ion ytterbium	
	<u>V. Cardinali</u> , B. Le Garrec, E. Marmois et G. Bourdet	
	CEA-CESTA	41
11:30	Influence de la température sur la section efficace d'émission et sur le fonctionnement laser du Nd:YVO4 à 1064nm	
	<u>X. Délen</u> , F. Balembois et P. Georges	
	Laboratoire Charles Fabry	42

#### 16:00 - Plénière 3 Grand Amphi

16:00	Impulsions attosecondes et optique extrêmement non-linéaire	
	<u>Y. Mairesse</u>	
	CELIA	43
17:00	Le projet ILE APOLLON 10PW : Avancées sur les cristaux de Titane Saphir et de LBO	
	J.P. Chambaret	
	ILE (Institut de Lumière Extrême	46
17:30	Cavity Optomechanics: Back-action cooling of mechanical oscilattors	
	T. Kippenberg	
	EPFL	47

## Jeudi 7 juillet 2011

#### 8:30 - JNCO\_5 : Optique non-linéaire 1 Amphi Charve

8:30	OPOs OP-GaAs infrarouges pompés à 2 $\mu$ m	
	C. Kieleck, M. Eichhorn, A. Hildenbrand, G. Stöppler, E. Lallier, D. Faye, A. Grisard, B. Gerard et S. Jackson	
	Institut franco-allemand ISL	48
8:50	Imagerie quantique par amplification paramétrique dans les cristaux non linéaires quadratiques	
	<u>F. Devaux</u> et E. Lantz	
	Université de Franche-Comté	50
9:10	Démonstration des corrélations quantiques de triplets de photons	
	<u>A. Dot</u> , K. Bencheikh, B. Boulanger, A. Levenson, P. Segonds et C. Félix	
	Institut Néel CNRS/UJF	51
9:30	Laser ZnSe:Cr2+ picoseconde accordable à verrouillage de modes par miroir non linéaire	
	JB. Dherbecourt, A. Denoeud, <u>JM. Melkonian</u> , M. Raybaut, A. Godard, M. Lefebvre et E. Rosencher	
	ONERA / DMPH	53

#### 10:30 - JNCO\_6 : Optique non-linéaire 2 Amphi Charve

10:30	Giant microphotonics: Large aperture PPMgLN	
	<u>T. Taira</u>	
	Institute for Molecular Science	55
10:50	Cristaux pour le filtrage temporel non linéaire d'impulsions laser femtosecondes par la technique XPW	
	<u>A. Jullien</u> , O. Albert, A. Ricci, N. Forget, R. Lopez-Martens, N. Minkovski et S. Kourtev	
	Laboratoire d'Optique Appliquée	59
11:10	Records de doublement et triplement de fréquence dans LBO	
	<u>G. Mennerat</u> , O. Bonville, P. Villeval et D. Lupinski	
	CEA	61

#### 13:30 - Plénière 4 Grand Amphi

13:30	Taming light and heat at the nanoscale: Applications to biosciences	
	ICFO	63
14:00	Plasmonique quantique avec un nanodiamant fluorescent	
	<u>S. Huant</u> Institut Néel	64
14:30	Puces à atomes et cavités fibrés : Un laboratoire quantique miniaturisé	
	<u>J. Reichel</u> Lab. Kastler Brossel	65

15:00	La Fluorine dopée Ytterbium : un système cristallin atypique pour les lasers à impulsions brèves et les amplificateurs
	de très forte puissance
	P. Camy, A. Braud, J.L. Doualan, A. Benayad, V. Ménard, G. Brasse, R. Moncorgé, F. Druon, P. Georges, S. Ricaud, D. Pa-
	padopoulos, A. Courjaud, E. Mottay et M. Siebold

CIMAP-ENSICAEN	$\dots$	
	CIMAP-ENSICAEN	66

## Sessions affiches

JNCO - Posters
----------------

P109	Etude comparative des défauts macroscopiques de YAl3(BO3)4 et de La0,71Y0,57Sc2,72(BO3)4 observés en ombre portée ou révélés par attaque chimique. <u>M. Bourezzou</u> , A. Maillard, R. Maillard, D. Rytz, P. Villeval, G. Aka, P. Loiseau et J. Lejay	60
P110	Laser bi-fréquence Yb3+:KGd(WO4)2 pompé par diode accordable avec des réseaux de Bragg volumiques	68
P111	<u>A. Brenier</u> LPCML UMR 5620 SHG et THG dans les cristaux non-linéaires nour des applications spatiales	70
	A. Ciapponi, H. Schröder, W. Riede et G. Tzeremes	72
P112	<b>Déformation photo-induites de nanoclusters d'argent dans des films de TiO2 sous flux laser continu</b> <u>N. Crespo-Monteiro</u> , N. Destouches, L. Nadar, F. Vocanson, S. Reynaud, E. Gamet, JY. Michalon et A. Boukenter	
P113	Laboratoire Hubert Curien	74
P114	ICMCB UPR 9048	76
P115	ONERA OPO avec amplification paramétrique intracavité basé sur un cristal de PPLN bifonctionnel <u>A. Godard</u> , M. Raybaut, M. Lefebvre, AM. Michel et M. Péalat	78
P116	ONERA / DMPH Baryscan : une technique innovante et sensible dédiée à la mesure de faibles non-linéarités <u>T. Godin</u> , M. Fromager, E. Cagniot, R. Moncorgé et K. Aït-Ameur	80
P117	CIMAP - ENSICAEN	82
P118	Institut franco-allemand ISL élaboration et caractérisation de nouveaux matériaux non linéaires pour la conception de lasers solides émettant dans l'ultraviolet <u>S. Ilas</u> , P. Loiseau et G. Aka	84
P119	LCMCP	86
P120	SYMME Caractérisations optiques et spectroscopie en lumière polarisée de cristaux laser type borate	88
P121	<u>V. Moerta</u> ICMCB-Université Bordeaux 1 <b>Etude des propriétés optiques de YAl3(BO3)4 par génération de second harmonique et de quatrième harmonique</b> <i>R. Maillard, A. Maillard, M. Bourezzou, D. Rytz, P. Villeval, G. Aka, J. Lejay et P. Loiseau</i>	90
P122	Université Paul Verlaine Metz Nanostructuration de fibres optiques par croissance de particules d'oxyde dopées Er3+ V. Mauroy, W. Blanc, M. Ude, S. Trezesien, L. Nguyen et B. Dussardier	92
P123	LPMC UMR 6622     Oscillateur paramétrique optique simplement résonant stabilisé en dessous du kHz.     O. Mhibik, D. Pabœuf, C. Drag et F. Bretenaker	94
P124	Laboratoire Aimé-Cotton-CNRS. Contrôle du dopage et de la photoréfractivité du LN dopé fer par spectroscopie Raman	96
D125	<u>S. Mignoni</u> , M. Fontana, F. Bourson, M. Bazzan et E. Kokanyan LMOPS	98
P123	question <u>R. Moncorgé</u> , J.L. Doualan, T. Godin, M. Fromager, K. Aït-Ameur, A. Chavez, R.A. Cruz et T. Catunda	100
P126	<b>Fibres Scintillatrices pour la calorimétrie en physique des hautes énergies</b> <i>K. Pauwels, E. Auffray, P. Lecoa, D. Amans, A. Belsky, K. Lebbou, G. Ledoux, D. Perrodin, A. Petrosvan, A. Vedda et C. Duiardin</i>	100
	LPCML, Université Lyon 1	102

P127	Céramiques transparentes de MgAl2O4 et Al2O3 : procédés et analyses	
	J. Petit, L. Vernhet, P. Dethare, A. Sergent, R. Marino, MH. Ritti, S. Landais, JL. Lunel, S. Trombert, P. Goldner et B. Viana	
	ONERA / DMSC	103
P128	Synthèse, croissance cristalline et optique non linéaire du moyen IR des composés AgGaS2 et ZnGeP2	
	J. Petit, M. Bejet, JC. Daux, P. Beauchene, A. Godard, JM. Melkonian, M. Raybaut et M. Lefebvre	
	ONERA / DMSC	105
P129	étude et réalisation d'une structure à cristaux photoniques en niobate de lithium pour la réalisation de modulateur	
	électro-optique.	
	<u>B. Sadani</u> , H. Lu, F. Baida, G. Ulliac et MP. Bernal	
	Institut FEMTO-ST	107
P130	Réseaux d'indice et réseaux de gain dans les milieux lasers solides dopés Nd3+ ou Yb3+ - Utilisation pour le mélange à	
	deux ondes et les cavités lasers auto-adaptatives	
	<u>R. Soulard</u> , A. Brignon, R. Moncorgé, J.L. Doualan, JP. Huignard, O. Antipov, A. Zinoviev, O. Eremeykin et E. Ivakin	
	CIMAP-ENSICAEN	109
P131	Matériau Yb:CaGdAlO4 pour applications laser de forte puissance à 1um	
	A. Suganuma, A. Jaffrès, B. Viana, PO. Petit, P. Goldner, S. Ricaud, F. Balembois, F. Druon et P. Georges	
	LCMCP Chimie ParisTech	111
P132	Tolérances angulaires pour l'amplification paramétrique optique non-colinéaire dans des cristaux uniaxes et biaxes.	
	B. Trophème, G. Mennerat et B. Boulanger	
	<u>CEA</u>	113
P133	Endommagement laser multi longueur d'onde dans KTP : quantification de la coopérativité entre les longueurs d'ondes	
	1064 nm et 532 nm	
	F. Wagner, A. Hildenbrand, JY. Natoli et M. Commandré	
	Institut Fresnel	115

#### **Rencontres pédagogiques - Posters**

P215	A la lumière du laser : la Bretagne unit ses forces pour fêter le cinquantenaire du laser	
	<u>T. Chartier</u> , E. Heinrich, S. Fève, P. Besnard, D. Graviou et J.C. Simon	
	Université européene de Bretagne	117
P216	Transmission d'un signal par voie optique	
	<u>N. Chateur</u> et L. Gallais	
	Ecole Centrale Marseille	118
P217	Une mallette pédagogique pour l'holographie	
	A. Escarguel	
	ESCUP	119
P218	L'optique pour la promotion des sciences dans le scientibus	
	<u>F. Louradour</u> et D. Pagnoux	
	XLIM, UMR CNRS 6172	120
P219	Accompagnement, suivi et insertion professionnelle des étudiants	
	<u>A. Maitre</u>	
	INSP	121
P220	Un laser à impulsions ultra-brèves pour l'enseignement	
	F. Margaillan et <u>C. Schwob</u>	
	INSP	122
P221	L'Abret la clé des sciences présente 'A la lumière des lasers'	
	<u>V. Riche</u> et M. Tréheux	
	ABRET, la clé des sciences	123
P222	Expérience de démonstration d'une phase géométrique : la phase de Pancharatnam.	
	J. Riquet, H. Bitard, G. Trénec, A. Gauguet, M. Büchner, <u>J. Vigué</u> et C. Robilliard	
	LCAR UMR 5589- IRSAMC	124

#### L'Utilisation de la Lumière Lente dans les Capteurs à Fibres Michel Digonnet Department of Applied Physics, Stanford University, California

La phase accumulée par une onde est inversement proportionnelle à la vitesse de groupe de l'onde dans le milieu de propagation. L'utilisation de lumière lente dans une fibre optique devrait donc permettre d'augmenter le déphasage induit par une perturbation externe appliquée à la fibre, et d'améliorer ainsi la sensibilité des capteurs interférométriques. Puisqu'il est possible de réaliser des vitesses de groupe de quelques mètres par seconde (ou des indices de groupes de l'ordre de  $10^5$ ), on peut espérer atteindre des sensibilités plusieurs ordres de grandeurs plus élevées que dans un capteur classique.

La lumière peut être ralentie en général de deux façons, soit en la faisant interagir avec un milieu atomique spécialement préparé (transparence induite électromagnétiquement, diffusion Brillouin stimulée, etc.), soit en la recyclant dans un interféromètre à ondes multiples (Fabry-Pérot, réseau de Bragg, etc.) pour produire de la lumière lente structurelle. Pour démontrer expérimentalement les avantages considérables de cette nouvelle approche, nous avons choisi d'étudier leurs effets dans les fibres à réseaux de Bragg. Ces composants sont bien connus, stables en température, peu coûteux, et faciles à modéliser, et ils conduisent à des solutions pratiques.

Une fibre à réseau de Bragg est un cristal photonique unidimensionnel: il possède une bande de fréquences interdites, centrée autour de la fréquence de Bragg, dans laquelle la lumière ne peut se propager. Aux bords de cette bande interdite, comme dans tout cristal photonique, il existe une série de pics où le réseau transmet la lumière (voir Figure 1). Dans ces régions, la lumière a fait plusieurs allers et retours dans le réseau, et elle a donc subi un retard élevé, ce qui se traduit par une vitesse de groupe apparente plus faible. La lumière est plus lente pour les résonances plus proches du pic de Bragg. Bien que connu depuis longtemps,<sup>1</sup> jusqu'à nos études récentes ce principe n'a pas été exploité. La vitesse de groupe publiée la plus élevée, calculée à partir du retard d'un soliton, était de ~39.<sup>2</sup> Nous avons depuis montré que pour obtenir de plus faibles vitesses, il fallait (1) augmenter la modulation de l'indice  $\Delta n$  du réseau, (2) augmenter la longueur L du réseau jusqu'à une valeur optimale imposée par les pertes, et (3) apodiser le profil du réseau.<sup>3</sup> Pour un réseau uniforme sans perte, l'indice de groupe est proportionnel à  $\sim \Delta n^{2.8} L^{2.9}$ ; le ralentissement s'accentue donc très rapidement en augmentant  $\Delta n$  ou L. En présence de pertes, pour une apodisation gaussienne, un  $\Delta n$  de 10<sup>-2</sup> (que l'on peut obtenir dans une fibre dopée à l'hydrogène), des pertes de 2 m<sup>-1</sup>, et une longueur optimisée de 1,7 cm, il est possible de ralentir la lumière d'un facteur d'environ 744.<sup>3</sup>



Figure 1. Spectre calculé d'un réseau de Bragg apodisé (a) transmission; (b) indice de groupe.

En plus d'une sensibilité considérable, cette technique offre un autre avantage important. En présence d'une perturbation externe, un réseau utilisé en lumière lente produit une modulation de phase sur un signal *transmis*, et non réfléchi comme dans les capteurs classiques en réflection. Il est donc possible de détecter cette modulation de phase en plaçant le réseau par exemple dans un interféromètre de Mach-Zehnder équilibré (Figure 2). Quand la fibre à réseau de Bragg est utilisé en réflection, la perturbation induit un changement de la longueur d'onde de Bragg, qui est mesurée en envoyant le signal réfléchi par le réseau dans un Mach-Zehnder déséquilibré. La sensibilité étant proportionnelle à la différence de longueur optique  $\Delta$  des deux bras de l'interféromètre, pour obtenir une meilleure sensibilité il faut augmenter  $\Delta$ , ce qui rend le Mach-Zehnder très sensible à la température (ainsi que volumineux), et ce qui converti le bruit de phase de la source en bruit d'amplitude. Avec la lumière lente, le Mach-Zehnder peut être équilibré ( $\Delta = 0$ ) et très court, ce qui élimine la dépendance en température et l'effet du bruit de phase. De plus, le réseau est interrogé avec un laser plutôt qu'avec une source à large bande ; il n'y a donc pas d'excès de bruit.



Figure 2. Diagramme conceptuel d'un capteur à lumière lente.

Nous avons démontré cette méthode en testant plusieurs fibres à réseaux de Bragg . Dans une fibre à réseau de Bragg avec une apodisation presque gaussienne, un  $\Delta n$  d'environ  $3 \times 10^{-3}$ , une longueur de 2 cm, et des pertes de 0,1 m<sup>-1</sup>, nous avons mesuré un indice de groupe  $n_g = 290$ , soit une vitesse de groupe de seulement 1030 m/s, de loin le record pour une fibre à réseau de Bragg. Avec un réseau différent ( $n_g \approx 133$ ) utilisé dans la configuration de la Figure 2, nous avons détecté une contrainte minimum à 25 kHz de 8,8 10<sup>-13</sup>, soit ~700 fois plus faible que le record pour un capteur à réseau passif sans lumière lente.<sup>4</sup> Il est clair que la phase du signal de sortie de ce nouveau type de capteur est également plus sensible aux variations de température. Cependant, le seul effet de cette variation de phase est de modifier le biais du Mach-Zehnder, modification qui est corrigée par le circuit de stabilisation. La longueur d'onde de la lumière lente varie également en température, d'environ 12 pm/°C. Ce pic de lumière lente est toutefois suffisamment large (~0,6 pm pour le capteur avec un  $n_g$  de ~133) pour que ce capteur puisse être utilisé dans le laboratoire sans avoir à prendre de précautions particulières pour stabiliser sa température.

Ce principe peut être appliqué à la mesure de nombreux paramètres physiques, tels que température, déplacement, rotation relative, ainsi que tout paramètre qui peut être converti en modulation de phase par un transducteur approprié, tel qu'un champ magnétique ou électrique. Toutefois, il y a un paramètre qui échappe à cette règle-la rotation absolue. La raison est que la différence de phase de Sagnac est indépendante de l'indice de réfraction du milieu de propagation.<sup>5</sup> Elle est aussi indépendante de l'indice de groupe. Il n'est donc pas possible d'améliorer la sensibilité d'un tel gyroscope avec de la lumière lente. La preuve peut-être la plus élégante se retrouve dans le gyroscope résonnant, qui utilise une cavité en anneau. Une rotation induit un changement des fréquences de résonances, qui se manifeste par un changement de l'intensité transmise par l'anneau à une fréquence proche d'une résonance. Un tel gyroscope, qui utilise de la lumière lente puisqu'il opère près d'une résonance, a pratiquement la même sensibilité qu'un gyroscope interféromètrique, qui utilise une boucle de Sagnac, et donc pas de lumière lente. Plus précisément, après optimisation de la longueur de fibre de chacun des deux gyroscopes, le gyroscope résonnant est seulement 2.09 fois plus sensible.<sup>6</sup> Son avantage principal est bien sûr qu'il nécessite une longueur de fibre bien moindre, puisque la lumière circule plusieurs fois dans l'anneau. La raison fondamentale

pour laquelle les deux gyroscopes ont pratiquement la même sensibilité est que la sensibilité des deux capteurs est limitée par les pertes dans la fibre de la même façon.

Plusieurs auteurs ont malgré tout proposé d'augmenter la sensibilité du gyroscope résonnant en ralentissant encore plus la lumière.<sup>7-9</sup> L'argument est que la phase de Sagnac est proportionnelle au temps de parcours de la lumière dans la fibre. Donc en couplant de nombreux anneaux résonnants entre eux, par exemple comme dans les configurations de la Figure 3, on introduit un ralentissement de la lumière plus important que dans un anneau simple, et on augmente la sensibilité. Ces publications ont démontré une amélioration marquée, parfois de plusieurs ordres de grandeur, de la sensibilité. Cet argument est faux.<sup>6</sup> Après optimisation, le temps de parcours de la lumière n'est pas plus long dans une structure à anneaux couplés. Lorsque la comparaison est faite correctement, en particulier lorsque l'on optimise les deux gyroscopes et que l'on tient compte des pertes, un gyroscope à résonateurs couplés n'est jamais plus sensible que le gyroscope résonnant.<sup>6</sup>



Figure 3. Configurations à lumière lente proposées comme gyroscope.<sup>7-9</sup>

Pour certains paramètres, tel que l'absorption, les deux sortes de lumière lente ont apparemment des impacts différents. Luc Thévenaz a démontré en utilisant la diffusion Brillouin stimulée dans une fibre que la lumière lente n'affecte pas l'atténuation de la lumière due à l'absorption.<sup>10</sup> Cet effet est prévu par le modèle classique d'un absorbeur comme un oscillateur harmonique: la vitesse de groupe n'intervient pas. Cependant, il est clair que lorsqu'un absorbeur est introduit dans un interféromètre à ondes multiples, les multiples passages de la lumière à travers l'absorbeur vont augmenter l'atténuation de la lumière de façon notable.

- 1. T. Erdogan, "Fiber grating spectra," J. of Lightwave Techno. Vol. 15, 1277-1294 (1997).
- 2. J. T. Mok, C. M. de Sterke, and B. J. Eggleton, "Delay-tunable gap-soliton-based slow-light system," *Opt. Express* Vol. 14, 11987–11996 (2006).
- 3. H. Wen, M. Terrel, S. Fan, and M. J. F. Digonnet, "Sensing with slow light in fiber Bragg gratings," accepté dans IEEE Sensors (2011).
- 4. A. D. Kersey, T. A. Berkoff, and W. W. Morey, "High resolution fibre-grating based strain sensor with interferometric wavelength-shift detection," *Electron. Lett.* Vol. 28, 136-138 (1992).
- 5. H. J. Arditty, and H. C. Lefèvre, "Sagnac Effect in Fiber Gyroscopes," *Opt. Lett.* Vol. 6, 401-403 (1981).
- 6. M. Terrel, M. J. F. Digonnet, and S. Fan, "Performance comparison of slow-light coupled-resonator optical gyroscopes," Laser & Photonics Reviews Vol. 3, No. 5, 452-465 (2009).
- 7. L. Yan, Z. Xiao, X. Guo, and A. Huang, "Circle-coupled resonator waveguide with enhanced Sagnac phase-sensitivity for rotation sensing," *Appl. Phys. Lett.* Vol. 95, 141104 (2009).
- 8. J. Scheuer, and A. Yariv, *Phys. Rev. Lett.* Vol. 96, "Sagnac effect in coupled-resonator slow-light waveguide structures," 053901 (2006).
- 9. B. Z. Steinberg, J. Scheuer, and A. Boag, "Rotation-induced superstructure in slow- light waveguides with mode-degeneracy: optical gyroscopes with exponential sensitivity," J. Opt. Soc. Am. B Vol. 24, 1216-1224 (2007).
- L. Thévenaz, S. hin, I. Dicaire, J.-C. Beugnot, S. Foaleng Mafang, and M. Gonzalez Herraez, "Experimental verification of the effect of slow light on molecular absorption," 20th Int. Conf. on Optical Fibre Sensors, Proc. of SPIE Vol. 7503, 75034W-4 (2009).

#### MICROSCOPIE TOMOGRAPHIQUE DIFFRACTIVE : VERS UNE IMAGERIE QUANTITATIVE TRIDIMENSIONNELLE HAUTE RESOLUTION

#### **Guillaume Maire**

#### Institut Fresnel, Avenue Escadrille Normandie Niemen, 13397 Marseille guillaume.maire@fresnel.fr

La microscopie tomographique diffractive est une technique d'imagerie récente qui permet d'accroître la résolution par rapport à la microscopie plein champ classique, et de reconstruire de manière quantitative la carte de permittivité tridimensionnelle de l'objet sondé. Elle consiste à illuminer l'objet par un faisceau cohérent collimaté sous différentes incidences successives, et à mesurer pour chacune d'elle le champ diffracté en phase et en amplitude. La carte de permittivité est alors reconstruite en appliquant une procédure d'inversion numérique à ces données [1]. Habituellement, ces procédures sont basées sur des approximations linéaires du calcul du champ diffracté, qui limitent l'application de cette technique aux objets faiblement contrastés.

Nous avons développé une méthode d'inversion itérative effectuant une modélisation rigoureuse de l'interaction onde-matière, applicable dans le cas général. Mise en œuvre expérimentalement dans un premier temps sur des échantillons bidimensionnels fortement contrastés, cette approche a permis de montrer que la résolution pouvait être améliorée au-delà des limites théoriques imposées par les approximations linéaires usuelles, pour atteindre en champ lointain des performances similaires aux techniques de champ proche [2]. Elle a à présent été adaptée pour traiter le cas d'objets tridimensionnels, dont de premières reconstructions seront présentées.

#### REFERENCES

[1] G. Maire et al., "Experimental demonstration of quantitative imaging beyond Abbe's limit with optical diffraction tomography", Physical Review Letters 102, 213905, 2009.

[2] J. Girard et al., "Nanometric resolution using far-field optical tomographic microscopy in the multiple scattering regime", Physical Review A 82, 061801(R), 2010.

#### LASERS A FIBRES CRISTALLINES POMPES PAR DIODES

#### F.Balembois<sup>1</sup>, I.Martial<sup>1,2</sup>, D.Sangla<sup>1,3</sup>, X.Délen<sup>1</sup>, Y.Zaouter<sup>4</sup>, E.Mottay<sup>4</sup>, F.Druon<sup>1</sup>, P.Georges<sup>1</sup>, K.Lebbou<sup>3</sup>, A.Brenier<sup>3</sup>, O.Tillement<sup>3</sup>, N.Aubry<sup>2</sup>, J.Didierjean<sup>2</sup>, D.Perrodin<sup>2</sup>, J.-M.Fourmigué<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, CNRS, Université Paris-Sud, RD 128 Campus Polytechnique, 91127 Palaiseau Cedex, France

<sup>2</sup> Fibercryst SAS, La Doua-Bâtiment l'Atrium, Blvd Latarjet, F- 69616 Villeurbanne Cedex, France
<sup>3</sup>Laboratoire de Physico-Chimie des Matériaux Luminescents, CNRS, UMR5620, Univ. de Lyon, 69622 Villeurbanne Cedex, France

<sup>4</sup> Amplitude Systemes, 6 allée du Doyen Georges Brus, 33600, Pessac, France

contact : francois.balembois@institutoptique.fr

#### Résumé

L'objectif de cet article est de faire le point sur les performances réalisées par les lasers à fibres cristallines. Le milieu utilisé est le YAG dopé par le néodyme, l'ytterbium ou l'erbium, selon les cas. Les résultats démontrent des coefficients d'amplification importants (supérieurs à 30), ainsi que de fortes puissances crêtes (>MW) et de fortes puissances moyennes (quelques dizaines de watts) tant en oscillateurs qu'en amplificateurs impulsionnels.

**MOTS-CLEFS :** *Pompage par diode, lasers à fibre cristalline, lasers déclenchés, amplificateurs laser, Nd :YAG, Yb :YAG, Er :YAG* 

#### 1. CONCEPT

En analysant les performances des lasers actuels, il est frappant de constater la place qu'ont pris les lasers à fibres par rapport aux lasers à cristaux massifs. Pourtant, les verres des fibres optiques sont de mauvais conducteurs thermiques et leurs propriétés spectroscopiques sont beaucoup moins bonnes que celles des cristaux. Ces handicaps sont surmontés par l'architecture : double gaine pour optimiser le couplage entre le faisceau de pompe et le signal, grande longueur pour réduire les effets thermiques et faible diamètre pour assurer un coefficient d'amplification important. Il subsiste cependant un défaut qui est la limite en puissance crête imposée par les effets non linéaires induits par un signal fortement confiné. De leur côté, les cristaux ont souvent des réponses non linéaires plus importantes que le verre et pourtant, ils supportent bien mieux les impulsions. La réponse est à nouveau dans l'architecture : en général, les tailles des faisceaux sont beaucoup plus grandes sans que l'efficacité n'en soit affectée. Ceci est possible car les sections efficaces (absorption et émission) sont d'un ordre de grandeur plus élevé que dans les fibres optiques pour un ion laser donné. Le couplage entre la pompe et le signal est cependant beaucoup plus problématique dans les cristaux que dans les fibres optiques. Dans le cas d'une architecture simple (pompage longitudinal avec une libre propagation des faisceaux), la solution pour assurer un bon recouvrement est de choisir la longueur du cristal de l'ordre de la longueur de Rayleigh du faisceau de pompe (ce qui est en général beaucoup plus court que la longueur de Rayleigh du signal, vu la mauvaise qualité du faisceau émis par le diode de pompe). Il est donc nécessaire d'avoir des cristaux fortement absorbants, fortement dopés et donc sujets à des effets thermiques très importants. Des configurations assez complexes ont été mises au point pour limiter les effets thermiques : disques minces ou « slabs ». Mais en général, le dopage des cristaux est assez élevé pour optimiser le confinement de la pompe dans un volume donné. Un dopage élevé est souvent problématique car de nombreux effets parasites peuvent apparaître lorsque la densité d'inversion de population est trop importante. En plus de réduire l'efficacité du laser, ces effets contribuent à augmenter l'échauffement local du cristal qui peut, à son tour, réduire les performances spectroscopiques de l'ion dopant.

Ainsi, pour tirer parti du potentiel des cristaux, il faut diminuer le dopage, maîtriser l'augmentation de température induite par la pompe et assurer un bon couplage entre la pompe et le signal. Les fibres cristallines représentent une opportunité pour aller dans cette direction : ce sont des milieux cristallins longs et fins avec un dopage en ions plus faible que les cristaux massifs traditionnels. Le couplage entre la pompe et le signal est amélioré par un confinement de la pompe via des réflexions totales internes sur le cylindre que constitue la fibre. La fibre a un diamètre suffisamment grand (1 mm, typiquement) pour permettre un passage du signal en propagation libre. Un exemple du concept est donné sur la figure 1. Le faisceau de pompe, issu d'une diode fibrée (100µm, ON 0,2), est focalisé dans la fibre cristalline. Dans l'exemple choisi, les rayons de pompe subissent en moyenne une réflexion et un effet de ce confinement est clairement visible à la fin de la fibre. Le dopage en ions  $Nd^{3+}$  est de 0,2% : entre 2 et 5 fois plus faible que les dopages habituellement utilisés. Compte tenu de la longueur de la fibre, il est suffisant pour assurer une absorption de la pompe supérieure à 90% en un seul passage. Les simulations que nous avons effectuées montre un couplage de l'ordre de 70% entre le signal et la pompe. L'augmentation de température induite par le pompage est maîtrisée par deux paramètres : le faible dopage en ion actif du milieu et la proximité du radiateur en cuivre offerte par les modules TARANIS (Fibercryst) intégrant des fibres cristallines [1].





Fig. 1 : Allure de la propagation du faisceau de pompe dans une fibre cristalline de Nd :YAG.

Fig. 2 : Courbe d'efficacité des lasers à fibres cristallines présentés dans la partie 2.

Les fibres cristallines peuvent être élaborées par différentes méthodes : extraction de barreaux de boules « Czochralski » (pour des diamètres supérieurs à 1 mm), croissance directe par « laser heated pedestal growth » ou « micro-pulling down » (pour des diamètres inférieurs à 1 mm) [2]. L'objectif de ce papier est de faire le point sur les avancées réalisées par les lasers à fibres cristallines ces dernières années avec la matrice YAG dopée par des ions néodyme, ytterbium ou erbium.

#### 2. PERFORMANCES EN OSCILLATEURS

Les oscillateurs que nous avons développés sont composés de deux miroirs concaves (rayons de courbure 50 mm ou 100 mm) dont un miroir est utilisé pour la sortie. Le pompage est assuré par des diodes laser fibrées émettant entre 60 W et 200 W selon les configurations. Le pompage est réalisé à 808 nm pour le Nd :YAG [2,3], à 940 nm pour l'Yb :YAG [4] et à 1532 nm pour l'Er :YAG [5]. Le diamètre des fibres cristallines testées varie entre 800 µm et 1,5 mm selon les cas pour une longueur typique de 50 mm. En régime continu, nos résultats récents montrent des pentes d'efficacité entre 40 % et 50 % selon les cas, avec des puissances de sorties toutes supérieures à la dizaine de watts (Fig.2). La plupart des résultats présentés sont des records pour les fibres cristallines de ces dimensions.

Le régime déclenché est assuré par l'insertion d'un modulateur acousto-optique dans la cavité. Un récapitulatif des performances est donné sur le tableau 1. La brièveté des impulsions (une dizaine de nanosecondes) est assurée par une cavité relativement courte (20 cm environ) et également par un gain important dans le milieu laser. Les puissances crêtes atteignent plusieurs

centaines de kW	pour des pr	uissances	moyennes	non nég	gligeables,	de plusieur	s watts,	et des	énergies
toujours supérie	ures au mill	lijoule.							

Matériau	Energie Durée Pu		Puissance crête	<b>Puissance moyenne</b>	
Nd :YAG (1064 nm)	4,4 mJ	12 ns	364 kW	4,4 W (à 1 kHz)	
Yb :YAG (1030 nm)	1,8 mJ	13 ns	138 kW	9 W (à 5 kHz)	
Er : YAG (1645 nm)	2 mJ	38 ns	53 kW	2 W (à 1 kHz)	

Tab. 1 : comparaison des performances des laser à fibre cristalline en régime déclenché d'après [2, 4, 5].

#### 3. PERFORMANCES EN AMPLIFICATEURS D'IMPULSIONS

Les fibres cristallines Nd :YAG et Yb :YAG ont également été testées comme amplificateurs d'impulsion. Comme le gain est important, il est possible de réaliser des amplificateurs efficaces en un ou deux passages seulement du signal dans le milieu. Les injecteurs sont des microlasers déclenchés passivement dans le cas du Nd :YAG (émission à 1064nm) et un laser à fibre femtoseconde (Amplitude Systemes) dans le cas de l'Yb:YAG (émission centrée sur 1030 nm). Les performances sont données dans le tableau 2. La puissance crête maximale démontrée est de 6 MW, supérieure à ce que peuvent supporter les fibres optiques actuelles.

Tab. 2 : comparaison des performances des amplificateurs laser à fibre cristalline. Les chiffres sous le nomdes matériaux sont les paramètres d'entrée du signal, d'après [6, 7].

Matériau	Gain	Durée	Puissance crête	<b>Puissance moyenne</b>
Nd :YAG	36	1 ns	126 kW	12,5 W
100 kHz, 350 mW, 3.5 µJ				
Nd :YAG	4	1 ns	488 kW	20,5 W
42 kHz, 5 W, 120 μJ				
Nd :YAG	34	450 ps	6 MW	2,7 W
1 kHz, 80 mW, 80 μJ				
Yb :YAG	30	700 fs	570 kW	12 W
30 MHz, 400 mW, 220 fs		350fs compress	(1,44 MW)	

#### CONCLUSION

Les résultats présentés dans ce papier prouvent que les fibres cristallines sont capables de donner de forts gains et de fortes puissances moyennes, comme dans les fibres, tout en produisant des impulsions de fortes puissances crêtes, comme dans les cristaux. Le potentiel de montée en puissance est important car le faible dopage et l'efficacité de l'extraction de la chaleur laissent prévoir des puissances de pompe supérieures à 500 W par face sans risque de fracture.

#### Références

[1] http://www.fibercryst.com

[2] J.Didierjean et al. "High-power laser with Nd:YAG single-crystal fiber grown by the micro-pullingdown technique", Optics Letters 31, 3468-3470 (2006)

[3] X.Délen et al. "34 W continuous wave Nd:YAG single crystal fiber laser emitting at 946 nm", accepted in Applied Physics B

[4] D. Sangla et al. "High power laser operation with crystal fibers", Applied Physic B Special Issue on High Power Lasers, 97, 263-273 (2009)

[5] I. Martial et al. "High-power diode-pumped Q-switched Er3+:YAG single-crystal fiber laser", LASE-Photonics West, San Fransisco (USA) 22-27 January 2011, proceeding SPIE publication en cours

[6] I.Martial et al. "Nd:YAG single-crystal fiber as high peak power amplifier of pulses below one nanosecond" soumis à Optics Express

[7] Y.Zaouter et al. "Direct amplification of ultrashort pulses in  $\mu$ -pulling-down Yb:YAG single crystal fibers", Optics Letters, Vol 36, N°5, 748-750 (2011)

<u>Remerciements :</u> nous remercions Teem Photonics pour le prêt de microlasers déclenchés à 1064 nm ainsi que la DGA et l'ANR pour leur soutien financier.

### Nanocristaux organiques fluorescents enrobés d'une coquille silicatée : vers un nouveau type de traceurs très lumineux pour l'imagerie médicale

## Cécile Philippot<sup>1</sup>, Fabien Dubois<sup>1</sup>, Mathieu Maurin<sup>2</sup>, Patrice Baldeck<sup>2</sup>, Boudewijn Van der Sanden<sup>3</sup> et Alain Ibanez<sup>1,\*</sup>

Institut Néel, CNRS, Univ. J. Fourier et Grenoble INP, BP 166, F-38042 Grenoble Cedex 9, France
Laboratoire Spectrométrie Physique, Univ. Joseph Fourier, CNRS (UMR 5588), BP 87, F-38402 Saint Martin d'Hères Cedex, France
Institut de Neurosciences Grenoble, INSERM U836, Chemin Fortuné Ferrini, 38042 Grenoble Cedex 9, France
\* alain.ibanez@grenoble.cnrs.fr

**Résumé abrégé**: Nous avons développé une méthode simple et générique, qui permet en une étape, l'élaboration de nanoparticules fluorescentes constituées d'un cœur organique monocristallin enrobé d'une coquille silicatée. Elle est basée sur la nébulisation pneumatique et le séchage de microgouttelettes sous flux laminaire qui permet de controller la nucléation et la croissance de nanocristaux moléculaires dans des sphères silicatées. On obtient ainsi des nanoparticules très brillantes, colloidalement stables, biocompatibles et facilement fonctionnalisables dans le but de développer de nouveau traceurs fluorescents pour l'imagerie 3D en profondeur de la microvascularisation du cortex cérébral de souris par fluorescence excitée à 2-photons.

Mots-clés : nanocristaux moléculaires, nucléation confinée, fluorescence à 2 photons, traceurs

#### Résumé plus étendu :

L'imagerie de la vascularisation de tumeurs et leur évolution après thérapies est un point clé dans l'évaluation et la validation de nouveaux protocoles de traitement anticancéreux. Toutes les méthodes d'imagerie médicale n'ont pas la résolution spatiale suffisante pour détecter les changements microscopiques apparaissant au niveau des capillaires sanguins. La microscopie de fluorescence à deux photons est actuellement la seule technique qui permette de visualiser ces changements vasculaires à l'échelle microscopique. Cependant, elle exige l'utilisation de traceurs fluorescents très lumineux, stables colloidallement en solution physiologique et de diamètres compris entre 20 et 100 nm afin d'être non diffusibles au travers des parois des vaisseaux sanguins. L'objectif est donc l'élaboration, la caractérisation et la fonctionnalisation de ce type de traceurs fluorescents pour l'imagerie 3D en profondeur (1mm environ) de la micro-vascularisation du cortex cérébral de souris par fluorescence excitée à 2-photons (angiographie cérébrale par balayage laser).

Ainsi, nous avons contrôlé l'élaboration de nanoparticules hybrides constituées par un noyau cristallin organique fluorescent entouré d'une coquille silicatée transparente pour obtenir des traceurs stables et biocompatibles [1]. Ces nanoparticules hybrides novatrices (nanocristal organique–coquille silicatée amorphe), de diamètre compris entre 20 et 100 nm, constituent une nanoplateforme multifonctionnelle, facilement dispersable en milieux biologiques qui devrait présenter de bonnes propriétés de vectorisation (ciblage des tumeurs cancéreuses par greffage de molécules biologiques à leurs surfaces) couplées à de fortes intensités de fluorescence excitée à 2 photons.

L'élaboration de ces traceurs cœur-coquille organo-minéraux requiert un parfait contrôle de la production et du séchage d'aérosols produits à partir de solutions chimiques sol-gel originales. Ceci nous a conduit, au développement d'un réacteur de synthèse adapté (figure 1-a) utilisant la nébulisation pneumatique : fragmentation du liquide sous flux d'azote avec formation de gouttelettes de 1-2 microns de diamètre. Nous avons utilisé lors de ces premiers travaux, plusieurs fluorophore modèles comme le CMONS (Cyano-Méthoxy-NitroStilbène) qui fluorescent fortement dans l'état cristallin. Nous avons préparé des solutions sol-gel contenant un solvant organique (THF par ex.) le fluorophore (CMONS) et des précurseurs sol-gel silicatés : du TMOS (tétraméthoxysilane) associés au MTMOS (méthyltriméthoxysilane) qui permet de réduire les interactions fluorophore-matrice silicatée (liaisons hydrogène) et de favoriser ainsi la nucléation confinée du fluorophore organique au cœur des gouttelettes. Nous avons ajouté ensuite une faible quantité d'eau afin d'activer les réactions d'hydrolyse et de polycondensation des alcoxydes de silicium qui conduiront ensuite à l'élaboration de coquilles silicatées. Ces solutions ont été nébulisées puis séchées sous un flux d'azote laminaire par passage dans un four tubulaire (150°C). L'évaporation très rapide du solvant organique accélère dans chaque gouttelette de l'aérosol la polycondensation du réseau silicaté avec formation, tout d'abord, de croûtes silicatées de surface suivie, en fin d'évaporation du solvant, par la nucléation et croissance confinées du fluorophore (CMONS) au cœur des nanoparticules. On obtient ainsi, en contrôlant les mécanismes de confinement de nucléation et croissance des nanocristaux moléculaires, des particules hybrides coeur-coquille parfaitement sphériques qui

#### JNCO\_1 : Cristallogénèse

sont piégées dans un filtre électrostatique (10kV). Elles présentent une distribution de taille étendue, entre 50 et 500 nm en diamètre (figure 1-b), ce qui est classique pour toute méthode de nébulisation de solution productive. Cependant, en jouant sur les paramètres de nébulisation (pression, débit de gaz vecteur, température...) et chimiques (concentrations relatives et nature des précurseurs, conditions d'hydrolyse/condensation et surtout en diluant fortement les solutions initiales), nous avons diminué sensiblement la taille moyenne et la distribution de taille des particules hybrides : distribution de tailles comprises entre 20-30nm et 300nm avec 65-70% de particule de diamètre < 100nm, ce qui correspond à la condition de taille requise pour ces traceurs pour l'angiographie in vivo. Nous avons ensuite confirmé la présence au cœur des particules de monocristaux organiques par diffraction électronique en transmission à 100K (figure 1-c, haut) et en visualisant, après dissolution des coquilles par des solutions de soude 10<sup>-2</sup>M, des cristallites facettés caractéristiques de morphologies monocristallines (figure 1-c, bas). Cependant, cette première série de particules présentaient un caractère hydrophobe marqué à cause des groupements méthyls non pontants fournis par l'alcoxyde MTMOS, utilisé d'emblée pour faciliter le bon confinement de la nucléation du fluorophore. Par la suite, en substituant l'alcoxyde MTMOS par du TMSE (1,2-bis(triméthoxysilyl)éthane) nous avons pu préserver de bonnes conditions de nucléation confinée tout en obtenant des nanoparticules plus hydrophiles. Ceci a permis ainsi d'obtenir des solutions physiologiques très concentrées en nanoparticules hydrophiles, colloïdalement stables et qui présentent une forte fluorescence (figure 1-d). Nous avons pu ensuite, à partir de ces solutions, sélectionner en taille les particules par centrifugation (diamètre < 100nm) et confirmer leur très bonne biocompatibilité sous culture cellulaire (lignée HeLa) en incubateur ainsi que leur bonne dispersion en milieu sanguin au Grenoble Institut des Neurosciences (GIN). Nous avons également réalisé la spectroscopie à deux photons de ces nanoparticules hybrides et démarré les premiers test de microscopie intravitale à deux photons sur le cortex cérébral de souris au GIN (INSERM U836).



Fig. 1. a) Réacteur de synthèse actuel. b) Image FESEM de particules synthétisées. c) Diffraction électronique en transmission à 100 K du cœur organique monocristallin et (au bas) image FESEM du cœur organique monocristallin facetté après dissolution de la coquille silicatée. d) Solution physiologique de nanoparticules dispersées sous excitation UV (fluorescence jaune).

En conclusion, nous avons démontré la faisabilité et la reproductibilité de notre méthode d'élaboration en une étape de nanocristaux organiques en coquilles sol-gel obtenues par nébulisation, en utilisant différents types de molécules organiques, de solvant et matrices sol-gel [1]. L'utilisation de différentes techniques de caractérisation (microscopie électronique à balayage, spectroscopies de luminescence à un et deux photons) a permis d'optimiser les conditions d'élaboration afin d'obtenir des nanoparticules hybrides de petites tailles (30-100nm), très luminescentes et biocompatibles. La microscopie électronique à balayage et la diffraction électronique nous ont permis de prouver la présence d'un cœur monocristallin au sein des nanoparticules et de définir les structures cristallines présentes. Les propriétés des nanocristaux comme agent imageant de la micro-vascularisation du cortex cérébral chez le petit animal en deux-photons ont ensuite été analysées par spectroscopie de fluorescence à deux-photons ainsi que la non-toxicité des particules vis - a - vis du vivant. Enfin, les premiers tests in-vivo des nanoparticules comme agents imageant, nous ont poussé à les fonctionnaliser afin d'augmenter leur furtivité et d'y ajouter une nouvelle fonction de ciblage.

#### **Reference :**

[1] Nanocristaux fluorescents enrobés d'une coquille inorganique" Brevet CNRS, PCT/2009/000294, A. Ibanez, C. Philippot, E. Djurado, N. Marcellin.

### Crystal growth of cubic rare earth sesquioxides

#### Philippe Veber<sup>\*</sup>, Matias Velázquez, Oudomsack Viraphong, Véronique Jubera, Rodolphe Decourt and Stanislav Péchev

CNRS, Université de Bordeaux, ICMCB-UPR 9048, GIS Advanced Materials in Aquitaine (AMA), 87 av. Dr. Schweitzer, 33608 PESSAC Cedex, France

\* veber@icmcb-bordeaux.cnrs.fr

**Résumé abrégé**: High-temperature solution growth of cubic rare earth sesquioxides is discussed in the present work. A new and original solvent enabled us to grow some of these compounds by reducing half of their actual melting temperature. Centimetre-sized Yb<sup>3+</sup>-doped Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Yb<sup>3+-</sup>doped Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> single crystals were grown and their characterizations by XRD, chemical analysis and optical spectroscopy were performed.

Mots-clés: crystal growth, laser, rare earth sesquioxides

Developing laser-grade rare-earth cubic sesquioxides single crystals of composition  $Ln_2O_3$  (with Ln = Gd, Sc and/or Y) doped with rare-earth ions like Yb<sup>3+</sup>,  $Er^{3+}$  or  $Eu^{3+}$  is one of the challenging area of today's crystal growth community [1]. Since the 1950's, most of the common crystal growth methods have been tried in order to grow centimetre-sized single crystals of  $Ln_2O_3$ . Recent investigations on cubic  $Ln_2O_3$  single crystals have demonstrated the laser potential of these materials and highlighted the extreme thermodynamic conditions under which their growth takes place [2]. In particular, the laser performances of Yb<sup>3+</sup>:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> crystal make it a potential candidate by comparison with well known Yb<sup>3+</sup>:YAG and Yb<sup>3+</sup>: KY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> crystals [3].

The present work deals with the crystal growth of cubic rare-earth sesquioxides. Initially, a review of the efforts focused on the growth of these materials by various techniques will be briefed. Later, the high-temperature solution growth using a new and original solvent [4-5] will be discussed in detail. The growth conditions as well as the growth setup operative in air, which enabled the growth of single crystals ranging from millimetre to centimetre sizes as shown in Fig. 1, will be presented. Yb<sup>3+</sup>-doped Yttria and Lutetia single crystal growths will be explained and structural, chemical and optical characterizations of the single crystals will be discussed.



Figure 1: (a) Centimetre-sized Yb<sup>3+</sup>-doped Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and (b) millimetre sized Yb<sup>3+</sup>-doped Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> as-grown single crystals.

- [1] Yoshikawa, A.; Chani, V. MRS Bulletin 2009, 34, 266-270.
- [2] Peters, R.; Kränkel, C.; Petermann, K.; Huber, G. J. Cryst. Growth 2008, 310, 1934-1938.
- [3] Baer, C. R. E.; Kränkel, C.; Saraceno, C. J.; Heckl, O. H.; Golling, M.; Peters, R.; Petermann, K.; Südmeyer, T.; Huber, G.; Keller, U. Optics Letters **2010**, 35 (13), 2302-2304.
- [4] P.Veber, M. Velazquez, J.P. Chaminade and O. Viraphong; 2009; Patent n° FR 09 57772.
- [5] Philippe Veber, Matias Velázquez, Oudomsack Viraphong, Véronique Jubera, Rodolphe Decourt and Stanislav Péchev, CrystEngComm, 2011, accepted paper.

### Recent Progress in the growth of large Ti-doped sapphire crystals for high power laser application

## <u>K. Lebbou<sup>a</sup></u>, A. Nehari<sup>a</sup>, A. Brenier<sup>a</sup>, J. Godroy<sup>b</sup>, S. Labor<sup>b</sup>, H. Legal<sup>b</sup>, G. Chériaux<sup>c</sup>, J.P. Chambaret<sup>d</sup>, T. Duffar<sup>e</sup>, R. Moncorgé<sup>f</sup>

<sup>a</sup>Laboratoire de Physico-Chimie des Matériaux Luminescents (LPCML) UMR 5620 CNRS-Université de Lyon 1, 69622, Villeurbanne, <sup>b</sup>RSA le rubis SA, BP 16, 38560 Jarrie/Grenoble, France

<sup>c</sup>LOA, ENSTA - Ecole Polytechnique, UMR 7639, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau Cedex, France

<sup>d</sup> ILE (Institut de Lumière Extrême) UMS 3205, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau Cedex, France

<sup>e</sup>SIMAP-EPM, BP75, Saint Martin d'Hères, 38402 Grenoble, France

<sup>f</sup>CIMAP, UMR 6252 CEA-CNRS-ENSICAEN, Université de Caen, 14050 Caen, France

Kheirreddine.lebbou@univ-lyon1;fr

Sapphire doped with Ti<sup>3+</sup> ions, is now recognized as the solid state laser material which allows the direct generation of the shortest laser pulses and as the basic amplifier medium for most of the future high power laser chains at the petawatt level [1,2]. Because of the great development of the chirped pulsed amplification (CPA) technique, the peak power of the laser pulses was no longer limited by the damage threshold of optics or by nonlinear distortion effects [3]. The CPA technique allows a laser pulse to be dispersively stretched in time by a factor of 10<sup>3</sup> to 10<sup>4</sup>. Lasing action in Ti-sapphire is essentially due to Ti<sup>3+</sup> ions but Ti<sup>4+</sup> ions may also cause a broad parasitic absorption in the Ti<sup>3+</sup> emission domain and may lead to a reduced "FOM" (factor of merit). This FOM measures indeed the ratio between the absorption coefficient determined at the maximum of the Ti<sup>3+</sup> absorption band (around 500nm) over the absorption coefficient of the parasitic Ti<sup>4+</sup> absorption band measured at the maximum of the emission band (around 790 nm). This FOM is one of the most important quality factor and it is often dependent both on the dopant concentration and of the crystal growth technique. Therefore, efforts are continuously devoted to the elaboration of laser crystals with minimum  $Ti^{4+}$  and optimal  $Ti^{3+}$  ion concentrations (depending on the laser systems to be developed). Today, the main Ti-doped sapphire growth techniques are the Czochralski, GOI (Musatov method), HEM (heat exchanger method), HDC (horizontal directional crystallization or Bagdasarov method) and Kyropoulos (KT) techniques. Although large undoped sapphire crystals have been grown by Khattak et al [4], by using the HEM technique, and by Barish et al [5], by the temperature gradient technique (TGT), there is still a challenge for the growth of the largest  $Ti^{3+}$  doped  $Al_2O_3$ crystals with homogeneous titanium and good optical quality. In the frame of this national collaboration between LPCML, CIMAP, LOA, ILE, SIMAP and RSA le rubis company we are working to improve crystals growth conditions through the control of starting raw materials (Figure 1), growing parameters and optical characterization. Large size and high optical quality (diameter 100 mm, weight 5 kg) of Ti<sup>3+</sup>-doped sapphire have been successfully grown by the Kyropoulos (figure 2). They are transparent, exempt of cracks, inclusions and other scattering centers [6]. The crystals in this work, amplify the energy without any damaging. Without post growth annealing, the absorption and luminescence not showed presence of unwanted impurities. The obtained results indicate homogeneous  $Ti^{3+}$  ion concentrations in large sections (80%).



Figure 1. Sapphire crystals grown from the melt to test the quality of alumina starting powders



Figure 2. Ti-doped sapphire bulk crystals

#### JNCO\_1 : Cristallogénèse

#### References

[1] P.F.Moulton, Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>—a new solid state laser, Opt.News 8 (1982).

[2] J.Seres, A. Moeller, E.Seres, K.O'Keeffe, M.Lenner, Sub-10-fs,terawatt-scale

Ti:sapphire laser system, Opt.Lett.28(2003)19.

- [3] D.Strickland, G.Mourou, Compression of amplified chirped optical pulses, Opt. Commun.56(1985)219.
- [4] Khattak, C.-P, Schmid, F. J. Cryst. Growth 2001, 225, 579
- [5] Barish, B-.C, IEEE Trans. Nucl Sc 2002, 49, 1233-1236
- [6] Ti-doped sapphire (Al2O3) single crystals grown by Kyropoulos technique and optical characterizations A.Nehari, A.Brenier, G.Panzer, K.Lebbou J. Godfroy, S.Labor, H.Legal, G.Chériaux, J.P.Chambaret, T. Duffar,

R.. Moncorgé, Crystal growth & design (Accepted november 2010)

# Croissance *in situ* de cristaux de KTiOPO<sub>4</sub> à domaines périodiquement alternés

#### Alexandra Peña<sup>1,\*</sup>, Bertrand Ménaert<sup>1</sup>, Benoît Boulanger<sup>1</sup>, Fredrick Laurell<sup>2</sup>, Carlota Canalias<sup>2</sup>, Valdas Pasiskevicius<sup>2</sup>, Patricia Segonds<sup>1</sup>, Corinne Félix<sup>1</sup>, Jérôme Debray<sup>1</sup> et Sébastien Pairis<sup>1</sup>

 <sup>1</sup> Institut Néel CNRS/UJF, 25 rue des Martyrs, BP 166, F38042 Grenoble Cedex 9, France
<sup>2</sup> Royal Institut of Technology, AlbaNova University Center, Roslagstullsbacken 21, 10691 Stockholm, Sweden

\* alexandra.pena@grenoble.cnrs.fr

#### Résumé

Nous avons conçu une technique de croissance homo-épitaxique à partir d'un germe de KTiOPO<sub>4</sub> dont les domaines ferroélectriques sont périodiquement alternés (PPKTP). Cette technique permet la croissance de cristaux de PPKTP de taille plus grande que par les techniques standard utilisant l'application d'un champ électrique sur cristal mono-domaine.

**MOTS-CLEFS :** *Croissance en solution à haute température, Micro structuration, Optique non linéaire* 

L'optique non linéaire utilise de plus en plus de matériaux micro-structurés qui permettent de maximiser l'efficacité des interactions en Quasi Accord de Phase [1-5]. Les techniques standard d'obtention de cristaux de KTiOPO<sub>4</sub> périodiquement alternées (PPKTP) permettent la fabrication de cristaux dont l'épaisseur maximale n'excède pas 1 mm selon la direction de la polarisation spontanée, mais avec par contre une très bonne régularité dans la taille du pas de réseau [6]. Cette régularité permet d'envisager certes interactions par Quasi Accord de Phase, mais uniquement dans des dispositifs optiques de faible énergie car l'ouverture des échantillons est limitée. Pour surmonter cette limitation, une technique de croissance cristalline, reposant sur l'utilisation d'un germe parfaitement structuré à partir de la technique standard, a permis d'obtenir des cristaux de grande taille de PPKTP [7].

Ce procédé de croissance en solution à haute température a permis d'obtenir des cristaux PPKTP avec une épaisseur de 3mm selon [001] (fig. 1a).



**(b)** 



Fig. 1 : Cristal de PPKTP élaboré à partir d'un germe de PPKTP dans une solution à haute température de composition 0,1 KTP – 0,6 KPO<sub>3</sub> – 0,3 KF. (a) Photo du cristal et orientation utilisée pour la croissance. (b) Image MEB.

#### JNCO\_1 : Cristallogénèse

La définition des conditions de croissance est fortement influencée par la température de transition de phase ferroélectrique de KTP, et aussi par la géométrie des germes. En effet, il faut que la température d'élaboration soit inférieure à la température de Curie ( $T_c$ ) [8], et il est également nécessaire que la croissance soit réalisée sur des lames perpendiculaires à la direction [001] qui est la direction de la polarisation spontanée. Or, les faces {001} ne sont pas stables dans les conditions standards d'élaboration [9]. Nous avons déterminé un système chimique qui permet de faire la croissance en dessous de  $T_c$  et de stabiliser les faces {001}, permettant ainsi d'obtenir une propagation des domaines du germe vers la couche (fig. 1b). Nous avons obtenu une croissance d'une épaisseur de 1 mm sur chacune des faces [001] d'un germe dont la période d'inversion est de 38,86 µm. Des mesures de génération de second harmonique en Quasi Accord de Phase ont montré l'identité parfaite entre le réseau du germe et celui de la couche poussée [7].

#### Références

[1] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, R. L. Byer, "Quasi-phase matched second harmonic generation: tuning and tolerances," IEEE J. Quantum Elec., vol. 28, pp. 2631-2654, 1992.

[2] V. Berger, "Nonlinear photonic crystals," Phys. Rev. Lett., vol. 81, pp. 4136-4139, 1998.

[3] C. Canalias, V. Pasiskevicius, "Mirrorless optical parametric oscillator," Nat Photonics, vol. 1, pp. 459-462, 2007.

[4] T. Ellenbogen, N. Voloch-Bloch, A. Gananny-Padowicz, A. Arie, "Nonlinear generation and manipulation of Airy beams," Nat Photonics, vol. 3, pp. 395-398, 2009.

[5] A. Bahabad, N. Voloch, A. Arie, R. Lifshitz, "Experimental confirmation of the general solution to the multiple-phase-matching problem," J. Opt. Soc. Am. B-Opt. Phys., vol. 24, pp. 1916-1921, 2007.

[6] C. Canalias, V. Pasiskevicius, R. Clemens, F. Laurell, "Sub-micron periodically poled flux grown KTP," Appl. Phys. Lett., vol. **82**, pp. 4233-4235, 2003.

[7] A. Peña, B. Ménaert, B. Boulanger, F. Laurell, C. Canalias, V. Pasiskevicius, P. Segonds, C. Félix, J. Debray, S. Pairis, "Template-growth of periodically domain-structure KTiOPO<sub>4</sub>," Opt. Mat. Express, 2011.

[8] M. Roth, N. Angert, M. Tseitlin, A. Alexandrovski, "On the optical quality of KTP crystals for nonlinear optical and electro-optic applications," Opt. Mater., vol. 16, pp. 131-136, 2001.

[9] P. F. Bordui, J. C. Jacco, G. M. Loiacono, R. A. Stolzenberger, J. J. Zola, "Growth of large single crystals of KTiOPO<sub>4</sub> (KTP) from high-temperature solution using heat pipe based furnace system," J. Cryst. Growth, vol. **84**, pp. 403-408, 1987.

#### CROISSANCE ET DEFAUTS DE CRISTAUX POUR APPLICATIONS LASER ET OPTIQUE NON LINEAIRE

# S. Ilas<sup>1,\*</sup>, A. Jaffres<sup>1</sup>, P.-O. Petit, P. Loiseau<sup>1,\*</sup>, G. Aka<sup>1</sup>, B. Viana<sup>1</sup>, J. Lejay<sup>1</sup>, A. Suganuma<sup>1</sup>, D. Rytz<sup>2</sup>, A. Maillard<sup>3</sup>

<sup>1</sup> LCMCP-ENSCP UMR 7574, 11 rue Pierre et Marie Curie, 75231 Paris Cedex 05 <sup>2</sup> FEE GmbH, Struthstr. 2, 55743 Idar-Oberstein, Allemagne <sup>3</sup> LMOPS EA 4423, 2 rue E. Belin, 57070 Metz

\* pascal-loiseau@chimie-paristech.fr

#### Résumé

Le besoin de sources laser solides produisant des puissances toujours plus élevées, notamment dans le domaine proche infra-rouge, ou permettant d'obtenir des longueurs d'onde dans le domaine ultraviolet par l'utilisation de cristaux optiques non linéaires, nécessite en premier lieu de disposer de cristaux optiques d'excellente qualité. Cette présentation dresse ainsi un état de l'art de la cristallogenèse de matériaux qui sont actuellement développés soit par la réalisation de sources laser femtosecondes et de fortes puissance émettant vers 1  $\mu$ m, soit pour la génération de fréquence dans le domaine ultraviolet.

**MOTS-CLEFS :** *cristallogenèse, laser, optique non linéaire, Yb*<sup>3+</sup>, *ultraviolet* 

#### 1. LASERS DOPES YTTERBIUM

Les dispositifs laser femtoseconde pompés par diode et de forte énergie suscitent un intérêt tout particulier pour des applications telles que l'ablation, le micro-usinage ou la chirurgie oculaire. A cette fin, le développement de cristaux dopés  $Yb^{3+}$  apparaît comme la voie privilégiée compte tenu du faible défaut quantique de cet ion favorable pour des applications haute puissance et à ses larges bandes d'émission propices à la génération d'impulsions ultra-brèves. A partir de l'analyse de critères de mérite, deux matériaux aluminates ont été identifiés comme potentiellement intéressants,  $YAIO_3$ : Yb et CaGdAIO<sub>4</sub>:Yb. En particulier, CaGdAIO<sub>4</sub>:Yb allie une bonne conductivité thermique à des propriétés spectroscopiques extrêmement favorables.

 $YAIO_3$ : Yb et CaGdAIO<sub>4</sub>:Yb se posent comme de bons candidats pour la réalisation de lasers de forte puissance ou la génération d'impulsions ultra-brèves. Pour  $YAIO_3$ : Yb, les transitions optiques sont spectralement assez étroites avec des sections efficaces d'émission et d'absorption élevées (respectivement  $2.10^{-20}$  cm<sup>2</sup> et  $10^{-20}$  cm<sup>2</sup>), pour un temps de vie d'environ 540 µs. Pour CaGdAIO<sub>4</sub>:Yb, les transitions sont extrêmement larges, ce qui autorise une grande accordabilité laser entre 1010 nm et 1080 nm, alors que la durée de vie de l'ion Yb<sup>3+</sup> est d'environ 440 µs.

Tous deux peuvent être élaborés sous forme monocristalline par la technique de tirage Czochraslki. Cependant tous deux présentent une forte coloration ambre à la sortie du four de croissance. Cette coloration est responsable d'une absorption résiduelle qui s'étend jusque dans le proche infra-rouge, ce qui génère d'importantes pertes, délétères pour l'établissement d'une oscillation laser. De plus, les cristaux de CaGdAlO<sub>4</sub> :Yb présentent des centres diffusants qui génèrent également des pertes. Les centres colorés présents dans les cristaux de YAlO<sub>3</sub> : Yb et CaGdAlO<sub>4</sub> :Yb ont été attribués à la formation de polarons. Différentes voies de post-traitement thermiques ont été envisagées, et il s'est avéré que les centres colorés pouvaient dans tous les cas être éliminés par recuit à haute température sous atmosphère réductrice. De plus, un léger écart à la stoechiométrie correspondant à l'introduction d'un excès en terre rare dans la charge permet de diminuer la quantité de centres colorés formés.

#### JNCO\_1 : Cristallogénèse

Ainsi, un excès de 2% en yttrium suivi d'un recuit sous atmosphère réductrice a permis d'améliorer la qualité cristalline de  $YAIO_3$ : Yb et d'observer un effet laser plus efficace que ceux mentionnés dans la littérature : 9 W pour environ 21 W de pompage par diode à 978 nm.

La nature des centres diffusants présents dans les cristaux de CaGdAlO<sub>4</sub> :Yb n'a pas pu être clairement identifiée, mais il pourrait s'agir de phases parasites riches en calcium. De plus, il est assez probable que ces phases parasites témoignent d'une légère non congruence du matériau. Ainsi, un excès de terres rares, entre 1% et 2%, permet de fortement diminuer la formation de ces centres diffusants et donc d'améliorer les performances laser. Des performances laser en régime continu similaires à celles de YAlO<sub>3</sub> : Yb ont ainsi pu être obtenues. Des études sont actuellement en cours pour évaluer CaGdAlO<sub>4</sub> :Yb sous la forme de disque mince ou de fibres cristallines pour les applications de haute puissance.

#### 2. LASERS SOLIDES UV

L'intérêt pour des systèmes laser compacts émettant dans l'ultraviolet ne cesse de s'accroître du fait de leurs nombreuses applications dans les domaines de la chirurgie médicale, de la microélectronique, de la photolithographie, du marquage de plastiques, de la chimie, des sciences des matériaux, ... De fait, ils devraient permettre à terme de supplanter les lasers excimères actuellement utilisés qui contiennent des gaz corrosifs, sont encombrants et nécessitent une maintenance régulière et coûteuse.

Actuellement, la voie la plus explorée pour la réalisation de tels dispositifs laser solides consiste à disposer en cascade plusieurs cristaux non linéaires générant des sommes de fréquence à partir d'une émission laser fondamentale située dans le proche infra-rouge. De cette façon, la longueur d'onde fondamentale d'émission laser d'un cristal YAG : Nd à 1064 nm est d'abord doublée en fréquence ( $2\omega = 532$  nm), puis convertie en longueurs d'onde ultraviolettes par génération de 3<sup>ème</sup>, 4<sup>ème</sup>, ... harmonique ( $3\omega$ ,  $4\omega$ , à = 355 nm, 266 nm respectivement). Ainsi, les recherches actuelles s'orientent vers des cristaux à base de borates capables d'assurer les derniers étages de conversion de fréquence dans le domaine UV en offrant des alternatives au choix très restreint de cristaux existants (essentiellement LBO pour  $3\omega$  et  $\beta$ -BBO pour  $4\omega$ ).

Dans ce cadre, deux types de cristaux ont pu être identifiés : des fluoborates d'alcalinoterreux, en particulier Ca<sub>5</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>F (CBF), et des cristaux de structure huntite, en particulier YAl<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> (YAB). Ces matériaux présentent une fusion non congruente, si bien que leur élaboration ne peut être réalisée que par croissance à partir d'une solution constituée du matériau dissout dans un solvant approprié appelé flux. Une étude systématique a permis de montrer que les cristaux de CBF pouvaient être obtenus en utilisant LiF comme flux. CBF présentent des caractéristiques très intéressantes comme un seuil de coupure dans l'UV de 190 nm, de bonnes propriétés d'usage (non hygroscopique et résistance thermomécanique), et la capacité de générer des fréquences dans le domaine UV, comme à  $3\omega$  ( $\lambda_{3\omega} \approx 355$  nm) par somme de fréquence  $\omega + 2\omega$ . Il s'agit donc potentiellement d'un cristal très compétitif vis-à-vis du LBO (LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub>), aujourd'hui largement utilisé pour la somme de fréquence à  $3\omega$ . Des études sont en cours pour améliorer plus avant la qualité des cristaux de CBF et limiter la formation d'inclusions à base de LiF.

Le YAB est quant à lui un cristal dont les propriétés non linéaires ont été mises en évidence dès 1981 pour la génération de vert par doublage de fréquence. Cependant, l'ensemble des propriétés non linéaires de ce matériau n'a toujours pas été totalement exploité. Ainsi, il a été récemment démontré que ce cristal avait la capacité de générer la quatrième harmonique à 266 nm par simple doublage de fréquence du vert. Néanmoins, il subsiste pour ce matériau un problème de transparence dans l'ultraviolet, en dessous de 300 nm, qui compromet son développement. Pour cette raison, de nouvelles conditions de synthèse doivent être proposées (choix du flux, des matières premières, ...). Des premiers résultats de croissance de YAB en flux de LaB<sub>3</sub>O<sub>6</sub> ont ouvert des perspectives prometteuses en permettant de préserver une transparence du YAB d'environ 50 % entre 200 et 300nm.

### Croissance rapide de cristaux convertisseurs de fréquence de KDP deutérés pour le laser mégajoule

Julien Leroudier<sup>1</sup>, Julien Zaccaro<sup>1,\*</sup> et Alain Ibanez<sup>1</sup>

1. Institut Néel, CNRS, Univ. J. Fourier et Grenoble INP, BP 166, F-38042 Grenoble Cedex 9, France

\*julien.zaccaro@grenoble.cnrs.fr

**Résumé abrégé** : Par une méthode développée à l'Institut Néel, des cristaux mixtes de la solution solide  $K(H_xD_{1-x})_2PO_4$  sont obtenus par croissance rapide. Nos avons montré que même en régime de croissance rapide (plusieurs mm/jour) des cristaux parfaitement homogènes en composition isotopique et de bonne qualité pouvaient être obtenus. **Mots-clés** : croissance en solution, KDP, DKDP.

#### Résumé plus étendu :

Le Laser Mégajoules (LMJ) en construction à Bordeaux sera dédié à la génération et l'étude de plasmas de hautes énergies. Chacune des 200 lignes laser du LMJ comporte deux sous-systèmes, la cellule de Pockels et le système de conversion de fréquence IR-visible-UV, composés de plaques monocristallines d'environ 400 mm de côté, issues de cristaux de KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> (KDP) de très grandes dimensions (300 kg). Ces cristaux sont actuellement obtenus par abaissement de température d'une solution de croissance dans laquelle est plongé un germe. Pour réduire le temps de cristallogenèse en multipliant les vitesses de croissance par un facteur 10, une méthode de croissance rapide a été mise au point à la fin des années 1980. Elle est basée sur un traitement en continu de la solution de permettant d'assurer un niveau de sursaturation élevé ( $\sigma = (C-C_0)/C_0 = 10\%$  où C et C<sub>0</sub> représentent respectivement la concentration de la solution et la concentration à l'équilibre) tout en évitant les nucléations homogènes et hétérogènes et ainsi la croissance de cristaux parasites. Cependant, au niveau des convertisseurs de fréquence visible-UV des lignes lasers, des cristaux de KDP partiellement deutérés (DKDP de formule  $K(D_{(1-x)}H_x)_2PO_4$ ) seront nécessaires pour réduire significativement un effet de diffusion Raman entraînant une absorption résiduelle suffisante pour détériorer ce type d'optique. Dans ce cas, la méthode de croissance par abaissement de température n'est pas applicable à la croissance de cristaux de DKDP. En effet, toute modification continue des conditions thermodynamiques (température et sursaturation) entraîne inévitablement des changements dans les mécanismes de diffusion des espèces et d'adsorption sur les faces du cristal. Les conséquences sont d'ordre chimique, morphologique et mécanique conduisant à une détérioration importante de la qualité des cristaux.

L'équipe Matériaux Optique Non Linéaire et Plasmonique (MatONLP) de l'Institut Néel a mis au point une méthode originale de croissance rapide à température et sursaturation constantes [1]. Ces croissances, réalisées selon des conditions thermodynamiques stationnaires, sont basées sur la circulation et le traitement en continu de la solution. La solution est tout d'abord enrichie en sel deutéré dans une zone de dissolution. Elle est ensuite transportée vers une zone de traitement et de filtration qui permet d'éviter ensuite toute nucléation parasite dans la zone de croissance. La zone de cristallogenèse est stabilisée à une température plus basse par rapport à celle de la zone de saturation afin d'appliquer une forte sursaturation relative. Ceci permet d'atteindre des vitesses de croissance des cristaux élevées. Cette méthode de croissance rapide en conditions stationnaires a été appliquée avec succès pour des monocristaux hydrides organo-minéraux, le KDP et le DKDP. Les conditions de cristallogenèse du DKDP sont en cours d'étude dans le cadre d'un contrat avec le CEA et des cristaux parfaitement homogènes en composition isotopique sont obtenus à des vitesses de plusieurs mm/jour.



Fig. 1 : Cristaux de KDP et DKDP obtenus par croissance rapide en conditions stationnaires.

#### NIOBATE DE LITHIUM PERIODIQUEMENT POLARISE A COURTE PERIODE ET PERSPECTIVES D'APPLICATION

#### Pascal Baldi<sup>1</sup>, Marc De Micheli<sup>1</sup>, Emmanuel Quillier<sup>1</sup>, Laurent Guilbert<sup>2</sup>, Jean-Paul Salvestrini<sup>2</sup> et Sorin Tascu<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Laboratoire de Physique de la Matière Condensée, UMR 6622, Université de Nice-Sophia Antipolis, Parc Valrose, 06108 Nice Cedex 2, France

<sup>2</sup> Laboratoire Matériaux Optiques, Photonique et Systèmes, Université Paul Verlaine et Supélec, 2 rue E. Belin 57070 Metz, France

<sup>3</sup> RAMTECH, University of Iasi, Faculty of Physics, Department of Physics, Bulevardul Carol I, Nr. 11, 700506 Iasi, Romania

Pascal.Baldi@unice.fr

#### Résumé

Le niobate de lithium périodiquement polarisé (PPLN) sur des périodes courantes de 6 à 22  $\mu$ m trouve actuellement de nombreuses applications en optique non linéaire (ONL). La micro-structuration à plus courte période, c'est-à-dire de 2,5  $\mu$ m à 300 nm, permettrait de nouvelles fonctionnalités, non seulement en ONL mais aussi en électrooptique. Les problèmes technologiques posés par ce défi sont présentés, ainsi que quelques exemples d'applications.

**MOTS-CLEFS :** *Niobate de lithium polarisé périodiquement (PPLN) ; Optique intégrée ; Optique non linéaire ; Effet électrooptique.* 

#### **1. INTRODUCTION**

Les matériaux optiques non linéaires polarisés périodiquement permettent aujourd'hui d'obtenir des interactions paramétriques du deuxième ordre ( $\chi^{(2)}$ ) co-propagatives efficaces à toute longueur d'onde grâce à la technique du quasi-accord de phase (QAP) [1]. Les applications sont nombreuses : amplificateurs (OPA) et oscillateurs (OPO) paramétriques optiques [2, 3], convertisseurs de signal par différence de fréquences (DFG) [4], sources de photons corrélés (SPDC) pour les communications quantiques [5]... Bien que la proposition théorique du QAP remonte aux débuts de l'optique non linéaire [1], les problèmes technologiques ont longtemps limité cette approche. Ce n'est qu'à la fin des années 1980 que l'inversion de domaines dans les matériaux ferroélectriques a permis l'utilisation pratique du QAP [6]. Depuis, celle-ci n'a cessé de s'accroître, rendant possible une véritable ingénierie de la réponse optique non linéaire.

Les interactions contra-propagatives (le signal (s) ou l'idler (i) se propageant en sens opposé de la pompe) ont été envisagées très tôt, avec pour motivation initiale l'espoir de réaliser un OPO sans miroir [7]. Mais la différence des vecteurs d'onde étant beaucoup plus grande que dans le cas co-propagatif, l'accord de phase par biréfringence n'est possible que pour  $\lambda_i >> \lambda_s$  (donc loin de la dégénérescence). Ainsi la seule réalisation expérimentale reportée à ce jour utilisait du Sodium Nitrite et présentait une efficacité de conversion très faible tant en DFG [8] qu'en SPDC [9].

Or le QAP permet théoriquement de compenser la forte différence des vecteurs d'onde, à condition d'utiliser des structures à très courte période. De nombreux articles théoriques sont apparus durant les années 1990 et 2000, mettant en évidence l'intérêt du contra-propagatif pour les OPA [10], le traitement tout-optique des signaux télécoms [11], la génération d'impulsions optiques par pompage continu [12], la génération de solitons convectifs [13], le ralentissement de la lumière [14]... L'utilisation de la SPDC en configuration contra-propagative est aussi d'un grand intérêt car le QAP très sélectif donnerait en théorie aux deux ondes une largeur spectrale très petite (< 10 pm d'après les simulations, soit mille fois moins qu'en co-propagatif).

Récemment a été reportée la réalisation d'un ÔPÔ utilisant le QAP contra-propagatif sur KTP [15], mais loin de la dégénérescence car la période d'inversion (800 nm) obtenue sur KTP est encore trop grande. Cette première mondiale a néanmoins suscité un regain d'intérêt sur le sujet.

#### 2. VERS LES PPLN A COURTE PERIODE

La technique la plus utilisée pour la fabrication de PPLN est l'application d'une impulsion électrique par un réseau d'électrodes (technique dite « e-field ») [16]. Les périodes couramment

obtenues, en particulier au LPMC de Nice et au RAMTECH de Iasi, sont de l'ordre de 6 µm sur des galettes de 3 pouces de diamètre et 500 µm d'épaisseur. Des périodes de 3 µm ont aussi été obtenues sur des échantillons plus courts et plus fins [17]. Ces périodes permettent le QAP copropagatif sur une très large gamme spectrale (400 - 4000nm). En contra-propagatif, les périodes requises sont de 200 à 400 nm, soit 15 fois moins. Pour atteindre de telles périodes, plusieurs techniques d'inversion de domaines ont été proposées : écriture directe par e-beam [18], application localisée à l'aide de pointes AFM [19], calligraphie [20] ou encore interférence d'ondes sur une résine photosensible suivie d'un poling en champ externe [21]. Pour l'instant aucune de ces techniques ne se révèle assez efficace dans la mesure où des domaines de qualité suffisante sont obtenus sur des zones de 1  $\mu$ m<sup>2</sup> au maximum. Les domaines submicroniques reportés à ce jour ne répondent pas encore aux critères d'uniformité [22], de dimension [23] ou de profondeur [24].

#### 3. DES DEBOUCHES POTENTIELS AUSSI EN ELECTRO-OPTIQUE

L'application d'un champ électrique sur une structure ferroélectrique périodiquement polarisée crée un réseau d'indice utilisable pour diverses fonctions. La configuration la plus étudiée à ce jour est celle où le champ E est parallèle à l'axe y, ce qui permet de réaliser sur des PPLN de période standard (22 µm) des filtres Solc très sélectifs aux longueurs d'onde télécoms [25], des Qswitch [26] ou des convertisseurs TE/TM intégrés [27] à basse tension de commande (22 V). La configuration E//z, qui crée dans le PPLN un simple réseau de Bragg sans rotation des lignes neutres, n'a à notre connaissance pas fait l'objet d'études approfondies. La période requise pour réaliser un réflecteur de Bragg d'ordre 1 à 1550 nm sur un PPLN en configuration  $E//\hat{z}$  est actuellement inaccessible (~ 360 nm), mais des applications très attractives sont envisageables sur des périodes de 2,5 µm (ordre 7). La sélectivité spectrale requise (~ 1 nm) en multiplexage dense nécessitant des réseaux de Bragg d'environ 1500 périodes, on pourrait traiter jusqu'à 16 canaux DWDM dans un seul guide, sous des tensions de commande typiques de 10 à 100 V.

#### 4. PROJET SOUTENU PAR LE RESEAU CMDO

Le LPMC (Nice) et le LMOPS (Metz) collaborent actuellement à la réalisation de démonstrateurs EO sur des PPLN de période standard (6,1 à 7,5 µm), dans le cadre d'un projet soutenu par le CMDO. Nous proposons aussi différentes approches devant permettre de réaliser des PPLN à courte période (~  $2 \mu m$ ), d'abord sans guide puis avec guides.

#### Références

<sup>7</sup> S.E. Harris « Proposed backward wave oscillation in the... », Appl. Phys. Lett. 9, p. 114 (1966).

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> J.A. Armstrong et al. « Interactions between light waves...», Phys. Rev. 127, p. 1918 (1962).

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> J.A. Giordmaine et al. « Tunable coherent parametric... », Phys. Rev. Lett. 14, p. 973 (1965).

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup> Voir « *Optical parametric oscillation...*», special issue J. of Opt. Soc. of America B 10 (1993). <sup>4</sup> P. Baldi *et al.* « *Nonlinear phase shift at 1.55 µm...* », Electronics Letters 35, p. 217 (1999).

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup> S. Tanzilli et al. « Highly efficient photon-pair source... », Electronics Letters 37, p. 26 (2001).

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup> E. Lim et al. « Second harmonic generation ... », Electronics Letters 25, p. 174 (1989).

<sup>&</sup>lt;sup>8</sup> D.S. Chemla et al. « Optical backward mixing in sodium nitrite », Opt. Com. 11, p. 57 (1974).

<sup>&</sup>lt;sup>9</sup> D.S. Chemla et al. « Optical backward parametric... », Appl. Phys. Lett. 28, p. 135 (1976). <sup>10</sup> Y.J. Ding et al. « Backward optical parametric... », IEEE J. of Quan. Elec. 32, p. 1574 (1996).

<sup>&</sup>lt;sup>11</sup> K. Gallo et al. « Cascading phase shift and multivalued response in... », Opt. Lett. 25, p. 966 (2000). <sup>12</sup> G. D'Alessandro et al. « Nonlinear dynamics... », Phys. Rev. A, 55, p. 4 (1997).

<sup>&</sup>lt;sup>13</sup> C. Durniak et al. « Temporal walk-off... », J. Opt. B: Qu. Semiclass. Opt. 6, p. 241 (2004).

<sup>&</sup>lt;sup>14</sup> J.B. Khurgin « Slowing and stopping photons using backward... », Phys. Rev. A 72, 023810 (2005). <sup>15</sup> C. Canalias et al. « Mirrorless optical parametric...», Nature Photonics 1, p. 459 (2007).

 <sup>&</sup>lt;sup>16</sup> J. Webjörn *et al.* « *Blue light generated*... », IEEE Pho. Tech. Lett. 1, p. 316 (1989).
<sup>17</sup> R.G. Batchko *et al.* « *Backswith poling in lithium niobate*... », Appl. Phys. Lett. 75, p. 1673 (1999).

<sup>&</sup>lt;sup>18</sup> C. Restoin et al. « Electron-beam poling on Ti:LiNbO<sub>3</sub> », Appl. Opt. 40, p. 33 (2001).

<sup>&</sup>lt;sup>19</sup> S. Moscovich et al. « Noncollinear second-harmonic generation in... », Opt. Exp. 12, 10 (2004).

<sup>&</sup>lt;sup>20</sup> M. Mohageg et al. « Calligraphic poling of Lithium Niobate », Opt. Exp. 13, 9 (2005).

 <sup>&</sup>lt;sup>21</sup> A.C. Busacca *et al.* « *Surface domain engineering in...* », Appl. Phys. Lett. 81, p. 4946 (2002).
<sup>22</sup> A.C. Busacca *et al.* « *Nano-domains definition in congruent...* », Proc. 12th ECIO, Greenoble (2005).

<sup>&</sup>lt;sup>23</sup> V.Ya. Shur et al. « Nanoscale Domain Effects in Ferro... », Ferroelectrics 354, p. 145 (2007).

<sup>&</sup>lt;sup>24</sup> K. Terabe et al. « *Domain and surface structuring on LiNbO*<sub>3</sub>... », Ferroelectrics 340, p. 121 (2006).

<sup>&</sup>lt;sup>25</sup> Y.Q. Lu et al. « Electro-optic effect... », Appl. Phys. Lett. 77 (23), 3719 (2000)

<sup>&</sup>lt;sup>26</sup> Y.H. Chen et al. « Actively Q-switched Nd: ŶVO4 laser... », Opt. Lett. 28, 1460-1462 (2003)

<sup>&</sup>lt;sup>27</sup> C.Y. Huang et al. « Electro-optic... », Optics Express 15 (5), 2548-2554 (2007)

#### L'ENDOMMAGEMENT LASER DES CRISTAUX CONVERTISSEURS DE FREQUENCE : METROLOGIE ET COMPREHENSION DU PHENOMENE

#### Laurent Lamaignère

#### CEA Cesta, BP2, 33114 Le Barp, France

#### laurent.lamaignere@cea.fr

#### Résumé

Cet article traite de la problématique de l'endommagement laser des cristaux convertisseurs de fréquence à travers la présentation d'une métrologie adaptée qui permet d'une part de prédire le comportement des cristaux sur les installations mais également d'obtenir des informations quant aux mécanismes gouvernant l'endommagement des cristaux en régime nanoseconde.

#### **MOTS-CLEFS :** *endommagement; cristaux ; métrologie ;*

#### **1. INTRODUCTION**

La détermination de la tenue au flux des cristaux convertisseurs de fréquence est une métrologie très complexe. En premier lieu, les mesures sont destructives : il n'est pas possible de tester deux fois le même composant ni sur la même installation pour s'assurer de la répétabilité de la procédure, ni sur une autre installation aux caractéristiques bien souvent différentes. Au-delà de cette spécificité, la mesure peut également être biaisée par les propriétés même des cristaux, citons la biréfringence, la conversion de fréquence... Malgré ces écueils, des procédures de tests rigoureuses et bien adaptées permettent de rendre compte des comportements des cristaux sur des installations laser mais également de déterminer les mécanismes d'endommagement laser. Ces points conduisent à une meilleure maîtrise des installations laser ainsi que des voies d'amélioration de la tenue au flux laser (TFL) des cristaux. Dans la deuxième partie sont présentés les aspects métrologie. Le troisième paragraphe passe en revue certaines des difficultés liées à ces mesures. La quatrième partie est illustrée d'exemples illustrant l'apport de la métrologie à la compréhension des mécanismes d'endommagement.

#### 2. MÉTROLOGIE DE L'ENDOMMAGEMENT LASER DES CRISTAUX

Les tests de tenue au flux peuvent être réalisés en mode 1/1 suivant la norme 11254-1 [1]. Cette procédure permet de déterminer un seuil d'endommagement pour lequel en-dessous d'une fluence seuil, aucun endommagement n'est observé et le cristal peut alors être utilisé sans se dégrader. Pour des composants de bonne qualité et/ou de grandes dimensions, il peut être nécessaire de balayer entièrement le cristal à l'aide d'une procédure de type rasterscan [2]. Lors de ce balayage, beaucoup de sites sont illuminés, ce qui permet de mesurer de très faibles probabilités d'endommagement. Notons que ces deux procédures sont complémentaires, elles sont bien souvent obtenues dans des gammes de fluence différentes. Les résultats des tests dépendent fortement de la densité de défauts présents dans les cristaux, par conséquent la taille du faisceau de test peut alors influer le résultat issu de la mesure. Pour s'affranchir de ce paramètre, les résultats sont alors exprimés en terme de densité de dommages qui permet non-seulement de ne plus être dépendante de ce paramètre (la taille du faisceau de test), mais également de pouvoir alors prédire le nombre de dommages attendus dans un cristal pour une répartition d'énergie dans un faisceau donné [2]. Une procédure de type S/1 (suivant la norme 11254-2 [1]) est également utilisée pour tester le « vieillissement » des cristaux par des illuminations successives. Cela permet de se rapprocher du fonctionnement de cristaux utilisés en cadence.

#### **3.** QUELQUES ÉCEUILS

Les cristaux de par leurs propriétés et caractéristiques sont des composants pour lesquels les mesures de TFL sont difficiles et peuvent être biaisées par de nombreux effets. Citons :

- l'autofocalisation du faisceau de test : phénomène qui va se produire pour des puissances dans le faisceau supérieures à une puissance critique, la taille du faisceau est alors réduite conduisant à une augmentation de la fluence locale et potentiellement un endommagement non-désiré ;
- la biréfringence du faisceau qui peut provoquer une séparation du faisceau suivant les axes ordinaire et extraordinaire (phénomène encore appelé walk-off) conduisant à une méconnaissance de la fluence à l'intérieur du cristal et par voie de conséquence une surestimation de la TFL (phénomène d'autant plus important que le faisceau de test est de petite dimension);
- la conversion de fréquence du faisceau de test à l'intérieur du cristal conduisant à la génération d'une onde laser supplémentaire, soit plus critique vis-à-vis de la TFL, soit pouvant se coupler au faisceau pompe et ainsi aggraver l'endommagement laser,
- la polarisation du faisceau de test qui peut entraîner un couplage différent avec les précurseurs à l'endommagement et donc des résultats de TFL différents suivant l'état de polarisation du faisceau de test ;

Ces quelques exemples ne sont pas exhaustifs, la durée d'impulsion du laser, sa taille sont autant de paramètres pouvant influer les résultats et qu'il est important de connaître et de maîtriser.

#### 4. MÉTROLOGIE ET PHÉNOMÉNOLOGIE DE L'ENDOMMAGEMENT

La compréhension des mécanismes d'endommagement repose notamment sur une métrologie fiable. Par exemple, S. Reyné, lors de deux expérimentations, a montré que les résultats différents de TFL obtenus pour diverses orientations du cristal par rapport au faisceau laser incident sont attribués à la présence de défauts précurseurs présentant une géométrie de type ellipsoïdale, respectant les propriétés de la structure cristalline du cristal étudié [3]. L'aggravation de la TFL observée en mélangeant deux faisceaux de longueurs d'onde différentes (1064 et 355nm) a, quant à elle, été attribuée au couplage des deux faisceaux et a permis de discriminer deux mécanismes d'endommagement suivant les contributions respectives des deux impulsions : à savoir une compétition entre un mécanisme d'ionisation multiphotonique et un mécanisme d'avalanche électronique [4].

#### CONCLUSION

La métrologie de l'endommagement laser des cristaux doit être réalisée avec précaution afin d'éviter les nombreux écueils liés aux propriétés des cristaux. Malgré tout, il est possible de déterminer avec justesse des densités de dommages qui permettent de prédire d'une part le fonctionnement des cristaux sur une installation laser mais également de mieux connaître les mécanismes d'endommagement afin également d'améliorer la TFL des cristaux.

#### Références

[2] L. Lamaignère, T. Donval, M. Loiseau, J.C. Poncetta, G. Razé, C. Meslin, B. Bertussi and H. Bercegol, "Accurate measurements of laser-induced bulk damage density" Meas. Sci. Technol. **20**, 095701 (2009).

[3] S. Reyné, G. Duchateau, J.-Y. Natoli, and L. Lamaignère, "Laser-induced damage of KDP crystals by  $1\omega$  nanosecond pulses: influence of crystal orientation" Opt. Express **17**, 21652 (2009).

[4] S. Reyné, G. Duchateau, J.-Y. Natoli, and L. Lamaignère, "Pump-pump experiment in  $KH_2PO_4$  crystals: Coupling two different wavelengths to identify the laser-induced damage mechanisms in the nanosecond regime" Appl. Phys. Lett. **96**, 121102 (2010).

<sup>[1]</sup> ISO Standard No. 11254-1:2000 ; ISO Standard No. 11254-2:2001.

#### MARQUAGE COLORE PAR LASER CONTINU SUR FILMS NANOCOMPOSITES RE-INSCRIPTIBLES

#### Nathalie Destouches<sup>1</sup>, Nicolas Crespo-Monteiro<sup>1</sup>, Latifa Nadar<sup>1</sup>, Laurence Bois<sup>2</sup>, Fernand Chassagneux<sup>2</sup>, Francis Vocanson<sup>1</sup>, Stéphanie Reynaud<sup>1</sup>, Emilie Gamet<sup>1</sup>

<sup>1</sup>. Université de Lyon, CNRS UMR 5516 Université Jean Monnet, Laboratoire Hubert Curien, 18 Rue Pr. B. Lauras, 42000 Saint-Etienne, France

<sup>2</sup>. Université de Lyon, CNRS 5615 Université Claude Bernard Lyon 1, Laboratoire des

Multimatériaux et Interfaces Bât. Berthollet,, 43 Boulevard 11 novembre 1918, 69622 Villeurbanne,

France,

nathalie.destouches@univ-st-etienne.fr

#### RÉSUMÉ

Des films nanocomposites  $TiO_2/Ag$  sont utilisés comme supports de données colorées inscriptibles et ré-inscriptibles. Des faisceaux lasers continus UV et visibles peuvent respectivement, soit inscrire et complètement effacer de manière reproductible des micro-motifs un sein des films, soit graver des micro-motifs permanents sur leur surface. La croissance des nanoparticules d'argent et les gammes de couleurs photogénérées dépendent des conditions d'illumination.

**MOTS-CLEFS :** photochromisme, plasmon, nanoparticules, films mésostructurés

#### **1. INTRODUCTION**

Les films nanocomposites TiO<sub>2</sub>/Ag sont connus depuis quelques années pour leurs propriétés photochromiques [1]. Leurs changements de couleurs réversibles résultent de la capacité à photogénérer et à photo-oxyder des nanoparticules (NP) d'argent au sein du TiO<sub>2</sub>. Eclairé sous une lumière UV dont l'énergie est plus grande que la bande interdite du TiO<sub>2</sub> (~3.2 eV), le titane génère des électrons photo-excités qui migrent vers les espèces  $Ag^+$  et les réduisent pour former des nanoparticules d'argent. A l'inverse, lorsque les films TiO<sub>2</sub>/Ag sont éclairés en lumière visible, des électrons sont excités à la surface des nanoparticules qui absorbent le rayonnement incident, produisant simultanément des ions  $Ag^+$ . L'oxydation durable des NP résulte de la séparation des charges à l'interface entre les NP d'Ag et le semiconducteur de type n qu'est le TiO<sub>2</sub>. La hauteur de barrière de Schottky est suffisamment basse pour que les électrons sont ensuite transférés vers et stabilisés par des molécules d'oxygène adsorbées au sein de la matrice qu'ils réduisent en  $O_2^-$  ou en H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> [2]. Le principal inconvénient de ces films est que leurs couleurs se sont souvent montrées peu stables dans le temps en l'absence de traitements chimiques spécifiques [3].

#### 2. PHOTO-INSCRIPTIONS REVERSIBLES

L'élaboration de films de  $TiO_2$  mésostructurés, imprégnés d'argent ionique, nous a récemment permis de réaliser des supports de données stables, inscriptibles ou ré-inscriptibles optiquement [4]. Les nanoparticules d'argent formées sous illumination UV sont encapsulées dans la mésoporosité de la matrice et restent stables durant de nombreux mois, conférant au matériau une coloration pérenne. La porosité bien maîtrisée des films mésoporeux permet, sous certaines conditions d'illumination, de contrôler la croissance des nanoparticules et d'obtenir des distributions de taille très homogènes. Dans ce cas, une illumination monochromatique, dont la longueur d'onde se situe dans la bande de résonance plasmon des NP, peut oxyder simultanément toutes les particules et blanchir le film. Nous avons récemment mis en évidence et utilisé cette propriété pour écrire et effacer de manière réversible des micro-motifs au moyen de différents lasers

continus. L'écriture, qui correspond à la génération des nanoparticules dans les zones illuminées, est réalisée à une longueur d'onde qui peut être absorbée par la matrice de  $TiO_2$  : 244 nm ou 325 nm. L'effacement, qui correspond à l'oxydation des nanoparticules formées préalablement, est réalisé à une longueur d'onde absorbée par les nanoparticules : 488 nm, 514 nm ou même 633 nm.

#### 3. PHOTO-INSCRIPTIONS IRREVERSIBLES

L'inscription de données par écriture laser directe peut également être effectuée de manière irréversible dans ces films. En effet, au delà d'un seuil en intensité, dont la valeur dépend de la longueur d'onde, la microscopie électronique à transmission et la micro-spectroscopie Raman témoignent de la cristallisation locale de la matrice de  $TiO_2$  dans une phase anatase, lors de l'illumination. La valeur de ce seuil dépend également de l'état d'oxydation de l'argent dans la couche, notamment du fait de l'absorption et de l'échauffement des NP à certaines longueurs d'onde. Cette densification locale de la couche induit la formation d'un trou sur la surface du film à l'endroit balayé par le laser, dont la profondeur peut varier de zéro à quelques centaines de nanomètres selon les conditions d'illumination et l'épaisseur de la couche initiale. Ce type d'inscription présente l'avantage d'être stable à très haute température.

#### 4. MARQUAGE MULTICOLORE

Enfin, nous montrerons qu'un marquage multicolore peut être réalisé au sein de ces films. Différents régimes de croissance et de déformation des nanoparticules métalliques existent selon les conditions d'illumination mises en œuvre et conduisent à différentes gammes de couleurs reproductibles, observables soit en transmission soit en réflexion spéculaire (Fig. 1).



Fig. 1 : Photographie de photo-inscriptions multicolores réalisées sur un film TiO<sub>2</sub>/Ag, (Haut) à forte intensité pour différentes vitesses d'écriture, (bas) à faible intensité pour différentes longueurs d'onde.

#### References

- [1] Y. Ohko et al., Nature Mater. 2, 29, 2003.
- [2] Kawahara, K.; Suzuki, K.; Ohko, Y.; Tatsuma, T., Phys. Chem. Chem. Phys. 7, 3851, 2005.
- [3] K. Naoi, et al., Chem. Comm. 10, 1288, 2005.
- [4] N. Crespo-Monteiro, et al., Adv. Mater. 22, 3166, 2010.

#### Sonder le fonctionnement cellulaire a l'aide de l'imagerie de nanoparticules dopees aux terres rares

#### Antigoni Alexandrou

#### Laboratoire d'Optique et Biosciences, Ecole Polytechnique, CNRS, INSERM U696

#### 91128 Palaiseau Cedex

#### Antigoni.Alexandrou@polytechnique.edu

La détection optique et l'imagerie sont des outils de choix pour la biologie moléculaire et cellulaire ainsi que pour les applications biomédicales. Ces applications sont souvent limitées par les propriétés des sondes existantes. Les besoins actuels vont bien au-delà des simples applications de marquage de composants cellulaires spécifiques : il s'agit de développer des sondes capables de mesurer la réponse cellulaire avec une résolution temporelle et spatiale et de quantifier les paramètres cellulaires importants, tel que le pH, les ions  $Ca^{2+}$  ou les dérivés réactifs d'oxygène (ROS).

Je décrirai comment différents types de nanoparticules (boîtes quantiques, nanoparticules dopées aux terres rares, nanoparticules dopées aux colorants, nanoparticules métalliques, nanodiamants) apportent des solutions à ces exigences variées en citant des exemples d'applications en biologie cellulaire. Les nanoparticules dopées aux terres rares possèdent des propriétés optiques particulièrement intéressantes : grâce à la localisation des excitations sur les ions de terre rare, les raies d'émission sont extrêmement fines (<10 nm), ce qui autorise une discrimination efficace de signaux parasites, comme la fluorescence cellulaire. Le décalage de Stokes est très important et les temps de vie longs permettent une implémentation facile de détection retardée. Ces nanoparticules en tant que sondes luminescentes sont très photostables, sont détectables individuellement et, contrairement aux boîtes quantiques, ne présentent pas d'intermittence de l'émission. Ce sont donc des sondes idéales pour le marquage [1] et le suivi long-terme de biomolécules uniques, telles que les récepteurs sur la membrane cellulaire [2,3].

De plus, nous avons découvert la présence de processus d'oxydoréduction réversibles dans le cas de nanoparticules  $YVO_4$ :Eu. Une réduction photo-induite des ions  $Eu^{3+}$  en ions  $Eu^{2+}$ , rend ces nanoparticules capables de détecter des oxydants, en particulier l'eau oxygénée,  $H_2O_2$ , molécule bactéricide mais également molécule de signalisation omniprésente dans de nombreux processus cellulaires (contraction, migration, différentiation, ...). Nous avons montré qu'en détectant la modulation de la luminescence des ions  $Eu^{3+}$ , il était possible de remonter à la concentration intracellulaire instantanée de  $H_2O_2$  [4]. Les dynamiques temporelles de production de  $H_2O_2$  sont différentes selon le processus physiologique concerné ce qui apporte un élément de réponse à la question ouverte : comment une même molécule de signalisation peut-elle induire et réguler des réponses différentes ?

En changeant la nature de l'ion dopant, il est possible de changer la couleur d'émission  $(Tb^{3+}, Ce^{3+}, ...)$ , d'obtenir des nanoparticules à up-conversion (co-dopage Yb<sup>3+</sup>, Eu<sup>3+</sup>) [5] ou de doter les nanoparticules de propriétés paramagnétiques (Gd<sup>3+</sup>). Nous avons ainsi réalisé des nanoparticules multifonctionnelles luminescentes, sondes d'oxydants et agents de contraste en Imagerie à Résonance Magnétique (IRM). La fonctionnalisation aisée de ces nanoparticules [6] permet d'envisager un spectre très large d'applications allant de la détection *in vitro* au ciblage *in vivo* de cellules spécifiques.

#### RÉFÉRENCES

[1] E. Beaurepaire, V. Buissette, M.-P. Sauviat, D. Giaume, K. Lahlil, A. Mercuri, D. Casanova, A. Huignard, J.-L. Martin, T. Gacoin, J.-P. Boilot, A. Alexandrou, *Functionalized fluorescent oxide nanoparticles : artificial toxins for sodium channel targeting and imaging at the single-molecule level*, Nano Lett. **4**, 2079 (2004)

[2] J.-B. Masson, D. Casanova, S. Türkcan, G. Voisinne, M. R. Popoff, M. Vergassola, A. Alexandrou, *Inferring maps of forces inside cell membrane microdomaines*, Phys. Rev. Lett. **102**, 048103 (2009)

[3] S. Türkcan, D. Casanova, J.-B. Masson, G. Mialon, M. R. Popoff, T. Gacoin, J.-P. Boilot, A. Alexandrou, *Observing the confinement potential of bacterial pore-forming toxin receptors with non-blinking*  $Eu^{3+}$ -doped oxide nanoparticles, submitted to Biophysical J.

[4] D. Casanova\*, C. Bouzigues\*, T.-L. Nguyên\*, R. O. Ramodiharilafy, L. Bouzhir-Sima, T. Gacoin, J.-P. Boilot, P.-L. Tharaux, A. Alexandrou, *Single europium-doped nanoparticles measure temporal pattern of reactive oxygen species production inside cells*, Nat. Nanotech. **4**, 581-585 (2009)

[5] G. Mialon, S. Türkcan, G. Dantelle, D. P. Collins, M. Hadjipanayi, R. A. Taylor, T. Gacoin, A. Alexandrou, J.-P. Boilot, *High up-conversion efficiency of YVO*<sub>4</sub>: *Yb*, *Er nanoparticles in water down to the single-particle level*, J. Phys. Chem. C **114**, 22449–22454 (2010)

[6] D. Casanova, D. Giaume, M. Moreau, J.-L. Martin, T. Gacoin, J.-P. Boilot, A. Alexandrou, *Counting the number of proteins coupled to single nanoparticles*, J. Am. Chem. Soc. **129**, 12592 (2007)

### Utilisation de cristaux scintillateurs pour la physique des particules : 15 ans de développement du tungstate de plomb

Etiennette Auffray<sup>1,\*</sup>, 1. CERN, departement PH, CERN, route de Meyrin, 1211 Geneve 23, \* Etiennette.auffray@CERN.CH

**Résumé** : En 1994, le tungstate de plomb (PbWO<sub>4</sub>) fut choisit comme cristal scintillateur pour la réalisation du calorimètre électromagnétique de l'une des quatre expériences (CMS, Compact Muon Solenoid) du collisionneur de hadrons (LHC) au CERN. Apres 6 ans de recherche et développement sur ce cristal, la production des 76000 cristaux nécessaires au détecteur fut lancée en 2001. Cette dernière s'acheva en avril 2008 et l'installation du calorimètre électromagnétique dans l'expérience CMS fut terminée en été 2008. Dans ce papier, les 15 ans de développement sur le tungstate de plomb seront présentés.

Mots-clés : Cristaux scintillateurs, tungstate de plomb, calorimètre électromagnétique.

#### **Résumé :**

Les propriétés de scintillation du tungstate de plomb (PbWO<sub>4</sub>, PWO) furent présentées pour la première fois lors de la première conférence sur les scintillateurs inorganiques «Crystal2000» à Chamonix en septembre 1992 [1, 2, 3, 4, 5]. La forte densité (8.3g/cm<sup>3</sup>), la faible longueur de radiation (0.89cm), l'émission rapide à 420nm du PWO couplées au développement de nouveaux photo-détecteurs (les photodiodes à avalanche) qui permettaient de lire la lumière de cristaux à faible rendement lumineux dans un champ magnétique rendaient ce cristal attractif pour son utilisation dans un calorimètre électromagnétique. En 1994, l'expérience CMS l'une des 4 expériences au LHC décida donc d'utiliser le PWO.

Afin d'améliorer les propriétés de scintillation et de résistance aux radiations du PW0, un large effort de R&D fut alors lancé par les collaborations Crystal Clear et CMS [6, 7, 8, 9]. Les figures 1a et 1b montrent l'amélioration obtenue sur la transmission du PWO entre 1994 et 1998.



Fig. 1a: Photo d'un cristal produit en 1994 et d'un cristal produit en 1998



Fig. 1b: Amelioration de la transmission optique du PWo entre 1994 et 1998

En 1998, une préproduction de cristaux fut lancée dans l'usine de Bogoroditsk à 200km au sud de Moscou (Bogoroditsk Techno-Chemical Plant, BTCP, Russie). 6000 cristaux furent produits entre 1998 et 2000 permettant ainsi d'optimiser la croissance et le rendement de production des cristaux ainsi que d'homogénéiser

#### JNCO\_3 : Matériaux luminescents...

les propriétés des cristaux. Cette préproduction permit le démarrage de la production, en 2001, de grand cristaux (~25x25x23 cm<sup>3</sup>) à un rythme d'environ 1000 cristaux par mois dans l'usine de BTCP.

Afin de maintenir le calendrier de construction du calorimètre électromagnétique, à partir de 2005, une deuxième compagnie, le Shanghai Institute of Céramique (SIC) en Chine produisit aussi des cristaux de PWO pour CMS.

La production des cristaux pour la partie centrale du calorimètre (le tonneau) fut terminee en avril 2007 (voir figure 2) et celle pour les bouchons en avril 2008. Un total de 73350 cristaux fut produit en Russie et de 4493 en chine. L'installation du calorimètre électromagnétique, composé de 75848 cristaux de tungstate de plomb, dans l'expérience CMS fut achevée en juillet 2008, et les premières données de physique prises en septembre 2008, 14 ans après que la décision d'utiliser le tungstate de plomb ait été prise.



Fig. 2: Photo de la partie centrale du calorimètre électromagnétique installée dans l'expérience CMS.

Dans ce papier, les différentes étapes de la recherche, du développement et de la production du tungstate de plomb seront présentées.

#### Références

- [1] V.G. Barishevsky, et al., Nucl. Inst. Meth. A 322 (1992) 231.
- [2] M. Kobayashi, M. Ishii, Y. Usuki, in Proceedings of the Crystal 2000 International WorkshopEditions Frontieres, Gidsur-Yvette, (1993). 375.
- [3] L. Nagornaya, V. Ryzhikov, in Proceedingsof the Crystal 2000 International Workshop, EditionsFrontieres, Gif-sur-Yvette, (1993) 367.
- [4] V.A. Kachanov, et al., in Proceedings of the Crystal 2000 International Workshop, EditionsFrontieres, Gif-sur-Yvette, (1993) 381
- [5] L. V. Miassoedov et al., in Proceedings of the Crystal 2000 International Workshop, EditionsFrontieres, Gif-sur-Yvette, (1993) 367
- [6] E. Auffray et al., Proceedings of the International Conference on Inorganic Scintillators and their Applications, SCINT97, CAS, Shanghai China, 1997, 219
- [7] A. Annenkov et al., Nucl. Inst. Meth. A 426 (1999) 486-490
- [8] A. Annenkov et al., Nucl. Inst. Meth. A 490 (2002) 30
- [9] E. Auffray et al., Nucl. Inst. Meth. A 486 (2002) 111

#### SCINTILLATEURS COUCHES MINCES POUR IMAGERIE X HAUTE-RESOLUTION

#### Thierry Martin<sup>1</sup>, Paul-Antoine Douissard<sup>1</sup>, Eric Mathieu<sup>1</sup>

<sup>1</sup> ESRF, 6 rue Jules Horowitz, 38043 Grenoble, France

tmartin@esrf.fr

#### Résumé

Des imageurs à haute-résolution spatiale (<1 $\mu$ m) sont utilisés à l'ESRF pour les applications d'imagerie Rayon X. La présentation montrera les éléments de la chaine de détection : les scintillateurs couches minces , les optiques de microscopie et les développement en cours.

**MOTS-CLEFS :** *film; scintillateur; X-ray; détecteur* 

#### 1. INTRODUCTION

Le rayonnement synchrotron est un formidable outil extrêmement puissant qui permet d'explorer la matière dans de nombreux domaines: physique, biologie, pharmacie et médical. Des imageurs X à haute résolution spatiale (<1 $\mu$ m) sont nécessaires et certains sont conçus et développés à l'ESRF (European Synchrotron Radiation Facility). Le système de détection met en jeu des convertisseurs X→lumière visible, appelé scintillateur, des optiques et des caméras (CCD et CMOS). L'optimisation des performances de l'imageur est possible par l'étude et le développement de chacun des éléments de la chaîne de détection. Le scintillateur est l'élément crucial pour assurer le contraste et la résolution sub-micrométrique.

#### **2.** CROISSANCE DE FILM SCINTILLANT

Dans le cadre de nos besoins de production en qualité et quantité ainsi que le développement de futurs scintillateurs, un laboratoire d'Epitaxie en Phase Liquide (EPL) vient d'être construit à l'ESRF pour la croissance de couches minces monocristallines (fig. 1). Son but est de produire des films scintillants, tels que le YAG :Ce, le LAG :Eu [1], le GGG :Eu [2] ou le plus récent LSO :Tb [3], [4], [5], sur des substrats de diamètre inférieur à 2 pouces. Ces films sont utilisés pour l'imagerie rayons X haute-résolution dans les synchrotrons.

Le four d'épitaxie mis au point, ainsi que son opération, seront présentés. Des films de  $Gd_3Ga_5O_{12}$ :Eu et  $Gd_3Ga_5O_{12}$ :Tb ont été fabriqués avec succès sur des substrats de  $Gd_3Ga_5O_{12}$  (fig. 2 et 3). Les épaisseurs des films obtenus varient entre 1µm et 100µm. L'épaisseur, ainsi que les propriétés de scintillations, sont ajustés par le temps de croissance, la température de croissance et la vitesse de rotation du substrat dans le bain. Un paramètre critique est la différence de paramètre de maille entre la couche et le substrat. Celui-ci doit être minimisé (<15.10<sup>-3</sup>Å pour des couches en compression) afin d'obtenir des couches minces de bonne qualité. Ce paramètre a été mesuré par diffraction rayons X. La rugosité du substrat avant croissance est également critique et ne doit pas dépasser 10 Å rms.


Fig. 1 : Fours d'Epitaxie en Phase Liquide



Fig. 2 : Production ESRF, 10µm de GGG:Eu sur 500µm GGG non dopé, 1" diamètre



Fig. 3 : Image de la lumière visible émise par un GGG:Eu sous irradiation d'un générateur X de laboratoire (40kV,40mA). Image prise avec un appareil photo numérique.

### CONCLUSION

L'influence de la température de croissance et de la vitesse de rotation du substrat sur la vitesse de croissance des couches permet la production de films minces de très bonne qualité optique (400nm de résolution spatiale ultime) avec des rendements lumineux de 35-45ph/keV. Le système de détection, composé de différents éléments optiques, permet la génération d'image haute résolution (2048 x 2048 pixels et bientôt 4096x4096 pixels) et haute dynamique (14-16bit de niveau de gris).

### REFERENCES

- [1] A. Koch and al., SPIE, vol. 3659, pp 170-179, 1999.
- [2] T. Martin and al., J. of synchrotron Radiation, vol. 13, pp 180-194, 2006.
- [3] T. Martin and al. ,IEEE Transactions on Nuclear Science, vol.56, pp 1412-1418, 2009.
- [4] P.A. Douissard and al., J. of synchrotron Radiation, vol. 17, pp 571-583, 2010
- [5] <u>www.scintax.eu/</u>

# TRANSFERTS D'ENERGIE DANS LES FLUORURES DOPES TERRES-RARES POUR CONVERTISSEURS SOLAIRES LUMINESCENTS BASSE-FREQUENCE

Diana Serrano, Alain Braud, Jean-Louis Doualan, Patrice Camy, Richard Moncorgé

<sup>1</sup> Centre de Recherche sur les Ion, les Matériaux et la Photonique, CIMAP, UMR 6242 CEA-CNRS-ENSICAEN-Université de CAEN, 14050 Caen, France

diana.serrano@ensicaen.fr

#### Résumé

 $CaF_2$  et  $KY_3F_{10}$  codopés avec les ions  $Pr^{3+}$  et  $Yb^{3+}$  sont étudiés en tant que matériaux prometteurs pour la conversion d'énergie. Ces cristaux présentent une absorption dans le bleu par les ions  $Pr^{3+}$  et une émission infrarouge efficace (environ 1µm) suite à un ou plusieurs transferts d'énergie entre le  $Pr^{3+}$  et l'Yb<sup>3+</sup>. L'optimisation de ces mécanismes de transferts d'énergie, dit de « conversion basse-fréquence » est notamment envisagée pour l'amélioration du rendement des cellules solaires à base de silicium.

**MOTS-CLEFS :** *Quantum cutting; Conversion basse-fréquence; Terres rares;*  $CaF_2$ *;*  $KY_3F_{10}$ 

# 1. INTRODUCTION

L'amélioration du rendement des cellules solaires à base de silicium nécessite une exploitation plus performante du spectre solaire. Les cellules solaires actuelles génèrent une seule paire électron-trou par photon absorbé, même quand l'énergie du photon absorbé est plus de deux fois supérieure à la bande interdite du silicium. La création de plusieurs paires électron-trou devient possible en ajoutant à la cellule classique silicium, un convertisseur luminescent capable de « convertir » chaque photon de haute énergie en plusieurs photons moins énergétiques [1]. Ce mécanisme, connu sous le nom de « quantum cutting » a été démontré dans différents matériaux dopés terres rares [2].



Fig. 1 : Schéma du « quantum cutting » dans le système Pr<sup>3+</sup>-Yb<sup>3+</sup>

Dans le cas des cellules solaires silicium, l'ion  $Yb^{3+}$  devient particulièrement intéressant car il présente un état excité autour de 10000 cm<sup>-1</sup> ( ${}^{2}F_{5/2}$ ), ce qui correspond à l'énergie de la bande interdite du silicium. Autrement dit, l'émission de l' $Yb^{3+}$  peut être efficacement absorbée par

une cellule solaire silicium. L'ion  $Pr^{3+}$  est un bon candidat en tant que codopant de l'Yb<sup>3+</sup> car il possède un état excité vers 20000cm<sup>-1</sup> (<sup>3</sup>P<sub>0</sub>) et un état intermédiaire, <sup>1</sup>G<sub>4</sub>, autour de 10000cm<sup>-1</sup>, ce qui permet l'absorption de lumière bleue par le niveau <sup>3</sup>P<sub>0</sub> suivi de deux transferts d'énergie résonnants entre le praséodyme et l'ytterbium. Le premier transfert d'énergie a donc lieu entre <sup>3</sup>P<sub>0</sub> $\rightarrow$ <sup>1</sup>G<sub>4</sub> et <sup>2</sup>F<sub>7/2</sub> $\rightarrow$ <sup>2</sup>F<sub>5/2</sub> et le deuxième entre <sup>1</sup>G<sub>4</sub> $\rightarrow$ <sup>3</sup>H<sub>4</sub> et <sup>2</sup>F<sub>7/2</sub> $\rightarrow$ <sup>2</sup>F<sub>5/2</sub> (Figure 1). Par conséquent, l'absorption d'un photon bleu par la transition <sup>3</sup>H<sub>4</sub> $\rightarrow$  <sup>3</sup>P<sub>0</sub> du praséodyme permet dans un cas idéal l'excitation de deux ions ytterbium et finalement l'émission de deux photons infrarouges.

l'excitation de deux ions ytterbium et finalement l'émission de deux photons infrarouges. Une série de cristaux de CaF<sub>2</sub> dopés 0.5%Pr<sup>3+</sup>-x% Yb<sup>3+</sup> (où x= 0; 0,5; 1; 2; 4 et 10) ainsi qu'une série de cristaux de KY<sub>3</sub>F<sub>10</sub> dopés 0.5%Pr<sup>3+</sup>-x% Yb<sup>3+</sup> (où x= 0; 1; 10 et 20) ont été fabriqués au laboratoire à partir de la technique Bridgman-Stockbarger. L'analyse des spectres d'émission et des déclins de fluorescence dans ces matériaux révèle des transferts d'énergie d'efficacité croissante avec l'augmentation de la concentration en Yb<sup>3+</sup>. Pour le premier transfert d'énergie, une efficacité de 97% est atteinte avec KY<sub>3</sub>F<sub>10</sub>:0.5%Pr<sup>3+</sup>-20%Yb<sup>3+</sup> [3]. Malheureusement, une forte diminution de la luminescence de l'ytterbium est également observée quand la concentration en ytterbium augmente. Ce phénomène est dû à l'extinction de la luminescence liée à la migration d'énergie entre les ions Yb<sup>3+</sup> ce qui limite fortement la luminescence de ces derniers. CaF<sub>2</sub>, quant à lui, se présente comme un matériau particulièrement intéressant, puisqu'une faible concentration en ytterbium suffit pour atteindre des efficacités de transfert extrêmement élevées. Une comparaison détaillée des performances en termes de « conversion basse-fréquence » entre CaF<sub>2</sub> et KY<sub>3</sub>F<sub>10</sub> sera présentée ainsi qu'avec les différents matériaux étudiés dans la littérature.



Fig. 2 : Déclins de luminescence du niveau  ${}^{3}P_{0}$  dans (a)  $KY_{3}F_{10} : 0.5\% Pr^{3+}-x\% Yb^{3+}$  avec x=0, 1, 10 et 20; (b)  $CaF_{2} : 0.5\% Pr^{3+}-x\% Yb^{3+}$  avec x=0, 0.5, 1, 2, 4 et 10. Dans les deux cas, la durée de vie diminue avec l'augmentation de la concentration en ytterbium du fait de l'efficacité croissante du transfert d'énergie  $Pr^{3+}\rightarrow Yb^{3+}$ .

Références

- [1] T. Trupke et M. A. Green, « Improving solar cell efficiencies by down-conversion of high-energy photons », *Journal of Applied Physics*, vol. 92, n°. 3, p. 1668-1674, 2002.
- [2] R. T. Wegh, H. Donker, E. V. D. van Loef, K. D. Oskam, et A. Meijerink, « Quantum cutting through downconversionin rare-earth compounds », *Journal of Luminescence*, vol. 87-89, p. 1017-1019, 2000.
- [3] D. Serrano et al., « Ytterbium sensitization in KY3F10: Pr3+, Yb3+ for silicon solar cells efficiency enhancement », *Optical Materials*, vol. 33, p.979 (2011).

# Optimisation de scintillateurs denses pour l'imagerie médicale X et Gamma

S. Blahuta<sup>1,\*</sup>, B. Viana<sup>1</sup>, A. Bessière<sup>1</sup>

<sup>1</sup>LCMCP-Chimie Paristech, Paris, 75005, France \* samuel-blahuta@chimie-paristech.fr

# RÉSUMÉ

Les propriétés optiques et de scintillation de trois matériaux ont été étudiées : des céramiques denses de  $Gd_2O_2S:Pr^{3+},Ce^{3+}$  (GOS: $Pr^{3+},Ce^{3+}$ ) et de  $(Lu_{0.5}Gd_{0.5})_2O_3:Eu^{3+}$  (LuGdO<sub>3</sub>: $Eu^{3+}$ ) ainsi que des monocristaux de  $Lu_{2(1-x)}Y_{2x}SiO_5:Ce^{3+}$  (LYSO: $Ce^{3+}$ ). Dans le but d'optimiser ces matériaux pour l'imagerie médicale, leurs défauts électroniques ont été caractérisés par Thermoluminescence (TL). Une fois ces défauts mis en évidence, des méthodes ont été testées pour réduire ces défauts : des recuits sous différentes atmosphères ainsi que des co-dopages. Les résultats présentés seront axés sur les effets des recuits et/ou des co-dopages sur les défauts dans ces différentes matrices. Leur impact sur les propriétés de scintillations sera également présenté.

MOTS-CLEFS : scintillateurs ; thermoluminescence ; co-dopages ; recuits

# **1- INTRODUCTION**

Les matériaux scintillateurs sont utilisés dans de nombreuses applications dont l'imagerie médicale, l'exploration géophysique et la physique des hautes énergies. Dans le domaine de l'imagerie médicale, deux techniques nous intéressent particulièrement : la Tomographie à Emission de Positons (TEP) et la scannographie X (Computed Tomography ou CT). Les matériaux recherchés doivent être denses, ce qui leur confère un fort pouvoir d'arrêt des rayonnements ionisants, avoir un bon rendement lumineux (> ~ 10000 photons/MeV) et un temps de réponse rapide [1]. Dans le cas du TEP, en plus d'un temps de réponse très court (ns), une bonne résolution énergétique est également requise. Pour le CT, une luminescence persistante (afterglow) la plus faible possible est recherchée [2].

Dans cette optique, nos travaux portent sur l'élaboration et l'optimisation de matériaux scintillateurs : des céramiques de  $GOS:Pr^{3+},Ce^{3+}$  et LuGdO<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup> pour l'imagerie X et des monocristaux de LYSO:Ce<sup>3+</sup> pour le TEP. La mise en évidence et la caractérisation des défauts électroniques permet de mieux comprendre les mécanismes en jeu afin d'améliorer les propriétés de scintillation de ces matériaux.

# 2- RÉSULTATS

### Effets des recuits

Les travaux sur LYSO:Ce<sup>3+</sup> ont permis de mettre en évidence de façon claire le rôle joué par les lacunes d'oxygène en tant que défauts électroniques principaux. L'influence de recuits sous atmosphère oxydante ou réductrice a été étudiée. Alors qu'un recuit réducteur exacerbe les défauts existants dans le matériau, un recuit oxydant les guérit légèrement. La Figure 1 montre l'évolution de l'intensité de TL d'un LYSO:Ce<sup>3+</sup> suite à un recuit sous air (courbes 1 et 2).

Concernant GOS:Pr<sup>3+</sup>,Ce<sup>3+</sup> nous avons montré que les lacunes de soufre sont cette fois les défauts majoritaires. Ces pièges à électrons vont avoir un impact sur les propriétés de

scintillation, particulièrement sur l'afterglow [3]. Après avoir caractérisé ces défauts par TL, un recuit sous atmosphère soufrée a été mis en place et ses conséquences étudiées.

#### Effets des co-dopages

Les céramiques denses et transparentes de LuGdO<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup> sont des matériaux très prometteurs pour l'application de scannographie CT. Ce matériau présente un bon rendement lumineux (jusque 70000 photons/MeV [4]) mais se doit d'avoir un afterglow optimisé. Dans ce but, la TL nous a permis d'identifier et de caractériser les défauts électroniques. Afin de réduire l'afterglow dans ces céramiques, différents co-dopages ont été testés et leurs impacts étudiés. La Figure 2 présente l'impact positif de certains co-dopages sur la TL.

Dans le cas de LYSO: $Ce^{3+}$ , certains co-dopages ont également été testés. En particulier,  $Ca^{2+}$  s'est avéré être un très bon candidat pour réduire efficacement la quantité de lacunes d'oxygène lors de la croissance cristalline. Son effet a été caractérisé (Fig. 1 courbe 3) et sera également présenté.



Fig. 1 : Courbes de TL de LYSO:Ce<sup>3+</sup> avant et après recuit sous air (courbes 1 et 2) ; effet du co-dopage par Ca<sup>2+</sup> sur LYSO :Ce<sup>3+</sup> (courbe 3)



Fig. 2 : Effets des co-dopages par  $Ce^{3+}$  et  $Tb^{3+}$  sur l'intensité de TL de céramiques  $LuGdO_3:Eu^{3+}$ 

#### RÉFÉRENCES

- [1] C.W.E. van Eijk, Phys. Med. Biol. 47 (2002) 85-106.
- [2] W. Rossner, Journal Of Luminescence 48-49 (1991) 29-36.
- [3] S. Blahuta, B. Viana, A. Bessière, E. Mattmann, B. LaCourse, Optical Materials (2011) article in press.
- [4] N.J. Cherepy, R. Gaume, S.R. Podowitz, Oral Presentation at Symposium On Radiation Measurements and Applications (SORMA) (2010).

# « UP-CONVERTERS » NANOSTRUCTURES POUR CELLULES SOLAIRES DE TROISIEME GENERATION

# Anne-Laure Joudrier<sup>1,2</sup>, Christian Andriamiadamanana<sup>1,2</sup>, Alban Ferrier<sup>1</sup>, Fabienne Pellé<sup>1</sup>, Jean-François Guillemoles<sup>2</sup>

 <sup>1</sup> Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Paris (LCMCP), UMR 7574 CNRS-UPMC-Chimie ParisTech, 11 rue Pierre et Marie Curie, 75 231 Paris cedex 05, France
 <sup>2</sup> Institut de Recherche et Développement sur l'Energie Photovoltaïque (IRDEP), UMR 7174 Chimie ParisTech-CNRS-EDF, 6 Quai Watier, 78 401 Chatou cedex, France

anne-laure-joudrier@chimie-paristech.fr

# Résumé

Afin d'améliorer le rendement des cellules solaires, la conversion de fréquence par « up-conversion » est une voie prometteuse. Ce travail présentera tout d'abord la synthèse de  $Y_2O_3$  dopé  $Er^{3+}$  et  $Yb^{3+}$  sous forme de nanoparticules et de couches minces, puis s'intéressera à la réponse spectrale de ces matériaux dans le cadre d'applications photovoltaïques.

**MOTS-CLEFS** : up-conversion ; photovoltaïque ; nanostructures

# 1. INTRODUCTION

La principale limite au rendement des cellules photovoltaïques est l'inadéquation entre le spectre du rayonnement solaire incident et le spectre d'absorption de la cellule. Pour améliorer le rendement de conversion lumière/courant électrique, il est donc nécessaire d'adapter le rayonnement solaire à la sensibilité spectrale des cellules. Deux phénomènes de conversion de fréquence communément appelés up- et down- conversion peuvent être exploités. L'« up-conversion », à laquelle s'attache ce travail, consiste à combiner deux photons de faible énergie afin d'obtenir un photon plus énergétique. Les oxydes et fluorures dopés aux terres rares, notamment  $Er^{3+}$  et Yb<sup>3+</sup>, sont bien adaptés à cette conversion de fréquence [1]. Dans cette communication, nous présenterons tout d'abord la synthèse de Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: $Er^{3+}$ ,Yb<sup>3+</sup> sous forme de nanoparticules et de couches minces, puis leur couplage avec une cellule solaire.

# 2. Synthese $D'Y_2O_3$ dope $Er^{3+}$ et $Yb^{3+}$ : Nanoparticules et couches minces

L'oxyde d'yttrium  $Y_2O_3$  est un matériau particulièrement intéressant puisqu'il peut être synthétisé sous différentes forme : nanoparticules, films ou couches minces [2, 3]. Bien que son rendement d'up-conversion soit inférieur à celui obtenu par les fluorures, sa structuration ainsi que les méthodes d'élaboration sont plus facilement compatibles avec des exigences industrielles.

La synthèse des nanoparticules a été effectuée par deux voies : hydrothermale et précipitation homogène. Les particules obtenues sont bien sphériques et monodisperses (fig. 1).



Fig. 1 : Clichés TEM de nanoparticules de  $Y_2O_3$  : $Er^{3+}$ , $Yb^{3+}$  obtenues par voie hydrothermale (a) et précipitation homogène (b)

Les films minces ont été réalisés par « atomic layer deposition » (ALD) et par « spin-coating » (fig. 2). Les couches présentent peu de défauts ainsi qu'une rugosité faible (quelques nm rms), ce qui est favorable aux applications envisagées.



Fig. 2 : Images MEB (a) et AFM (b) des couches réalisées par spin-coating

#### 3. SPECTRES D'UP-CONVERSION ET COUPLAGE AVEC UNE CELLULE SOLAIRE

Les spectres en transmission et absorption ont été mesurés pour les nanoparticules et les couches minces ; les transitions caractéristiques de l'erbium sont bien visibles.

Les niveaux d'énergie de l'erbium sont bien adaptés au spectre solaire terrestre et au gap du c-Si dont sont majoritairement constituées les cellules solaires les plus répandues. En couplant une telle cellule avec une pastille d' $Y_2O_3$ :Er<sup>3+</sup> 3% et sous un éclairement à  $\lambda = 1,54 \mu m$ , un courant a été observé (Fig. 3a). Les spectres d'up-conversion des particules d' $Y_2O_3$  (dopées Er<sup>3+</sup> 1% et Yb<sup>3+</sup> 2%) de deux tailles différentes ont également été enregistrés, avec une longueur d'onde d'excitation  $\lambda = 980 \text{ nm}$  (Fig. 3b).



Fig. 3 : (a) Courant obtenu en fonction de la puissance incidente ( $\lambda_{incidente} = 1,54 \mu m$ ) et (b) spectres d'upconversion obtenus avec deux tailles de particules ( $\lambda_{excitation} = 980 \text{ nm}$ )

# **CONCLUSION ET PERSPECTIVES**

Pour réaliser des cellules solaires à rendement amélioré utilisant le phénomène d'upconversion, l'oxyde  $Y_2O_3$ :  $Er^{3+}$ ,  $Yb^{3+}$  a été synthétisé par plusieurs voies, sous forme de nanoparticules et de couches minces. Les caractérisations ont montré des particules et des couches de bonne qualité. La nanostructuration de ces matériaux permettra ensuite d'exploiter les interactions entre les ions de terres rares et le plasmon de surface [4] de façon à améliorer l'absorption du rayonnement solaire. Dans ce but, des calculs sont en cours ainsi que la réalisation des structures correspondantes. L'association des nanoparticules d' $Y_2O_3$  avec des nanoparticules métalliques est également envisagée.

### **References**

- [1] A. Shalav, B. S. Richards, M. A. Green, Solar Energy Materials & Solar Cells, 91, 829, (2007)
- [2] G. K. Das, T. T. Y. Tan, J. Phys. Chem. C, 112, 11211, (2008)
- [3] J. Yang, Z. Quan, D. Kong, X. Liu, J. Lin, *Crystal Growth & Design*, 7(4), 730, (2007)
- [4] H. A. Atwater, A. Polman, Nature Materials, 9, 205, (2010)

# COMPACT AND EFFICIENT DIODE-PUMPED AND INTRACAVITY FREQUENCY-DOUBLED ND :YAG AND ND :GGG LASERS TO PUMP RGBO PR<sup>3+</sup>-DOPED FLUORIDE LASER CRYSTALS AROUND 469 NM

# Bin Xu, Patrice Camy, Rémi Soulard, Florent Starecki, Gurvan Brasse, Jean-Louis Doualan, R. Moncorgé

*Centre de recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique (CIMAP) UMR 6252 CEA-CNRS-ENSICAEN, Université de Caen, 14050 Caen, France* 

patrice.camy@ensicaen.fr

#### ABSTRACT

CW laser operation of  $Pr^{3+}$ -doped fluoride crystals is reported in the Red, Orange and Green spectral regions by using a frequency-doubled Nd laser.

**MOTS-CLEFS** : Laser crystals, rare-earth ion spectroscopy

The first Pr-laser was demonstrated by pumping a Pr:YLF single crystal with a pulsed dye laser at 444 nm [1]. Quasi-cw laser operation was also achieved under flashlamp pumping [2] as well as CW laser operation by pumping with an Ar ion laser around 476 nm [3]. Although very interesting, such laser systems were either not easy to operate or inefficient and they have been almost abandoned for about 10 years.

The situation has considerably changed during the last years thanks to the appearance and the recent development of efficient blue laser pump sources (i) GaN laser-diodes emitting around 445 nm [4,5] to address the  ${}^{3}H_{4}\rightarrow{}^{3}P_{2}$  absorption transition of  $Pr^{3+}$  (see in the Fig. 1) and (ii) OPSL specific on-demand systems around 477nm for the  ${}^{3}H_{4}\rightarrow{}^{3}P_{0}$  transition [6]. The first one is very attractive thanks to its straightforwardness, compactness and simplicity but Gallium Nitride semiconductors are still limited in power to 1 W and beam quality seriously drops for powers higher than 500 mW. The second pumping scheme can be much more powerful, with high beam quality, but due to the development needed to reach special wavelengths, OPSL pumping sources for  $Pr^{3+}$  are still not commercially available.



Fig. 1. Room temperature absorption spectra of Pr:LLF, Pr:YLF and Pr:KYF in blue range.

#### JNCO\_4 : Lasers à solides

As a matter of fact, in the present communication, we examine the possibility of pumping the  $Pr^{3+}$  ions into the third absorption band around 470nm. This absorption band, which corresponds to the  ${}^{3}H_{4}\rightarrow{}^{3}P_{1}$ ,  ${}^{1}I_{6}$  absorption transition of the  $Pr^{3+}$  ions, has not been exploited so much, except at 465.8nm with an Argon laser [3], thus quite far from the absorption peak, and only one paper reports pumping at 473 nm [7].

For that purpose, our choice was to built two diode-pumped and intracavity frequencydoubled Nd:YAG and Nd:GGG laser sources tuned at about 469.12 nm and 468.5 nm, and to operate these laser sources to pump a series of  $Pr^{3+}$ -doped laser crystals,  $Pr^{3+}$ :LiLuF<sub>4</sub> (Pr:LLF),  $Pr^{3+}$ :LiYF<sub>4</sub> (Pr:YLF),  $Pr^{3+}$ :KY<sub>3</sub>F<sub>10</sub> and  $Pr^{3+}$ :KYF<sub>4</sub>, to obtain Red, Orange as well as Green laser emissions.

The maximum output power achieved with a Nd:GGG-LBO V-type cavity (Nd:GGG laser crystal associated with an LBO nonlinear crystal inside a V-shaped laser cavity) was limited to about 450 mW with a power stability of 8.7 % rms. Even though 600 mW with a much better stability of 3.8% rms was obtained by using a chopper-modulation technique, the results achieved with another Nd:YAG-LBO V-type cavity were much more effective. In particular, thermal focal length measurements showed an around four times higher thermal loading in the case Nd:GGG compared to Nd:YAG in the same cooling conditions and up to 1.4 W stable blue output power was obtained with Nd-YAG-LBO.

 $Pr^{3+}$  laser experiments were thus carried out by using such a laser pump source at 469 nm. The  $Pr^{3+}$  laser crystals were placed in a simple nearly hemispherical cavity with an output mirror having a radius of curvature of 50 mm, which supplied a good overlap between the pump and cavity modes.

As mentioned above, several  $Pr^{3+}$ -doped laser crystals were investigated in various conditions and the latest results will be presented at the conference. As an example, CW laser operation of a  $Pr^{3+}$ :KYF<sub>4</sub> laser crystal around the orange and red laser wavelengths of 605.5 and 642.3 nm was demonstrated for the first time. Slight laser wavelength tuning was also achieved around these two wavelengths by tilting the laser crystal. In particular, lasing was achieved around 605.9 nm, which is especially interesting since it means that it is possible to use such a compact solid state laser source to replace the dye laser presently used to perform quantum information experiments. The achieved output power was limited however by the pump power actually absorbed in the laser crystal and by its optical quality, so that new crystals with more appropriate dopant concentrations and thicknesses are presently investigated.

#### References

[1] L. Esterowitz, R. Allen, M. Kruer, F. Bartoli, L. S. Goldberg, H. P. Jenssen, A. Linz, and V. O. Nicolai, "Blue light emission by a Pr:LiYF<sub>4</sub>-laser operated at room temperature," J. Appl. Phys. 48, 650-652, (1977).
[2] A. A. Kaminskii, A. I. Lyashenko, N. P. Isaev, V. N. Karlov, V. L. Pavlovich, S. N. Bagaev, A. V.

Butashin, and L. E. Li, "Quasi-cw Pr<sup>3+</sup>:LiYF<sub>4</sub> laser with  $\lambda = 0.395 \,\mu\text{m}$  and an average output power of 2.3 W," Quantum Electron. **28**, 187-188 (1998).

[3] T. Sandrock, T. Danger, E. Heumann, G. Huber, and B. T. H. Chai, "Efficient continuous-wave laser emission of Pr<sup>3+</sup>-doped fluorides at room temperature," Appl. Phys. B **58**, 149-151 (1994).

[4] F. Cornacchia, A. Di Lieto, M. Tonelli, A. Richter, E. Heumann, and G. Huber, "Efficient visible laser emission of GaN laser diode pumped Pr-doped fluoride scheelite crystals," Opt. Express **16**, 15932-15941 (2008).

[5] P. Camy, J. L. Doualan, R. Moncorgé, J. Bengoechea, and U. Weichmann, "Diode-pumped  $Pr^{3+}$ :KY<sub>3</sub>F<sub>10</sub> red laser," Opt. Lett. **32**, 1462-1464 (2007)

[6] A. Richter, E. Heumann, G. Huber, V. Ostroumov and W. Seelert, "Power scaling of semiconductor laser pumped Praseodymium-lasers," Opt. Express 15, 5172-5178 (2007).

[7] E. Heumann, C. Czeranowski, T. Kellner, and G. Huber, "An efficient all-solid-state Pr3+:LiYF4 laser in the visible spectral range," Technical Digest CLEO'99, paper CTuG1, p86, (Baltimore, 1999).

# LASER Yb:CaGdAlO<sub>4</sub> EN "THIN-DISK"

# S. Ricaud<sup>1, 4</sup>, B. Weichelt<sup>2</sup>, P. Goldner<sup>3</sup>, B. Viana<sup>3</sup>, M. Abdou-Ahmed<sup>2</sup>, D. Ritz<sup>4</sup>, E. Mottay<sup>5</sup>, P. Georges<sup>1</sup> and F. Druon<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, CNRS, Univ Paris-Sud, RD 128, 91127 Palaiseau, France

<sup>2</sup> Institut für Strahlwerkzeuge (IFSW), Universität Stuttgart, Pfaffenwaldring 43 D-70569 Stuttgart, Germany

<sup>3</sup> Laboratoire de Chimie Appliquée de l'Ecole nationale Supérieure de Chimie de Paris, 11 rue P. et M. Curie 75231 Paris, France

> <sup>4</sup> FEE GmbH, Struthstrasse 2, D-55743 Idar-Oberstein, Germany <sup>5</sup> Amplitude Systèmes, 6 allée du Doyen Georges Brus 33600 Pessac, France

> > sandrine.ricaud@institutoptique.fr, +33 1 64533440

#### Résumé

Nous présentons un laser thin-disk Yb :CALGO en régime continu permettant d'obtenir une puissance moyenne de 30W avec une pente d'efficacité de 40% et une efficacité optique-optique de 32%.

MOTS-CLEFS : matériau ytterbium, laser thin-disk, laser pompé par diode laser

# **1.** INTRODUCTION

La technologie « thin-disk » [1] est une technique de conditionnement de cristaux laser qui permet d'obtenir des puissances moyennes extrêmement élevées : typiquement quelques kW en régime continu. Ainsi, en utilisant un cristal en forme de disque mince et en recyclant un grand nombre de fois le faisceau de pompe, cette géométrie originale permet d'avoir des lasers très efficaces et de forte puissance moyenne avec de surcroit une très bonne dissipation de la charge thermique. En régime impulsionnel, cette technique permet d'obtenir les oscillateurs les plus puissants et les plus énergétiques [2,3]. En effet, des résultats intéressants ont été publiés avec des cristaux Yb:YAG, notamment un oscillateur générant des impulsions de 80 W [3] de puissance moyenne et des énergies de 25  $\mu$ J pour une durée de 1 ps. Cependant, la section efficace d'émission de l'Yb:YAG ne permet pas l'obtention des durées ultra-courtes, et c'est pourquoi l'adaptation de cette technique à de nouveaux matériaux est intéressante. L'obtention d'impulsions de forte puissance moyenne et de durée courte sont donc les deux objectifs fixés pour ces travaux.

Dans cette optique, le cristal  $Yb^{3+}$ :CaGdAlO<sub>4</sub> semble avoir un très fort potentiel. Tout d'abord, sa section efficace d'émission est la plus large et la plus plate de tous les matériaux dopés ytterbium connus. Ainsi des impulsions de 47 fs centrées à 1050 nm ont été obtenues en sortie d'un oscillateur [4]. Ensuite, la mesure de la conductivité thermique d'un cristal dopé 2% est de ~6.5W.K<sup>-1</sup>.m<sup>-1</sup> [5]. Cette forte conductivité thermique permet donc un pompage à de forte puissance de pompe. Ces propriétés justifient donc son intérêt pour une utilisation dans une configuration thin-disk.

# 2. MONTAGE ET RESULTATS EXPERIMENTAUX

Nous présentons, dans cette conférence, la première démonstration d'un laser thin-disk Yb:CALGO. Nous avons étudié les caractéristiques de cristaux venant de différentes boules, de dopage 2% ou 3.5%, en régime continu ainsi que l'accordabilité.

Les expériences (fig. 1) ont été faites avec des cristaux de 350µm d'épaisseur, obtenus par la méthode de croissance dite de Czochralski. La diode laser fibrée de pompage délivre 90W à 980 nm. Un module de recyclage du faisceau de pompe permet au signal de traverser 24 fois le cristal.



Fig. 1: Montage expérimental et photo d'une tête thin-disk (le recyclage de la pompe n'est pas représenté)



Les meilleurs résultats (fig. 2) ont été obtenus avec un cristal dopé 2%. Nous pouvons considérer que presque la totalité du signal de pompe est absorbée après les 24 passages dans le cristal. Une puissance moyenne de 30W a été mesurée pour une efficacité optique-optique de 32%. Par ailleurs la courbe d'accordabilité large (fig. 3) nous permet d'envisager l'obtention d'impulsions ultracourtes.

Ces résultats prometteurs nous encouragent à continuer à travailler vers la génération d'impulsions femtoseconde.

#### 3. References

- A. Giesen, et al., "Scalable Concept for Diode-Pumped High-Power Solid-State Lasers", Appl. Phys. B 58, 365-372 (1994).
- [2] A. Giesen, et al., "Fifteen Years of Work on Thin-Disk Lasers: Results and Scaling Laws", IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 13, 598-609 (2007).
- [3] J. Neuhaus, et al., "Subpicosecond thin-disk laser oscillator with pulse energies of up to 25.9 microjoules by use of an active multipass geometry", Opt. Express 16, 20530-20539 (2008).
- [4] Y. Zaouter, et al., "47-fs diode-pumped Yb<sup>3+</sup>:CaGdAlO<sub>4</sub> laser", Opt. Letters **31**, 119-121 (2006).
- [5] J. Boudeile, et al., "Continuous-wave and femtosecond laser operation of Yb:CaGdAlO<sub>4</sub> under high-power diode pumping", Opt. Letters **32**, 1962-1964 (2007).

# Performances lasers en pompage par diodes lasers et étude des propriétés thermooptiques à des températures cryogéniques de matériaux lasers dopés à l'ion ytterbium

# Vanessa Cardinali<sup>a,</sup>, Bruno Le Garrec<sup>a</sup>, Emilie Marmois<sup>a</sup> et Gilbert Bourdet<sup>b</sup>

<sup>a.</sup> CEA-CESTA, BP 2, 33 114 LE BARP Cedex, France

<sup>b.</sup> LULI, École Polytechnique, Route de Saclay 91 128 Palaiseau Cedex, France

# Résumé :

Les matrices basées sur des sesquioxydes de terre rare dopées ytterbium sont d'excellents candidats pour les lasers de puissance. Les propriétés optiques et thermiques s'améliorent quand la température du matériau diminue : travailler à la température de l'azote liquide présente de nombreux avantages : les sections efficaces d'absorption et d'émission croissent, le système laser passant progressivement d'un système quasi trois niveaux à un système à quatre niveaux. On montrera en particulier qu'autour de 220K, la compétition entre émission et réabsorption provoque un changement de transition dans les sesquioxydes ( $Y_2O_3$ ,  $Lu_2O_3$ ,  $Sc_2O_3$ ) dopées ytterbium.

La mesure des propriétés thermo-optiques (conductivité thermique, coefficient thermo-optique dn/dT, coefficient de dilatation et sections efficaces d'émission et d'absorption) présente un grand intérêt pour le développement des lasers de puissance, intérêt d'autant plus important que les données de la littérature concernant ces matériaux sont rares à température ambiante et quasiment inexistantes à basse température.

Les méthodes utilisées pour les mesures des différents paramètres thermo-optiques seront détaillées : mesure par dilatomètrie du coefficient d'élongation, mesure interférométrique du coefficient thermo-optique dn/dT, mesure par de la conductivité thermique par la méthode laser flash . Les résultats ainsi obtenus pour des céramiques sesquioxydes dopés Yb, à température cryogénique, seront montrés. On montrera également les résultats expérimentaux obtenus sur des matériaux cristallins comme le YAG et le fluorure de calcium dopés Yb et aussi le verre phosphate dopé Nd.

# Influence de la température sur la section efficace d'émission et sur le fonctionnement laser du Nd:YVO4 à 1064nm.

Xavier Délen,<sup>\*</sup> François Balembois, and Patrick Georges

Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, CNRS, Université Paris-Sud, Campus Polytechnique, RD 128, 91127 Palaiseau Cedex, FRANCE \*Corresponding author: xavier.delen@institutoptique.fr

Ces dernières années, de nombreux systèmes laser haute puissance utilisant des cristaux Nd:YVO<sub>4</sub> avec des puissances de pompe supérieures à 50W ont été démontrés. Les effets induits par le gradient de température et la lentille thermique qui en résulte ont été étudiés intensivement. Par contre, il n'y a que peu de données sur les conséquences de la montée en température absolue [1]. Dans le cadre de ce travail, nous avons enregistré un ensemble de données détaillées sur la gamme de températures opérationnelle d'un milieu laser. De plus, nous avons étudié les effets de la température absolue sur le gain petit signal et les performances du laser.

L'évolution de la section efficace d'émission en fonction de la température a été mesurée indirectement en utilisant la technique de Fuchtbauer-Ladenburg [2]. Un ensemble de 14 spectres a été enregistré pour une gamme de températures allant de 16°C à 80°C. La figure 1 montre la section efficace d'émission normalisée  $\sigma_{em}$  pour une polarisation  $\pi$  et des températures de la monture de 16°C, 50°C et 80°C. Les valeurs sont normalisées par rapport à  $\sigma_{em}(16°C)$ . Cela montre clairement une baisse du maximum de section efficace, l'élargissement de la raie d'émission et le décalage spectral du maximum avec l'augmentation de température. L'augmentation totale de température induit une baisse de 44% du maximum de section efficace. D'après des études précédentes sur d'autres cristaux dopés Nd [3], le maximum de section efficace baisse de 10% à 12% sur notre gamme de température pour le Nd :YAG. Cette valeur est environ trois fois plus faible que celle que nous avons mesurée pour le Nd :YVO<sub>4</sub>. A longueur d'onde fixe  $\lambda_0$  (maximum de section efficace à 16°C), une baisse de 55% a été observée. Cette baisse plus importante est due à la combinaison de deux effets : baisse de section efficace maximale et décalage spectral de ce dernier. La longueur d'onde du maximum de section efficace évolue quasi linéairement sur la gamme de température considérée avec un taux de 3pm/°C.

En utilisant un laser Nd :YVO<sub>4</sub> pompé par diode, nous avons enregistré le gain petit signal en fonction de la température du cristal (figure 1). Pour les mêmes puissances de pompe, l'évolution du gain petit signal avec la température a été calculée en utilisant les données obtenues avec la technique de Fuchtbauer-Ladenburg. Les courbes de gain calculées sont en très bon accord avec les valeurs mesurées et confirment l'influence particulièrement importante de la température sur la section efficace du Nd :YVO<sub>4</sub>. Nous avons aussi observé la longueur d'onde d'émission de notre oscillateur pour laquelle nous avons bien observé la même évolution spectrale que celle du maximum de section efficace.



Fig 1. Gauche: Spectre de section efficace d'émission relative autour de 1064 nm en fonction de la température. Droite: Gain petit signal en fonction de la puissance de pompe absorbée pour différente températures.

Pour conclure, notre étude révèle une variation particulièrement importante de la section efficace d'émission avec la température du Nd : $YVO_4$  pour une gamme de température opérationnelles. Cette baisse observée est beaucoup plus importante que celles données pour le Nd :YAG dans la littérature. La validité de nos résultats est confirmée par une mesure de gain petit signal en fonction de la température. Un décalage spectral du maximum de section efficace a aussi été observé. Notre travail souligne qu'il est important de considérer non seulement les gradients de températures mais aussi la température absolue dans les sources Nd : $YVO_4$ .

Remerciements : Xavier Délen remercie le CNRS et la DGA pour le financement de son doctorat.

[3] J. Dong, A. Rapaport, M. Bass, F. Szipocs, and K. Ueda, "Temperature-dependent stimulated emission cross section and concentration quenching in highly doped Nd<sup>3+</sup>: YAG crystals," Phys. Stat. Sol. (a) **202**, 2565-2573 (2005).

<sup>[1]</sup> G. Turri, H. P. Jenssen, F. Cornacchia, M. Tonelli, and M. Bass, "Temperature-dependent stimulated emission cross section in Nd<sup>3+</sup> : YVO<sub>4</sub> crystals," J. Opt. Soc. Amer. B **26**, 2084-2088 (2009).

<sup>[2]</sup> B. Aull, and H. Jenssen, "Vibronic interactions in Nd:YAG resulting in nonreciprocity of absorption and stimulated emission cross sections," IEEE J. Quantum Electron., **18**, 925-930 (1982).

# IMPULSIONS ATTOSECONDES ET OPTIQUE EXTRÊMEMENT NON-LINÉAIRE

#### Yann Mairesse

<sup>1</sup> CELIA, UMR 5107 (Université Bordeaux I, CNRS, CEA), 351 cours de la libération, 33405 Talence Cedex

mairesse@celia.u-bordeaux1.fr

### Résumé

La génération d'harmoniques d'ordre élevé permet de produire des impulsions lumineuses attosecondes. Nous exposerons les mécanismes à l'oeuvre dans ce processus, les méthodes de caractérisations des impulsions attosecondes, et passerons en revue quelques unes de leurs applications. Nous présenterons également une utilisation alternative de la génération d'harmoniques dans laquelle le processus de génération sert à révéler la structure du milieu émetteur ainsi que ses dynamiques aux échelles femtoseconde et attoseconde.

**MOTS-CLEFS :** *impulsions attosecondes, dynamiques ultra-rapides, spectroscopie moléculaire* 

### **1.** INTRODUCTION

Les impulsions lumineuses ultra-brèves sont les outils de prédilection pour étudier la dynamique de processus ultra-rapides dans la matière, par des expériences de type pompe-sonde. La résolution temporelle de ces expériences est limitée par la durée des impulsions employées. Les durées des lasers visibles ou infrarouges les plus brefs atteignent actuellement quasiment le cycle-optique (2.6 fs à 800 nm). Des phénomènes encore plus rapides existent dans la matière : processus électroniques de coeur au sein des atomes, relaxations électroniques dans les solides, transferts de charge au sein des molécules... Ils se déroulent à l'échelle sub-femtoseconde, et sont inaccessibles aux impulsions laser les plus brèves. Pour les étudier, il faut générer des impulsions attosecondes (1 as =  $10^{-18}$  s) [1].

Pour produire des impulsions brèves, il est nécessaire de disposer d'une source lumineuse dont le spectre est large. La génération d'harmoniques d'ordre élevé, qui a lieu lorsque l'on focalise une impulsion laser femtoseconde à des éclairements de l'ordre de 10<sup>14</sup> W/cm<sup>2</sup> dans un jet de gaz rare, est une source large bande cohérente dans l'UVX [2, 3]. Le spectre obtenu est constitué d'harmoniques impaires du fondamental et présente une zone d'amplitude quasiment constante, le plateau, suivi d'une brusque coupure. Ce phénomène a été découvert à la fin des années 1980. Depuis, des spectres harmoniques s'étendant sur plusieurs centaines d'eV voire au keV ont été produits, ce qui correspond à des durée potentiellement accessibles de l'ordre de quelques attosecondes.

La génération d'harmoniques d'ordre élevé peut être employée de deux manières complémentaires pour mesurer des dynamiques ultra-rapides. D'une part, il est possible de produire des impulsions optiques attosecondes, que l'on refocalise dans le milieu cible où elles initient ou sondent une dynamique. Une approche alternative est apparue ces dernières années : la spectroscopie optique extrêmement nonlinéaire, dans laquelle des paquets d'électrons attosecondes accélérés par le champ laser sondent la structure du milieu générateur. Nous présenterons chacune de ces approches, ainsi que des exemples d'application.

# 2. IMPULSIONS LUMINEUSES ATTOSECONDES : PRODUCTION, CARACTÉRISATION ET UTILISATION

La génération d'harmoniques d'ordre élevé produit a priori naturellement des impulsions attosecondes sous la forme de trains d'impulsions. Cela peut être compris en analysant le mécanisme de production des harmoniques (Fig. 1) : dans un premier temps, la barrière coulombienne est abaissée par

le champ laser intense, permettant une ionisation tunnel. L'électron ainsi libéré est accéléré dans le champ laser, et peut revenir sur l'ion parent. Il se recombine alors, émettant une impulsion UVX. Ce mécanisme est périodique et produit donc un train d'impulsions attosecondes séparés d'une demi-période laser, dont le spectre est constitué des harmoniques impaires du fondamental.



FIGURE 1 : Modèle de la génération d'harmoniques d'ordre élevé.

La caractérisation temporelle expérimentale des impulsions attosecondes est délicate en raison du domaine spectral qu'elles occupent : l'ultra-violet lointain. Les techniques habituellement utilisées dans le visible reposent en effet sur l'utilisation de cristaux non-linéaires, ou de modulateurs de phase. Ces éléments n'ont pas d'équivalent direct dans l'UVX, et la simple transposition des méthodes existantes n'est donc pas aisée. En 2001, deux techniques ont été mises en oeuvre, ouvrant la voie à la métrologie attoseconde. Toutes deux sont basées sur l'ionisation d'un gaz par l'impulsion à caractériser, en présence d'un champ laser additionnel. Dans un cas le champ laser était relativement intense et jouait le rôle de caméra à balayage de fente attoseconde, permettant la mesure d'une impulsion isolée de 650 as [4]. Dans l'autre cas le champ était plus faible, donnant accès à une mesure interférométrique des phase spectrales des harmoniques (méthode RABBITT) permettant de reconstruire un train d'impulsions de 250 as [5]. En fait ces techniques peuvent être considérées comme des cas particuliers d'une méthode générale de caractérisation d'impulsions attosecondes dans laquelle les impulsions UVX sont converties en un paquet d'électrons attosecondes en photoionisant un gaz, et où le champ laser additionnel joue le rôle de modulateur de phase ultrarapide. La métrologie attoseconde se ramène alors à un cas particulier de mesure FROG (Frequency Resolved Optical Gating), bien connue en optique, et qui a reçu le nom de FROG CRAB (Complete Reconstruction of Attosecond Bursts) [6]. FROG CRAB est devenue la méthode standard pour la mesure d'impulsions attosecondes isolées comme de trains d'impulsions attosecondes. Une fois les premières mesures d'impulsions réalisées, une étape importante du développement de l'optique attoseconde a été le contrôle de ces impulsions. Différentes méthodes de contrôle spectral et temporel ont été réalisées.

Les impulsions attosecondes étant contrôlées et caractérisées, de premières expériences d'application ont été proposées et réalisées. Nous établirons un panorama des applications réalisées jusqu'à présent en physique atomique, moléculaire et physique des solides, et discuterons des perspectives futures de métrologie attoseconde optique.

# 3. Spectroscopie optique extrêmement non-linéaire

En 2004, un nouveau domaine d'application de la génération d'harmonique a été ouvert : la spectroscopie optique extrêmement non-linéaire. En spectroscopie optique non-linéaire, des informations sur la structure et la dynamique d'un milieu peuvent être extraites. Le même principe peut être transposé au cas de la génération d'harmoniques, processus extrêmement non-linéaire. Ainsi, une reconstruction tomographique de l'orbitale la plus haute occupée du diazote a été effectuée [7]. L'importante sensibilité de la génération d'harmoniques peut être comprise en examinant le mécanisme de génération : l'émission lumineuse est produite lors de la recombinaison radiative d'un paquet d'ondes électronique attoseconde avec l'ion parent (Fig. 1). La longueur d'onde de de Broglie des électrons se recombinant est de l'ordre de l'Angström, et ces électrons constituent donc une sonde précise du milieu générateur.

A l'échelle femtoseconde, la spectroscopie optique extrêmement non-linéaire a été utilisée pour mesurer des paquets d'ondes rotationnels dans diverses molécules, des paquets d'ondes vibrationnels,

des dissociations moléculaires [8]... Nous exposerons les avantages notabels qu'elle présente par rapport aux techniques de spectroscopie femtoseconde conventionnelles.

A l'échelle attoseconde, cette spectroscopie peut être utilisée pour révèler une éventuelle dynamique de la molécule entre ionisation et recombinaison. La figure 2 présente un exemple dans le cas du diazote. Après ionisation, le trou laissé dans la molécule évolue sous l'action du champ laser. L'analyse fine du rayonnement émis, combinée à une analyse théorique poussée, permet de reconstruire la forme du trou lors de l'ionisation, qui est difficile à prévoir théoriquement [9, 10]. L'extension de ce type de mesures à des systèmes plus complexes permettrait de mesurer les transferts de charge après ionisation.



FIGURE 2 : Dynamique du trou dans une molécule de diazote entre ionisation et recombinaison radiative.

#### CONCLUSION

La génération d'harmoniques d'ordre élevé a connu deux révolutions ces dix dernières années : l'avènement de la physique attoseconde, et la spectroscopie optique extrêmement non-linéaire. Ces deux approches sont complémentaires et devraient permettre d'observer une large gamme de phénomènes à des échelles de temps jusqu'alors inaccessibles.

#### Références

- [1] F. Krausz and M. Ivanov, "Attosecond physics," Rev. Mod. Phys., vol. 81, p. 163, 2009.
- [2] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. McIntyre, K. Boyer, and C. K. Rhodes, "Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 4, p. 595, 1987.
- [3] M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompré, G. Mainfray, and C. Manus, "Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases," *J. Phys. B*, vol. 21, p. L31, 1988.
- [4] M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, "Attosecond metrology," *Nature*, vol. 414, p. 509, 2001.
- [5] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, P. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini, "Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation," *Science*, vol. 292, p. 1689, 2001.
- [6] Y. Mairesse and F. Quéré, "Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts," *Phys. Rev. A*, vol. 71, no. 1, p. 011401, 2005.
- [7] J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Pepin, J. C. Kieffer, P. B. Corkum, and D. M. Villeneuve, "Tomographic imaging of molecular orbitals," *Nature*, vol. 432, no. 7019, p. 867, 2004.
- [8] J. Marangos, S. Baker, N. Kajumba, J. Robinson, J. Tich, and R. Torres, "Dynamic imaging of molecules using high order harmonic generation." *Phys. Chem. Chem. Phys.*, vol. 10, p. 35, 2008.
- [9] O. Smirnova, Y. Mairesse, S. Patchkovskii, N. Dudovich, D. Villeneuve, P. Corkum, and M. Y. Ivanov, "High harmonic interferometry of multi-electron dynamics in molecules," *Nature*, vol. 460, p. 972, 2009.
- [10] Y. Mairesse, J. Higuet, N. Dudovich, D. Shafir, B. Fabre, E. Mevel, E. Constant, S. Patchkovskii, Z. Walters, M. Ivanov, and O. Smirnova, "High harmonic spectroscopy of multichannel dynamics in strong-field ionization," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 104, p. 213601, 2010.

# LE PROJET ILE APOLLON 10 PW : Avancees sur les cristaux de Titane Saphir et de LBO

# Jean Paul Chambaret

Directeur adjoint de ILE UMS 3205, ENSTA Batterie de L'Yvette 91761 Palaiseau Cedex jean-paul.chambaret@ensta.fr

Le projet français ILE APOLLON financé dans le cadre du CPER 2007- 2013 consiste à réaliser et à mettre à disposition de la communauté des physiciens des Ultra Hautes Intensités, un laser (APOLLON 10P) délivrant des impulsions d'une puissance crête de 10 Pétawatts (10<sup>16</sup>W) à une cadence de 1tir par minute. L'énergie par impulsion est de 150 Joules et la durée de 15 femtosecondes. Après focalisation l'éclairement sur cible peut atteindre 10<sup>24</sup> W/cm<sup>2</sup>. Ces performances qui représentent un niveau 10 fois supérieur aux meilleures performances actuelles, nécessitent la résolution de nombreux verrous technologiques, dont certains sont liées à la réalisation de composants optiques cristallins de très grande dimension.

- Le milieu laser amplificateur nécessaire à amplifier de telles impulsions est le saphir dopé au Titane (Ti-Sa). Les plus grands diamètres n'excédaient pas à l'origine de ce projet 10 cm alors que le besoin en monocristaux de TiSa se situe plutôt autour de disques de 20 cm de diamètre. Nous décrirons les études et les recherches qui ont été mises en place pour atteindre ces objectifs, ainsi que le démarrage d'une filière française très prometteuse comme nouvel axe de croissance et de développement de ces cristaux de TiSa.

- Les lasers de pompage nécessaires à fournir l'énergie à ces cristaux sont des lasers nanoseconde à Néodyme Verre émettant dans l'infra rouge et qui doivent être doublés en fréquence, car le Tisa absorbe dans le vert. Les besoins sont de l'ordre de 200 Joules par faisceau à 532 nm et il est évident que le coût de ces lasers de grande dimension est très lié à l'énergie délivrée à 1064 nm. Au lieu d'utiliser des cristaux de KDP dont les rendements atteignent difficilement 50%, il serait souhaitable d'utiliser des cristaux de LBO avec lesquels des rendements supérieurs à 90% ont déjà été validés. Ces cristaux sont accessibles aujourd'hui sur des diamètres n'excédant pas 40 mm. Nous présenterons les récents résultats obtenus avec la société française Cristal Laser permettant d'envisager l'utilisation de cristaux de LBO de 65 mm capables de délivrer plus de 215 Joules à 532 nm à partir de 235 joules à 1064 nm soit avec un rendement supérieur à 90%.

# CAVITY OPTOMECHANICS: BACK-ACTION COOLING OF MECHANICAL OSCILLATORS

### **Tobias J. Kippenberg**

### Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, CH-1015 Lausanne, Suisse

#### tobias.kippenberg@epfl.ch

The mutual coupling of optical and mechanical degrees of freedom via radiation pressure has been a subject of interest in the context of quantum limited displacements measurements for Gravity Wave Detection for many decades, however light forces have remained experimentally unexplored in such systems. Recent advances in nano- and micro-mechanical oscillators have for the first time allowed the observation of radiation pressure phenomena in an experimental setting and constitute the emerging research field of Cavity Optomechanics [1].

Using on-chip micro-cavities that combine both optical and mechanical degrees of freedom in one and the same device [2], radiation pressure back-action of photons is shown to lead to effective cooling [3-6] of the mechanical oscillator mode using dynamical backaction, which has been predicted by Braginsky as early as 1969 [4]. This back-action cooling exhibits many close analogies to atomic laser cooling. For instance, it is shown theoretically that only in the resolved sideband regime, cooling to the quantum ground state is possible. With this novel technique the quantum mechanical ground state of a micromechanical oscillator can be reached. Using cryogenic precooling [7] to 600 mK the preparation of a micromechanical oscillator to only 2 quanta is shown, occupying the quantum ground state 50% of the time. Moreover it is possible in this regime to observe strong coupling in which the mechanical and optical mode hybridize. Moreover the optomechanical interaction allows unprecedented sensitivity of reading out mechanical motion, achieving an imprecision below the level of the zero point motion [8,9].

Optomechanical systems also offer entirely new means to control the light field. Using the recently discovered phenomenon of optomechanically induced transparency [10] it is possible to enable devices that store light in mechanical excitations, or create optical delay lines with unpredecented delay time. Recent highlights of the literature of some of the emerging applications of cavity optomechanics will be reviewed.

#### REFERENCES

- [1] T. J. Kippenberg, K. J. Vahala, Science 321, 1172 (2008).
- [2] T. J. Kippenberg, H. Rokhsari, T. Carmon, A. Scherer, K. J. Vahala, Physical Review Letters 95, 033901 (2005).
- [3] V. B. Braginsky, S. P. Vyatchanin, Physics Letters A 293, 228 (2002).
- [4] V. B. Braginsky, Measurement of Weak Forces in Physics Experiments. (University of Chicago Press, Chicago, 1977).
- [5] A. Schliesser, P. Del'Haye, N. Nooshi, K. J. Vahala, T. J. Kippenberg, Physical Review Letters 97, 243905 (2006).
- [6] A. Schliesser, R. Riviere, G. Anetsberger, O. Arcizet, T. J. Kippenberg, Nature Physics 4, 415 (2008).
- [7] A. Schliesser, O. Arcizet, R. Riviere, T. J. Kippenberg, Nature Physics 5, 509 (2009).
- [8] G. Anetsberger et al., Nature Physics 5, 909 (2009).
- [9] A. Schliesser, O. Arcizet, R. Riviere, G. Anetsberger, T. J. Kippenberg, Nature Physics 5, 509 (2009).
- [10] S. Weis et al., Science 330, 1520 (2010).

# OPOS OP-GAAS INFRAROUGES POMPÉS À 2 µM

C. Kieleck<sup>1</sup>, M. Eichhorn<sup>1</sup>, A. Hildenbrand<sup>1</sup>, G. Stöppler<sup>1</sup>,

E. Lallier<sup>2</sup>, D. Faye<sup>2</sup>, A. Grisard<sup>2</sup>, B. Gerard<sup>3</sup> et S.D. Jackson<sup>4</sup>

<sup>1</sup> Institut franco-allemand de recherches de Saint-Louis, 5 rue du Général Cassagnou, BP 70034, 68301 SAINT-LOUIS Cedex, FRANCE

<sup>2</sup> Thales Research and Technology France (TRT), RD 128, 91767 Palaiseau, France

<sup>3</sup> Alcatel-Thales 3-5 Lab, RD 128, 91767 Palaiseau Cedex, France

<sup>4</sup> Institute of Photonics and Optical Science, School of Physics, University of Sydney, NSW 2006.Australia

christelle.kieleck@isl.eu

### Résumé

Les performances d'OPOs GaAs à quasi-accord de phase pompés par des lasers à 2 µm sont présentés. Ils adressent différentes applications civiles ou militaires. *MOTS-CLEFS : arséniure de gallium, quasi-accord de phase, infrarouge, optique non linéaire.* 

#### **INTRODUCTION**

Des rayonnements cohérents dans l'infrarouge moyens coïncidant avec les bandes de transmission atmosphérique ou avec des spectres d'absorption de molécules offre un large potentiel d'applications civiles et militaires tels que le lidar, des applications chirurgicales peu invasives ou les contre-mesures optroniques par exemple. Ces longueurs d'onde dans l'infrarouge moyen sont obtenues en convertissant des rayonnements laser émis par des sources matures et puissantes via des matériaux optiques non linéaires.

Les progrès de croissance de l'Arséniure de Gallium à quasi-accord de phase (OP-GaAs) à faibles pertes permettent de profiter des propriétés du GaAs pour en faire un matériau non linéaire attractif dans le moyen infrarouge [1]. Son coefficient non linéaire d'ordre 2 élevé, ses excellentes propriétés thermiques et mécaniques ainsi que son domaine de transparence qui s'étend de 1  $\mu$ m à 16  $\mu$ m le rende concurrentiel du cristal de ZnGeP<sub>2</sub> bien que les énergies accessibles soient actuellement limitées par l'épaisseur des cristaux (~ 1 mm).

#### **RESULTATS**

Un laser  $\text{Ho}^{3+}$ :YAG déclenché par un modulateur acousto-optique à plusieurs dizaines de kHz permet de générer des impulsions de quelques dizaines de nanosecondes et de pomper un OPO OP-GaAs vers 2.09 µm [2] selon le schéma de la figure 1(a). Jusqu'à 7.7 W moyens ont été obtenus à 100 kHz entre 3 et 5 µm [3]. A 40 kHz, pour 2.4 W, les facteurs de qualité M<sup>2</sup> des faisceaux signal et compémentaire sont < 1.8.



Fig. 1 : Schéma du montage laser Ho<sup>3+</sup>:YAG pompant un OPO OP-GaAs (a) et puissance OPO obtenue en fonction de la puissance de pompe (b)

Le laser  $\text{Ho}^{3+}$ :YAG impulsionnel, polarisé, pompé par un laser  $\text{Tm}^{3+}$ :fibre commercial a été remplacé par un laser à fibre codopé  $\text{Tm}^{3+}$ , $\text{Ho}^{3+}$  déclenché à des cadences variant de 40 à 75 kHz. A 40 kHz, 2.2 W d'OPO entre 3 et 5 µm ont été émis et 1.3 W à 75 kHz. Les performances sont limitées par la puissance des diodes de pompe [4]. Des travaux sur les fibres elles-mêmes ainsi que sur les lasers à fibres déclenchés sont à poursuivre pour limiter les pertes et optimiser les rendements.



Fig. 2 : Schéma du montage laser à fibre Tm<sup>3+</sup>,Ho<sup>3+</sup> pompant un OPO OP-GaAs (a) et puissance OPO obtenue en fonction de la puissance de pompe (b)

Un mode vibrationnel de l'amide II absorbe à 6.45  $\mu$ m et la génération de cette longueur d'onde permet d'envisager des applications chirurgicales peu invasives. Un laser Tm<sup>3+</sup>:YAG déclenché par une cellule électro-optique à une cadence de 100 Hz émet à 2.012  $\mu$ m et pompe un OPO OP-GaAs [5]. 6  $\mu$ J à 100 Hz ont été obtenus (signal+ complémentaire). L'optimisation des caractéristiques du laser de pompe associée à la réduction des pertes dues aux traitements optiques aux longueurs d'onde d'intérêt permettront d'améliorer les performances.

# CONCLUSIONS

Différents laser dopés,  $Tm^{3+}$ ,  $Ho^{3+}$  ou codopé  $Tm^{3+}$ , $Ho^{3+}$  ont permis le pompage efficace d'OPOs émettant dans l'infrarouge moyen. Des progrès sur les sources à fibres déclenchées à 2  $\mu$ m ainsi que sur les cristaux OP-GaAs devraient permettre de réduire les pertes et d'accroitre les énergies accessibles pour proposer des designs compacts de sources infrarouges efficaces.

### REMERCIEMENTS

L'ISL remercie la Délégation Générale pour l'Armement (contrats 2008 92 0909 et 2007 92 0904) et la Communauté Européenne (projet MIRSURG, <u>http://www.mirsurg.eu</u>, Grant Agreement No. 224042) pour les financements partiels de ces travaux.

#### Références

[1] D. Faye, A. Grisard, E. Lallier, B. Gerard, M. Avella, J. Jiménez, "Distribution of point defects in orientation-patterned GaAs crystals: A cathodoluminescence study", Appl. Phys. Lett. 93, 151115 (2008)

[2] C. Kieleck, M. Eichhorn, A. Hirth, D. Faye, E. Lallier, "High-efficiency 20–50 kHz mid-infrared orientation-patterned GaAs optical parametric oscillator pumped by a 2  $\mu$ m holmium laser", Optics Letters, 34 (3), 262-264, (2009)

[3] A. Hildenbrand, C. Kieleck, M. Eichhorn, E. Lallier, D. Faye, A. Grisard, B. Gerard, "7,7 W à 100 kHz en sortie d'un OPO OP-GaAs pompé par laser Ho<sup>3+</sup>:YAG", JNCO, (2011)

[4] C. Kieleck, M. Eichhorn, D. Faye, E. Lallier and S. D. Jackson, "Polarization effects and fiber-laserpumping of a 2-μm-pumped OP-GaAs OPO", Photonics West 2010, 7582-36, (2010)

[5] G Stöppler, C. Kieleck, M. Eichhorn, "High-Pulse Energy Q-switched Tm<sup>3+</sup>:YAG Laser for Nonlinear Frequency Conversion to the Mid-IR", Proc. SPIE 7836, 783609 (2010).

# Imagerie quantique par amplification paramétrique dans les cristaux non linéaires quadratiques

#### **Fabrice Devaux\***, Eric lantz

Institut FEMTO-ST, Département d'Optique P.M Duffieux CNRS-UMR n°6174, Université de Franche-Comté, 25030 Besançon, France \* fabrice.devaux@univ-fcomte.fr

**Résumé abrégé** : Nous présentons un panorama de l'imagerie quantique et de ces applications. L'accent sera mis plus particulièrement sur les applications mettant en œuvre les propriétés quantiques de l'amplification paramétrique ou exploitant les propriétés spatiales des paires de photons jumeaux produits par émission paramétrique spontanée dans les cristaux non linéaires quadratiques.

Mots-clés : imagerie quantique, photons jumeaux, corrélation quantique, intrication spatiale.

#### Résumé plus étendu :

Depuis une quinzaine d'années, dans le domaine de l'optique quantique, l'imagerie quantique s'est révélée comme une solution pertinente pour dépasser les limites de l'imagerie classique grâce aux propriétés spatiales des états quantiques de la lumière. Des applications telles que l'amplification d'images sans bruit [1] ou d'images de très faible niveau [2], l'amélioration du rendement quantique d'une caméra [3], la détection d'objets faiblement absorbants [4], l'intrication spatiale d'images [5], l'amélioration de la résolution des images [6] ou le positionnement spatial de faisceau avec une précision sous poissonienne [7] ont été proposées et réalisées expérimentalement.

La plupart de ces applications mettent à profit les propriétés quantiques de l'interaction paramétrique (processus non linéaire de mélange à trois ondes) dans les milieux cristallins non linéaires quadratiques. Notamment, dans ces cristaux, l'interaction entre une onde lumineuse et le milieu donnent naissance, sous certaines conditions, à l'émission par le milieu non linéaire de paires de photons corrélés (appelés fluorescence paramétrique ou émission paramétrique spontanée) à la fois dans le domaine spatial [8] et dans le domaine temporel. La simplicité de mise en œuvre de ces sources de photons jumeaux, fait de ce type de sources un outil de choix pour l'imagerie quantique.

Lors de cet exposé, un panorama de l'imagerie quantique sera présenté et l'accent sera mis plus particulièrement sur les expériences caractérisant les fluctuations spatiales au niveau quantique des images issues soit de l'amplification paramétrique optique soit des sources de photons jumeaux que sont les cristaux non linéaires quadratiques.

#### **Références :**

[1] A. Mosset et al., Phys. Rev. Lett. 94 (2005) 223603

- [2] S. Brustlein et al., Journal of Modern Optics, 53 (2006) 799-807.
- [3] F. devaux et al., Opt. Lett., 32 (2007) 175-177.
- [4] G. Brida et al., Nature Photonics, **4** (2010) 227-230
- [5] P. Navez et al., Phys. Rev. A, 65 (2001) 013813.
- [6] M.I. Kolobov et al. Phys. Rev. lett.85 (2000)3789-3792.
- [7] N. Treps et al,. Science301(2003), 940-943.
- [8] J.L. Blanchet et al., Phys. Rev. A, 81 (2010) 43825.

# DEMONSTRATION DES CORRELATIONS QUANTIQUES DE TRIPLETS DE PHOTONS

A. Dot<sup>1</sup>, K. Bencheikh<sup>1</sup>, B. Boulanger<sup>1</sup>, A. Lenvenson<sup>2</sup>, P. Segonds<sup>1</sup>, C. Félix<sup>3</sup>

 Institut Néel, CNRS / Université Joseph Fourier, BP 166, 38402 Grenoble, France
 Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, CNRS, 91460 Marcoussis, France

audrey.dot@grenoble.cnrs.fr

### Résumé

Nous mettons en évidence des corrélations quantiques entre des photons triplets générés directement par conversion de fréquence d'ordre 3. Nous considérons plusieurs protocoles, y compris la recombinaison des 3 photons et les 3 recombinaisons par paires.

**MOTS-CLEFS :** *optique non linéaire, corrélations quantiques, interactions à quatre ondes* 

La Génération de Triplets de Photons (TPG) correspond à la scission d'un photon parent en trois photons d'énergie moindre dans un matériau non linéaire d'ordre trois [1, 2]. C'est la façon la plus directe d'obtenir un état quantique pur à trois photons, plutôt que d'utiliser deux paires intriquées comme proposé historiquement par Greenberger-Horne-Zeilinger (GHZ) [3]. En 2004, notre groupe a réalisé la première expérience de TPG dans un cristal de KTP, l'interaction d'ordre trois étant stimulée par injection de deux champs incidents [4]. Nous présentons ici des calculs quantiques originaux correspondant à des protocoles compatibles avec nos expériences en cours, visant à mettre en évidence les corrélations quantiques des triplets de photons. Ils reposent sur le principe de recombinaison des photons des triplets dans un cristal non linéaire par génération de somme de fréquences (SFG) à deux ou trois champs, et sur l'étude du champ recombiné ainsi généré.

Ce protocole permet de discriminer les photons d'injection des photons triplets, ce qui est nécessaire étant donné qu'à la sortie du cristal générateur, les champs sont dans un état mixte, ne permettant donc pas l'isolation des seuls photons triplets. De plus, ce type de protocole avait été appliqué avec succès aux photons jumeaux [5]. Dans notre cas, il convient d'envisager plusieurs *scenarii*, c'est-à-dire la recombinaison des trois champs, et les trois recombinaisons des champs par paires. Le but est alors de prouver que le champ recombiné à partir des champs triplets contient des informations sur les corrélations des photons de ces champs parents.

Les calculs ont été menés en quantifiant tous les champs, leur distribution en fréquence étant considérée gaussienne, et dans l'approximation de l'onde plane et de gain faible. La résolution analytique des équations du mouvement a donné l'évolution des opérateurs de champ quantique des triplets de photons en tout point du cristal non linéaire, en représentation d'Heisenberg. Les champs ont ensuite été recombinés en leur appliquant l'opérateur somme de fréquence adéquat. Le champ recombiné comporte des caractéristiques différentes selon les schémas de recombinaison considérés, et selon l'intensité des champs stimulants. Dans tous les cas, les calculs quantiques génèrent des champs d'allure spectrale différente de ceux qui seraient obtenus classiquement, c'est-à-dire dans le cas de recombinaison de champs indépendants. En exemple, figure 1 donne l'allure spectrale du champ recombiné par somme de fréquences des trois champs triplets, la TPG étant stimulée par 10<sup>5</sup> photons, et le cristal (KTP) étant pompé à 10<sup>15</sup> photons.



Fig 1 : Spectre du champ recombiné à partir des trois champs triplets.

Le pic est le spectre exact du champ pompe, issu de la recombinaison de tous les photons qui se «reconnaissent » les uns les autres de leur triplet, mettent en évidence le lien quantique qu'ils partagent. Le fond gaussien provient de la recombinaison de photons n'ayant pas de lien entre eux : il est donc équivalent au spectre de recombinaison classique des champs. L'allure globale de la courbe de la figure 1 est proche du résultat obtenu dans le cas de photons jumeaux [5]. Les calculs correspondants à tous les autres *scenarii* décrits plus hauts ont été menés, chacun d'eux permettant de révéler différents aspects du caractère quantique des triplets. Les expériences correspondantes sont en cours.

# Références

- D. M. Greenberger, M.A. Horne, A. Shimony, A. Zeilinger, "Bell's theorem without inequalities", Am. J. Phys. 58, 1131-1143 (1990).
- [2] K. Banaszek, P. Knight, "Quantum interference in three-photon down-conversion", Phys. Rev.A 55,2368-2375 (1997).

[3] H. Hubel, D. Hamel, A. Fedrizzi, S. Ramelow, K. Resch, T. Jennewein, "Direct generation of photon triplets using cascaded photon pair sources", Nature 266, 601-603 (2010).

[4] J. Douady, B. Boulanger, "Experimental demonstration of a pure third-order optical parametric downconversion", Opt.Lett.29, (2004).

[5] B. Dayan, "Theory of two-photon interactions with broadband down-converted light and entangled photons", Phys. Rev. A 76, (2007).

# LASER ZNSE:CR<sup>2+</sup> PICOSECONDE ACCORDABLE A VERROUILLAGE DE MODES PAR MIROIR NON LINEAIRE

# Jean-Baptiste Dherbecourt<sup>1</sup>, Adrien Denoeud<sup>1</sup>, Jean-Michel Melkonian<sup>1</sup>, Myriam Raybaut<sup>1</sup>, Antoine Godard<sup>1</sup>, Michel Lefebvre<sup>1</sup> et Emmanuel Rosencher<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> ONERA – the French Aerospace Lab, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau cedex <sup>2</sup> École Polytechnique, Département de Physique, RD 128, 91127 Palaiseau cedex

jean-michel.melkonian@onera.fr

# RÉSUMÉ

Nous présentons le verrouillage de modes d'un laser  $ZnSe:Cr^{2+}$  au moyen d'un miroir non linéaire intracavité basé sur un cristal de PPLN de type fan-out. Cette approche permet d'ajuster à la demande la longueur d'onde de fonctionnement du miroir non linéaire et ainsi d'obtenir un fonctionnement picoseconde accordable sur plus de 100 nm.

**MOTS-CLEFS :** *lasers à verrouillage de modes, lasers infrarouge, mélange et génération d'harmoniques, dispositifs optiques non linéaires* 

# 1. INTRODUCTION

Les sources laser picoseconde largement accordables présentent un fort intérêt pour les applications de spectroscopie résolue en temps, en particulier dans l'infrarouge moyen où de nombreuses molécules présentent des raies rovibrationnelles spécifiques. A titre d'exemples on peut citer la spectroscopie Raman pour le secteur médical ou l'industrie [1,2], et la caractérisation résolue en temps de détecteurs infrarouges [3]. Parmi les rares systèmes laser permettant l'émission direct dans l'infrarouge moyen, ZnSe:Cr<sup>2+</sup> se détache actuellement car il bénéficie d'une bande de gain exceptionnellement large (2–3,2 µm) ainsi que d'autres propriétés favorables à un fonctionnement laser efficace [4]. Actuellement, l'effort a principalement porté sur le verrouillage de modes passif par effet Kerr ou au moyen de SESAM en vue d'obtenir des impulsions femtoseconde les plus courtes possibles. En revanche, l'obtention d'un fonctionnement largement accordable en régime picoseconde à faible largeur de raie (limitée par transformée de Fourier) n'a pas encore été démontrée.





#### JNCO\_5 : Optique non-linéaire 1

À cette fin, nous utilisons une approche alternative de verrouillage de modes basée sur un miroir non linéaire (MLN) intracavité [5]. Le MLN est constitué d'un cristal non linéaire de PPLN de type fan-out associé à un miroir dichroïque partiellement réfléchissant à la longueur d'onde laser et totalement réfléchissant à sa seconde harmonique (cf. Fig. 1). En ajustant la phase relative entre les ondes lors du deuxième passage dans le cristal au moyen d'une lame dispersive prismatique, le rayonnement de seconde harmonique est reconverti vers le laser. Le MNL est alors équivalent à un absorbant saturable rapide bien adapté au verrouillage de modes. De plus, la souplesse offerte par le cristal de PPLN permet d'ajuster la longueur d'onde de fonctionnement sur la plage 2,44–2,56  $\mu$ m et donc de préserver les propriétés d'accordabilité de ZnSe:Cr<sup>2+</sup> tout en réalisant le verrouillage de modes (cf. Fig. 2).



Fig. 2. Caractéristique entrée-sortie (gauche), et accordabilité du verrouillage de modes droite).

Le verrouillage de modes auto-démarrant est obtenu pour une puissance de pompe supérieure à 4,3 W ; la puissance moyenne émise est de 350 mW pour une puissance de pompe incidente de 6 W issue d'un laser à fibre dopé thulium émettant à 1,9 µm. La durée des impulsions est de l'ordre de 85 ps, mesurée au moyen d'un auto-corrélateur par absorption à deux photons. Nous discuterons des en détails des performances du présent montage et des améliorations possibles pour la montée en puissance.

Ce travail a bénéficié d'un financement de la Région Ile-de France.

### REFERENCES

[1] B. G. Saar, G. R. Holtom, C. W. Freudiger, C. Ackermann, W. Hill, and X. S. Xie, Opt. Express 17, 12532-12539 (2009).

[2] T. R. Meyer, S. Roy, and J. R. Gord, Appl. Spectroscopy 61, 1135-1140 (2007).

[3] K. L. Vodopyanov, H. Graener, C. C. Phillips, T. J. Tate, Phys. Rev. B 46, 13194-13200 (1992).

[4] E. Sorokin, S. Naumov and I.T.Sorokina, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 11 (3), pp. 690-712 (2005)

[5] K. A. Stankov, Appl. Phys. B 45, 191-195 (1988).

# GIANT MICROPHOTONICS: LARGE APERTURE PPMGLN

# Takunori Taira

#### Institute for Molecular Science, 38 Nishigonaka, Myodaili, Okazaki 444-8585 Japan

taira@ims.ac.jp

### Résumé

Using a large aperture (5-mm-thick) periodically poled 5-mol% MgO doped LN (LA-PPMgLN), we have demonstrated an efficient high-energy OPO: the maximum parametric total output energy was up to 179-mJ and 72-% slope efficiency. Finally mJ level high brightness tunable mid-IR ( $\lambda$ =5~11- $\mu$ m,  $\Delta\lambda$ <1.5-cm<sup>-1</sup>) was realized in ZnGeP<sub>2</sub> based differential frequency generation (ZGP-DFG) with LA-PPMgLN based OPO. On the other hand, the LA-PPMgLN allows us a highly efficient broadband OPCPA to produce 15.7-fs (2-cycle) 740- $\mu$ J pulses at the 2.1- $\mu$ m carrier wavelength. Recent results in our laboratory will be presented as well.

#### 1. INTRODUCTION

*"Micro Solid-State Photonics"* based on micro domain and their boundary controlled photonic devices by the electro-magnetic field has been studied. Engineered compact solid-state optical devices allow reliable, efficient and multi-functional light sources. Especially, interest in quasi-phase matched (QPM) devices has increased due to their advantages over birefringent-phase matching (BPM) method [1]. A significant advantage of QPM is that any interaction within the transparency range of the material, even interactions for which BPM is impossible, can be non-critically phase matched at a specific temperature. Using various electric-field poling techniques, periodically-poled LiNbO<sub>3</sub> (PPLN) for high-efficiency nonlinear wavelength conversion has been demonstrated: due to its large electro-optical, piezoelectric and nonlinear-optical effects, the applications include signal processing for optical communications and ultrafast pulse generation and shaping. Lately, attention has been directed toward the periodically poled structured MgO-doped congruent LiNbO<sub>3</sub> (PPMgLN), due to its higher resistance to photorefractive damage and much lower coercive field compared with LN. In this talk we will discuss the ability of MgLN to be patterned in a QPM structure and will review the results in some of the recent applications.

#### 2. FABRICATION

From the point of view of nonlinear coefficient ( $\sim$ 25.0 pm/V) and an appropriate coercive field ( $\sim$ 4.5 kV/mm), MgLN is a suitable material for large cross-sections QPM devices that can be

used for highly efficient, high-power and/or short pulse operation. However, the nature of charge concentration during the poling process hinders patterning of the periodically poled QPM structure. In order to overcome this limitation a multi-pulse field poling technique for large cross-section MgLN was developed [2]. Also, the coercive field necessary to invert the crystal polarization was drastically reduced at an elevated temperature of 250°C: the coercive field was 1.2 kV/mm, which is about 1/4 compared with that for MgLN at room temperature (RT), and about 1/17 of that for LN at RT. High-voltage pulses of ~17 kV (electric field of ~3.4 kV/mm) were applied to the crystal through the electrode at the elevated



Fig. 1. Photographs of etched surface: (a) Y face from +z surface to -z surface, (b)  $z_d=1.0$  mm, (c)

temperature of 120 °C in an insulation-oil bath. The obtained periodic structures were examined by HF etching as shown in Fig. 1. Figure 1(a) shows the periodic structure penetrating from the +z surface to the -z surface with a 32.1 µm period. Figures 1(b)–1(d) show periodic structures at each  $z_d$ , which indicates the depth from the +z surface [3].

#### 3. VIS AND UV GENERATION

Continuous-wave (cw) high-power green light generation at RT has been obtained in a single-pass frequency-doubling configuration with bulk PPMgLN device placed outside a diode end-pumped Nd:GdVO<sub>4</sub> laser. The PPMgLN samples of 6.95-µm domain period, uniform periodicity, and 50% duty cycle along the entire crystal length are fabricated by use of a highvoltage multi-pulse poling method. A maximum power of 1.18 W at 531 nm with 16.8% conversion efficiency is obtained from a 2-mm-thick, 25-mm-long PPMgLN; the corresponding internal green power and conversion efficiency are 1.38 W and 19.6%, respectively, whereas the normalized conversion efficiency is 3.3%/W [4]. Periodically-poled MgO:LiNbO<sub>3</sub> devices offer damage threshold much higher than non-doped LN, larger nonlinear susceptibilities and wider transparency range. Thus, employing a PPMgLN with uniform domain period ( $\Lambda$ ) of micron-order width and 50% duty cycle along the entire crystal length, cw UV radiation at 354 nm, the third harmonics of Nd:GdVO<sub>4</sub> reported from single-pass cascaded [5]. Initially, second-harmonic generation of the 1063 nm Nd:GdVO<sub>4</sub> micro-laser at 2.1%/W conversion efficiency, producing 1.15 W at 531 nm, is obtained from a 10-mm-long PPMgLN with  $\Lambda$ =6.95 µm. Sum frequency mixing of this 531 nm light with the residual 1063 nm fundamental radiation in a 3.6-mm-long PPMgLN with  $\Lambda$ =1.78 µm produces 47 mW of UV with 3.9%/W/cm normalized conversion efficiency.

#### 4. MIR GENERATION

The advent of QPM materials such as PPLN, combined with the development of new laser

sources based on solid-state technology, have led to the practical realization of optical parametric oscillation (OPO) devices with previously unattainable performance capabilities; they include the singly resonant cw OPOs and the low-threshold tunable pulsed OPOs. However, high power applications were limited due to its poor photorefractive damage threshold and high coercive field. Successfully developed large-aperture periodically poled Mg-doped LiNbO<sub>3</sub> (LA-PPMgLN) has benefits to increase the acceptable incident energy, and we demonstrated a high-energy 2.1 µm degenerated OPO of total output energy of 110 mJ with 75% slope efficiency (Fig. 2) pumped by a Q-switched 10-ns pulse Nd:YAG laser [6]. We also have demonstrated broad mid-infrared (MIR) DFG in a ZGP crystal pumped by a high-energy optical parametric system based on



Fig. 2. Total output energy and conversion efficiency of degenerate PPMgLN OPO with a 40% reflection OM output coupler at free-running operation. The inset graph shows the OPO output peak wavelength on the holder temperature around the 2  $\mu$ m region. The dotted curve presents a tuning curve calculated by the Sellmeier



Fig. 3. (Color online) Experimental setup of the ZGP-DFG system. The ZGP-DFG system was pumped with a 2.1 µm narrow-bandwidth LA-PPMoLN-based parametric MOPA system and seeded with a tunable LN-DFG system

OPM large-aperture device. The а experimental setup of the ZGP-DFG system is shown in Fig. 3. We constructed a spectrally narrowed 2 µm parametric master oscillator-power amplifier (MOPA) system with LA-PPMgLN as a pump source for the ZGP DFG system. An L-shaped compact master OPO (MO) was constructed, consisting of a volume Bragg grating (VBG) and an additional 300 GHz (finesse ~6) etalon in the MO cavity. The LA-PPMgLN device ( $\Lambda$ =32.3 µm) has a length of 38 mm and an aperture of 5 mm x 5 mm. For the 2.128 µm degenerated OPO, the temperature of the device was tuned to 40°C±0.1°C. For amplifying the MO output we used another LA-PPMgLN device with the same size and period as that of the MO. Stable narrow bandwidth 30 mJ (max. 61mJ) amplified pulses were used for



Fig. 4. (Color online) Tuning characteristics of the ZGP-DFG system (closed circles) and the LN-DFG system (open circles). Inset shows the intensity distribution of the ZGPDFG

pumping. Figure 4 shows the ZGP (10-mm-long type I crystals) DFG output energy versus wavelength estimated from the LN-DFG (tunable signal) and MOPA wavelength. The ZGP-DFG system could be tuned continuously from 4.6 to 11.2  $\mu$ m (the Gaussian fitted spectral bandwidth: ~1.6 cm<sup>-1</sup>) with a maximum output energy of 2.0 mJ at 5.1  $\mu$ m. The measured beam intensity distribution is shown in the Fig. 4 inset. This spectrum successfully proves our ZGP-DFG system pumped with QPM devices to be applicable to many sophisticated laser spectroscopies in the MIR frequency region, such as double-resonance spectroscopies of molecular clusters in a supersonic jet expansion [7, 8].

### 5. OPTICAL PARAMETRIC AMPRIFICATION FOR HHG

The LA-PPMgLN based optical parametric chirped pulse amplification (OPCPA) could be found to have advantages for the high-harmonic generation (HHG) in a noble gas to generate attosecond pulses of photon energies up to ~100eV. The cutoff energy in the high-harmonic spectrum is given in atomic units by the formula  $I_p + 3.17U_p$ , where  $I_p$  is the atom's ionization potential, and  $U_p = E^2 / 4\omega^2$  is the ponderomotive potential, where *E* is the driver laser's field strength, and  $\omega$  is the frequency. It has been suggested and recently demonstrated that using a longwavelength driver, coherent x-ray photon energy cutoff can be significantly extended. The wavelength-scaling law of the HHG yield remains of interest in theoretical investigation, and a recent paper shows that favorable phase-matching can be realized for MIR drivers. By using LA-PPMgLN for power CPA, we have produced carrier-envelope-phase-stable 15.7-fs (2-cycle) 740-µJ pulses at the 2.1-µm carrier wavelength, from a three-stage optical parametric chirped-pulse amplifier system, pumped by an optically synchronized 49-ps 11-mJ Nd:YLF laser. A novel seed pulse spectral shaping method is used to ascertain the true amplified seed energy and the parametric superfluorescence levels [9].

#### CONCLUSION

- A structure for quasi-phase matching of 5mm x 5mm large aperture using 5 mol% MgOdoped periodically poled LiNbO<sub>3</sub> (LA-PPMgLN) for high-power wavelength conversion was realized by multi-pulse field poling techniques at elevated temperature.
- A free-running degenerate LA-PPMgLN OPO pumped by a *Q*-switched 1.064µm Nd:YAG laser exhibits maximum output pulse energy of 110 mJ with high slope efficiency of 75%

around room temperature. Broad spectral bandwidth ( $\Delta\lambda$ ~100 nm) around the degeneracy wavelength was suppressed by using a VBG as an output coupler.

- A tunable, narrow-bandwidth (<2 cm<sup>-1</sup>) MIR optical parametric system with the LA-PPMgLN based high-energy pump source has been developed: a continuously tunable tuning range from 4.6 to 11.2  $\mu$ m producing a maximum output energy of 2.0 mJ at 5.1  $\mu$ m. Practical use of the MIR source is demonstrated by MIR-UV double-resonance spectroscopy of jet-cooled acetanilides.
- The generation of 2-cycle (15.7-fs), 740- $\mu$ J pulse at the carrier wavelength of 2.1  $\mu$ m and the repetition rate of 1 kHz, from a broadband OPCPA system based on the LA-PPMgLN. A novel method of seed spectral shaping is used to solve the nontrivial problem of determining the true super fluorescence level and the amplified signal energy from the total pulse energy of 920  $\mu$ J.
- We are validating the theory of angular quasi-phase-matching (AQPM) by performing measurements of second harmonic generation and difference-frequency generation. A nonlinear least-squares fitting of these experimental data led to the refining of the Sellmeier equations of 5 mol% PPMgLN that are now valid over the complete transparency range of the crystal. We also demonstrated that AQPM exhibits complementary spectral ranges and acceptances compared with birefringence phase matching [10].

### ACKNOWLEDGMENTS

This work could not be done without continuous efforts and fruitfull discussions with various research groups from Japan and abroad. The author would like to thank Dr. H. Ishizuki of Institute for Molecular Science, Dr. J. Saikawa of Shimazu Co., Prof. M. Fujii of Tokyo Institute of Technology, Prof. Ferenc Krausz of Max-Planck-Institute of Quantum Optics, and Prof. B. Boulanger of Institut Néel CNRS/UJF.

# Références

[1] M.M. Fejer, G.A. Magel, D.H. Jundt, and R.L. Byer, "Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances," IEEE J. Quantum Electron. 28, 2631 (1992).

[2] H. Ishizuki, I. Shoji, and T. Taira, "Periodical poling characteristics of congruent MgO:LiNbO<sub>3</sub> crystals at elevated temperature," Appl. Phys. Lett. 82, 4062 (2003).

[3] H. Ishizuki and T. Taira, "High-energy quasi-phase-matched optical parametric oscillation in a periodically poled MgO:LiNbO<sub>3</sub> device with a 5mm x 5mm aperture," Opt. Lett. 30, 2918 (2005).

[4] N. Pavel, I. Shoji, T. Taira, K. Mizuuchi, A. Morikawa, T. Sugita, and K. Yamamoto, "Room-temperature, continuous-wave 1-W green power by single-pass frequency doubling," Opt. Lett. 29, 830, (2004).

[5] K. Mizuuchi, A. Morikawa, T. Sugita, K. Yamamoto, N. Pavel, and T. Taira, "Continuous-wave ultraviolet generation at 354 nm in a periodically poled MgO:LiNbO<sub>3</sub> by frequency tripling of a diode end-pumped Nd:GdVO<sub>4</sub> micro-laser," Appl. Phys. Lett. 85, 3959 (2004).

[6] J. Saikawa, M. Fujii, H. Ishizuki, and T. Taira, "High-energy, narrow-bandwidth periodically poled Mgdoped LiNbO<sub>3</sub> optical parametric oscillator with a volume Bragg grating," Opt. Lett. 32, 2996 (2007).

[7] J. Saikawa, M. Miyazaki, M. Fujii, H. Ishizuki, and T. Taira, "High-energy, broadly tunable, narrowbandwidth mid-infrared optical parametric system pumped by quasi-phase-matched devices," Opt. Lett. 33, 1699 (2008).

[8] M. Miyazaki, J. Saikawa, H. Ishizuki, T. Taira, and M. Fujii, "Isomer selective infrared spectroscopy of supersonically cooled *cis-* and *trans-N-*phenylamides in the region from the amide band to NH stretching vibration," Phys. Chem. Chem. Phys. 11, 6098 (2009).

[9] X. Gu, G. Marcus, Y. Deng, T. Metzger, C. Teisset, N. Ishii, T. Fuji, A. Baltuska, R. Butkus, V. Pervak, H. Ishizuki, T. Taira, T. Kobayashi, R. Kienberger and F. Krausz, "Generation of carrier-envelope-phase-stable 2-cycle 740-μJ pulses at 2.1-μm carrier wavelength," Opt. Express 17, 62 (2009).

[10] P. Brand, B. Boulanger, P. Segonds, Y. Petit, C. Felix, B. Menaert, T. Taira, and H. Ishizuki, "Angular quasi-phase-matching experiments and determination of accurate Sellmeier equations for 5%MgO:PPLN, ,, Opt. Lett. 34, 2578 (2009).

# CRISTAUX POUR LE FILTRAGE TEMPOREL NON LINEAIRE D'IMPULSIONS LASER FEMTOSECONDES PAR LA TECHNIQUE XPW

# Aurélie Jullien<sup>1</sup>, Olivier Albert,<sup>1</sup> Aurélien Ricci<sup>1,2</sup>, Nicolas Forget<sup>3</sup>, Rodrigo Lopez-Martens<sup>1</sup>, Nikolaï Minkovski<sup>4</sup>, Stoyan Kourtev<sup>4</sup>

<sup>1</sup> 1Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA ParisTech, Ecole Polytechnique, CNRS, 91761 Palaiseau Cedex, France

> <sup>2</sup> Thales Optronique SA, Laser Solutions Unit, 78995 Elancourt, France <sup>3</sup> FASTLITE, Centre Scientifique d'Orsay, BP45, 91401 Orsay, France

<sup>4</sup>Faculty of Physics, University of Sofia, BG-1164, Sofia, Bulgaria

Aurelie.Jullien@ensta-paristech.fr

# Résumé

La génération non linéaire de polarisation croisée (XPW) permet d'améliorer le contraste temporel des impulsions laser femtosecondes intenses. Le principe repose sur un effet non linéaire d'ordre trois dans des cristaux cubiques dont la susceptibilité non linéaire est anisotrope. Nous présentons les performances d'un filtre XPW ainsi que les caractéristiques linéaires et non linéaires requises des cristaux employés.

MOTS-CLEFS : Laser ; Optique non linéaire

#### **1. INTRODUCTION**

Le contraste temporel des impulsions délivrées par les chaines laser femtosecondes intenses est un paramètre clé pour les applications physiques et industrielles. Il s'agit du rapport d'intensité entre l'impulsion principale et le niveau d'émission spontanée amplifiée (ASE inhérent aux processus d'amplification) sur une échelle de temps de quelques centaines de picosecondes et doit être maintenu à au moins 10 ordres de grandeur.

Une solution pour réduire la durée et filtrer le profil temporel des impulsions a récemment été proposée et appliquée aux lasers femtosecondes avec un grand succès : la génération non linéaire d'onde polarisée orthogonalement (XPW pour Cross-Polarized Wave) [1, 2].

#### 2. GENERATION NON LINEAIRE DE POLARISATION CROISEE (XPW)

Il s'agit d'un effet non linéaire du troisième ordre dégénéré en fréquences et gouverné par l'anisotropie du tenseur non linéaire de cristaux cubiques (type BaF<sub>2</sub>) (Fig. 1a). Lorsque le matériau est isotrope en optique linéaire, l'accord de phase et l'accord de vitesse de groupe sont automatiques. L'efficacité XPW est proportionnelle au produit des coefficients  $\chi_{xxxx}^{(3)}$  et  $\sigma$  l'anisotropie du tenseur  $\chi^{(3)}$  ( $\sigma = (\chi_{xxxx}^{(3)} - 2\chi_{xyyx}^{(3)} - \chi_{xxyy}^{(3)})/\chi_{xxxxx}^{(3)}$ ).



Fig. 1 : (a) Principe de génération XPW. (b) Amélioration du contraste par XPW: mesure de l'intensité temporelle avant et après XPW.

Le processus est achromatique et nous avons démontré son efficacité sur une large plage de longueur d'ondes (de 310 nm à 1 $\mu$ m). La dépendance cubique de l'intensité de l'onde générée par rapport à l'onde incidente permet d'améliorer le contraste de plusieurs ordres de grandeur, comme cela a été maintenant démontré par plusieurs équipes (Fig. 1b) [1]. De plus, le filtrage XPW permet sous certaines conditions d'améliorer la qualité spectrale (contraste cohérent). Le piédestal de l'impulsion relatif aux défauts d'amplitude et phase spectrale est supprimé lors du filtrage et cette qualité est ensuite traduite dans le domaine spectral. Enfin, nous avons mis en évidence la capacité du processus XPW à réduire la durée des impulsions femtoseconde.

### 3. CRISTAUX POUR L'XPW

La Table 1 résume les propriétés non linéaires des cristaux anisotropes utilisés jusqu'alors pour l'XPW avec de bons résultats. Les cristaux pertinents présentent une forte anisotropie et une valeur modérée d'indice non linéaire, afin d'optimiser l'efficacité XPW et réduire l'impact de l'auto-modulation de phase. De plus, une symétrie cubique est préférable à une symétrie tétragonale afin d'éviter un signal parasite de biréfringence linéaire résiduelle. Si les cristaux de LiF sont utilisés dans l'UV en raison de leur bande d'absorption élevée, le BaF<sub>2</sub> reste le cristal le plus employé pour les laser femtosecondes (visible ou proche infrarouge). Il présente un bon équilibre des valeurs de  $\chi_{xxxx}^{(3)}$  et  $\sigma$ . De plus, il est transparent sur une large gamme de longueurs d'onde et est peu dispersif. L'optimisation de l'orientation cristallographique ([101]) permet d'atteindre des rendements XPW de l'ordre de 30% [3].

Cristaux	Symétrie	$n_2 (10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}^{-1})$	σ
YVO <sub>4</sub>	Tétragonal	16	+0.95
CaF <sub>2</sub>	Cubique	1.3	-0.6
$BaF_2$	Cubique	2	-1.2
LiF	Cubique	0.7	-0.35
С	Cubique	5	-1.8

Tab. 1 : Symétrie et propriétés non linéaires de quelques cristaux anisotropes

Des recherches sont en cours pour optimiser les caractéristiques de ces matériaux cristallins, en particulier, augmenter la valeur de l'anisotropie (nouveaux matériaux, cristaux dopés). Un autre axe d'amélioration est la résistance au dommage du cristal à des intensités laser (10<sup>12</sup> W/cm<sup>2</sup>) et récurrences (quelques kHz) élevées. Dans ce sens nous démontrerons la possible utilisation du diamant pour l'XPW.

### Références

[1] N. Minkovski, G. I. Petrov, S. M. Saltiel, O. Albert, and J. Etchepare, "Nonlinear polarization rotation and orthogonal polarization generation experienced in a single-beam configuration" J. Opt. Soc. Am. B 21, 1659–1664 (2004).

[2] A. Jullien, O. Albert, F. Burgy, G. Hamoniaux, J.-P. Rousseau, J.-P. Chambaret, F. Augé-Rochereau, G. Chériaux, J. Etchepare, N. Minkovski, and S. M. Saltiel, "10<sup>-10</sup> Temporal contrast for femtosecond ultraintense lasers by cross-polarized wave generation" Opt. Lett. 30, 920–922 (2005).

[3] S. Kourtev, N. Minkovski, L. Canova, A. Jullien, O. Albert and S. M. Saltiel "Improved nonlinear cross-polarized wave generation in cubic crystals by optimization of the crystal orientation", JOSA B 26, 1269 (2009).

# **RECORDS DE DOUBLEMENT ET TRIPLEMENT DE FRÉQUENCE DANS LBO**

# Gabriel Mennerat<sup>1</sup>, Odile Bonville<sup>1</sup>, Dominique Lupinski<sup>2</sup>, Philippe Villeval<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives CESTA, BP 2, F-33114 Le Barp <sup>2</sup> Cristal Laser SA, 32, rue R. Schumann, F-54850 Messein

gabriel.mennerat@cea.fr

# Résumé

Le potentiel du triborate de lithium  $LiB_3O_5$  pour la conversion de fréquence à forte énergie est démontré dans l'installation Alisé. 217 J de rayonnement à 527 nm ont été produits par doublement de fréquence avec un rendement de 92%. Le meilleur rendement global a atteint 85% pour la génération de 50 J d'ultraviolet à 351 nm dans un ensemble doubleur/tripleur en LBO. Jusqu'à 360 J d'UV ont été obtenus à partir de 450 J d'infrarouge dans un couple doubleur/tripleur en KDP/LBO.

**MOTS-CLEFS :** Conversion de fréquence optique ; forte énergie ; LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub>

# 1. INTRODUCTION

Les applications sociétales des lasers de puissance – génération d'énergie par fusion à confinement inertiel (FCI), transmutation de produits de fission ou accélération de protons pour le traitement localisé de cellules cancéreuses – nécessitent des cadences de tir bien supérieures à celle des grandes installations scientifiques actuelles comme le National Ignition Facility (NIF) ou le Laser mégajoule (LMJ).

S'appuyant sur les acquis des programmes NIF et LMJ ainsi que sur les enseignements des démonstrateurs technologiques Mercury [1], Halna, Polaris ou LUCIA, une nouvelle génération d'amplificateurs laser est étudiée pour les programmes européens HiPER (High Power laser Energy Research facility) ou ELI (Extreme Light Infrastructure). L'amplification d'impulsions énergétiques de quelques nanosecondes continuera vraisemblablement à reposer sur des matériaux – verres, cristaux ou céramiques – dopés à l'ion néodyme ou ytterbium, utilisés par ailleurs pour d'autres applications industrielles ou militaires. Ces milieux laser émettent dans l'infrarouge proche (long. d'onde  $\approx 1,05 \,\mu$ m), rayonnement ensuite converti dans le vert pour la génération d'impulsions ultra-courtes voire dans l'ultraviolet pour la FCI. Cette conversion en fréquence est réalisée par génération d'harmoniques dans des cristaux optiques non-linéaires.

De forts rendements de conversion, jusqu'à 80%, sont obtenus en régime monocoup dans la gamme 10 kJ sur les chaînes particulièrement optimisées des grands programmes de FCI. Les monocristaux de dihydrogéno-phosphate de potassium purs (KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> alias KDP) ou deutérés (DKDP) sont les seuls qui puissent être produits industriellement en dimensions ( $40 \times 40$  cm<sup>2</sup>) et quantités suffisantes pour équiper les centaines de faisceaux du NIF et du LMJ.

Fonctionner de manière permanente avec des cadences de tir de 10 Hz et des énergies dans la gamme kilojoule représente un défi considérable en matière de refroidissement des matériaux laser et de fiabilité d'ensemble. Un certain nombre de ruptures technologiques concernant les matériaux et les architectures sont déjà amorcées pour minimiser la charge thermique et corriger les aberrations associées. De nouveaux compromis technico-économiques devront être trouvés autour de tailles de faisceaux de 10 à 15 cm. In fine, les cristaux convertisseurs devront fonctionner à des puissances moyennes dans la gamme 10 kW, soit deux ordres de grandeur supérieurs aux niveaux démontrés aujourd'hui.

Il y a donc un besoin de cristaux non-linéaires de grande ouverture plus tolérants que le (D)KDP vis-à-vis des imperfections du faisceau incident et combinant des propriétés optiques et thermiques compatibles avec la très forte puissance moyenne. En outre, leur intensité de fonctionnement devra être substantiellement plus faible pour atténuer les risques d'endommagement laser, exacerbés à haute cadence.

### 2. DOUBLEMENT DE FRÉQUENCE

Des lasers ultra-intenses de la classe multi-pétawatt, fondés sur la technique d'amplification à dérive de fréquence sont en cours de construction de par le monde. Pour atteindre des durées d'impulsions inférieures à 100 femtosecondes (soit  $10^{-13}$  s), on emploie de gros amplificateurs large bande soit par effet laser dans des cristaux de saphir dopé au titane (TiSa), soit par effet optique paramétrique (OPA) dans des cristaux non-linéaires. Ces deux types d'amplificateurs sont pompés par des impulsions énergétiques courtes (sub-ns à 30 ns) dans le vert (longueur d'onde de 500 à 550 nm).

Le pompage de cristaux TiSa s'accommodant bien d'une qualité de faisceau moyenne, les spécifications de front d'onde de ces lasers de pompe sont principalement déterminées par la criticité angulaire du doublement de fréquence. Relâcher ce paramètre simplifie l'architecture globale ; une meilleure conversion impacte les coûts d'acquisition et de fonctionnement de l'ensemble du système laser.

Le titanyl-phosphate de potassium (KTiOPO<sub>4</sub> alias KTP) ou les cristaux de type borate (BO<sub>3</sub>) supplantent progressivement le KDP depuis 20 ans dans les lasers médicaux ou industriels les plus exigeants. Le triborate de lithium (LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub> ou LBO) est de plus en plus utilisé à forte puissance.

Cristal Laser a mis au point, en collaboration avec l'Institut de Géologie et Minéralogie de Novosibirsk (Sibérie), un procédé industriel de croissance cristalline en flux fournissant des boules de LBO dépassant 1 kg d'excellente homogénéité [2]. Dans le cadre d'une démonstration de faisabilité pour le programme européen ELI, jusqu'à 217 J de rayonnement à 527 nm ont ainsi été produits par doublement de fréquence du faisceau principal d'Alisé, avec un rendement de 92% dans des cristaux de 65 mm de diamètre [3]. La simple substitution de DKDP par LBO nous a par ailleurs permis, grâce à sa tolérance angulaire 10 fois plus large, de porter de 30% à 60% le rendement de conversion de faisceaux fortement aberrants, issus de chaînes laser commerciales délivrant des impulsions de 40 J à la cadence de 0,1 Hz. [4]

Le LBO présente une résistance à l'endommagement laser exceptionnelle (>  $60 \text{ J/cm}^2$ ) et une non-linéarité deux fois supérieure à celle du DKDP. Son absorption deux ordres de grandeur inférieure (<  $10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ ), et sa conductivité trois fois plus élevée lui confèrent un facteur de mérite thermique plus de 15 fois supérieur. Ces caractéristiques ont permis de produire 700 W de vert dans un système laser de marquage industriel [5] et laissent présager un excellent comportement à forte énergie et haute cadence.

### 3. TRIPLEMENT DE FRÉQUENCE

Les applications en physique des hautes énergies nécessitent la production d'ultraviolet par triplement de fréquence. Le LBO dispose, pour cela, des mêmes avantages relatifs que pour le doublement de fréquence. Son potentiel à très forte énergie a été validé en régime monocoup dans l'installation Alisé. 360 J de rayonnement à 351 nm ont été produits dans des cristaux de 65 mm de diamètre à partir de 450 J de rayonnement fondamental infrarouge, avec un rendement énergétique global exceptionnel de 80%[7].

Le LBO est par ailleurs un candidat prometteur pour l'amplification paramétrique optique d'impulsions ultra-courtes (< 20 fs) ultra-intenses (plusieurs dizaines de pétawatts). Les progrès en cristallogenèse se poursuivent ; la production industrielle de composants de LBO décimétriques compatibles avec la gamme kilojoule semble atteignable d'ici quelques années.

# Références

- [1] A. Bayramian, *et al.* "High-average-power femto-petawatt laser pumped by the mercury laser facility," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 25, no. 7, pp. B57–B61, Jul. 2008.
- [2] A. Kokh, et al. "Growth of high quality large size LBO crystals for high energy second harmonic generation," *Journal of Crystal Growth*, vol. 312, no. 10, pp. 1774–1778, May 2010.
- [3] G. Mennerat, *et al.* "Very high efficiency high-energy frequency doubling in the Alisé facility," in *Advanced Solid State Photonics*, San Jose, California, Feb. 2010.
- [4] G. Mennerat, *et al.* "Second-harmonic generation of strongly aberrated beams in DKDP and LBO," in *Advanced Solid State Photonics*, Denver, Colorado, Feb. 2009.
- [5] C. Stolzenburg, *et al.* "700 W intracavity-frequency doubled Yb :YAG thin-disk laser at 100 kHz repetition rate," in *Solid State Lasers XIX : Technology and Devices*, vol. 7578. SPIE, 2010, p. 75780A.

# TAMING LIGHT AND HEAT AT THE NANOSCALE: APPLICATIONS TO BIOSCIENCES

# **Romain Quidant**

ICFO- The Institute of Photonic Sciences Av. del Canal Olímpic s/n 08860 Castelldefels (Barcelona), Spain

#### romain.quidant@icfo.es

Metallic nanostructures (MN) supporting localized surface plasmon (LSP) resonances have the potential to act as efficient point-like sources of both light and heat, opening plenty of new science and applications in areas ranging from integrated optics to biomedicine. Both the optical and photothermal properties of MN can be engineered through a suitable design of their geometrical parameters, environment and illumination conditions.

In the first part of this presentation we discuss how proper plasmon mode engineering in ensembles of electromagnetically coupled nanostructures can benefit to biosensing and optical trapping. In the context of sensing, we show that shaping the sensing volume to dimensions commensurable with the target molecules to detect enables to strongly enhance the sensing sensitivity. As for optical trapping, we demonstrate that plasmonic hot spots can be used to create efficient nano-optical tweezers able to trap nano-objects, including biological systems, upon moderate laser intensities.

In the second part of the talk, we discuss both theoretically and experimentally the general physical rules for optimizing heat generation in plasmonic nanostructures. We then discuss the applications of functionalized point-like heat sources to the stimulation of intra cellular processes and cancer cell destruction.

### PLASMONIQUE QUANTIQUE AVEC UN NANODIAMANT FLUORESCENT

### Serge Huant (\*)

#### Institut Néel, CNRS & Université Joseph Fourier, Grenoble

### serge.huant@grenoble.cnrs.fr

Nous avons récemment mis au point une sonde active à photons uniques pour la microscopie optique en champ proche à balayage. En fixant de façon contrôlée un nanodiamant (20 nm environ) contenant un centre coloré NV (Nitrogen-Vacancy) unique à l'apex d'une pointe optique, nous réalisons une sonde « à photon unique» bénéficiant de l'extrême photostabilité du centre NV et fonctionnant à température ambiante [1].

Dans cet exposé, je présenterai en détails l'application de ces nano-sources de lumière à base d'un nanodiamant unique à des expériences de plasmonique. Je montrerai qu'en utilisant la seule fluorescence du nanodiamant dans le régime du champ proche optique, il est possible d'exciter des plasmons de surface dans des films d'or homogènes ou nanostructurés, ceci avec une résolution spatiale limitée par la « précision de pointé » de la sonde, soit la dizaine de nanomètres [2]. La nanosource de lumière étant de nature quantique (source à un ou deux photons selon le nombre de centres NV hébergés par le nanodiamant), nos expériences constituent un premier pas dans un monde nouveau, celui de la plasmonique quantique « déterministe», ce dernier vocable faisant allusion au contrôle spatial rigoureux exercé sur le point d'injection des plasmons uniques. Je décrirai ensuite brièvement les applications en cours dans notre laboratoire, centrées sur la possibilité d'étendre à la plasmonique certaines expériences fondatrices de l'optique quantique.

(\*) Recherche réalisée au sein de l'équipe « Champ Proche » de l'Institut Néel avec Oriane Mollet, Aurélien Cuche et Aurélien Drezet, en collaboration avec François Treussart et Jean-François Roch (ENS Cachan) et Thierry Gacoin et son équipe (Ecole Polytechnique).

#### **References**

[1] A. Cuche, A. Drezet, Y. Sonnefraud, O. Faklaris, F. Treussart, J.-F. Roch, S. Huant, Opt. Express 17, 19969 (2009).

[2] A. Cuche, O. Mollet, A. Drezet, S. Huant, Nano Lett. 10, 4566 (2010).

# **PUCES A ATOMES ET CAVITES FIBRES : UN LABORATOIRE QUANTIQUE MINIATURISE**

# **Jakob Reichel**

#### Laboratoire Kastler Brossel de l'E.N.S., 24, rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 0

### jakob.reichel@ens.fr

Les « puces à atomes » réunissent deux champs de recherche qui sont parmi les plus actifs de la physique expérimentale actuelle : les gaz quantiques et les nanotechnologies. L'idée générale des puces à atomes est de faire appel aux nanostructures (électroniques, optiques ou autres) pour piéger et manipuler des gaz quantiques à la proximité immédiate de la surface nanostructurée. Il en résulte des systèmes aux propriétés nouvelles et prometteuses, d'un intérêt à la fois fondamental et technologique. L'exposé en présentera quelques illustrations, en particulier sur le couplage d'un condensat de Bose-Einstein au mode d'une cavité miniaturisée de très haute finesse. Nous verrons également comment cette cavité d'un nouveau type, développée elle aussi dans notre équipe, a ouvert la voie à d'autres applications dans plusieurs domaines.
# LA FLUORINE DOPEE YTTERBIUM : UN SYSTEME CRISTALLIN ATYPIQUE POUR LES LASERS A IMPULSIONS BREVES ET LES AMPLIFICATEURS DE TRES FORTE PUISSANCE

P. Camy<sup>1</sup>, A. Braud, J.L. Doualan<sup>1</sup>, A. Benayad<sup>1</sup>, V. Ménard<sup>1</sup>, G. Brasse<sup>1</sup>, R. Moncorgé<sup>1</sup>, F. Druon<sup>2</sup>, P. Georges<sup>2</sup>, S. Ricaud<sup>2,3</sup>, D.N. Papadopoulos<sup>4</sup>,

A. Courjaud<sup>3</sup>, E. Mottay<sup>3</sup>, M. Siebold<sup>5</sup>

<sup>1</sup> Centre de recherché sur les Ions, les Matériaux et la Photonique (CIMAP), UMR 6252 CEA-CNRS-ENSICaen, Université de Caen, 14050 Caen, France

<sup>2</sup> Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique (LCFIO), UMR 8501 CNRS,

Université Paris Sud, 91127 Palaiseau, France

<sup>3</sup> Amplitude Systèmes, 6 Allée du Doyen Georges Brus, 33600 Pessac, France

<sup>4</sup> Institut de la Lumière Extrême, CNRS, Ecole Polytechnique, ENSTA, Institut d'Optique,

Université Paris Sud, Palaiseau, France

<sup>5</sup>FZ-Dresden-Rossendorf (FZD), D-01314 Dresden, Germany

patrice.camy@ensicaen.fr

La fluorine pure  $CaF_2$  et ses isotypes  $SrF_2$  et  $BaF_2$  sont des cristaux bien connus, utilisés depuis longtemps dans divers champs applicatifs (photolithographie à 157 nm par exemple) pour leur exceptionnelle transparence dans les domaines UV et moyen infrarouge, leur très faible dispersion, et leur symétrie cubique qui conduit à de très bas niveaux de biréfringence. Aux débuts des années 60, ces matériaux, dopés par des ions actifs tels que  $Sm^{2+}$  [1],  $Tm^{2+}$  [2],  $Dy^{2+}$  [3] et  $U^{3+}$  [4], furent même parmi les premiers milieux à gain des systèmes laser opérant en mode continu, et en pompage par diode.

Du fait de la spécificité de sa structure, la fluorine dopée par des ions de terres rares trivalents a été pourtant très peu utilisée depuis lors en tant que matériau laser. Ce n'est qu'à partir de la première démonstration du fonctionnement laser de CaF<sub>2</sub> :Yb<sup>3+</sup> en 2004 [5] que CaF<sub>2</sub> et ses isotypes sont devenus les cristaux parmi les plus prometteurs, et les plus étudiés, dans le domaine des matériaux dopés ytterbium utilisés dans les systèmes laser pompés par diode [6-8]. De fait, le système  $CaF_2$ : Yb<sup>3+</sup>, en particulier, possède des caractéristiques qui conviennent bien aux lasers de forte puissance: une excellente conductivité thermique de 9.3 W/m/K [9], proche de celle du YAG, une large bande d'émission, qui s'étend de 990 nm à 1080 nm, et une longue durée de vie du niveau émetteur (2.3 ms). Il faut ajouter à ces caractéristiques un procédé de fabrication bien maîtrisé comparé à d'autres matériaux candidats aux mêmes applications. Les techniques de cristallogenèse utilisées permettent d'envisager à court terme des monocristaux de grande taille et de très haute qualité optique, mais aussi la croissance sous forme de couches minces par la technique d'épitaxie en phase liquide. Enfin, il est bien connu que les propriétés de ce type de matériau laser s'améliorent aux températures cryogéniques, en particulier lorsqu'il s'agit d'atteindre de très fortes puissances. Ainsi, dans le cas de CaF<sub>2</sub>:Yb<sup>3+</sup>, on atteint des valeurs nettement plus élevées de conductivité thermique, mais aussi de section efficaces d'absorption et d'émission [10], ce qui conduit à des performances laser inédites [12].

Cependant, bien que plusieurs travaux aient déjà été consacrés au sujet, la nature ainsi que les caractéristiques spectroscopiques du centre laser émetteur, tant dans les systèmes simplement dopés ytterbium que dans les systèmes co-dopés (comme Na-Yb par exemple), ne sont pas encore bien connus, et restent sujet à controverse [10, 12-14], d'autant plus à 77K, température pour laquelle un fonctionnement à ultra faible « défaut quantique » à été démontré [15].

La présentation fera donc un état des lieux sur les caractéristiques générales de la fluorine et de ses isotypes, en focalisant sur les propriétés spectroscopiques dans la perspective du développement d'applications laser de forte puissance.

#### REFERENCES

- [1] P.P. Sorokin, M.J. Stevenson, IBM Journal, 56-58 (1961)
- [2] R.C. Duncan Jr., Z. J. Kiss, Appl. Phys. Lett. 3, 23-24 (1963)
- [3] S.E. Hatch, W.F. Parsons, R.J. Weagley, Appl. Phys. Lett. 5, 153-154 (1964)
- [4] R.J. Keyes, T.M. Quist; Appl. Phys. Lett. 4, 50-51 (1964)
- [5] V. Petit, J. L. Doualan, P. Camy, V. Ménard, and R. Moncorgé, Appl. Phys. B 78, 681-684 (2004).

[6] M. Siebold, S. Bock, U. Schramm, B. Xu, J. L. Doualan, P. Camy, and R. Moncorgé, Appl. Phys. B 97(2), 327-338 (2009).

[7] P. Camy, J.L. Doualan, A. Benayad, V. Menard, R. Moncorgé, J. Boudeile, F. Druon, F. Balembois, P. Georges, Laser Physics 20 (2) pp. 533–536 (2010)

[8] O.K. Alimov, T.T. Basiev, M.E. Doroshenko, P.P. Fedorov, V.A. Konyuskin, S.V. Kouznetsov, A.N. Nakladov, V.V. Osiko, H. Jelinkova, J. Sulc, Adv. Sol. State Phot. (ASSP) OSA 2009, paper WB25

[9] J. Boudeile, J. Didierjean, P. Camy, J. L. Doualan, A. Benayad, V. Ménard, R. Moncorgé, F. Druon, F. Balembois, and P. Georges, Opt. Expr. 16, 10098-10109 (2008).

[10] P. Camy, J.L. Doualan, A. Benayad, V. Menard, R. Moncorgé, J. Boudeile, F. Druon, F. Balembois, P. Georges, "Yb3+ doped (Ca, Sr, Ba)F2 for high power laser applications" Laser Physics 20 (2) 533-536 (2010).

[11] A. Pugžlys, G. Andriukaitis, D. Sidorov, A. Irshad, A. Baltuška, W. J. Lai, P.B. Phua, L. Su, J. Xu, H. Li, R. Li, S. Ališauskas, A. Marcinkevicius, M. E. Fermann, L. Giniunas, R. Danielius "Spectroscopy and lasing of cryogenically cooled Yb,Na:CaF2," Appl. Phys. B. 97(2), 339-350 (2009).

[12] V. Petit, P. Camy, J. L. Doualan, X. Portier and R. Moncorgé, Phys. Rev. B, 78 085131 (2008)

[13] M. Ito, C. Goutaudier, Y. Guyot, K. Lebbou, T. Fukuda, G. Boulon, J. Phys. Cond. Matter 16, 1501-1521 (2004)

[14] S. Hraiech, A. Jouini, K. J. Kim, Y. Guyot, A. Yoshikawa, G. Boulon, Rad. Meas. 45, 323-327 (2010)

[15] S. Ricaud, D.N. Papadopoulos, P. Camy, J.L. Doualan, R. Moncorgé, A. Courjaud, E. Mottay, P. Georges, F. Druon, Opt. Lett. 35 (22) (2010)

# ETUDE COMPARATIVE DES DEFAUTS MACROSCOPIQUES DE YAL3(BO3)4 ET DE LA0,71Y0,57SC2,72(BO3)4 OBSERVES EN OMBRE PORTEE OU REVELES PAR ATTAQUE CHIMIQUE.

#### Mourad Bourezzou<sup>1</sup>, Alain Maillard<sup>1</sup>, Régine Maillard<sup>1</sup>, Daniel Rytz<sup>2</sup>, Philippe Villeval<sup>3</sup>, Gérard Aka<sup>4</sup>, Jullien Lejay<sup>4</sup>, Pascal Loiseau<sup>4</sup>.

<sup>1</sup> LMOPS, Université Paul Verlaine Metz, EA 4423 57070 Metz, France
<sup>2</sup> FEE GmbH, Struthstr. 2, 55743 Idar-Oberstein, Allemagne
<sup>3</sup>Cristal Laser, Parc d'activité du Breuil, 54850 Messein, France
<sup>4</sup>LMSCP-ENSCP, UMR 7574, 11 rue Pierre et Marie Curie 75005 Paris, France

Mourad.bourezzou@metz.supelec.fr

#### Résumé.

Afin d'étudier leur qualité cristalline, des photographies « Schlieren » (ombre portée) et des attaques chimiques ont été effectuées sur des cristaux de YAl<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> (YAB) et de La<sub>0,71</sub>Y<sub>0,57</sub>Sc<sub>2,72</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> (LYSB).

Des stries ainsi que des « etch-pits »ont pu être révélés puis corrélés à la structure cristallographique R32 des deux cristaux.

**MOTS-CLEFS :** *YAB, LYSB, ombre portée, attaque chimique.* 

#### INTRODUCTION.

Les cristaux de YAB et de LYSB cristallisent dans le système trigonal, appartiennent au groupe d'espace R32 et sont des dérivés de la structure huntite CaMg<sub>3</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>4</sub>. Ils présentent des bonnes propriétés optiques avec une large transparence et un coefficient optique non linéaire prometteur pour la génération d'UV [1]. Ils sont non hygroscopiques et possèdent un seuil de dommage optique élevé. Des cristaux de YAB et de LYSB ont été obtenus par croissance en solution puis des échantillons ont été découpés suivant les axes principaux X, Y et Z avant d'être polis. La qualité cristalline de ces échantillons est étudiée par la photographie « Schlieren » (ombre portée) et par attaque chimique des surfaces [2]. Les stries et les « etch-pits » révélés sont alors reliés à la croissance des faces rhomboédriques.

#### **EXPERIMENTATION.**

Des échantillons à faces parallèles sont découpés suivant les axes principaux X, Y et Z puis polis optiquement. Les surfaces sont contrôlées au microscope à contraste de phase afin de s'assurer de la disparition de rayure résiduelle.

Dans un premier temps, un faisceau de lumière blanche parallèle incohérente arrive en incidence normale sur une face puis traverse le cristal, une image à grande distance du cristal révèle des défauts d'homogénéité sous forme d'ombre. Des photos des faces YZ, XZ, XY la lumière se propageant dans la direction X, Y, Z respectivement sont enregistrées pour chaque cristal étudié.

Dans un second temps, des attaques chimiques sont effectuées [2]. Le cristal est placé dans un bécher contenant de l'acide phosphorique ( $H_3PO_4$ ) et chauffé à 180° C pendant une heure. Il est alors rincé à l'eau distillé puis à l'éthanol et séché. Des images obtenues au microscope optique avec des grandissements de x10, x20, x50 et x100 sont enregistrées avant de poursuivre l'attaque chimique. Cinq attaques d'une durée d'une heure sont ainsi effectuées afin de suivre l'évolution des faces attaquées.

#### **RESULTATS ET DISCUSSION.**

Les ombres portées révèlent des striations dans des directions spécifiques suivant les faces observées. Les orientations de ces bandes sont mesurées par rapport aux directions du repère XYZ. L'étude de la structure rhomboédrique et le calcul des projections des différentes faces du rhomboèdre dans les plans XY, XZ et YZ permettent de relier les striations observées à la croissance des différentes faces du rhomboèdre.

Les directions des stries ainsi que la forme et l'organisation spatiale des « etch-pits », révélateurs de dislocations et d'imperfections créées au cours de la croissance, sont en accord avec la structure rhomboédrique (fig. 1a-b), de ces cristaux. Les angles relevés sont en adéquation avec ceux déterminés par le calcul (fig. 2a-b).à partir de la connaissance des paramètres cristallographiques de la maille des cristaux.



Fig. 1 a-b : Représentation des structures rhomboédrique et hexagonal



Fig. 2 a-b-c : (a) LYSB Ombre portée de la face YZ ; (b) LYSB Cliché de microscopie optique de la face XY après 3 h d'attaque chimique (x100) ; (c) YAB Image de microscopie à contraste de phase.

#### **CONCLUSION**

L'étude de la qualité cristalline via les techniques d'ombre portée et d'attaque chimique des échantillons de LYSB et de YAB a révélé des striations liées à la présence de dislocations. Ces dislocations présentent des orientations en cohérence avec la structure élémentaire des cristaux étudiés, c'est-à-dire la maille rhomboédrique. Ces défauts révélés influent sur la propagation du faisceau lors de processus de doublage de fréquence. Dans le cas du cristal YAB ces défauts sont faiblement structurés (fig. 2c) et doivent être évités pour ne pas perturber le front d'onde lors des expériences de doublage de fréquence. Dans le cas du cristal LYSB la régularité des stries observées peut être mise à profit pour réaliser des éléments diffractant.

#### REFERENCES

[1] D.A. Keszler, J.L. Stone-Sundberg, N. Ye, M.A. Hruschka, "Borate crystals for optical frequency conversion", United States Patent. n° US 7,534,377 B2, 2009.

[2] A. Peter, K. Polgar, E. Beregi, « Revealing growth defects in non-linear borate single crystals by chemical etching », Journal of Crystal Growth. vol. 209, pp.102-109, 2000.

# LASER BI-FRÉQUENCE YB<sup>3+</sup>:KGD(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> POMPÉ PAR DIODE ACCORDABLE AVEC DES RÉSEAUX DE BRAGG VOLUMIQUES

#### **Alain Brenier**

#### LPCML UMR CNRS 5620, Université Claude Bernard-Lyon, 69622 Villeurbanne

Alain.brenier@univ-lyon1.fr

#### Résumé

Un laser bi-fréquence  $KGd(WO_4)_2$ : Yb<sup>3+</sup> (KGW:Yb) pompé par diode à travers une fibre optique bifurquée et un séparateur de faisceau ajustable est présenté. Grâce à deux réseaux de Bragg volumiques chirpés transversalement utilisés comme coupleur de sortie, la différence de fréquences des deux faisceaux colinéaires est continûment accordable entre 0 et 7.6 THz avec 110 GHz de largeur à mi-hauteur.

**MOTS-CLEFS** : laser bi-fréquence, accordabilité, téraHertz, Bragg.

#### **1. INTRODUCTION**

Les cristaux KGW:Yb ou KYW:Yb ont l'avantage d'être d'excellents matériaux lasers grâce à un faible défaut quantique, une importante absorption vers 981 nm, une grande section efficace d'émission et d'être commercialement disponibles. Leur émission large peut être exploitée pour la génération de pulses ultra-courts, pour l'accordabilité ou pour une génération bi-fréquences [1]. Par exemple l'accordabilité a été obtenue entre 997 et 1050 nm [1] à l'aide de la rotation d'un réseau de Bragg volumique. La présente contribution décrit un laser bi-fréquence KGW:Yb pompé par diode dont l'accordabilité résulte de l'utilisation de deux réseaux de Bragg volumiques.

#### 2. LA CAVITÉ LASER

Le cristal traité anti-trflet a été fourni par MolTech GmbH et est dopé 5% Yb. D'après son orientation sur la Fig. 1 il peut émettre une onde ordinaire de polarisation  $N_p$  et une onde extraordinaire de polarisation dans le plan  $N_g$ - $N_m$ . Elles sont pompées par les deux brins de sortie d'une fibre optique bifurquée reliée à une diode laser LIMO. La cavité plan-plan est stabilisée par



#### Tunable Dual-Frequency Laser cavity



une lentille convergente traitée anti-reflet aux longueurs d'ondes lasers. Deux réseaux de Bragg volumiques chirpés transversalement (TCVBG) avec des pas variant en sens inverse jouent le rôle de coupleur de sortie. Un réseau (TCBG<sub>0</sub>) a ses longueurs d'ondes résonantes dans la plage de gain de l'onde ordinaire, l'autre (TCBG<sub>E</sub>) dans la plage de gain de l'onde extraordinaire. Les deux réseaux ont été inscrits dans le même élément de verre photo-thermo-réfractif par Optigrate, contrairement à la Fig. 1 où ils ont été séparés pour une meilleure visualisation. Comme leur réflectivité à la résonance est de l'ordre de 50%, le seuil laser serait assez élevé et un miroir plan partiellement réfléchissant (R' de 70 à 90 %) a été ajouté pour abaisser le seuil.

#### 3. RÉSULTATS

En déplaçant transversalement les TCVBG, l'onde ordinaire a été obtenu continûment accordable entre 1033-1047 nm et l'onde extraordinaire entre 1020-1033 nm, ce qui correspond à une différence de fréquences entre 0 et 7.6 THz. Leurs puissances sont données Fig. 2.



Fig. 2 : Puissance des ondes ordinaire et extraordinaire pour deux valeurs R' du miroir de sortie.

#### **CONCLUSION**

Un laser bi-fréquence avec une différence de fréquences de 0 à 7.6 THz a été obtenu en exploitant deux réseaux de Bragg volumiques chirpés. Les puissances des ondes ont été étudiées spectralement et en fonction de leur puissance de pompe. Leur largeur spectrale est 110 GHz. Un tel dispositif est potentiellement utile pour la génération THz [3].

#### Références

- [1] A. Brenier, IEEE J. Quant. Electron. 47, 279 (2011).
- [2] B. Jacobsson, J. E. Hellstrom, V. Pasiskevicius, F. Laurell, Opt. Express 15, 1003 (2007).
- [3] G. Kh. Kitaeva, Laser Phys. Lett. 5, 559 (2008).

# SHG ET THG DANS LES CRISTAUX NON-LINEAIRES POUR DES APPLICATIONS SPATIALES

## Alessandra Ciapponi<sup>1</sup>, Helmut Schröder<sup>1</sup>, Wolfgang Riede<sup>1</sup>, G. Tzeremes<sup>2</sup>

<sup>1</sup> German Aerospace Center, Pfaffenwaldring 38-40, 70597 Stuttgart, Germany <sup>2</sup> European Space Agency (ESA / ESTEC), Noordwijk, The Netherlands

alessandra.ciapponi@dlr.de

#### Résumé

Les cristaux non linéaires utilisés comme générateurs de deuxième ou troisième harmoniques ont un rôle très important pour la construction des lasers haute puissance utilisés pour des missions spatiales comme AEOLUS et ATLID [1]. Dans le cadre d'un projet en collaboration avec l'ESA, une campagne de tests permettant d'étudier différentes combinaisons de cristaux ont été réalisées avec l'objectif d'atteindre une conversion dans l'UV supérieure à 30 %. Des études sur les effets des irradiations à haute énergies sont aussi réalisées pour pouvoir déterminer l'influence de l'environnement spatial sur les propriétés optiques des cristaux [2].

**MOTS-CLEFS :** *cristaux non-linéaires ; conversion de fréquences ; qualification pour l'espace ; rayon gamma et proton* 

#### **1.** INTRODUCTION

Pour des opérations dans l'espace il est très important d'avoir une bonne efficacité et une bonne stabilité à long terme des tous les éléments utilisés dans les lasers. Pour cette raison une qualification des optiques est nécessaire. La qualification comprend l'exposition long-terme des composants au vide, aux radiations cosmiques, à des cycles thermiques, aux vibrations et au flux laser.

Le module de conversion des fréquences est une partie du laser qui peut être optimisé et qui peut apporter une amélioration des performances de tout le système. Aujourd'hui la THG pour les lasers utilisés à l'ESA est obtenue avec une combinaison des cristaux LBO. Le but principal de cette étude est de trouver différentes combinaisons des cristaux qui peuvent être utilisés dans l'espace et qui ont une efficacité de conversion supérieure au 30 %. Les cristaux choisis, LBO, BBO, KTP et BiBO, sont étudiés sous différentes conditions atmosphériques (air ou vide). Des tests pour la simulation des conditions spatiales sont également conduits avec l'objectif d'irradier les cristaux avec une dose de radiation équivalente à 3 années d'exposition dans l'espace. L'influence des cycles thermiques et des vibrations ont également été étudiés.

#### 2. DETAILS EXPERIMENTAUX

Les cristaux non-linéaires ont été sélectionnés pour satisfaire certaines caractéristiques comme: la haute tenue au flux (> 15 J/cm<sup>2</sup> dans l'UV), la non hygroscopicité, un large angle d'acceptation et un petit angle de walk-off. La section est de 10x10 mm avec une longueur variable en fonction des propriétés non-linéaires de chaque cristal. Un modèle théorique a été utilisé pour déterminer la longueur qui permet d'obtenir le maximum de conversion [3]. Les cristaux sont coupés pour une conversion maximale à 58,6 °C.

Les cristaux non-linéaires sont irradiés avec un laser Nd :YAG à la longueur d'onde de 1064 nm, (10 ns, 100 Hz). A l'aide d'un télescope les dimensions et la divergence du faisceau sont variés. D'abord la lumière est convertie avec un cristal coupé pour la génération de deuxième harmonique. Ensuite elle est convertie dans l'UV avec un cristal de type THG. Les deux cristaux sont positionnés à l'intérieur d'une chambre ultra haut vide (10<sup>-9</sup> mbar). Une fois que la conversion est maximale on procède alors à des tests pour déterminer la stabilité de la conversion dans le temps.



Fig. 1 : (a) Schéma du montage expérimentale développé pour l'étude de la conversion de fréquences. (b) Graph montrant l'optimisation de la génération de troisième harmonique avec une combinaison de cristaux BiBO. La fluence reportée sur l'axe X est calcule pour l'IR à l'entrée du crystal de SHG. Une efficacité de conversion de 41 % est atteinte.

#### 3. RESULTATS ET DISCUSSION

Les expériences pour la génération de la deuxième harmonique ont montré que les cristaux de KDP et BiBO présentent une capacité de conversion dans le visible de 63 %. Des simulations de l'SHG avec LBO et THG avec LBO/LBO ont démontré une forte corrélation avec les données expérimentales. La combinaison BiBO/BiBO permettre d'attendre 41 % de conversion dans l'UV. BiBO/LBO montre aussi une haute efficacité de conversion (35 %). Aucune différence n'a été relevée entre des tests dans l'air et des tests sous vide. La stabilité à long terme de la conversion a aussi été étudiée. Les cristaux irradiés pendant 17 heures ont montré des variations maximales de 2 % de l'efficacité de conversion. Les résultats pour les irradiations par des rayons gamma (1,2 et 1,3 MeV) et par des protons (11, 100 et 230 MeV) ont montré que pour LBO et BiBO il y a aucune dégradation du spectre de transmission entre 300 et 1000 nm. BBO montre une petite dégradation a été remarquable dans la zone UV mais négligeable pour le domaine IR. Une récupération partielle est observée à température ambiante, et la récupération est totale après recuit (150 °C, 2 h). Les cycles thermiques dans des conditions de vide ( $p < 10^{-5}$  mbar) montrent que la transmission des cristaux n'est pas dégradée par un changement de température entre -40 °C et +50 °C.

#### CONCLUSION

Une fixation qui permet un accord de phase dans un régime UHV a été conçue, réalisée et testée. Pour SHG et THG, la corrélation est bonne entre la simulation et l'expérimentation. La plus grande efficacité de conversion (> 60 %) pour la SHG a été obtenue par des cristaux BiBO et KTP. Les combinaisons prometteuses pour la THG sont BiBO / BiBO et BiBO / LBO. De plus amples recherches sont nécessaires pour confirmer ces premiers résultats. LBO et BiBO ne présentent aucune dégradation après leur irradiation par rayons gamma et protons [4].

#### REFERENCES

[1] Nett, H., Endemann, M., "Atmospheric Dynamics Mission: Aeolus", Geoscience and Remote Sensing Symposium, 2004. IGARSS '04. Proceedings, (2004).

[2] U. Roth et al. "Proton and gamma radiation tests on nonlinear crystals", Applied Optics Vol.41 (464-469), No. 3, 2002.

[3] D. Eimerl, S. Velsko, L. Davis and F. Wang; "Progress in Nonlinear Optical Materials for High Power Lasers", Prog. Crystal Growth and Charact. (20), 59-113 (1990)

[4] A. Ciapponi, W. Riede, G. Tzeremes, H. Schröder, P. Mahnke; "Non-linear optical frequency conversion crystals for space applications"; Proc. SPIE 7912; Solid State Lasers XX: Technology and Devices, (2011)

# Deformations photo-induites de nanoclusters d'argent dans des films de $TiO_2$ sous flux laser continu

#### Nicolas Crespo-Monteiro, Nathalie Destouches, Latifa Nadar, Francis Vocanson, Stéphanie Reynaud, Emilie Gamet, Jean-Yves Michalon, Aziz Boukenter

Université de Lyon, CNRS UMR 5516 Université Jean Monnet, Laboratoire Hubert Curien, 18 Rue Pr. B. Lauras, 42000 Saint-Etienne, France

nathalie.destouches@univ-st-etienne.fr

#### Résumé

Les films nanocomposites Ag/TiO<sub>2</sub> sont connus depuis quelques années pour leurs propriétés photochromiques. Leurs changements de couleur ont été interprétés comme résultant de la réoxydation sélective des nanoparticules sous illumination visible quasimonochromatique. Dans ce travail nous montrons qu'en présence de nanoclusters, deux mécanismes de déformation anisotropes des particules peuvent avoir lieu selon l'intensité incidente, une légère réduction de taille ou une fragmentation.

**MOTS-CLEFS :** photochromisme, fragmentation, nanoclusters, films mésoporeux

# 1. INTRODUCTION

Les films nanocomposites d'Ag/TiO<sub>2</sub> sont connus depuis quelques années pour leurs propriétés photochromiques [1,2]. Le changement réversible de couleur sous illumination continue est lié à une modification de la taille et de la forme des nanoparticules. L'illumination en lumière visible induit une photo-excitation des électrons à la surface des nanoparticules d'argent. Ces électrons photo-excités sont stabilisés par l'oxygène ambiant [3] et la matrice de TiO<sub>2</sub>, ce qui entraîne l'oxydation des nanoparticules d'argent en ions Ag<sup>+</sup>. Lorsque la taille et la forme des nanoparticules sont hétérogènes, l'absorption d'une lumière monochromatique visible varie d'une particule à l'autre et est maximale quand la longueur d'onde incidente est centrée sur la bande de résonance plasmon de surface de la particule. L'éclairement sous flux quasi-monochromatique permet ainsi d'oxyder sélectivement des nanoparticules, et de modifier la distribution de tailles des nanorparticules, de telle sorte que la couleur du matériau tende vers la couleur de l'illuminant [1,2]. Nous montrons ici, qu'en présence de nanoclusters d'argent un autre mécanisme de déformation, de type photo-fragmentation, survient lorsque l'intensité du faisceau incident augmente. Ce mécanisme conduit à une nouvelle distribution en taille des nanoparticules et à un changement de couleur qui n'est pas forcément en accord avec la couleur de l'illuminant.

La décomposition thermique d'un sel métallique imprégné dans un film mésoporeux de  $TiO_2$ induit la croissance de nanoparticules d'argent hétérogènes, parmi lesquelles des nanoclusters de 20 à 120 nm de diamètre. Cette communication montre l'évolution de ces nanoclusters lors d'expositions à des flux laser de différentes intensités dont la longueur d'onde se situe dans la bande de résonance plasmon des nanoclusters, et analyse les variations spectrales qui en résultent.

#### 2. EFFET PHOTOCHROMIQUE SOUS FAIBLE INTENSITE LUMINEUSE

Lors d'une exposition à un flux laser continu, dont l'intensité est voisine de la centaine de mW.cm<sup>-2</sup> et dont la longueur d'onde se situe au voisinage du maximum de leur bande de résonance plasmon, les films nanocomposites étudiés montrent une diminution progressive de leur absorbance à une longueur d'onde voisine mais supérieure à la longueur d'onde du laser. Les films passent d'une coloration grisâtre (après traitement thermique) à une coloration qui tend vers celle du laser. Ces variations du spectre d'absorption des films ont déjà été rapportées dans la littérature et résultent d'une oxydation de certains nanoclusters dont la taille diminue.

En outre, les films insolés deviennent légèrement anisotropes lorsqu'ils sont éclairés par un faisceau laser polarisé. La diminution d'absorbance mentionnée précédemment est plus marquée dans la direction parallèle au champ électrique incident que dans la direction perpendiculaire. En accord avec la théorie de Gans, cette anisotropie peut résulter d'une réduction de taille des nanoclusters légèrement plus importante dans la direction parallèle à la polarisation incidente que dans la direction perpendiculaire. [1,2].

#### 3. EFFET PHOTOCHROMIQUE SOUS FORTE INTENSITE LUMINEUSE

L'usage d'une intensité de l'ordre du W/cm<sup>2</sup> modifie fortement le comportement photochromique des films. Sous illumination laser, le spectre de résonance plasmon des films se déplace rapidement vers les courtes longueurs d'onde, quelle que soit la longueur d'onde visible du laser, et présente une absorbance à la résonance croissante lors des premières minutes d'exposition. Ces variations se traduisent par un changement de couleur du film qui tend vers l'orangé quelle que soit la couleur du faisceau incident (Fig. 1a). L'analyse par microscopie électronique des films avant et après insolation témoigne d'une diminution rapide de la taille des nanoclusters et de l'apparition simultanée de nombreuses nanoparticules (de taille typiquement inférieure à 30 nm) dans leur voisinage (Fig 1b et 1c). Ce mécanisme peut s'apparenter à un mécanisme de photofragmentation des nanoclusters. Comme précédemment les films deviennent légèrement anisotropes après insolation sous faisceau laser polarisé, mais l'analyse des images de microscopie électronique ne permet pas de lier clairement cette anisotropie optique à une anisotropie de forme des nanoparticules.



Fig. 1 : Insolation à  $\lambda$ =488nm, I=4W.cm<sup>2</sup> durant 15 min, a) image optique en transmission, b) et c) images MEB avant et après insolation respectivement.

#### CONCLUSION

L'illumination laser de films nanocomposites Ag/TiO<sub>2</sub> présentant des nanoclusters d'argent, à des longueurs d'onde qu'ils absorbent induit des changements morphologiques et spectraux qui dépendent fortement de l'intensité utilisée. Pour des intensités inférieures à quelques centaines de mW.cm<sup>-2</sup>, la taille des particules diminue progressivement et la couleur du film tend vers celle de l'illuminant. Pour des intensités supérieures au W.cm<sup>-2</sup>, la taille des particules diminue rapidement et de nombreuses nanoparticules apparaissent dans leur voisinage ; la couleur tend vers une teinte orangé quelle que soit la longueur d'onde incidente.

#### Références

- [1] Y. Ohko et al., Nature Mater. 2, 29, 2003.
- [2] K. Naoi et al., Chem. Comm. 10, 1288, 2005.
- [3] K.Kawahara et al Phys. Chem. Chem. Phys. 7, 3851, 2005.

# **TROISIEME HARMONIQUE DANS LES PPLN**

#### Jean-Christophe Delagnes<sup>1</sup>, Arnaud Royon<sup>1</sup>, Gautier Papon<sup>1</sup>, Inka Manek-Hönninger<sup>1</sup>, Bruno Bousquet<sup>1</sup>, Patrick Mounaix<sup>1</sup>, Lionel Canioni<sup>1</sup>, Yannick Petit<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> LOMA, UMR 5798 CNRS, Université de Bordeaux, 351 Cours de la Libération, F-33405 Talence <sup>2</sup> ICMCB, UPR 9048 CNRS, Université de Bordeaux, Avenue du Dr. Schweitzer, F-33608 Pessac

jc.delagnes@loma.u-bordeaux1.fr

#### Résumé

Nous présentons des résultats expérimentaux et théoriques sur la génération de  $3^{\text{ème}}$  harmonique (THG) en cascade de manière efficace (quelques %) dans des ppLN à pas constant, directement en quasi-accord de phase entre fondamental et  $3^{\text{ème}}$  harmonique.

MOTS-CLEFS: Optique Non-Linéaire, Harmoniques, ppLN, Matériaux structurés

#### 1. INTRODUCTION

La génération de 3<sup>ème</sup> harmonique (THG) est universelle mais peu efficace. On peut néanmoins amplifier ces effets en structurant les matériaux [1] et/ou en utilisant des processus en cascade (2<sup>nd</sup> ordre) [2-6,8,9] plus efficaces. La propagation non-linéaire peut être modifiée par le vecteur d'onde de la structure : le quasi-accord de phase (QPM) est obtenu par polarisation périodique (pp) des domaines [2-12]. De fait, la THG directe par  $\chi^{(2)}$  en cascade a été démontrée dans LiNbO<sub>3</sub> (ppLN) comme sous-produit de la QPM-SHG [2], ou par structuration quasi-périodique [4] ou complexe (Fibonacci) [5] des domaines optimisant le schéma séquentiel SHG +SFG. Notre étude démontre que ces structures complexes ne sont pas nécessaires, et que la THG peut être obtenue directement et de manière efficace sur un ppLN simple (rapport cyclique 50-50%). Ainsi, ni la SHG ni la SFG (Fig.1.b et c) n'ont besoin d'être optimisées individuellement pour obtenir la THG en cascade (Fig.1.a). Il suffit d'un ppLN qui satisfait globalement le QPM pour la THG, soit  $2K_0 = \Delta k_{SHG} + \Delta k_{SFG} = \Delta k_{THG}$  où  $K_0 = 2\pi/\Lambda$  est le vecteur d'onde du ppLN,  $\Delta k_{SHG} = k_2 - 2k_1$ ,  $\Delta k_{SFG} = k_3 - k_2 - k_1$ , et  $\Delta k_{THG} = k_3 - 3k_1$  les désaccords de phase pour la SHG, la SFG ( $\omega + 2\omega \rightarrow 3\omega$ ) et la THG.

#### 2. MODELE THEORIQUE

Les équations de propagation des trois ondes monochromatiques (fondamental  $A_{\omega}(z)$ , 2<sup>ème</sup> et 3<sup>ème</sup> harmoniques  $A_{2\omega}(z)$  et  $A_{3\omega}(z)$ ) sont données par :

$$\begin{cases} \partial_{z}A_{\omega} = \frac{2i\pi}{n_{1}\lambda_{1}}d_{eff}(z)\left(A_{3\omega}A_{2\omega}^{*}e^{i\Delta k_{SFG}z} + A_{2\omega}A_{\omega}^{*}e^{i\Delta k_{SHG}z}\right)\\ \partial_{z}A_{2\omega} = \frac{4i\pi}{n_{2}\lambda_{1}}d_{eff}(z)\left(\frac{1}{2}A_{\omega}^{2}e^{-i\Delta k_{SHG}z} + A_{3\omega}A_{\omega}^{*}e^{i\Delta k_{SFG}z}\right) \Rightarrow\\ \partial_{z}A_{3\omega} = \frac{6i\pi}{n_{3}\lambda_{1}}d_{eff}(z)A_{2\omega}A_{\omega}e^{-i\Delta k_{SFG}z} \end{cases} \Rightarrow \begin{cases} \partial_{z}A_{\omega} = \frac{4i\xi_{eff}^{2}}{\pi^{2}n_{1}n_{2}}\frac{A_{3\omega}A_{\omega}^{*2}}{(K_{0} - \Delta k_{SHG})}\\ \partial_{z}A_{3\omega} = -\frac{12i\xi_{eff}^{2}}{\pi^{2}n_{2}n_{3}}\frac{A_{\omega}^{3}}{(K_{0} - \Delta k_{SHG})} \end{cases} \end{cases}$$
(1)

où  $d_{eff}(z)$  est proportionnel au  $\chi^{(2)}$  modulé spatialement du ppLN, et  $n_1$ ,  $n_2$ , et  $n_3$  les indices aux fréquences des trois ondes. L'accord de phase est satisfait si le pas  $\Lambda = 2\pi/K_0$  est tel que  $K_0 = (\Delta k_{SHG} + \Delta k_{SFG})/(m + n)$  (m, n entiers relatifs). A l'ordre le plus bas m+n=2 (m, n impairs pour une période 50-50 %).  $K_0 = (\Delta k_{SHG} + \Delta k_{SFG})/2 = \Delta k_{THG}/2$ . En polarisation {*eee*}, on a  $K_0 = 3\pi(n_{3,z} - n_{1,z})/\lambda_0$  ( $\Lambda = 9 \mu m$  pour LiNbO<sub>3</sub>). En accord de phase, le système (1) se simplifie en un système de THG effectif, faisant apparaître le coefficient  $\xi_{eff} = 2\pi d_{eff}/\lambda_1$  au carré (cascade). En pratique, un ppLN subharmonique, i.e. m+n=2p (p entier), convient également puisqu'il offre des pas plus grands ( $K_p = 2^p K_0$  joue alors le rôle de  $K_0$ ) tout en conservant une bonne efficacité.

#### 3. RESULTATS EXPERIMENTAUX

Le montage (Fig.1.d) comprend un OPA centré à 1,5  $\mu$ m qui constitue le fondamental (durée de 80 fs). La 3<sup>ème</sup> harmonique est séparée du fondamental par un filtre passe haut (filtres colorés). Le ppLN mesure 2 mm de long et contient 7 motifs de pas compris entre 18 et 25  $\mu$ m. Cet intervalle de pas correspond à l'accord de phase pour *m*+*n*=4. Le profil de 3<sup>ème</sup> harmonique est de bonne qualité (Fig.1.e). Sa puissance suit une loi cubique (Fig.1.f) montrant un processus de THG effectif. Les spectres THG mesurés pour chaque pas (e.g 1,77 nm à 498 nm soit 214 fs) sont en accords avec notre modèle, la largeur étant principalement limitée par la GVM du LiNbO<sub>3</sub> entre fondamental (0,46.*c*) et 3ème harmonique (0,4.*c*).



Figure 1. a) QPM-THG, b) SHG hors accord de phase  $k_{2\omega} = 2k_{\omega} + \Delta k_{SHG} \neq 2k_{\omega} + K_0$ , c) SFG hors accord de phase  $k_{3\omega} = k_{\omega} + k_{2\omega} + \Delta k_{SFG} \neq k_{\omega} + k_{2\omega} + K_0$ . (Les désaccords sont indiqués par les flèches jaunes) d) Montage expérimental, e) Image du faisceau THG, f) Puissance de THG vs. fondamental (+ expérience, - loi cubique).

#### 4. PERSPECTIVES

Pour les matériaux usuels (LiNbO3, KTA, KTP, etc), on peut évaluer la faisabilité du triplage d'une source terre-rare à 1050 nm. En polarisations linéaires ({*ooo*} ou {*eee*}), la dispersion conduit à des périodes plus petites ( $<4 \mu$ m) que les limites actuelles. Les processus cascade autorisent des polarisations plus complexes ({*xzx*}{*zzz*}) qui, pour KTA, KTP, RTA ou RTP, donnent des périodes de 5 µm. Bien que les limitations due à la GVM subsistent, une fonctionnement ultralarge bande est possible en insérant un ppLN « éventail » dans une line à dispersion nulle. Les avantages du ppLN (suppression du walk-off, THG) sont alors conservés en permettant l'utilisation à forte puissance.

#### CONCLUSION

Nous avons démontré un processus original de génération QPM non séquentielle de 3<sup>ème</sup> harmonique dans un ppLN. L'implémentation est simple, robuste, efficace et large bande (quoique limitée par la GVM) et peut être appliqué à la conversion de lasers terre-rare vers le visible ou l'UV. Par ailleurs, la QPM-THG est applicable à divers matériaux et géométrie, et d'autres processus du 3<sup>ème</sup> ordre peuvent aussi être émulés.

#### Références

- [1] L. B. Glebov, et al., Opt. Express 17, 3564 (2009), Opt. Lett. 25, 1693 (2000), SPIE 4724, 101 (2002)
- [2] S. K. Das, S. Mukhopadhyay, N. Sinha, A. Saha, et al., Opt. Commun. 262, 108 (2006)
- [3] Y. Q. Qin, Y. Y. Zhu, C. Zhang, N. B. Ming, J. Opt. Soc. Am. B 20, 73 (2003)
- [4] Y. Y. Zhu, R. F Xiao, J. S. Fu, G. K. L. Wong, N.B. Ming, Appl. Phys. Lett. 73, 432 (1998)
- [5] S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, and N. B. Ming, Science 278, 843 (1997)
- [6] O. Pfister, J. S. Wells, L. Hollberg, et al., Opt. Lett. 22, 1211 (1997).
- [7] P. N. Butcher and D. Cotter, "The Elements of Nonlinear Optics" (Cambridge University Press, 1990).
- [8] K. Kintaka, M. Fujimura, T. Suhara, and H. Nishihara, Electron. Lett. 33, 1459 (1997).
- [9] M. S. Kim, C. S. Yoon, Phys. Rev. A 65, 033831 (2002).
- [10] J. A. L'Huillier, et al., Applied Physics B-Lasers And Optics 86, 185 (2007), ibid. 86, 197 (2007).
- [11] G. D. Miller, R. G. Batchke, W. M. Tulloch, et al., Opt. Lett. 22, 1834–1836 (1997).
- [12] L. E. Myers, R. C. Eckardt, M. M. Fejer, et al., J. Opt. Soc. Am. B 12, 2102–2116 (1995).

# **EFFET DU DÉSYNCHRONISME DANS UN OPO PICOSECONDE AFFINÉ SPECTRALEMENT PAR UN RÉSEAU DE DIFFRACTION INTRACAVITÉ**

## Jean-Baptiste Dherbecourt, Cédric Laporte, Jean-Michel Melkonian, Myriam Raybaut, Antoine Godard et Michel Lefebvre

Onera – The French Aerospace Lab, 91761 Palaiseau cedex, France

cedric.laporte@onera.fr

#### RÉSUMÉ

L'insertion d'un réseau de diffraction intracavité dans un OPO pompé de manière synchrone par un laser picoseconde conduit à une augmentation du désynchronisme maximal toléré alors que le spectre émis est en même temps contraint dans une bande étroite. Une étude détaillée de ces effets, nous permet de les attribuer à une adaptation géométrique du faisceau de l'onde résonnante par rapport au réseau de diffraction.

**MOTS-CLEFS :** oscillateurs paramétriques optiques synchrones.

Les oscillateurs paramétriques optiques (OPO) à pompage synchrone sont des sources efficaces pour convertir la longueur d'onde d'un laser à verrouillage de modes fonctionnant en régime ps-fs vers l'infrarouge moyen. Cependant, le contrôle en fréquence fin de ces sources devient délicat dès lors que l'on souhaite les faire fonctionner proche de la dégénérescence. En effet, du fait de la très large bande de gain paramétrique, l'OPO émet alors un spectre naturellement large (10 à 100 nm) dont la structure et la longueur d'onde centrale dépendent fortement du désynchronisme entre le temps d'aller-retour de la cavité OPO et la période de répétition du laser de pompe [1,2]. Un moyen simple et efficace de contrôler le spectre émis est d'insérer intracavité un réseau de diffraction en configuration Littrow (cf. Fig. 1) [3,4]. Cependant, alors que cette méthode permet effectivement de contraindre le spectre émis dans une bande étroite (quelques nm), la tolérance vis-à-vis du désynchronisme se trouve également augmentée. Ce phénomène, déjà observé par Hanna et col. sans être expliqué [3], semble paradoxal si l'on considère que l'OPO n'a plus la possibilité de modifier son spectre – et donc son temps de groupe – pour compenser le désynchronisme.



Fig. 1 : Diagramme schématique de la configuration OPO synchrone étudiée.

Afin de comprendre cet effet, nous avons mené une étude détaillée de l'effet du synchronisme sur le fonctionnement d'un OPO synchrone basé sur un cristal de PPLN:MgO pompé par un laser Nd:YVO4 picoseconde et émettant une longueur d'onde signal proche de 2 µm (cf. Fig.

1). Nous observons que, dans le cas où un réseau est placé intracavité, le désynchronisme induit un décalage transverse du faisceau selon la direction de dispersion du réseau qui s'accompagne d'un décalage en longueur d'onde proportionnel (cf. Fig. 2). Un tel décalage n'est pas observé lorsque le réseau est remplacé par un simple miroir hautement réfléchissant. Ces observations nous amènent à conclure que le désynchronisme est compensé par une adaptation géométrique du faisceau signal résonnant dans la cavité OPO, plus précisément par un décalage transverse et une modification de l'angle d'incidence sur le réseau de diffraction. Cette interprétation est corroborée par la réduction de la plage de désynchronisme tolérée lorsqu'une lame de couteau est disposée intracavité proche d'un des bords du faisceau selon la direction de dispersion du réseau de diffraction.



Fig. 2 : Effets du désynchronisme sur l'émission de l'OPO synchrone (onde signal) avec et sans réseau de diffraction. (Les labels des spectres et des images de faisceaux correspondent à ceux de la figure du dessus).

#### Références

[1] C. Fallnich, B. Ruffing, Th. Herrmann, A. Nebel, R. Beigang, and R. Wallenstein, "Experimental investigation and numerical simulation of the influence of resonator-length detuning on the output power, pulse duration and spectral width of a cw mode-locked picosecond optical parametric oscillator," Appl. Phys. B, vol. 60, pp. 427–436, 1995.

[2] A. Ryasnyanskiy, N. Dubreuil, P. Delaye, R. Frey, and G. Roosen, "Fourier transformed picosecond synchronously pumped optical parametric oscillator without spectral filtering element," J. Europ. Opt. Soc. Rap. Public., vol. 3, 08037, 2008.

[3] D. C. Hanna, M. V. O'Connor, M. A. Watson, and D. P. Shepherd, "Synchronously pumped optical parametric oscillator with diffraction-grating tuning," J. Phys. D: Appl. Phys., vol. 34, pp. 2440–2454, 2001.

[4] J.-B. Dherbecourt, A. Godard, M. Raybaut, and J.-M. Melkonian, M. Lefebvre, "Picosecond synchronously pumped ZnGeP<sub>2</sub> optical parametric oscillator," Opt. Lett., vol. 35, pp. 2197–2199, 2010.

# **OPO** AVEC AMPLIFICATION PARAMÉTRIQUE INTRACAVITÉ BASÉ SUR UN CRISTAL DE **PPLN** BIFONCTIONNEL

Antoine Godard<sup>1</sup>, Myriam Raybaut<sup>1</sup>, Michel Lefebvre<sup>1</sup>, Anne-Marie Michel<sup>2</sup>, Michel Péalat<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Onera – The French Aerospace Lab, 91761 Palaiseau cedex, France <sup>2</sup> SAGEM Défense Sécurité, Groupe SAFRAN, Centre Hussenot, 100 avenue de Paris, 91344 Massy cedex, France

antoine.godard@onera.fr

#### Résumé

L'amplification paramétrique intracavité du rayonnement complémentaire d'un oscillateur paramétrique optique est réalisée dans un cristal de PPLN bifonctionnel doté de deux réseaux non linéaires en cascade. Une augmentation de 60 % de la puissance à 4  $\mu$ m et une amélioration significative de la qualité de faisceau sont obtenues.

**MOTS-CLEFS :** *oscillateurs et amplificateurs paramétriques ; processus non linéaires en cascade.* 

Une méthode pour augmenter l'efficacité de conversion vers l'onde complémentaire des oscillateurs paramétriques optiques (OPO) est d'insérer un second cristal non linéaire dans la cavité de telle sorte que ce second cristal – pompé par l'onde signal résonnante de l'OPO – agisse comme un amplificateur paramétrique optique (OPA) pour le rayonnement complémentaire [1,2]. Cependant, l'utilisation de deux cristaux distincts au sein d'une cavité OPO induit également des effets indésirables – pertes aux interfaces supplémentaires, augmentation du temps de construction de l'oscillation paramétrique, complexification de l'architecture OPO – qui ne permettent pas de tirer pleinement parti de cette architecture OPO–OPA [3].

Ici, nous utilisons un cristal de PPLN bifonctionnel contenant deux réseaux non linéaires en cascade : un réseau OPO de pas uniforme suivi d'un réseau OPA ayant une structure fan-out (cf. Fig. 1). De cette manière, les conditions de quasi-accord de phase peuvent être ajustées indépendamment en agissant respectivement sur la température et la position transverse du cristal. Une telle structure de cristal a déjà été mis en œuvre dans une architecture OPO–OPO (le signal du premier OPO joue le rôle de pompe pour le second OPO) [4] mais elle n'a jamais été étudiée dans le cas d'un dispositif OPO–OPA.



Fig. 1 : Diagramme schématique de la configuration OPO-OPA étudiée.

Dans nos conditions expérimentales – régime nanoseconde, 10 W de pompe, longueur d'onde complémentaire ~ 4  $\mu$ m – où les effets thermiques commencent à jouer un rôle significatif [5], nous démontrons une augmentation relative de 60 % de la puissance complémentaire par rapport à un OPO conventionnel basé sur un cristal de PPLN mono-réseau (cf. Fig. 2). De plus, nous observons une amélioration significative de la qualité de faisceau lorsque le processus OPA est au quasiaccord de phase. Ces améliorations s'accompagnent d'une augmentation brutale de la puissance

DFG à 2,27 µm et de la suppression des raies Raman parasites qui sont observées lorsque seul le processus OPO est effectif (cf. Fig. 3).



Fig. 2 : Puissance complémentaire à 4 µm en fonction de la puissance de pompe à 1,064 µm pour l'OPO–OPA lorsque la condition de quasi-accord de phase est (OPA on) et n'est pas (OPA off) respectée et pour la configuration OPO conventionnelle basée sur un cristal de PPLN mono-réseau (single OPO) (Inserts : profils de faisceau à 4 µm).



Fig. 3 : Spectre émis dans la gamme 0,9–2,6 µm par le dispositif OPO–OPA lorsque la section OPA est à l'accord de phase (OPA on) et hors accord de phase (OPA off), pour une puissance pompe incidente de 10 W.

#### Références

[1] K. Koch, G. T. Moore, and E. C. Cheung, "Optical parametric oscillation with intracavity difference-frequency mixing," J. Opt. Soc. Am. B, vol. 12, pp. 2268–2273, 1995.

[2] J. M. Fukumoto, H. Komine, W. H. Long, Jr., and E. A. Stappaerts, "Periodically poled LiNbO<sub>3</sub> optical parametric oscillator with intracavity difference frequency mixing," in Advanced Solid State Lasers, W. Bosenberg and M. Fejer, eds., Vol. 19 of OSA Trends in Optics and Photonics Series (Optical Society of America, 1998), paper FC6.

[3] J.-M. Melkonian, A. Godard, M. Lefebvre, and E. Rosencher, "Pulsed optical parametric oscillators with intracavity optical parametric amplification: a critical study," Appl. Phys. B, vol. 86, pp. 633–642, 2007.

[4] P. V. Gorelik, F. N. C. Wong, D. Kolker, and J. J. Zondy, "Cascaded optical parametric oscillation with a dual-grating periodically poled lithium niobate crystal," Opt. Lett., vol. 31, pp. 2039–2041, 2006.

[5] A. Godard, M. Raybaut, T. Schmid, M. Lefebvre, A.-M. Michel, and M. Péalat, "Management of thermal effects in high-repetition-rate pulsed optical parametric oscillators," Opt. Lett., vol. 35, pp. 3667–3669, 2010.

# BARYSCAN : UNE TECHNIQUE INNOVANTE ET SENSIBLE DÉDIÉE À LA MESURE DE FAIBLES NON-LINÉARITÉS

#### Thomas Godin, Michael Fromager, Emmanuel Cagniot, Richard Moncorgé, Kamel Aït-Ameur

Centre de Recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique (CIMAP), UMR 6252 CEA-CNRS-ENSICAEN-Université de Caen, 6 Bd du Maréchal Juin, 14050 Caen Cedex 4, France

thomas.godin@ensicaen.fr

#### Résumé

Nous présentons une technique innovante consacrée aux mesures de faibles variations d'indice de réfraction. A l'instar de la méthode Z-scan, sa mise en œuvre à la fois théorique et expérimentale est simple mais permet d'atteindre une sensibilité de  $\lambda/5.10^4$ , ce qui représente une des plus importantes améliorations observée. Dans cette technique, basée sur l'utilisation d'un PSD (Position Sensitive Detector), les propriétés non-linéaires sont déduites de l'évolution de la position du barycentre d'un faisceau laser pompe-sonde tronqué durant la translation de l'échantillon le long de l'axe optique. Cette méthode a été validée expérimentalement par la mesure de variations d'indice de réfraction d'origine électronique et de variations de polarisabilité  $\Delta \alpha_p$  résultant de l'excitation des ions Cr<sup>3+</sup> dans le rubis.

MOTS-CLEFS : optique non-linéaire ; auto-focalisation ; variation de phase

#### **1.** CONTEXTE ET PRINCIPE DE LA TECHNIQUE

Les mesures de faibles variations d'indice de réfraction induites par effets non-linéaires ou thermiques sont un domaine d'intenses recherches depuis les années 60. La liste des méthodes employées est longue [1] et parmi cette pléthore de solutions, nous pouvons citer les plus marquantes: les techniques à mélange d'onde, les techniques interférométriques, la déflectométrie de Moiré et les techniques dites de «distorsion» basée sur l'auto-focalisation du faisceau. Même si la pertinence et la fiabilité de ces techniques sont indiscutables, l'article de *M. Sheik-Bahae* [2], cité plus de 3000 fois, tend à prouver que la méthode la plus populaire reste le Z-scan. La raison principale de son succès réside dans la facilité de sa mise en œuvre à la fois expérimentale et théorique. Le principe est le suivant : l'échantillon étudié est translaté le long de l'axe optique d'un faisceau Gaussien parfait (*i.e.*  $M^2 = I$ ) focalisé. Pendant le "scan", le matériau subit une variation d'intensité radiale conduisant à une distorsion du faisceau, signature de l'effet non-linéaire, celle-ci étant détectée par le biais de la transmission d'un diaphragme placé en champs lointain. Avec ce montage simple, il est possible de mesurer des variations de phase non-linéaire de l'ordre de  $\lambda/300$ .

De ce point de départ, une myriade de méthodes ont été développées afin de surpasser cette valeur, avec comme objectif d'étudier les non-linéarités rencontrées dans les milieux les plus minces ou tout simplement de réduire la puissance du faisceau d'excitation. Ainsi, différentes voies ont été explorées: changement dans le profil du faisceau incident, optimisation de la théorie, changement de la partie "détection" ou bien modifications drastiques de la géométrie du montage original. Toutes ces techniques apportent effectivement des améliorations mais pour la plupart, impliquent des inconvénients majeurs en termes de simplicité, les rendant moins attractive que la technique Z-scan originale.

Nous proposons ici une variante de la technique Z-scan, que nous appellerons "Baryscan", remplissant les deux conditions énoncées précédemment : (i) la simplicité de la technique originale, en gardant les mêmes hypothèses et montage que le Z-scan, (ii) augmentation de la sensibilité en changeant le système de détection. Le principe est extrêmement simple : on remplace la photodiode

par un PSD (Position Sensitive Detector), connu pour sa résolution nanométrique [3]. L'astuce réside dans la façon de transformer l'effet focalisant induit par la non-linéarité en un déplacement du barycentre du faisceau. Cette fonction est assurée par une lame de rasoir placée contre la surface active du PSD (Fig. 1) et tronquant la moitié du faisceau : il devient ainsi évident qu'une variation de la taille du faisceau change la position du barycentre. L'effet non-linéarire peut donc être mesuré en analysant l'évolution de la position du barycentre au cours de la translation de l'échantillon.

#### 2. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Dans le cas de la technique « Baryscan », de façon similaire au Z-scan, nous pouvons exprimer l'évolution de la position du barycentre du faisceau B(x) en fonction de la position de l'échantillon  $x=z/z_0$  au cours de la translation (Eq. 1) et en déduire le déphasage non-linéaire induit.  $z_0$  est la distance de Rayleigh,  $B_0$  la position du barycentre sans effet de lentille et  $\Delta \Phi_0$  le déphasage non-linéaire sur l'axe.

$$B(x) = B_0 \sqrt{\frac{1}{1 + \frac{4x\Delta\Phi_0}{(9+x^2)(1+x^2)}}}$$
(1)

Nous proposons de valider expérimentalement ce concept à travers l'étude des variations d'indice de réfraction d'origine électronique résultant de l'excitation de ions  $Cr^{3+}$  dans le rubis  $(Cr^{3+}:Al_2O_3)$ . Ces variations d'indice sont attribuées à une variation de polarisabilité  $\Delta \alpha_p$  des ions entre le niveau excité et le niveau fondamental.



Fig. 1 : Principe de la technique « Baryscan » et courbe obtenue pour le rubis.

Un signal Baryscan net a été obtenu pour une puissance du faisceau incident de moins de 3mW et un excellent accord théorie-expérience est atteint (Fig. 1), conduisant à une valeur de variation de polarisabilité  $\Delta \alpha_p$  de 2,1.10<sup>-25</sup> cm<sup>3</sup>, très proche de la valeur mesurée avec la technique Z-scan ( $\Delta \alpha_p = 2,2.10^{-25}$  cm<sup>3</sup> [4]).

Ainsi, le principal avantage de la technique Baryscan comparée au Z-scan et à ses nombreuses variantes réside dans le fait qu'elle fait preuve d'une sensibilité exceptionnelle  $(\lambda/5.10^4)$ , environ 170 fois celle du Z-scan, tout en conservant une grande facilité d'utilisation.

#### Références

[1] A. Sherman, E. Benkler, and H.R. Telle, "Small third-order optical-nonlinearity detection free of laser parameters", *Opt. Lett.*, Vol. 34, No. 1, 2009.

[2] M. Sheik-Bahae, A.A. Said, T. H. Wei, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland, "Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam", *IEEE J. Quantum Electron.*, 26, 4, 1990.

[3] C. S. Vikram and H. J. Caulfield, "Interference fringe analysis based on centroid detection", *Appl. opt.*, 46, 2007.

[4] M. Traiche, T. Godin, M. Fromager, R. Moncorgé, T. Catunda, E. Cagniot, and K. Ait-Ameur, "Pseudononlinear and athermal lensing effects on transverse properties on  $Cr^{3+}$  based solid-state lasers", *Opt. Commun.* 284 1975, 2011.

# 7,7 W A 100 KHZ EN SORTIE D'UN OPO OP-GAAS POMPE PAR LASER HO $^{3+}:YAG$

A. Hildenbrand<sup>1</sup>, C. Kieleck<sup>1</sup>, M. Eichhorn<sup>1</sup>, E. Lallier<sup>2</sup>, D. Faye<sup>2</sup>, A. Grisard<sup>2</sup>, B. Gerard<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Institut franco-allemand de recherches de Saint-Louis, 5 rue du Général Cassagnou, BP 70034, 68301 SAINT-LOUIS Cedex, FRANCE

<sup>2</sup> Thales Research and Technology, RD 128, 91767 PALAISEAU Cedex, FRANCE <sup>3</sup>Alcatel-Thales 3-5 Lab, RD 128, 91767 PALAISEAU Cedex, FRANCE

anne.hildenbrand@isl.eu

#### Résumé

Cet article présente une source laser compacte basée sur un OPO GaAs à quasi-accord de phase (OP-GaAs) pompé par un laser Ho<sup>3+</sup>:YAG à 2,09  $\mu$ m. 7,7 W de puissance moyenne ont été obtenus entre 3 et 5  $\mu$ m à 100 kHz.

**MOTS-CLEFS :** *OPO*, arséniure de gallium, quasi-accord de phase, Ho<sup>3+</sup>:YAG.

#### 1. INTRODUCTION

Les sources laser émettant dans le moyen infrarouge ont de nombreuses applications. Elles ont notamment démontré de fortes capacités pour les contre-mesures optroniques, qui requièrent une émission laser impulsionnelle haute cadence (> 20 kHz) en bande I (vers 2  $\mu$ m) et en bande II (entre 3 et 5  $\mu$ m). Une source laser compacte basée sur un OPO à cristal OP-GaAs pompé par un laser Ho<sup>3+</sup>:YAG à 2,09  $\mu$ m a été réalisée.

#### 2. DESIGN DE LA SOURCE

L'architecture de la source est définie sur la figure 1. Un OPO (cristal OP-GaAs) est pompé par un laser  $Ho^{3+}$ :YAG impulsionnel émettant à 2,09 µm. Les faisceaux « signal » et « complémentaire » en sortie de l'OPO se situent entre 3 et 5 µm. L'émission en bande I est assurée par prélèvement d'une partie du faisceau  $Ho^{3+}$ :YAG à 2,09 µm.

Le design optique et le choix des composants opto-mécaniques sont définis afin de minimiser l'encombrement de la maquette. Les dimensions de la source sont de 330 x 475 mm.



Fig. 1 : Architecture de la source

Le barreau d'Ho<sup>3+</sup>:YAG est pompé d'un côté en configuration de double passage de pompe par un laser continu à fibre dopée thulium (*IPG Laser*) émettant au maximum 50 W de puissance moyenne à 1907,6 nm. Le cristal Ho<sup>3+</sup>:YAG mesure 28 mm de long et a un diamètre de 5 mm. Il est dopé à 0,7 % et est traité antireflet. Il est monté dans un support en cuivre refroidi par eau. La cadence du modulateur acousto-optique (AOM) peut être fixée entre 20 et 100 kHz.

Un atténuateur variable en amont de l'OPO permet de faire varier la puissance de pompe de l'OPO tout en gardant une puissance constante en sortie du laser Ho<sup>3+</sup>:YAG. Ainsi, la durée des

impulsions du laser Ho<sup>3+</sup>:YAG est constante. Un isolateur optique en sortie de la cavité Ho<sup>3+</sup>:YAG permet d'éviter les retours de l'OPO dans la source Ho<sup>3+</sup>:YAG.

La cavité OPO est mécaniquement la plus courte possible. Elle est pompée en configuration simple passage de pompe et est doublement résonante. Le cristal OP-GaAs a une longueur de 20 mm, une largeur de 5 mm et une hauteur de 450  $\mu$ m. Il est monté dans un support stabilisé en température afin de contrôler les longueurs d'ondes d'émission.

#### 3. RESULTATS OBTENUS EN SORTIE DE L'OPO OP-GAAS

Les courbes de la figure 2(a) montrent la puissance en sortie de l'OPO OP-GaAs en fonction de la puissance Ho<sup>3+</sup>:YAG incidente pour différentes cadences de répétition : 40 kHz, 70 kHz, et 100 kHz correspondant à des durées d'impulsion de 32 ns, 51 ns et 70 ns respectivement.

En sortie d'OPO, nous obtenons jusqu'à 4,0 W (101  $\mu$ J), 6,4 W (91  $\mu$ J), et 7,7 W de puissance moyenne (77  $\mu$ J) pour respectivement 40 kHz, 70 kHz et 100 kHz, avec un rendement différentiel supérieur à 45 % et un rendement optique-optique supérieur à 34 %.

A 40 kHz et 70 kHz, l'énergie en sortie de l'OPO est limitée par le seuil d'endommagement du cristal OP-GaAs. Un dommage est apparu à une fluence de 1,9 J/cm<sup>2</sup> à 40 kHz et de 1,5 J/cm<sup>2</sup> à 70 kHz. Les performances obtenues sont donc limitées par les 450 µm d'épaisseur du cristal.

A 100 kHz, l'énergie est limitée par la puissance de pompe disponible.





Les mesures de qualité des faisceaux signal et complémentaire ont été réalisées à une cadence de 40 kHz pour 2,4 W de puissance moyenne en sortie d'OPO. Les caustiques des faisceaux focalisés sont présentées en figure 2(b). Des images des profils spatiaux sont également données à différents points de mesure. Les faisceaux sont légèrement astigmatiques et on a estimé des facteurs de qualité pour l'onde signal :  $M^2_X = 1$  et  $M^2_Y = 1,34$ , et pour l'onde complémentaire :  $M^2_X = 1,20$  et  $M^2_Y = 1,76$ .

Ce travail a été partiellement financé par la Direction Générale de l'Armement dans le cadre du contrat DGA/DSA/UM TER 2007 92 0904 03 00 00 00.

#### REFERENCES

[1] C. Kieleck, A. Hildenbrand, M. Eichhorn, D. Faye, E. Lallier, B. Gérard, S.D. Jackson, "OP-GaAs OPO pumped by 2 µm Q-switched lasers: Tm, Ho:silica fiber laser and Ho:YAG laser", Proc. SPIE 7836, 783607 (2010).

[2] C. Kieleck, M. Eichhorn, A. Hirth, D. Faye, E. Lallier, "High-efficiency 20–50 kHz mid-infrared orientation-patterned GaAs optical parametric oscillator pumped by a 2  $\mu$ m holmium laser", Opt lett 34 (3), 262-264 (2009).

# ÉLABORATION ET CARACTÉRISATION DE NOUVEAUX MATÉRIAUX NON LINÉAIRES POUR LA CONCEPTION DE LASERS SOLIDES ÉMETTANT DANS L'ULTRAVIOLET

Simon Ilas<sup>1</sup>, Pascal Loiseau<sup>1</sup>, Gérard Aka<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Paris, UMR 7574, Chimie Paristech, 11, rue Pierre et Marie Curie, 75005 Paris, France

simon-ilas@etu.chimie-paristech.fr

#### RÉSUMÉ

Dans le cadre de la recherche de nouveaux matériaux ONL dédiés à la réalisation de dispositifs laser solide émettant dans l'ultraviolet, nous étudions actuellement deux matériaux:  $Ca_5(BO_3)_3F$  (CBF) et YAl<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> (YAB). Ces deux matériaux présentent des fusions non congruentes. L'élaboration de monocristaux se fait donc par la méthode du flux. Les deux matériaux sont présentés ainsi que leurs défauts qui freinent actuellement leur essor.

**MOTS-CLEFS** : ultraviolet ; fusion non congruente ; flux

#### **1. INTRODUCTION**

Actuellement les lasers émettant dans l'ultraviolet sont des lasers excimères (XeCl, KrF, ArF, F<sub>2</sub>, émettant respectivement à 351 nm, 248 nm, 193 nm, 157 nm). Ces lasers ont trois inconvénients majeurs : leur coût, les gaz corrosifs utilisés et leur encombrement. Le but à terme serait donc de supplanter les lasers à gaz par des lasers solides, ce qui permettrait une miniaturisation des dispositifs. De plus, les lasers solides ont potentiellement des durées de vie plus longues et leur coût de maintenance est plus faible. Au delà de ces avantages, le faisceau laser issu d'un laser solide est de meilleure qualité que celui issu d'un laser excimère. Les lasers solides sont aussi capables d'opérer à des taux de répétition plus élevés en régime impulsionnel, ils sont caractérisés par des largeurs spectrales d'émission plus fines et de meilleures qualités de faisceau, et ils permettent la conception de sources laser UV accordables. Actuellement, la voie la plus explorée pour la réalisation de tels dispositifs laser solides consiste à disposer en cascade plusieurs cristaux non linéaires générant des sommes de fréquence à partir dune émission laser fondamentale située dans le proche infra-rouge (émission fournie par un cristal dopé néodyme ou ytterbium vers 1  $\mu$ m par exemple). De cette façon, la longueur d'onde fondamentale d'émission laser d'un cristal Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> : Nd (YAG / Nd) à 1064 nm pourrait d'abord être doublée en fréquence ( $2\omega$ ,  $\lambda$  = 532 nm) puis convertie en longueurs d'onde ultraviolettes par génération de 3<sup>ème</sup>, 4<sup>ème</sup>, 5<sup>ème</sup> harmonique  $(3\omega, 4\omega, 5\omega, ... a) \lambda = 355$  nm, 266, 213,...respectivement). Dans ce but, les plus gros efforts de recherche actuels s'orientent vers des cristaux à base de borates (non centrosymétriques et non cubiques pour permettre l'obtention d'un phénomène non linéaire) du fait des bonnes propriétés générales de cette classe de matériaux en terme de transparence dans l'ultraviolet, d'efficacité non linéaire et de résistance aux dommages laser, combinés à leur grande richesse chimiques [1].

#### 2. CBF

CBF est un fluoroborate cristallisant dans le groupe d'espace non centrosymétrique Cm. Le réseau anionique est constitué de groupements borates [BO<sub>3</sub>]. Ce matériau présente une fusion non congruente et sa croissance peut se faire en flux de LiF [2] [3]. Le système CBF-LiF se comporte comme un pseudobinaire et permet la cristallisation de CBF (Figure 1). Une optimisation du flux doit être faite car le monocristal présente des inclusions de LiF en son coeur (Figure 1). Différentes pistes sont explorées pour améliorer ce flux telles que l'ajout de  $B_2O_3$  ou de  $CaF_2$ .





FIGURE 1 : Monocristal de CBF présentant des inclusions de LiF

#### 3. YAB

YAB est un matériau cristallisant dans le groupe d'espace non centrosymétrique  $R_{32}$ . Le réseau anionique est constitué de groupements borates [BO<sub>3</sub>]. Tout comme CBF, il présente une fusion non congruente. Jusqu'à maintenant, ce cristal a principalement été étudié dopé par des ions comme Yb<sup>3+</sup> ou Nd<sup>3+</sup> en tant que cristal laser autodoubleur de fréquences [4]. Ce matériau peut également servir comme simple cristal non linéaire. Il existe de nombreux flux pour ce matériau, notamment ceux à base de K<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>10</sub> ou ceux issus du système B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Li<sub>2</sub>O [5]. Ces flux conduisent à de bons résultats mais les cristaux ne sont pas de qualité optique suffisante. Afin d'améliorer la qualité optique et notamment la transparence, nous étudions actuellement un autre flux : LaB<sub>3</sub>O<sub>6</sub>.

#### Références

- [1] P. Becker, "Non linear crystals," Journal of Crystal Growth, vol. 20, p. 899, 1999.
- [2] G. Chen, Y. Wu, and P. Fu, Journal of Crystal Growth, vol. 292, p. 449, 2006.
- [3] K. Xu, P. Loiseau, G. Aka, and J. Lejay, Crystal Growth & Design, vol. 9, p. 2235, 2009.
- [4] A. Brenier, D. Jaque, and A. Majchrowski, Opt. Mater, vol. 28, p. 310, 2006.
- [5] X. Yu, Y. Yue, J. Yao, and Z. Hu, Journal of Crystal Growth, vol. 312, p. 3029, 2010.

# GENERATION DE SECOND-HARMONIQUE D'OXYDES NANOMETRIQUES POUR L'IMAGERIE BIO-MEDICALE

# Cécile Joulaud<sup>1</sup>, Ronan Le Dantec<sup>1</sup>, Yannick Mugnier<sup>1</sup>, Djanta Gnon<sup>1</sup>, Luigi Bonacina<sup>2</sup>, Jérôme Extermann<sup>2</sup>, Jean Pierre Wolf<sup>2</sup>, Christine Galez<sup>1</sup>

<sup>1</sup> SYMME, Université de Savoie, BP 80439, 74944 Annecy-le-Vieux, France <sup>2</sup> GAP-Biophotonics, Université de Genève, 20 rue de l'école de médecine, 1211 Genève, Suisse

Cecile.joulaud@univ-savoie.fr

#### Résumé

Cette étude porte sur la caractérisation des propriétés optiques non linéaires de nanocristaux non-centrosymétriques, en vue d'une utilisation comme bio-marqueurs pour l'imagerie médicale. Les coefficients moyens d'hyperpolarisabilité ont été déterminés pour différents matériaux (ZnO, BaTiO<sub>3</sub>, KTP, KNbO<sub>3</sub>, LiNbO<sub>3</sub>) par la technique de diffusion Hyper-Rayleigh. Des mesures résolues en polarisation ont permis d'estimer certains coefficients indépendants des tenseurs de susceptibilité d'ordre 2.

*MOTS-CLEFS* : nanocristaux ; optique non linéaire ; génération de second-harmonique ; diffusion Hyper-Rayleigh

## 1. INTRODUCTION

Grâce à leurs dimensions proches de celles d'entités biologiques, les nanomatériaux présentent un intérêt croissant dans le domaine de la santé. En particulier, l'utilisation de nanocristaux aux propriétés optiques non linéaires en tant que bio-marqueurs pourrait ouvrir de nouvelles perspectives en imagerie bio-médicale, avec le développement de la microscopie de Génération de Second-Harmonique (GSH) [1,2].

La stabilité optique et la longévité du signal de GSH sont deux avantages par rapport aux marqueurs fluorescents, déjà utilisés en imagerie biologique. De plus, la GSH est un processus nonrésonnant, ce qui permet d'adapter la longueur d'onde d'excitation aux propriétés de transparence de l'échantillon étudié (flexibilité en longueur d'onde). Il est alors possible d'utiliser une excitation lumineuse dans l'infrarouge, où la profondeur de pénétration des rayons dans les tissus biologiques est plus importante que dans le visible [3].

Nous présentons ici la caractérisation des propriétés optiques non linéaires des nanocristaux, effectuée par l'intermédiaire de la technique de diffusion Hyper-Rayleigh ou « Hyper-Rayleigh Scattering » (HRS).

#### 2. SECTION EXPERIMENTALE

Les mesures de diffusion Hyper-Rayleigh nécessitent la préparation de suspensions colloïdales de nanoparticules. Les poudres sèches et agglomérées de nanoparticules sont mélangées dans un solvant, eau ou éthanol, à des concentrations d'environ 5 mg/mL, puis dispersées et désagrégées par des ultrasons à l'aide d'une sonotrode. La technique de filtrage utilisée consiste à laisser décanter les suspensions ainsi obtenues et à récupérer le surnageant ne comportant que les particules les plus fines. La concentration des surnageants obtenus est typiquement de 0.1 mg/mL. Leur concentration précise est déterminée par pesée après évaporation d'un volume donné de solution. Des dilutions sont également effectuées à partir des surnageants afin d'obtenir des échantillons de différentes concentrations en nanoparticules.

La taille des nanoparticules en suspension est mesurée par « dynamic light scattering », permettant d'estimer le diamètre moyen des nanoparticules en suspension, ainsi que la dispersion en

taille d'un échantillon. Le diamètre des nanoparticules varie typiquement entre 50 et 200 nm selon les matériaux.

Le banc de diffusion Hyper-Rayleigh est constitué d'un laser YAG de longueur d'onde 1064 nm, pulsé à 2 ns et de fréquence de répétition 10 kHz. Le faisceau laser est focalisé sur l'échantillon à étudier et le signal diffusé à 532 nm est collecté perpendiculairement au faisceau incident puis analysé à l'aide d'un photomultiplicateur couplé à un système d'acquisition.

Connaissant les concentrations et tailles moyennes des nanocristaux, les valeurs d'hyperpolarisabilité des nanocristaux sont ensuite obtenues par la méthode dite de référence externe.

#### 3. **RESULTATS**

Les coefficients optiques non linéaires moyens <d> (déduits des mesures d'hyperpolarisabilité) obtenus pour les différents nanocristaux (ZnO, BaTiO<sub>3</sub>, KTP, KNbO<sub>3</sub>, LiNbO<sub>3</sub>) sont semblables aux coefficients des matériaux massifs. Les écarts observés peuvent provenir de plusieurs facteurs expérimentaux tels que l'inhomogénéité en taille des nanoparticules et la difficulté d'obtenir des valeurs très précises en concentration.

Il a été vérifié que l'intensité du signal de second-harmonique dépend de la taille des nanocristaux. Pour des nanoparticules de taille très inférieure à la longueur d'onde, c'est-à-dire dans un régime de diffusion Rayleigh, l'intensité du signal à  $2\omega$  est proportionnelle au volume quadratique des nanoparticules.

En faisant varier la polarisation incidente du signal d'excitation, on a également pu obtenir, en supposant l'hypothèse de Kleinmann, les 2 coefficients optiques non linéaires indépendants  $(d_{ij})$ des matériaux de symétrie cristalline 4mm et 6mm (BaTiO<sub>3</sub> et ZnO). Pour les autres matériaux, l'estimation des différents coefficients indépendants apparait nettement plus complexe.

#### CONCLUSION

Les coefficients moyens <d> obtenus sont du même ordre de grandeur d'un nanocristal à l'autre. Pour une utilisation en tant que bio-marqueurs, d'autres caractéristiques sont importantes, comme la toxicité. Les propriétés optiques non linéaires ne semblent pas un critère de sélection au premier ordre.

#### Références

[1] P. Pantazis, J. Maloney, D. Wu, and S. E. Fraser, "SHG nanoprobes for in-vivo imaging", PNAS, vol. 107, pp. 14535-14540, 2010

[2] B.E. Cohen, "Biological imaging: beyond fluorescence", Nature, vol. 467, pp. 407-408, 2010

[3] J. Extermann, L. Bonacina, E. Cuna, C. Kasparian, Y. Mugnier, T. Feurer, J.P. Wolf, "Nanodoublers as deep imaging markers for multi-photon microscopy", Optics Express, vol. 17 (17), pp.15342-15349, 2009

# CARACTERISATIONS OPTIQUES ET SPECTROSCOPIE EN LUMIERE POLARISEE DE CRISTAUX LASER TYPE BORATE<sup>[1]</sup>

# V. Jubera<sup>1</sup>, H. Hajrouche<sup>1</sup>, M. Chavoutier<sup>1</sup>, Y. Petit<sup>1</sup>, J. Debray<sup>2</sup>, B. Menaert<sup>2</sup>, P. Segonds<sup>2</sup>, F. Adamietz<sup>3</sup>, V. Rodriguez<sup>3</sup>, I. Manek-Hönninger<sup>4,5</sup>, P. Veber<sup>1</sup>, M. Velazquez<sup>1</sup>, O. Viraphong<sup>1</sup>, R. Decourt<sup>1</sup>, A. Fargues<sup>1</sup>, A. Garcia<sup>1</sup>

 <sup>1</sup> CNRS, Université de Bordeaux, ICMCB, 87av. Dr. A. Schweitzer, Pessac, F-33608, France
<sup>2</sup> CNRS, Institut Néel, 25 rue des Martyrs, BP166, 38042 Grenoble Cedex 9, France
<sup>3</sup> Université de Bordeaux, Institut des Sciences Moléculaires, UMR5255 CNRS, 351 Cours de la Libération, Talence Cedex F-33405, France

<sup>4</sup> CNRS, Université de Bordeaux1, CELIA, 351 Cours de la Libération, TalenceF-33405, France <sup>5</sup> Université Bordeaux 1, LOMA, UMR, 351 Cours de la Libération, 33405 Talence Cedex, France

jubera@icmcb-bordeaux.cnrs.fr

#### Résumé

Différentes solutions solides de formulation  $Li_6Ln(BO_3)_3$ :Yb (Ln= Y, Gd) ont été étudiées dans le but d'évaluer l'impact des taux de substitution des différents ions terres rares sur les propriétés optiques et spectroscopiques des ions ytterbium.

La croissance cristalline de quatre compositions a été réalisée avec succès, permettant l'obtention de cristaux de taille centimétrique. Les propriétés de luminescence en lumière polarisée sont reportées ainsi que les caractéristiques chimiques, physiques et optiques de matériaux obtenus. Parmi celles-ci, les mesures de dureté, d'indice de réfraction, de gain seront plus particulièrement regardées.

#### **MOTS-CLEFS :** *borate, ytterbium, luminescence*

#### 1. INTRODUCTION

Cette étude s'inscrit dans la recherche de nouveaux matériaux dopés terre rare et plus particulièrement de composés de type borate dopés ytterbium pour application LASER. L'obtention de monocristaux de bonne qualité est, bien entendu, un critère primordial pour générer des performances laser satisfaisant les domaines d'applications visées (laser continu accordable, laser impulsionnel femtoseconde). De plus, il est important d'étudier, en parallèle de la croissance cristalline, les relations qui existent entre la structure du matériau (nombre de sites de substitution pour la terre rare, connexion et coordination des polyèdres LnOx (Ln= Y, Gd, Yb)), ses caractéristiques physiques (dureté, conductivité thermique) et ses propriétés optiques (mesures d'indices de réfraction, de gain). Les composés étudiés de formulation  $Li_6Ln(BO_3)_3$ :Yb (Ln=Gd,Y) (notation LLnB:Yb), ne présentent qu'un site de substitution pour les ions ytterbium. Nous nous sommes attachés à faire varier les taux Y/Gd pour modifier l'environnement local des ions ytterbium et avons obtenu quatre cristaux de compositions suivantes:  $Li_6(Gd_{0,75}Yb_{0,25})(BO_3)_3$  noté LG½Y½B:Yb et Li<sub>6</sub>(Gd<sub>0,1875</sub>Yb\_{0,25})(BO\_3)\_3 noté LG½Y½B:Yb et Li<sub>6</sub>(Gd<sub>0,1875</sub>Yb\_{0,25})(BO\_3)\_3 noté LG½Y½B:Yb.

#### 2. PREPARATION DES MATERIAUX ET CARACTERISATIONS

Les composés de type borate LLnB présentent une fusion congruente. Le mode de croissance par tirage à partir d'un bain fondu est donc parfaitement adapté à ce type de matériaux. L'optimisation des paramètres de croissance a permis l'obtention de cristaux transparents de taille centimétrique. Ces paramètres (vitesse de rotation, rampe de température, ...) ont été adaptés à chaque composition sans pour autant que ces modifications aient donné des différences notables sur la qualité des cristaux (figure 1).



Fig 1.- Cristaux obtenus LGB :Yb (a), LY<sub>1/4</sub>G<sub>3/4</sub>B:Yb (b) LYGB :Yb (c), LY<sub>3/4</sub>G<sub>1/4</sub>B :Yb (d)

Chacun des cristaux obtenus a fait l'objet de diverses caractérisations. Les études en concentration réalisées sur poudre ont permis de fixer le taux en ytterbium introduit dans les bains ou dans les flux de croissance. Le taux initial a été fixé à 25 % (substitution atomique) soit 13.10<sup>20</sup> ions/cm<sup>3</sup>. L'analyse de la concentration en ions ytterbium par ICP a montré que les cristaux LLnB :Yb, contiennent une concentration légèrement inférieure égale à 22 % en ions ytterbium.

L'étude suivante concerne la faisabilité de la mise en forme de ces matériaux. La découpe et le polissage doivent être adaptés en fonction de la dureté du cristal. Des mesures selon l'essai de Knoop ont été réalisées. Les borates de type LLnB ont une dureté de 4-5 dans l'échelle de Mohs, similaire au composé  $Sr_3Y(BO_3)_3$  (BOYS)<sup>[2]</sup>.

La connaissance des propriétés thermiques (mesure de l'expansion thermique par la diffraction des rayons X en température, mesure de conductivité thermique et de capacité calorifique) permet de comprendre une partie des pertes obtenues en cavité laser. L'opérateur peut alors prévoir un dispositif de refroidissement autour du milieu amplificateur si ces données sont mauvaises. Ces mesures nous ont permis d'estimer la conductivité thermique autour de 2 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>. Peu de variations ont été enregistrées entre les différents composés. Contrairement à l'amélioration qui a pu être observée par ailleurs pour le GGG avec 5 % de substitution molaire d'ytterbium <sup>[3]</sup>, nous n'avons pas pu améliorer la conductivité thermique en jouant sur le taux yttrium/gadolinium.

#### 3. ETUDES SPECTROSCOPIQUES ET CARACTERISATION OPTIQUES

La luminescence des ions ytterbium a été étudiée dans un premier temps sur poudre puis en lumière polarisée sur des cubes orientés. Les résultats indiquent une différence notable selon les directions de propagation et de polarisation. Les indices de réfraction ont été déterminés sur les différentes compositions à partir de la méthode de l'angle de Brewster. Les valeurs moyennes de  $n_X$ ,  $n_Y$  et  $n_Z$  sont 1,55, 1,6 et 1,7. Les mesures d'indice de réfraction par la méthode de Brewster sur nos cristaux monocliniques ont nécessité une méthodologie couplant la diffraction des rayons X et la conoscopie afin d'orienter correctement les échantillons.

Des mesures de gain ont été réalisées puis, les cristaux non traités anti-reflet ont été testés en cavité laser (cavité linéaire). Des résultats intéressants ont été obtenus: une puissance de 460 mW pour 1,6 W de pompe avec un seuil à 200 mW pour des plaquettes perpendiculaires à l'axe b<sup>[4]</sup>.

En perspective, un travail important devra être mené en spectroscopie résolue angulairement et en polarisation pour définir les directions optimales de fonctionnement LASER.

#### REFERENCES

[1] M. Chavoutier, V. Jubera, P. Veber, I. Manek-Hönninger, D. Descamps, A. Garcia, O. Viraphong, J. Hejtmanek, R. Decourt, B. Menaert, F. Adamietz, V. Rodriguez, A. Fargues, F. Guillen, M. Velazquez, *J. Solid State Chem.* 184 (2011) 441–446

[2] S. Chénais, F. Druon, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, P.H. Haumesser, B. Viana, G. Aka, D. Vivien, J. *Opt.Soc.Am.*, B19 (2002) 1083–1091.

[3] R. Gaumé, B. Viana, D. Vivien, J.-P. Roger, D. Fournier, Appl. Phys.Lett. 83(7) (2003) 1355–1357.

[4] Y. Petit, B. Boulanger, P. Segonds, C. Félix, B. Ménaert, J. Zaccaro, and G. Aka, *Optics Express* 16(11), (2008) 7997-8002

# ETUDE DES PROPRIETES OPTIQUES DE YAl3(BO3)4 PAR GENERATION DE SECOND ET DE QUATRIEME HARMONIQUE

Régine Maillard<sup>1</sup>, Alain Maillard<sup>1</sup>, Mourad Bourezzou<sup>1</sup>,

Daniel Rytz<sup>2</sup>, Philippe Villeval<sup>3</sup>,

Gérard Aka<sup>4</sup>, Julien Lejay<sup>4</sup>, Pascal Loiseau<sup>4</sup>.

<sup>1</sup> LMOPS, Université Paul Verlaine Metz, EA 4423 57070 Metz, France
<sup>2</sup> FEE GmbH, Struthstr. 2, 55743 Idar-Oberstein, Allemagne
<sup>3</sup>Cristal Laser, Parc d'activité du Breuil, 54850 Messein, France
<sup>4</sup>LMSCP-ENSCP, UMR 7574, 11 rue Pierre et Marie Curie 75005 Paris, France

rmaillar@metz.supelec.fr

#### Résumé

Afin d'étudier les propriétés optiques non-linéaires de YAl<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> (YAB), des mesures de génération de second et de quatrième harmonique d'un laser Nd-YAG sont effectuées sur ces cristaux. Les coefficients optiques non-linéaires effectifs pour la conversion 1064 nm =>532 nm et 532 nm => 266 nm sont mesurés à température ambiante, sans cristal de référence et le coefficient optique non-linéaire d<sub>11</sub> impliqué dans le développement de d<sub>eff</sub> est déduit.

**MOTS-CLEFS :** *YAB, conversion de fréquence, génération d'UV* 

## 1. INTRODUCTION

Les cristaux de la famille des borates comme  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (BBO), LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub> (LBO) ou Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub> (LTB) sont couramment utilisés pour les applications de conversion de fréquences. Avec le développement des applications dans l'Ultra-Violet (UV), les laser UV tout solide sont de plus en plus indispensables et de nouveaux matériaux avec de bonnes performances pour la génération d'UV sont recherchés.

De premières études effectuées sur des cristaux de YAl<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> (YAB) montrent que ce borate, de groupe d'espace R32, est un bon candidat pour ce type d'applications. Avec une dureté relativement élevée et une bonne stabilité chimique, il permet plus facilement un polissage optique et un traitement de surface que d'autres borates [1]. Les valeurs d'indices mesurées montrent qu'un accord de phase de type I est possible pour la conversion 1064 nm =>532 nm et 532 nm => 266 nm

#### **2.** EXPERIENCE

Nous présentons des mesures de conversion de fréquences d'un laser Nd-YAG. Ces mesures sont effectuées sans cristal de référence, et ce afin de tenir compte de la réponse spécifique du cristal aux conditions de focalisation [2]. Le laser est utilisé en mode continu, avec une puissance moyenne de 6W.

Pour la conversion 1064=>532nm, deux échantillons sont taillés avec l'angle d'accord de phase de type I soit 30,7°, avec des épaisseurs de 2,3 et 3,2mm, le faisceau se propageant dans un plan XZ. Des mesures sont effectuées avec deux focales différentes de waist 43 et 92  $\mu$ m.

Pour la génération d'UV, une première conversion 1064=>532nm est effectuée avec un cristal de BBO puis un cristal de YAB, d'épaisseur 1,4mm, taillé selon l'angle d'accord de phase de type I à  $66.2^{\circ}$  permet d'obtenir la conversion 532 nm => 266 nm. Le plan de propagation est toujours le plan XZ

#### **3. RESULTATS**

Pour la conversion 1064=>532 nm , une valeur d<sub>eff</sub> de 1,1pm/V a été obtenue soit en tenant compte du développement de d<sub>eff</sub> qui est pour cette symétrie d<sub>eff</sub>= d<sub>11</sub>cos $\theta$  cos 3 $\phi$ , d<sub>11</sub> = 1,28 pm/V Pour la conversion 532=>266 nm , le rayonnement UV peut être vu sur un écran par fluorescence comme le montre la figure 1



Figure 1 : fluorescence d'un écran soumis au rayonnement UV produit par un cristal de YAB

Les valeurs de d<sub>eff</sub> obtenues dépendent fortement du point d'impact du faisceau incident dans l'échantillon, ce qui est corrélé avec une variation de l'absorption en différents points du cristal. Dans la position la plus favorable, une valeur de d<sub>eff</sub> de 0.43pm/V a pu être obtenue

#### CONCLUSION

Des valeurs de d<sub>eff</sub> de 1,1pm/V et 0.43pm/V ont pu être mesurées sur des cristaux de YAB taillés selon l'angle d'accord de phase de type I pour des conversions respectivement de 1064=>532 nm et de 532=>266 nm. Même s'il est encore nécessaire de préciser les résultats obtenus pour la génération d'UV avec des échantillons plus homogènes en absorption, ces premières mesures montrent que le YAB présente un bon potentiel pour la réalisation de sources UV.

#### REFERENCES

[1] D. Rytz, A. Gross, S. Vernay, V. Wesermann"YAl3(BO3)4:a novel NLO crystal for frequency conversion to UV",SPIE vol 6998, Solid State Lasers and Amplifiers, 2008.

[2] R, Maillard, A. Maillard, K. Polgar, "Visible and UV effective non-linear optical coefficients of  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> as function of the growth technique" Optical Materials 31, 899–901,2009.

# NANOSTRUCTURATION DE FIBRES OPTIQUES PAR CROISSANCE DE PARTICULES D'OXYDE DOPÉES $Er^{3+}$

# Valérie Mauroy<sup>1</sup>, Wilfried Blanc<sup>1</sup>, Michèle Ude<sup>1</sup>, Stanislaw Trzesien<sup>1</sup>, Luan Nguyen<sup>2</sup>, et Bernard Dussardier<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Laboratoire de Physique de la Matière Condensée, Université de Nice-Sophia Antipolis, CNRS UMR 6622, Parc Valrose, 06108 Nice, Cedex 2, France

<sup>2</sup> Centre de Recherche sur l'Hétéro-Epitaxie et ses Applications, CNRS UPR 10, rue Bernard Gregory, Les Lucioles 1, 06560 Valbonne Sophia Antipolis, France

valerie.mauroy@unice.fr

#### Résumé

Les fibres optiques céramiques permettent de combiner les propriétés mécaniques d'un matériau amorphe et les propriétés spectroscopiques d'un environnement qui peut être cristallin ou amorphe. Dans cette communication, nous présentons une méthode de nanostructuration de fibres optiques à base de silice où l'introduction de magnésium dans la composition du coeur permet d'obtenir des particules. Leurs caractéristiques ainsi que celles de la spectroscopie des ions  $Er^{3+}$  dépendent de la concentration en ions de terre alcaline.

**MOTS-CLEFS** : fibres optiques ; erbium ; nanoparticules ; spectroscopie

#### 1. INTRODUCTION

Les propriétés d'amplification des ions de terre rare sont utilisées dans de nombreux dispositifs tels que les lasers. Afin d'assurer un meilleur contrôle thermique et d'obtenir une meilleure qualité de faisceau, les développements s'orientent vers une géométrie fibrée. C'est le cas par exemple des fibres cristallines [1]. Un autre axe intéressant est celui constitué par les fibres céramiques. Le choix de la composition des nanocristaux permet alors d'obtenir des propriétés spectroscopiques inexistantes dans la matrice amorphe environnante. Différents matériaux sont étudiés tels que les verres oxyfluorés [2] ou des silicates [3]. L'étirage de ces matériaux en fibres optiques reste difficile et le processus de dévitrification nécessite un post-traitement thermique qui peut fragiliser la fibre. Afin de s'affranchir de ces difficultés, nous étudions une méthode de nanostructuration in-situ obtenue directement au cours du procédé standard de fabrication de fibres optiques à base de silice (procédé MCVD). La faisabilité de cette voie est démontrée en incorporant du calcium [4][5]. Mais les caractéristiques des particules engendraient une forte diffusion de la lumière. Dans cette communication, nous présentons les résultats plus prometteurs obtenus en ajoutant du magnésium.

#### 2. CARACTÉRISATIONS DES NANOPARTICULES

Les fibres ont été fabriquées au LPMC par le procédé MCVD. Le magnésium, ainsi que l'erbium, sont apporté par la méthode classique du trempage en solution. Trois concentrations en  $MgCl_2$  ont été préparées : 0,1, 0,5 et 1 mol/l. Le coeur des fibres contient aussi du phosphore et du germanium. Les caractéristiques des nanoparticules analysées à travers l'acquisition d'images MEB, permets l'observation de particules dans le coeur de la fibre optique. Comme on peut le voir sur la Figure 1, leurs caractéristiques dépendent très fortement de la concentration en Mg. Ces analyses sont reportées dans le Tableau 1. Le diamètre moyen n'augmente pas linéairement avec la concentration en Mg mais semble présenter un maximum pour la concentration intermédiaire. Il en est de même pour la densité de particules. Les mesures d'atténuation montrent que la fibre contenant 0,1 mol/l de  $MgCl_2$  atteint un niveau de transparence compatible avec des applications en tant que fibre amplificatrice [6]. En revanche, les pertes sont plus importantes pour les concentrations supérieures. Du point de vue spectroscopique, les spectres d'émission de  $Er^{3+}$  présentés sur la Figure 1 montrent clairement un élargissement pour les deux plus

fortes concentrations. Les déclins de fluorescence à 1,55  $\mu m$  présentent aussi un changement pour ces deux compositions. Une modification notable de l'environnement des ions erbium a donc opéré.



FIGURE 1 : Images MEB du coeur de la fibre optique contenant  $0,1 \ mol/l$  (a) et  $0,5 \ mol/l$  (b). (c) : Spectres d'émission des fibres optiques excités à 980 nm à température ambiante.

TABLE 1 : Caractéristic	ues des nanopartici	iles obtenues d'a	près les images ME	B des fibres optiques.

Concentration de magnésium	Diamètre moyen	<b>Densité par</b> m <sup>2</sup>
0,1 <i>mol/l</i>	42 nm	$1,36.10^{-13}$
0,5 mol/l	168 nm	$1,40.10^{-12}$
1 mol/l	70 nm	8,43.10 <sup>-13</sup>

#### CONCLUSION

L'introduction de magnésium dans le coeur d'une fibre à base de silice permet d'obtenir des nanoparticules de quelques dizaines de nanomètres de diamètre. Pour les nanoparticules les plus petites, les pertes sont tout à fait compatibles avec des applications telles que les fibres amplificatrices. Cependant, on ne constate pas de modification spectroscopique de l'erbium. En ce qui concerne les deux autres échantillons, les particules sont plus importantes mais possèdent un élargissement spectral de fluorescence à 1,5  $\mu m$  dû à un changement de composition de l'environnement de l'erbium. La composition exacte et la nature cristalline ou amorphe des particules seront discutées au cours de la présentation.

#### Références

- [1] Fiber Crystal Growth from the Melt. Springer, 2004.
- [2] M. Mortier and F. Auzel, "Rare-earth doped transparent glass-ceramics with high cross-sections," J. Non-Cryst. Solids, vol. 256 & 257, pp. 361–365, 1999.
- [3] B. Samson, L. Pinckney, J. Wang, G. Beall, and N. Borrelli, "Nickel-doped nanocrystalline glass ceramic fiber," Opt. Lett., vol. 27, pp. 309–1311, 2002.
- [4] W. Blanc, B. Dussardier, G. Monnom, R. Peretti, A. Jurdyc, B. Jacquier, M. Foret, and A. Roberts, "Er doped oxide nanoparticles in silica based optical fibres," *Glass technol : Eur. J. Glass Sci. Technol. A*, vol. 50, p. 79, 2009.
- [5] F. d'Acapito, C. Maurizio, M. Paul, T. S. Lee, W. Blanc, and B. Dussardier, "Role of CaO addition in the local order around erbium in SiO2-GeO2-P2O5 fiber preforms," *Mater. Sci. Eng. B*, vol. 146, pp. 167–170, 2008.
- [6] W. Blanc, V. Mauroy, L. Nguyen, S. Bhaktha, P. Sebbah, B. Pal, and B. Dussardier, "Rare earth-doped transparent glass ceramic optical fibers prepared by modified chemical vapor deposition," *Accepté après soumission à J. Am. Ceram. Soc.*, 2011.

# OSCILLATEUR PARAMÉTRIQUE OPTIQUE SIMPLEMENT RÉSONANT STABILISÉ EN DESSOUS DU KHZ

#### Oussama Mhibik, David Pabœuf, Cyril Drag, Fabien Bretenaker

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS/Université Paris-Sud, Orsay

fabien.bretenaker@u-psud.fr

#### Résumé

Nous décrivons un oscillateur paramétrique optique simplement résonant continu (CW-SROPO), doublé en intracavité et accordable entre 579 et 678 nm. Sa fréquence relative est stabilisée en dessous du kHz suivant la technique de Pound-Drever-Hall (PDH).

MOTS-CLEFS : OPO ; SHG ; Stabilité ; PDH

#### **1. INTRODUCTION**

Le traitement de l'information quantique, en particulier celui utilisant la manipulation de certains ions de terre rare incorporés dans des matrices solides, et la spectroscopie à ultra-haute résolution, nécessitent des sources accordables visibles ayant une faible largeur de raie. Les oscillateurs paramétriques optiques (OPO) constituent une approche particulièrement prometteuse pour atteindre cet objectif grâce à leur large plage d'accordabilité ainsi que leur bonne stabilité en fréquence (par opposition aux lasers à colorants). Notre approche pour atteindre des longueurs d'onde visibles consiste à construire un oscillateur paramétrique optique continu simplement résonant (CW-SROPO) émettant dans l'infrarouge proche puis à doubler le complémentaire résonant dans la cavité. La configuration de doublage intracavité est plus efficace en raison de la forte intensité du faisceau résonant [1]. En plus, nous avons démontré, récemment, qu'il est possible de transférer la gigue de la pompe au signal non résonant [2]. Dans ce travail nous avons stabilisé, pour la première fois, la fréquence d'un CW-SROPO au niveau du kHz. En quelques mots, la technique mise en œuvre consiste à transmettre la stabilité d'une cavité de référence au CW-SROPO. La référence de fréquence est une cavité Fabry-Perot confocale de finesse moyenne (F=100) utilisée en transmission. Un comparateur, permet de comparer le niveau de signal optique transmis par le FP et détecté par une photodiode, avec le niveau de consigne. Le comparateur délivre un signal d'erreur qui est ensuite filtré et amplifié par l'électronique de la boucle pour être utilisé comme signal de rétroaction appliqué à un actionneur piezo-électrique portant un miroir de la cavité OPO. Néanmoins, cette technique présente deux principales limitations. Premièrement, la bande passante de l'asservissement est limitée par le temps de stockage des photons dans la cavité. Ceci rend l'utilisation d'une cavité de très haute finesse impossible et limite donc la précision du discriminateur de fréquence. Deuxièmement, le bruit d'intensité est interprété par l'électronique de la boucle d'asservissement comme bruit de fréquence.

Nous nous sommes donc tournés vers une autre technique communément connue sous le nom de Pound-Drever-Hall (PDH). Cette technique rend possible l'utilisation d'une cavité de référence de très grande finesse [3]. Ceci permet donc d'avoir un signal d'erreur (ou signal PDH) avec une grande pente et donc accroitre la précision du discriminateur de fréquence. De plus, le signal PDH offre une large bande d'accrochage définie par la fréquence de modulation (quelques dizaines de MHz typiquement). L'asservissement PDH est aussi connu pour son immunité au bruit d'intensité.

#### 2. Résultats expérimentaux

La cavité de l'OPO est une cavité en anneau composées de deux miroirs concaves ( $M_1$  et  $M_2$ ) de 150 mm de rayon de courbure distants de 180 mm, et de deux miroirs plans ( $M_3$  et  $M_4$ ) distants de 380 mm (voir figure 1(a)).  $M_3$  est monté sur un actionneur piézo-électrique (PZT). Ils sont conçus pour avoir une réflexion supérieure à 99,8% entre 1,2  $\mu$ m et 1,4  $\mu$ m, et une transmission supérieure à 95% à 532 nm et entre 850 nm et 950 nm pour assurer un fonctionnement simplement résonant. Le

cristal non linéaire est un PPSLT dopé au MgO (1%) (MgO-PPSLT) ayant une longueur de 30 mm. Ce cristal contient un réseau unique avec une période de 7,97 µm. Il est conçu pour assurer un quasiaccord de phase pour une longueur d'onde complémentaire entre 1,2  $\mu$ m et 1,4  $\mu$ m pour une pompe à 532 nm. Le cristal doubleur est un cristal de BBO de 10 mm de longueur, traité antireflet pour le complémentaire et les longueurs d'onde visibles (voir la figure 1(a)). Un cristal électro-optique (EOM) alimenté avec un oscillateur local (LO), permet de moduler la phase du laser à 25 MHz. Le faisceau est ensuite couplé dans une fibre qui assure le filtrage spatial de ce dernier. En sortie de la fibre, on récupère un faisceau à la limite de diffraction qui, injecté dans la cavité de référence, permet d'atteindre un couplage avec le mode fondamental de la cavité FP de référence avoisinant 80%. La référence est une cavité FP ayant un intervalle spectral libre de 1,3 GHz et une finesse F = 3000. Le signal d'erreur est obtenu après démodulation et filtrage du signal en provenance de la photodiode rapide (PDR). Le signal PDH est ensuite envoyé à l'entrée d'un filtre de boucle pour être appliqué au PZT après amplification par un amplificateur haute tension (AHT) (voir la figure 1(a)). L'OPO demeure asservi quelques dizaines de minutes, cette durée étant limitée seulement par les sauts de mode. La densité spectrale de bruit de fréquence mesurée à partir du signal d'erreur de la figure 1(b) permet d'estimer la largeur de raie de la source à une valeur inférieure à 1 kHz (sur 1 s). Cette stabilité est relative à la cavité de référence.



FIGURE 1 : (a) : Dispositif expérimental. MD : miroir dichroïque; OI : isolateur optique; PD : photodiode (b) : Densité spectrale de puissance de bruit de fréquence mesuré sur 1 s.

#### **CONCLUSION ET PERSPECTIVES**

Nous venons de montrer ce qui est, à notre connaissance, la valeur de largeur de raie la plus basse pour une telle source paramétrique. Les prochaines étapes vont consister à améliorer la stabilité long terme en stabilisant la longueur de la cavité de référence sur une référence atomique.

#### Références

- T.-H. My, C. Drag, and F. Bretenaker, "Single-frequency and tunable operation of a continuous intracavityfrequency-doubled singly resonant optical parametric oscillator," *Opt. Lett.*, vol. 33, no. 13, pp. 1455–1457, 2008.
- [2] O. Mhibik, T.-H. My, D. Pabœuf, F. Bretenaker, and C. Drag, "Frequency stabilization at the kilohertz level of a continuous intracavity frequency-doubled singly resonant optical parametric oscillator," *Opt. Lett.*, vol. 35, no. 14, pp. 2364–2366, 2010.
- [3] J. Millo, D. V. Magalhães, C. Mandache, Y. Le Coq, E. M. L. English, P. G. Westergaard, J. Lodewyck, S. Bize, P. Lemonde, and G. Santarelli, "Ultrastable lasers based on vibration insensitive cavities," *Phys. Rev. A*, vol. 79, no. 5, p. 053829, 2009.

# CONTROLE DU DOPAGE ET DE LA PHOTOREFRACTIVITE DE LN DOPE FER PAR SPECTROSCOPIE RAMAN

# Sabrina Mignoni<sup>1</sup>, Marc Fontana<sup>1</sup>, Patrice Bourson<sup>1</sup>, Marco Bazzan<sup>2</sup>, Edvard Kokanyan<sup>3</sup>

 <sup>1</sup> Laboratoire Matériaux Optiques, Photonique et Systèmes, EA 4423, Université Paul Verlaine de Metz et Supélec, 2, rue E. Belin, 57070 Metz, France
<sup>2</sup>Dipartimento di Fisica G. Galilei e Università di Padova, Via Marzolo 8, 35131 Padova, Italy <sup>3</sup>Institute for Physical Research, National Academy of Sciences of Armenia, 0203 Ashtarak, Armenia

sabrina.mignoni@metz.supelec.fr

#### Résumé

Nous présentons nos résultats obtenus grâce à la technique de la spectroscopie Raman pour contrôler le profil de diffusion du fer et mesurer la photoréfractivité dans des cristaux de niobate de lithium dopés fer ayant reçu différents traitements (réducteurs ou oxydants). Nous calculons l'efficacité photoréfractive de nos échantillons, et pouvons alors les comparer entre eux.

MOTS-CLEFS : niobate de lithium ; photoréfractivité ; spectroscopie Raman

#### **1. INTRODUCTION**

Le niobate de lithium LiNbO<sub>3</sub> (LN) est un excellent matériau pour diverses applications en raison de ses propriétés photoréfractives (PR) [1]. Un des enjeux de recherche de ce matériau consiste à réaliser des guides optiques PR performants pour l'optique intégrée. Un des challenges pour optimiser la réponse photoréfractive consiste en la maîtrise des concentrations de Fe<sup>2+</sup> et Fe<sup>3+</sup> [2]. Faire subir aux échantillons un traitement réducteur ou oxydant est un moyen d'obtenir le bon rapport entre Fe<sup>2+</sup> et Fe<sup>3+</sup> dans ce but [3]. L'objectif de notre travail consiste à déterminer les conditions optimales de réalisation de l'incorporation du fer (Fe) dans le LN, par le contrôle de sa microstructure et l'estimation de ses propriétés PR par une seule et même technique, la spectroscopie Raman.

#### **2.** EXPERIENCES ET RESULTATS

Plusieurs échantillons LN:Fe ont été étudiés lors de ce travail. Il s'agit entre autres de contrôler le profil de diffusion du fer, et d'estimer l'influence du traitement oxydant ou réducteur sur les différents cristaux.

Par ailleurs, nous avons proposé une nouvelle approche des règles d'activité Raman, qui ainsi peuvent prendre en compte des non linéarités optiques du second ordre, ce qui est en général négligé dans la littérature. Nous avons ainsi établi les configurations Raman dans lesquelles, soit les intensités de raies sont amplifiées, soit de nouvelles raies sont activées par un processus non linéaire. Ces prédictions ont été confirmées par des résultats expérimentaux obtenus sur plusieurs échantillons. Enfin, nous avons pu proposer une nouvelle méthode d'estimation de l'efficacité PR permettant de comparer utilement divers échantillons selon leur dopage ou traitement.



Fig. 1 : Fréquence du mode A<sub>1</sub>[TO<sub>1</sub>] de différents échantillons étudiés mesurés en Raman en retrodiffusion avec une longueur d'onde de 633 nm.

#### CONCLUSION

Nous avons pu montrer que la microstructure était modifiée non seulement par l'introduction d'un dopant comme Fe, mais aussi par les divers traitements. Nous avons aussi mis en évidence pour la première fois le mécanisme de l'incorporation des ions Fe dans des structures de LN obtenues par diffusion [4].

Nous avons mis en évidence la photoréfractivité de différents cristaux de niobate de lithium dopés fer, non traités, oxydés et réduits à deux concentrations différentes (0.03 et 0.05 wt%) grâce au calcul de l'efficacité photoréfractive à partir des spectres Raman mesurés. Nous sommes en mesure de comparer la photoréfractivité de nos échantillons, et les résultats obtenus sont en bon accord avec la théorie [5].

#### Références

[1] T. Volk, M. Wöhlecke, "Lithium Niobate Defects, Photorefraction and Ferroelectric Switching," Springer Series in Materials Science, Springer, Berlin, Heidelberg, 2008

[2] K. Buse, "Light-induced charge transport processes in photorefractive crystals II: Materials," Appl. Phys. B, vol. 64, pp. 391-407, 1997

[3] D. Kip, "Photorefractive waveguides in oxide crystals: fabrication, properties, and applications," Appl. Phys. B, vol. 67, pp. 131-150, 1998

[4] S. Mignoni, M. D. Fontana, M. Bazzan, M.V. Ciampolillo, A.M. Zaltron, N. Argiolas, C. Sada, "Micro-Raman analysis of Fe-diffused lithium niobate waveguides," Appl. Phys. B, vol. 101, pp. 541-546

[5] S. Mignoni, A. Zaltron, M. V. Ciampolillo, M. Bazzan, N. Argiolas, C. Sada and M. D. Fontana, "Effect of Fe Doping by Thermal in-Diffusion on the Defect Structure of Lithium Niobate," IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering, vol. 15, pp. 012063, 2010

# **ORIGIN OF NON-RESONANT POPULATION INDUCED REFRACTIVE INDEX CHANGES IN ION-DOPED LASER MATERIALS : STILL AN OPEN QUESTION**

R. Moncorgé<sup>1</sup>, J.L. Doualan<sup>1</sup>, T. Godin<sup>1</sup>, M. Fromager<sup>1</sup>, K. Ait-Ameur<sup>1</sup> A. Chavez<sup>2</sup>, R.A. Cruz<sup>2</sup>, T. Catunda<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Centre de Recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique (CIMAP), UMR 6252 CEA-CNRS-ENSICAEN, Université de Caen, France <sup>2</sup> Group Instituto de fisica Sao-Carlos, USP Sao-Carlos, SP, Brazil

richard.moncorge@ensicaen.fr

#### ABSTRACT

More reliable ESA and Z-scan measurements have been performed in Cr:GSGG and ruby. The results indicate that the real origin of the purely dispersive and athermal refractive index changes observed in these materials needs to be reconsidered.

**KEY-WORDS** : Laser materials, Nonlinear spectroscopy

A number of works have been dedicated these last years to the analysis and the implementation of the athermal and non-resonant refractive index changes which can be observed in most of the  $Nd^{3+}$  and  $Yb^{3+}$  doped laser materials at high enough excitation pump powers [1-4]. These pseudo-nonlinear effect has been assigned rather unambiguously to the polarizability changes experienced by the laser active ions when they are brought from their ground- to excited energy levels, and these polarizability changes to the existence and the influence of strong electric-dipole allowed UV absorptions bands associated with  $4f^n \rightarrow 4f^{n-1}5d$  and ligand-to-metal or inter-valence charge transfer transitions. The question is a bit more complicated in the case of the laser materials based on transition-metal ions such as  $Cr^{3+}$ ,  $Ti^{3+}$  and probably  $Cr^{2+}$ . The optical electrons of these laser active ions indeed have an Ar(3d<sup>n</sup>) electronic configuration and they strongly interact with their lattice environment. In this case, the processes responsible for the optically-induced refractive index changes observed in these materials may originate from ligand-to-metal CT transitions [5], as in the case of Yb<sup>3+</sup> doped materials, which constitutes the most commonly admitted interpretation, and/or to variations of the metal-ligand distances, thus to stress-induced elasto-optic effects, when the ions are excited from their ground- to excited energy levels. Now, when UV absorption bands such 4f5d or CT transitions can be invoked and can be measured, we also know that the resulting polarizability and refractive index changes can be simply derived, in principle, by using some simple quantum-mechanical model and/or the famous Kramers-Kronig relations. So, our purpose here in this work was to examine whether the spectroscopic properties of some well-known materials like Cr :GSGG and Cr:Al2O3 (ruby) - the one remains a reference material - could correctly account for the observed refractive index changes based on the existing models.

Three types of experiments have been performed: i) Z-scan measurements to reexamine the results which were obtained in past works, but without giving enough details on the experimental conditions, ii) low and high temperature ESA measurements, more particularly in the case of Cr:GSGG, because of the proximity of its <sup>2</sup>E and <sup>4</sup>T<sub>2</sub> emitting levels, in order to measure the role of the selection rules, iii) more reliable ESA measurements both in the visible and the near UV spectral domain, especially in the case of ruby, in order to reach unquestionable values for the oscillator strengths of the considered ground- and excited-state absorption transitions.

As an illustration, we show in the following figure the ESA spectrum which is obtained in the near-UV in the case of ruby.



Figure 1: Near-UV excited-state absorption difference spectrum of ruby obtained after 570 nm excitation

By calibrating and analysing such ESA spectrum, by collecting the ground absorption spectra obtained in the past in the VUV spectral domain and by using a standard electronic oscillator model, the involved polarizability change  $\Delta \alpha_p(\overline{\nu})$  at a certain frequency could be estimated from the oscillator strengths  $f_g$  and  $f_{ex}$  of the considered ground- and excited-state absorption transitions

by such an expression like  $\Delta \alpha_p(\overline{v}) = 7.15 \cdot 10^{-15} \left[ \frac{f_{ex}}{(\overline{v}_{CT} - \overline{v}_{ex})^2 - \overline{v}^2} - \frac{f_g}{\overline{v}_{CT}^2 - \overline{v}^2} \right]$ , where  $hc\overline{v}_{CT}$  stand

for the average energy position of the considered CT state,  $hcv_{ex}$  for the position of the excited metastable state from which ESA occurs (<sup>2</sup>E level for ruby) and hcv for the probe wavelength. With experimental values  $f_{ex} \approx 0.04$  and  $f_g \approx 0.3$ , thus values differing by nearly one order of magnitude, it was thus possible to estimate a  $\Delta \alpha_p$  value at the He-Ne probe laser wavelength of 632.8 nm, of about -4.2 x 10<sup>-25</sup> cm<sup>3</sup>, thus a relatively large but a negative value, which is rather unexpected ! On the contrary, if it was assumed, as it is usually made when no ground-state absorption data is available, that  $f_g \approx f_{ex}$ , we would have found  $\Delta \alpha_p = +1.54.10^{-25} cm^3$ , which is in much better agreement (sign and value) with the Z-scan results [6].

The question thus arises concerning the accuracy of the literature spectroscopic data, the validity of the model which allows the use of an expression like Exp. (1) and/or the validity of the interpretation made in terms of polarisability variation.

This question along with the information obtained from the high and low temperature ESA spectra registered in the case of Cr:GSGG will be developed in more details at the conference.

#### References

[1] R. Soulard, A. Zinoviev, J.L. Doualan, E. Ivakin, O. Antipov, R. Moncorgé, "Detailed characterization of the refractive index changes observed in the Nd3+ doped high gain laser crystals YVO4, GdVO4 and KGW" Opt. Exp. **18**(2), 1553-1568 (2010) and refs therein

[2] R. Soulard, R. Moncorgé, A. Zinoviev, K. Petermann, O. Antipov, A. Brignon, "Nonlinear spectroscopic properties of  $Yb^{3+}$ -doped sesquioxides  $Lu_2O_3$  and  $Sc_2O_3$ "Opt. Express **18**, 11173-80 (2010) and refs therein [3] R. Soulard, A. Brignon, J.P. Huignard, R. Moncorgé "Non-degenerate near-resonant two-wave mixing in

diode-pumped  $Nd^{3+}$  and  $Yb^{3+}$  doped crystals in the presence of athermal refractive index grating" J. Opt. Soc. Am. B **27**, 2203-2210 (2010)

[4] A.A. Fotiadi, O.L. Antipov, P. Megret, "Dynamics of pump-induced refractive index changes in singlemode Yb-doped optical fibers" Opt. Expr. **16**(17) 12658 (2008)

[5] R.C. Powell, S.A. Payne "Dispersion effects in four-wave mixing measurements of ions in solids" Opt. Lett. **15**(21) 1233-1235 (1990) and R.C. Powell, Physics of Solid State Laser Materials, Springer, NY, Berlin, Heidelberg, 1998

[6] T. Godin, M. Fromager, E. Cagniot, R. Moncorgé and K. Aït-Ameur, "Baryscan: a sensitive and userfriendly alternative to Z-scan for weak nonlinearities measurements" Opt. Lett. **36** (8) 1401 (2011) and refs therein
### FIBRES SCINTILLATRICES POUR LA CALORIEMETRIE EN PHYSIQUE DES HAUTES ENERGIES

#### K.Pauwels<sup>1,2</sup>, E.Auffray<sup>2</sup>, P.Lecoq<sup>2</sup>, A.Belsky<sup>1</sup>, G.Ledoux<sup>1</sup>, D.Amans<sup>1</sup>, K.Lebbou<sup>1</sup>, D.Perrodin<sup>3</sup>, A.Petrosyan<sup>4</sup>, A.Vedda<sup>5</sup> et C.Dujardin<sup>1</sup>

 <sup>1</sup>Laboratoire de Physico-Chimie des Matériaux Luminescents, Université Lyon 1, CNRS, UMR 5620, Bâtiment A. Kastler, 10 rue Ampère, F-69622 Villeurbanne cedex, France.
 <sup>2</sup>European Organization for Nuclear Research, CERN, 1211 Geneva 23, Switzerland.
 <sup>c</sup>Fibercryst SAS, Bd Latarget, 69616, Villeurbanne, France
 <sup>4</sup>Institute for Physical Research, NAS of Armenia, 0203 Ashtarak-2, Armenia
 <sup>5</sup>Dipartimento di Scienza dei Materiali, Università di Milano-Bicocca, Via Cozzi 53, 20125 Milano, Italy.

Christophe.dujardin@univ-lyon1.fr

#### Résumé

Le projet ANR INFINHI propose un nouveau concept de calorimètre à haute granularité basé sur l'utilisation de fibres monocristallines inorganiques ayant différentes fonctionnalités. Ces différents types de fibres, une fois assemblées forment ce que l'on nomme un « métacable ». Ce métacable est la brique élémentaire permettant la mise en œuvre d'un calorimètre de grande envergure, adapté aux futures expériences de physique des hautes énergies. Le principe consiste à élaborer par la technique « micropulling down » des fibres de matériaux LuAG. Ces grenats présentent un bon pouvoir d'arrêt. Dopés avec l'ion cérium, ils donnent lieu à des propriétés de scintillation adaptées à ce type de détecteurs (haut rendement de scintillation, déclin rapide), alors que non dopées, seul l'effet Cherenkov est escompté. Ces deux types de fibres ont vocation à séparer les différents types de contribution des gerbes électromagnétiques créées lors des interactions. Ce concept permet de réunir au sein d'un même assemblage (le métacable) différentes fonctionnalités et d'obtenir ainsi un détecteur très homogène.. Dans cette présentation une étude des différents paramètres physico- chimiques gouvernant les propriétés optiques et de scintillation des fibres élaborées en lien étroit avec les paramètres de synthèse sera présentée.

**MOTS-CLEFS**: Scintillateurs, LuAG: Ce, Calorimétrie(quatre au maximum)

# CERAMIQUES TRANSAPRENTES DE $MGAL_2O_4 \text{ et } AL_2O_3$ : procedes et analyses

#### Johan Petit<sup>1</sup>, Laura Vernhet<sup>1</sup>, Philippe Dethare<sup>1</sup>, Alessandra Sergent<sup>1</sup>, Robert Marino<sup>1</sup>, Marie-Hélène Ritti<sup>1</sup>, Stéphane Landais<sup>2</sup>, Jean-Luc Lunel<sup>2</sup>, Sandrine Trombert<sup>3</sup>, Philippe Goldner<sup>4</sup>, Bruno Viana<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Département des Matériaux et Structures Composites, ONERA, 29 av de la Division Leclerc, 92322 Chatillon cedex, France <sup>2</sup>Département des Matériaux et Structures Métalliques, ONERA, Chemin de la Hunière,

91761Palaiseau cedex, France <sup>3</sup>Baïkowski, Les Marais Noirs Ouest, BP501, 74339 La Balme de Sillingy cedex, France <sup>4</sup>LCMCP, CNRS UMR 7574, Chimie-Paristech, 11 rue P&M Curie, 75231 Paris cedex 5 johan.petit@onera.fr

#### RESUME

Ce travail présente les récents résultats obtenus sur les céramiques transparentes de spinelle et d'alumine ainsi que le procédé utilisé et les analyses effectuées. A 640 nm, sur 1 mm d'épaisseur, les transmissions sont de 48% et 83% pour l'alumine et le spinelle respectivement.

Mots clés : céramiques transparentes ; HIP ; alumine ; spinelle

#### 1. INTRODUCTION

Pour les applications en conditions extrêmes des fenêtres visibles et infrarouges, les matériaux tels que les polymères organiques, les verres ou les monocristaux ne sont pas toujours appropriés. En effet, les polymères et les verres sont réservés aux basses températures et sont mécaniquement limités. Les monocristaux sont très coûteux voire impossible à fabriquer dans des grandes dimensions. Ces raisons sont à l'origine de plusieurs études sur les céramiques dites transparentes à travers le monde avec des résultats plus ou moins concluants suivant les matériaux. Dans le projet ANR CERATRANS, nous nous sommes concentrés sur deux composés : le spinelle (MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) et l'alumine (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Les propriétés thermomécaniques de l'alumine sont supérieures à celles du spinelle mais la réalisation de céramiques transparentes est plus difficile à cause de sa biréfringence qui entraîne de la diffusion aux joints de grains. Dans ce travail, sont présentées les différentes étapes du procédé de fabrication de pièces de céramiques de spinelle et d'alumine transparentes, les analyses microstructurales et leurs relations avec la transparence mesurée.

#### 2. PROCEDE EXPERIMENTAL

Nous avons choisi la voie humide pour la formation de nos crus. Les suspensions sont élaborées à partir du broyage humide en milieu aqueux des poudres jusqu'à complète désagglomération. Le rayon moyen des grains finaux est de l'ordre de 150 nm et la surface spécifique de  $15 \text{ m}^2.\text{g}^{-1}$ . La densité de ces suspensions stables est de ~73% et ~50% en masse pour l'alumine et le spinelle respectivement.

Les crus sont élaborés par filtration lente sous vide des suspensions. Les crus ainsi obtenus ( $\emptyset$ 40x20 mm<sup>3</sup>) sont séchés sous hygrométrie contrôlée. Un frittage naturel sous vide secondaire pendant quelques heures est préalablement effectué pour amorcer la densification et fermer la porosité : ~1200°C pour l'alumine ; ~1600°C pour le spinelle. Enfin, un traitement isostatique à chaud par la méthode HIP est réalisé sous 170 MPa à 1200°C et 1500°C pour l'alumine et le

spinelle respectivement. Dans le cas de ce dernier, un post-traitement sous air peut être nécessaire pour l'élimination de défauts colorés.



#### 3. **RESULTATS**

Figure 1 : (a) courbes de transmission dans le visible / proche IR des spinelle et alumine pour 1 mm
d'épaisseur (\*= valeurs rapportées à 1 mm) ; (b) exemple de structure observée au MEB après HIP sur
l'alumine ; (c) photo des échantillons de spinelle (2.6 et 3.5 mm d'épaisseur) ;
(d) photo d'un échantillon d'alumine (2.8 mm d'épaisseur)

Les résultats de transparence obtenus sont proches de l'état de l'art. Pour l'alumine, la microstructure doit être contrôlée pour empêcher le grossissement des grains qui interviennent pour une part importante dans la diffusion de la lumière en plus de la porosité résiduelle. Actuellement, nos meilleurs résultats ont été obtenus pour une taille de grains d'environ 500 à 600 nm et une porosité d'environ 0.14%.

#### 4. CONCLUSION

Les résultats présentés ici sont très encourageants que ce soit pour le spinelle ou bien l'alumine. Pour le premier, le post-traitement sous air doit être optimisé pour diminuer la coloration sans augmenter la diffusion. Pour la deuxième, le contrôle de la taille des grains et la diminution de la porosité résiduelle doivent être améliorés afin de diminuer fortement la diffusion dans le visible.

Pour les deux composés, des tailles d'échantillons de Ø80 mm sont en cours d'étude.

### SYNTHESE, CROISSANCE CRISTALLINE ET OPTIQUE NON LINEAIRE DU MOYEN IR DES COMPOSES AGGAS<sub>2</sub> ET ZNGEP<sub>2</sub>

#### Johan Petit<sup>1</sup>, Michel Bejet<sup>1</sup>, Jean-Claude Daux<sup>1</sup>, Pierre Beauchene<sup>1</sup>, Antoine Godard<sup>2</sup>, Jean-Michel Melkonian<sup>2</sup>, Myriam Raybaut<sup>2</sup>, Michel Lefebvre<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Dépt des matériaux et Structures Composites, ONERA, BP72, 29 av de la Division Leclerc, 92322 Chatillon cedex, France <sup>2</sup>Dépt des Mesures Physiques, ONERA, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau cedex, France

johan.petit@onera.fr

#### RESUME

Nous avons obtenu la phase  $AgGaS_2$  pure à partir des éléments simples et les cristaux sont de bonne qualité optique après recuit sous vide statique/dynamique. Les premiers essais sur ZnGeP<sub>2</sub> ont permis d'obtenir un rendement de 60 à 70 % sur la synthèse et des cristaux des quelques cm<sup>3</sup>. Les tests optiques en DFG sur AgGaS<sub>2</sub> ont été effectués. **Mots clés :**  $AgGaS_2$ ,  $ZnGeP_2$ , laser, optique non-linéaire, croissance cristalline

#### **1.** INTRODUCTION

Les contre-mesures optiques et la détection d'espèces gazeuses à distance sont des applications qui requièrent l'obtention de lasers accordables dans la gamme 3-12  $\mu$ m de l'infrarouge moyen. En effet, c'est dans cette région que se trouvent la signature thermique des aéronefs ainsi que la plupart des bandes d'absorption des composés gazeux. Pour y arriver, des Oscillateurs Paramétriques Optiques (OPO) permettent de convertir les émissions lasers fixes du proche IR en des émissions laser accordables du moyen IR. Cependant, pour atteindre ces grandes longueurs d'onde, il faut des matériaux qui y soient transparents. Les oxydes devenant opaques au-delà de 5 $\mu$ m pour la plupart, nous nous sommes tournés vers les phosphures et les sulfures tels que AgGaS<sub>2</sub> (AGS) et ZnGeP<sub>2</sub> (ZGP) [1,2,3,4].

Dans ce présent travail, seront présentées les étapes de synthèse chimique des phases désirées, de leur croissance cristalline et des post-traitements éventuels. Enfin, les résultats optiques seront exposés.

#### 2. ELABORATION DE AGS ET ZGP

La synthèse de AGS et ZGP s'effectue à partir des éléments simples de pureté 6N en proportion stoechiométrique. Ils sont mis dans un creuset en nitrure de bore lui-même placé dans une ampoule de quartz scellée sous vide. Le mélange est monté jusqu'à 1000°C. Or à ces températures les pressions de vapeur saturante du soufre et du phosphore sont supérieures à 100 bar d'où les risques importants d'explosion des réacteurs en quartz. Pour éviter cela, le four a été conçu spécialement. Une phase pure d'AGS a été obtenue. Pour le ZGP, la production de phase irréversible de ZnP<sub>2</sub> parasite est un problème. Les conditions thermiques du four doivent être optimisées pour en limiter la production. La croissance s'effectue en ampoule scellée par la méthode Bridgman verticale autour des points de fusion (996°C pour AGS et 1027°C pour ZGP). Après la croissance, AGS est opaque a cause de précipités d'une phase riche en sulfure de gallium : une méthode de recuit sous vide statique/dynamique a été proposée pour rendre la transparence maximale [5].

#### **3. TESTS OPTIQUES**

Pour caractériser la qualité optique et non linéaire des cristaux d'AGS, des tests de génération de différence de fréquence (DFG) ont été effectués. Une émission DFG à 8-12 µm requiert deux

faisceaux accordables très proches. Pour cela, un OPO PPLN de type II pompé à 1,06 µm a été utilisé selon le schéma : 1064 (o)  $\rightarrow$  1.88-1.96 µm (o) + 2.45-2.33 µm (e). Les émissions peuvent être accordées en changeant la température du cristal. Le signal et le complémentaire sont collimatés et injectés dans un cristal d'AGS non traité anti-reflet. Deux cristaux d'AGS de 15 mm de long avec des angles  $\theta = 41^{\circ}$  et  $\theta = 43^{\circ}$  ont été testés pour l'accord de phase de type II selon : 1.88-1.96 µm (e) – 2.45-2.33 µm (o)  $\rightarrow$  8-12 µm (e). Le type II permet d'accéder à un coefficient non linéaire effectif supérieur au type I.



Figure 1 : (a) produit de synthèse d'AGS ; (b) monocristal d'AGS recuit ; (c) monocristal de ZGP ; (d) courbe d'accordabilité de DFG pour deux cristaux d'AGS différents en comparaison avec la courbe théorique ; (insert) profils temporels des différents signaux.

#### 4. CONCLUSION

Nous avons réussi à synthétiser la phase pure d'AGS et à obtenir des cristaux de bonne qualité optique après recuit. Concernant ZGP, les premiers essais de croissance sont prometteurs avec l'obtention de gros monocristaux pour l'extraction de germes. Sa synthèse est également en cours d'étude avec un rendement actuel de 60 à 70%. Les résultats de DFG sur AGS confortent la bonne qualité des échantillons et démontrent notre savoir-faire optique dans la gamme du moyen IR.

[3] G. A. Verozubova, A. I. Gribenyukov, V. V. Korotkova, M. P. Ruzaikin, Materials Science and Engineering B 48 (1997) 191-197

[5] J. Petit, M. Bejet, J-C. Daux, Materials Chemistry and Physics 119 (2010) 1-3

<sup>[1]</sup> P. G. Schunemann, T. M. Pollak, MRS Bulletin, 23 (1998), 23-27

<sup>[2]</sup> V. Petro, F. Rotermund, F. Noack, P. Schunemann, Opt. Letters 24 (1999) 414-416

<sup>[4]</sup> G. A. Verozubova, A. I. Gribenyukov, V. V. Korotkova, A. W. Vere, C. J. Flynn, J. Crystal Growth 237-239 (2002) 2000-2004

# **ETUDE ET RÉALISATION D'UNE STRUCTURE À CRISTAUX PHOTONIQUES EN NIOBATE DU LITHIUM POUR LA MODULATION ÉLECTRO-OPTIQUE**

#### Benattou SADANI, Huihui LU, Fadi I. BAIDA, Gwenn ULLIAC et Maria-Pilar BERNAL

Institut FEMTO-ST, Université de Franche-Comté, UMR CNRS 6174, 25030 Besançon, France

bsadani@univ-fcomte.fr

#### Résumé

Nous présentons une nouvelle configuration de cristaux photoniques en niobate de lithium pour la modulation électro-optique. Des résultats théoriques et expérimentaux seront présentés. Nous ferons une étude à la fois sur des guides APE et sur des guides ridges réalisés sur couche mince de niobate de lithium.

**MOTS-CLEFS :** *niobate de lithium, cristaux photoniques, cavité Fabry-Pérot, modulation électro-optique* 

#### 1. INTRODUCTION

Des travaux récents ont montré qu'il était possible de réaliser des modulateurs électrooptiques à base de cristaux photoniques (CP) en niobate de lithium [1]. Cette étude exploite le phénomène de lumière lente [2] dans le cas d'un CP composé d'un réseau à maille carrée de trous d'air gravés dans le niobate du lithium. Nous proposons ici une nouvelle configuration de cristaux photoniques pour la modulation électro-optique où la géométrie étudiée est une configuration de type cavité Fabry-Pérot (FP). Le CP consiste en un réseau triangulaire de trous d'air orienté éclairé dans la direction  $\Gamma$ M. Un défaut est aménagé au centre de ce CP en « omettant » une ligne de trous au milieu de la structure (voir figure 1). La direction de la ligne est perpendiculaire à la direction de propagation de la lumière (direction du guide) et de chaque côté cette ligne existent 5 rangées des trous d'air.





Un code FDTD a été adapté pour le calcul de la transmission et du facteur du champ local f de cette structure. Les résultats obtenus sont jugés assez favorables car ils permettraient d'améliorer la modulation électro-optique [3] déjà observée. Sur la figure 2(a), un pic apparaît autour de 1,55µm correspondant au mode de la cavité Fabry-Pérot et qui apparaît à l'intérieur de la bande interdite.



Figure 2 : (a) Spectre de la transmission normalisée obtenue par FDTD (en rouge) et facteur du champ local (en bleu) pour la structure présentée sur la figure 1, (b) Spectre de la transmission normalisée pour différentes asymétriques FP cavités

L'influence du nombre de rangées de chaque côté de la cavité FP, joue un rôle aussi bien sur la transmission que sur le facteur f (cf. figure 2(b)). Comme attendu, on peut constater que l'asymétrie au niveau de la structure influe sur l'amplitude et la position du pic de résonance et affecte ainsi le facteur de qualité de la cavité.

#### 2. RÉALISATIONS ET CARACTÉRISATIONS

Nous avons fabriqué deux cavités FP possédant deux asymétries différentes. Les cristaux ont été réalisés sur des guides d'ondes APE par usinage FIB (Focused Ion Beam). La figure 3(b) présente les structures réalisées.



Figure 3 : (a) Images MEB des cavités FP réalisées, (b) Spectre de transmission expérimental normalisé obtenu pour chacune des structures.

Les cavités réalisées ont été caractérisées en transmission. Les résultats expérimentaux mettent en évidence une bande interdite photonique possédant un taux d'extinction de -18 dB. La position de la bande interdite concorde bien avec les résultats théoriques, cependant nous n'observons pas le pic de résonance (cf. figure 2(b)). Cela est probablement dû aux défauts de fabrication et, plus précisément, à la forme conique des trous [3]. La réalisation de cristaux photoniques sur des guides APE nécessite une gravure profonde, ce qui engendre cette conicité. Afin de remédier à ce problème, nous avons décidé d'utiliser des couches minces de niobate de lithium. Sur une couche d'1 µm d'épaisseur, nous avons réalisé par procédé RIE (Reactive Ion Etching) un guide d'onde de type ridge d'une profondeur de 200 nm, sur lequel nous avons fabriqué une cavité FP composé à base de cristal photonique par usinage FIB (cf. figure 4).



Figure 4 : Image MEB d'un guide ridge et d'une cavité FP réalisée sur couche mince

Des expériences sont en cours pour caractériser cette nouvelle réalisation et mettre en évidence expérimentalement la présence du pic de résonance de la structure.

#### Références

- [1] Roussey et al. Appl. Phys. Lett. 89, 241110, 2006
- [2] Razzari et al. Appl. Phys. Lett. 86, 231106, 2005
- [3] M. Roussey et al, J.Opt. Soc. AM. B/Vol. 24, No. 6/June, 2007
- [4] Burr et al. Optics Express, Vol. 16 Issue 9, pp.6302-6316, 2008

# Reseaux d'indice et reseaux de gain dans les milieux lasers solides dopes $Nd^{3+}$ ou $Yb^{3+}$ - Utilisation pour le melange a deux ondes et les cavites lasers auto-adaptatives

# Rémi Soulard<sup>1,2,\*</sup>, Arnaud Brignon<sup>1</sup>, Richard Moncorgé<sup>2</sup>, J.L. Doualan<sup>2</sup>, Jean-Pierre Huignard<sup>1</sup>, Oleg Antipov<sup>3</sup>, Andrei Zinoviev<sup>3</sup>, Oleg Eremeykin<sup>3</sup>, Evgeni Ivakin<sup>4</sup>

 <sup>1</sup> Thales Research And Technology, 1 Av Augustin Fresnel, 91767 Palaiseau Cedex, France
 <sup>2</sup> CIMAP, UMR 6252 CNRS-CEA-ENSICAEN, Université de Caen, France
 <sup>3</sup> Institute of Applied Physics, Russian Academy of Science, 603950 Nizhny Novgorod, Russia
 <sup>4</sup> Stepanov Institute of Physics, National Academy of Science of Belarus, 220072 Minsk, Belarus

\* remi.soulard@ensicaen.fr

#### Résumé

Ce travail présente tout d'abord une étude des variations d'indice de réfraction d'origine électronique qui sont dues à une variation de polarisabilité des ions lorsqu'ils sont promus de l'état fondamental à l'état excité. Nous avons évalué la variation de polarisabilité non résonante des ions Nd<sup>3+</sup> et Yb<sup>3+</sup> dans les principales matrices lasers et nous avons étudié la nature des transitions optiques à l'origine de cet effet. Nous avons ensuite exploité ces résultats pour prédire le potentiel de ces matériaux laser dans le cas d'un mélange à deux ondes non-dégénéré. Ce modèle a été validé expérimentalement dans une fibre cristalline de YAG :Nd<sup>3+</sup>. L'étude du transfert d'énergie d'un faisceau vers un autre présente un grand intérêt pour des applications telles que la mise en phase de lasers à fibres et l'interférométrie auto-adaptative. Par ailleurs, un laser auto-adaptatif pompé par diodes laser a été réalisé permettant l'obtention de forte énergie par impulsion.

**MOTS-CLEFS :** *matériaux lasers ; variation d'indice athermique ; mélange d'onde* 

#### **1. INTRODUCTION**

Bien que les variations d'indice de réfraction d'origine électronique dans les matériaux laser solides dopés terres rares et ions de transition du groupe du fer ont été observées depuis longtemps, en particulier par des expériences de mélange à quatre ondes et des techniques de Z-scan [1,2], plusieurs groupes de recherche se sont récemment intéressés à ces variations d'indice de réfraction motivés par des questions fondamentales ainsi que par des applications potentielles.

#### 2. VARIATIONS D'INDICE DE REFRACTION DANS LES MATERIAUX DOPES TERRES-RARES

De nombreux résultats ont déjà été obtenus tant au niveau de la spectroscopie des ions dans le proche UV qu'au niveau des mesures de variations d'indice. Les mesures spectroscopiques et de variations d'indice ont été effectuées dans la plupart des matériaux dopés  $Nd^{3+}$  ou  $Yb^{3+}$  utilisés aujourd'hui ou en cours d'étude dans les systèmes laser à impulsions brèves et/ou de forte puissance. Il s'agit bien sûr du YAG mais aussi des vanadates  $YVO_4$  et  $GdVO_4$ , des tungstates KYW et KGW, des sesquioxydes  $Lu_2O_3$ ,  $Sc_2O_3...$ , ainsi que des verres phosphate et silicate.

Parmi les résultats les plus marquants, citons les suivants :

- Il a été démontré que les bandes d'absorption UV à l'origine des variations de polarisabilités des ions lorsqu'on les porte dans leur état excités émetteurs de rayonnement laser infrarouge, donc des variations d'indice de réfraction des matériaux lorsqu'ils sont soumis à un fort pompage optique, étaient associées à deux types de transitions optiques très intenses :

o des transitions inter-configurationnelles 4f5d, dans le cas des matériaux dopés  $Nd^{3+}[3]$ 

- $\circ~$  des transitions de transfert de charge ligand-metal (LMCT) dans le cas des matériaux dopés  $Yb^{3+}\left[4\right]$
- Deux bancs de mesures pompe-sonde de variation d'indice ont été montés et utilisés [5] :
  - Un interféromètre dit de « Jamin-Lebedev » utilisant un laser TiSa (ou une diode laser fibrée) à impulsions et un laser He-Ne pour mesurer des variations d'indice transitoires de l'ordre de 10<sup>-6</sup> avec un excellent rapport signal à bruit.
  - Un diffractomètre utilisant les mêmes sources que précédemment, pour discriminer les contributions thermiques des contributions purement électroniques affectant les signaux observés.

- Une estimation très fiable des variations de polarisabilité des ions Nd<sup>3+</sup> et Yb<sup>3+</sup> dans la plupart des matériaux laser utilisés aujourd'hui.

# 3. UTILISATION DES HOLOGRAMMES D'INDICE ET DE GAIN DANS UN MATERIAU PLACE EN INVERSION DE POPULATION

La saturation du gain laser est une non-linéarité qui permet de générer des hologrammes de gain et des hologrammes d'indice. De nombreuses applications sont alors envisageables. Voici les résultats les plus significatifs que nous avons obtenus [6,7] :

- Le montage et la mise en œuvre d'une expérience de mélange à deux ondes dans une fibre monocristalline de Nd :YAG.

- L'élaboration d'un modèle permettant de reproduire les résultats obtenus dans l'expérience de mélange à deux ondes et surtout de faire ressortir les paramètres et les matériaux les plus pertinents pour optimiser le transfert d'énergie entre faisceaux dont il est question.

- La réalisation d'une expérience de vibrométrie auto-adaptative permettant une détection linéaire du signal par rapport au déplacement de l'objet à analyser

- L'obtention d'une source laser impulsionnelle, mono-fréquence de haute énergie, de bonne qualité de faisceau et de rendement énergétique élevé pour les applications LIDAR. Cette source dite « auto-adaptative » délivre des impulsions de 100 mJ à une cadence de 100 Hz.

#### CONCLUSION

Cette communication par poster présentera l'ensemble des résultats d'une thèse démarrée en 2007. Elle contient à la fois des aspects fondamentaux, par la caractérisation des transitions optiques à l'origine des variations d'indice et par la découverte de matériaux dans lesquels ces variations d'indice peuvent être exacerbés, ainsi que des aspects pratiques, par la mise en œuvre de ces effets non-résonant pour de nouvelles applications basés par exemple sur le mélange à deux ondes.

#### REFERENCES

[1] R.C. Powell, S.A. Payne, L.L. Chase, G.D. Wilke, "Index of refraction change in optically pumped solidstate laser materials", Opt. Lett., 14(21), 1204-1206, 1989

[2] S.M. Lima, H. Jiao, L.A.O. Nunes, T. Catunda, "Non linear refraction spectroscopy in resonance with laser lines in solids", Opt. Lett., 27(10), 845-847, 2001

[3] J. Margerie, R. Moncorgé, P. Nagtegaele, "Spectroscopic investigation of variations in the refractive index of a Nd:YAG laser crystal : Experiments and crystal-field calculations", Phys. Rev. B, 74, 235108, 2006.

[4] R. Moncorgé, O.N. Ereymekin, J.L. Doualan, O.L. Antipov, "Origin of athermal refractive index changes observed in Yb3+ doped YAG and KGW", Opt. Comm., 281, 2526-2530, 2008.

[5] R. Soulard, A. Zinoviev, J. L. Doualan, E. Ivakin, O. Antipov, and R. Moncorgé, "Detailed characterization of pump-induced refractive index changes observed in Nd:YVO4, Nd:GdVO4 and Nd:KGW," Opt. Expr. 18, 1553-1568, 2010

[6] R. Soulard, A. Brignon, J. P. Huignard, and R. Moncorgé, "Non-degenerate nearresonant two-wave mixing in diode pumped Nd<sup>3+</sup> and Yb<sup>3+</sup> doped crystals in the presence of athermal refractive index grating " J. Opt. Soc. Am. B 27, pp 2203-2210 (2010)

[7] R. Soulard, A. Brignon, S. Raby, E. Durand and R. Moncorgé, "Diode-pumped Nd:YAG self-adaptive resonator with a high gain amplifier operating at 100 Hz", Appl. Phys. B, (à paraître)

# MATÉRIAU YB:CAGDALO<sub>4</sub> POUR APPLICATIONS LASER DE FORTE PUISSANCE À 1 $\mu$ M

#### Akiko Suganuma<sup>1</sup>, Anaël Jaffrès<sup>1</sup>, Bruno Viana<sup>1</sup>, Pierre-Olivier Petit<sup>1</sup>, Philippe Goldner<sup>1</sup>, Sandrine Ricaud<sup>2</sup>, François Balembois<sup>2</sup>, Frédéric Druon<sup>2</sup>, Patrick Georges<sup>2</sup>

 <sup>1</sup> LCMCP-Chimie-Paristech UMR CNRS 7574, 11 Rue P&M Curie 75231 Paris Cedex 05 France
 <sup>2</sup> Lab. Charles Fabry de l'Institut d'Optique, Campus Polytechnique, RD 128, 91127 Palaiseau

bruno-viana@chimie-paristech.fr

#### Résumé

 $Yb^{3+}$ :CaGdAlO<sub>4</sub> est un matériau combinant des propriétés optiques remarquables à de bonnes propriétés thermiques. Il est donc particulièrement adapté aux applications laser de fortes puissances et pour la génération d'impulsions ultra-brèves. Un effet laser a été obtenu dans  $Yb^{3+}$ :CaGdAlO<sub>4</sub> sous pompage par diode jusqu'à 100W. Cependant, améliorer la qualité cristalline de ce matériau reste un point clé pour l'obtention de performances laser optimisées. Ainsi, des croissances de compositions enrichies en terres rares sous argon permettent de mieux exploiter les très bonnes propriétés intrinsèques de  $Yb^{3+}$ :CaGdAlO<sub>4</sub>.

**MOTS-CLEFS** : Matériaux laser ; Ytterbium ; CALGO ; Lasers de puissance.

Un problème récurrent affecte les matériaux laser pour les applications de forte puissance : la production de chaleur. C'est pourquoi il est crucial de choisir des matériaux possédant de très bonnes propriétés thermo-mécaniques. C'est le cas de Yb<sup>3+</sup>:CaGdAlO<sub>4</sub> qui est un nouveau matériau laser présentant une conductivité thermique très élevée (> 6.5 W K<sup>-1</sup>m<sup>-1</sup>) et donc un bon comportement sous fortes puissances de pompage. Un gain important sur une large gamme spectrale d'émission (> 40 nm) permet à cette matrice de se poser comme un excellent candidat en vue de la réalisation de laser de forte puissance et/ou en régime d'impulsions ultra-brèves. De plus, ce matériau se singularise des autres matrices oxydes lasers par sa spectroscopie optique [1]. Cependant la qualité cristalline de ce matériau nécessite des améliorations. La coloration des cristaux à la sortie du tirage Czochralski est imputée à une bande d'absorption parasite dans l'UV qui s'étend sur tout le domaine du visible et dont la traîne se prolonge jusque dans le proche IR, domaine où l'ion Yb<sup>3+</sup> absorbe et émet, ce qui conduit à une diminution de l'efficacité quantique et plus généralement des performances laser. Nous avons réussi à augmenter la qualité optique des ces cristaux en associant un excès en cations terres rares à une croissance cristalline sous atmosphère d'argon.



Fig.1 : Monocristal de 2% Yb<sup>3+</sup> : CaGdAlO<sub>4</sub> synthétisé par méthode Czochralski.

L'effet laser sous pompage par diode a été obtenu pour différentes concentrations en Yb<sup>3+</sup> (de 2 à 5%). La spectroscopie optique pour cette gamme de concentration est aussi très favorable et la large bande d'émission obtenue dans le proche IR est attribuée à l'existence de sites d'émission localisés sur une même position cristallographique.

Des mesures de lentille thermique ont été conduites et ont révélé un comportement favorable de Yb<sup>3+</sup>:CaGdAlO<sub>4</sub> pompé jusqu'à 100 W. Sous 86 W de puissance incidente, les lentilles thermiques mesurées sont f=37cm sans laser et f=25cm avec effet laser. Pour la même puissance incidente, l'élévation globale de température atteint 105°C mais le gradient de température dans le cristal est de seulement 20°C. Cette augmentation relativement faible de la température confirme l'excellente conductivité thermique du cristal et contribue à la diminution de la lentille thermique. En outre, ce matériau a démontré des propriétés intéressantes dans le domaine des impulsions ultrabrèves <100fs [2].

Afin d'exploiter pleinement le potentiel du Yb<sup>3+</sup>:CaGdAlO<sub>4</sub> comme matériau laser de forte puissance, l'essai d'une configuration en thin-disk semble prometteur : cette architecture particulière permet d'optimiser les transferts de chaleur et d'augmenter les puissances de pompe utilisées. Des cristaux de Yb<sup>3+</sup>:CaGdAlO<sub>4</sub> préparés sous forme de thin-disk ont déjà été testés en cavité laser et ont permis d'obtenir des performances laser de 26 W pour 80 W de puissance incidente. Cependant, celles-ci restent inférieures aux résultats laser obtenus sur le thin-disk Yb<sup>3+</sup>:YAG et sont en cours d'optimisation. C'est pourquoi des essais de croissance de Yb<sup>3+</sup>:CaGdAlO<sub>4</sub> avec des taux de dopage en ytterbium plus élevés (5% et supérieur) sont envisagés et ce travail sera effectué au cours du projet ANR-Femtocryble. En effet, de par sa faible épaisseur, il est nécessaire que la pompe effectue plusieurs passages dans le thin disk pour extraire le maximum de puissance. Des concentrations plus élevées en ytterbium devraient permettre d'augmenter la puissance extraite pour un même nombre de passages.

#### Références

[1] P.O. Petit, J. Petit, P. Goldner, B. Viana; Opt. Mat. 30 (7), 1093, (2008)

[2] D. N. Papadopoulos, F. Druon, J. Boudeile, I. Martial, M. Hanna, P. Georges, P. O. Petit, P. Goldner, B. Viana, *Opt. Lett.* 34 (2), 193, (2009)

### TOLERANCES ANGULAIRES POUR L'AMPLIFICATION PARAMETRIQUE OPTIQUE NON-COLINEAIRE DANS DES CRISTAUX UNIAXES ET BIAXES.

B. Trophème<sup>1\*</sup>, G. Mennerat<sup>1</sup>, B. Boulanger<sup>2</sup>

<sup>1</sup> CEA - CESTA, avenue des Sablières 33114 Le Barp, France <sup>2</sup> Institut Néel, 25 rue des Martyres BP 166, 38042 Grenoble Cedex 9, France

benoit.tropheme@cea.fr

#### Résumé

Ce travail a pour objectif de présenter une étude numérique et expérimentale des tolérances angulaires associées à l'amplification paramétrique optique en géométrie non colinéaire. Un code de calcul général a été développé pour déterminer et prévoir les directions d'accord de phase et les tolérances dans des cristaux uniaxes et biaxes. Les données numériques sont comparées à des résultats obtenus par une expérience dédiée à ces mesures de tolérances.

MOTS-CLEFS : OPA, non-colinéaire, tolérances.

L'amplification paramétrique optique (OPA) par de multiples pompes est une technique prometteuse pour la combinaison de faisceaux [1, 2] et pour l'amplification de signaux femtoseconde ultra large bande [3]. Une configuration non colinéaire entre les pompes et le signal est alors requise afin de restreindre les transferts de phase d'une pompe à son complémentaire associé. Les tolérances angulaires à l'accord de phase sont des paramètres critiques pour l'efficacité et la stabilité de l'OPA, ce qui implique d'adapter la mise en forme spatiale des différents faisceaux. Nous proposons ici une approche originale permettant de calculer ces tolérances aux distorsions de front d'onde, à la divergence des faisceaux et à l'instabilité de pointé. Nous avons développé et validé un code numérique général déterminant toutes les configurations non colinéaires satisfaisant la condition d'accord de phase, y compris hors des plans principaux des cristaux uniaxes et biaxes.

Nous avons étudié un OPA non colinéaire en accord de type I où le signal à 720 nm se propage le long de l'axe X ( $\theta$ =90°,  $\varphi$ =0°) du cristal biaxe de LBO chauffé à 193°C et pompé par des faisceaux à 532 nm, cf Fig. 1(a).



Fig. 1 : (a) configuration des faisceaux dans l'OPA et orientation du LBO avec (X,Y,Z) correspondant aux axes diélèctriques; (b) positions angulaires calculées pour un accord non colinéaire de type I où  $\theta$  et  $\phi$  sont les coordonnées sphériques du vecteur d'onde pompe ( $k_p$ ), le faisceau signal se propageant selon l'axe X ( $\theta$ =90°,  $\phi$ =0°); la ligne continue correspond à un accord de phase parfait et celles en pointillés à un désaccord de  $\pm \pi$ ; (c) Gain du signal mesuré et calculé en fonction de l'angle entre le signal et la pompe se propageant dans le plan XZ.

La ligne continue, Fig. 1(b), correspond à l'ensemble des lieux d'accord de phase dans l'espace  $(\theta, \phi)$ . L'angle entre la pompe et le signal vaut 1,13° dans le plan principal XZ, ce qui correspond

aux points sur l'axe vertical, *i.e.* à ( $\theta$ =88.87°,  $\varphi$ =0°) et (91.13,  $\varphi$ =0°). Dans le plan XY, les vecteurs d'onde pompe sont dirigés selon ( $\theta$ =90°,  $\varphi$ =±1.18°). Les limites de tolérance angulaire concernant le vecteur d'onde pompe sont représentées par deux lignes pointillées. Chaque limite correspond à un désaccord de phase  $\Delta kL = \pm 2\pi$  respectivement, correspondant aux premiers zéros de la fonction sinc<sup>2</sup>( $\Delta kL/2$ ) où L est la longueur du cristal. Le gain d'amplification mesuré en fonction de l'écart angulaire entre la pompe et le signal autour de la direction ( $\theta$ =91.13°,  $\varphi$ =0°) est en bon accord avec les calculs. La tolérance angulaire vaut alors 0,75 mrad.cm (pleine largeur à mi-hauteur). Ce paramètre est donc critique pour l'utilisation de nombreuses sources lasers à faible énergie comme les lasers à fibre nanoseconde : la divergence typique d'un faisceau gaussien à 15 mm d'un col de 100 µm de rayon à 1/e<sup>2</sup> dépasse les 800 µrad. Les expressions analytiques obtenues dans les plans principaux du LBO et du BBO montrent que les valeurs de tolérances sont près de deux fois plus faibles dans le BBO en raison de sa plus forte biréfringence.

#### CONCLUSION

Nos résultats confirment le besoin d'un contrôle de la qualité et de la divergence du faisceau pompe pour la réalisation d'OPA non colinéaire. Notre modèle pourra aider à optimiser des prochains systèmes.

#### Références

[1] A. Dubietis, R. Danielius, G. Tamošauskas, and A. Piskarskas, "Combining effect in a multiple-beampumped optical parametric amplifier," J. Opt. Soc. Am. B **15**, 1135-1139 (1998)

[2] Takashi Kurita, Keiichi Sueda, Koji Tsubakimoto, and Noriaki Miyanaga, "Experimental demonstration of spatially coherent beam combining using optical parametric amplification," Opt. Express **18**, 14541-14546 (2010)

[3] Daniel Herrmann, Raphael Tautz, Franz Tavella, Ferenc Krausz, and Laszlo Veisz, "Investigation of two-beam-pumped noncollinear optical parametric chirped-pulse amplification for the generation of few-cycle light pulses," Opt. Express **18**, 4170-4183 (2010)

# ENDOMMAGEMENT LASER MULTI LONGUEUR D'ONDE DANS KTP : QUANTIFICATION DE LA COOPERATIVITE ENTRE LES LONGUEURS D'ONDES 1064 nm et 532 nm

Frank Wagner<sup>1</sup>, Anne Hildenbrand<sup>1, 2</sup>, Jean-Yves Natoli<sup>1</sup>, Mireille Commandré<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Institut Fresnel, UMR CNRS 6133, Université Aix-Marseille, 13397 Marseille cedex 20, France <sup>2</sup> Actuellement à l'Institut franco-allemand de recherches de Saint-Louis (ISL), 5 rue du Général Cassagnou, BP 70034, 68301 Saint-Louis Cedex, France

frank.wagner@fresnel.fr

#### Résumé

L'endommagement laser nanoseconde dans le volume de cristaux de  $KTiOPO_4$  est étudié lors de situations d'irradiation qui permettent une conversion de fréquence plus ou moins efficace. Le résultat principal est que le seuil d'endommagement laser pour un mélange de longueur d'ondes peut être plus bas que celui pour l'irradiation avec une seule longueur d'onde (1064 nm ou 532 nm) en absence de conversion de fréquence. Les données permettent une comparaison avec des mesures effectuées dans KDP par d'autres auteurs. Cette comparaison souligne la forte coopérativité du mécanisme d'endommagement dans KTP et suggère que le mécanisme d'endommagement laser dans KTP diffère fondamentalement de celui dans KDP.

MOTS-CLEFS : KTP ; SHG ; endommagement laser ; mécanisme coopératif

#### 1. INTRODUCTION

Le cristal non-linéaire potassium titanyl phosphate,  $\text{KTiOPO}_4$  (KTP) est toujours un des matériaux non linéaires les plus utilisés [1]. Son utilisation principale est la conversion de fréquence et plus précisément le doublage en fréquence de lasers Nd:YAG (1064 nm  $\rightarrow$  532 nm). L'accord de phase généralement utilisé pour cette conversion est de type II, où un photon infrarouge polarisé selon l'axe Z et un autre photon infrarouge polarisé dans le plan X-Y sont combinés pour former un photon visible polarisé dans le plan X-Y.

L'endommagement laser du volume de KTP par un laser q-switch émettant des pulses de 6 ns à 1064 nm a été étudié récemment dans des situations d'irradiation qui ne permettent pas de conversion de fréquence [2]. Il a été montré que la polarisation Z endommage moins facilement le cristal que les polarisations X et Y. Une « fatigue » du matériau a également été mise en évidence : Pour la polarisation selon l'axe X par exemple, le seuil d'endommagement laser décroit de 18 J/cm<sup>2</sup> pour un tir unique par site à 9 J/cm<sup>2</sup> pour 10'000 tirs par site.

#### 2. DETAILS EXPERIMENTAUX

Nous avons quantifié l'endommagement laser nanoseconde de deux manières : premièrement des courbes d'endommagement (probabilité d'endommagement en fonction de la fluence crête) ont été enregistrées en mode S-on-1 (200 tirs par site), deuxièmement des mesures R-on-1 ont été effectuées afin d'estimer le seuil d'endommagement laser en utilisant seulement quelques sites (4-5 sites). Le montage expérimental, qui est schématisé en figure 1(a), a donc été adapté aux différents modes de mesure. Pour les courbes d'endommagement, en pompant soit à 1064 nm soit à 532 nm, une détection d'endommagement automatisée par traitement d'images a été utilisée. Pour les mesures R-on-1 (sur chaque site on monte la fluence jusqu'à ce qu'il casse) l'endommagement a été détecté par la diffusion de la lumière verte généré et l'efficacité de conversion a été mesuré simultanément. Nous avons mesuré les seuils d'endommagement en présence et en absence de SHG (plus ou moins efficace) et en SHG inverse.



Fig. 1 : (a) Schéma des différentes configurations du montage expérimental. Une seule longueur d'onde pompe est utilisée pour une expérience donnée. (b) Mesures des seuils d'endommagement approximatifs en fonction du rapport des énergies des deux longueurs d'ondes et comparaison au modèle non-coopératif.

#### 3. RESULTATS ET DISCUSSION

La figure 1(b) montre les seuils d'endommagement (fluence de pompage incidente) extraits des courbes de probabilité et des mesures R-on-1 en fonction du rapport r des énergies par pulse entre 532 nm et la lumière incidente de pompage. Il est frappant que bien que les données aient été acquises dans des situations très diverses, les points qui correspondent à une situation de SHG forment clairement une courbe qui décroit rapidement pour des mélanges des deux longueurs d'ondes. Considérant que notre faisceau est proche d'un profil spatial Gaussien et que donc le diamètre d'un faisceau généré est réduit d'un facteur  $\sqrt{2}$  par rapport au diamètre du faisceau pompe, on peut comparer les mesures à un mécanisme d'endommagement non-coopératif (lignes noires sur la figure 1(b)). Le mécanisme d'endommagement non-coopératif prend en compte une sensibilité différente du matériau par rapport aux deux longueurs d'ondes pures, mais le rapport des sensibilités (7 J/cm<sup>2</sup> / 11 J/cm<sup>2</sup> = 0.64) est considéré indépendant du rapport des fluences des deux longueurs d'ondes. Clairement le seuil d'endommagement mesuré dans des situations où le matériau est soumis à un mélange des longueurs d'ondes est inférieur au seuil attendu par ce modèle. Le mécanisme d'endommagement est donc coopératif entre les deux longueurs d'ondes. Plus précisément, le paramètre  $\gamma$  défini par :  $\gamma_{532/1064} = (T_{532 only} - T_{532}) / T_{1064}$  varie de ½ à 10 au lieu de rester à 0.64. Le mécanisme d'endommagement se révèle alors beaucoup plus coopératif que celui trouvé auparavant dans KDP (entre 355 nm et 1064 nm) [3].

#### CONCLUSION

Les données présentées mettent en évidence l'existence d'un mécanisme d'endommagement coopératif dans KTP et permettront de développer un model pour ce mécanisme. Une discussion plus détaillé des données est soumis pour publication à *Optics Communications*. Le modèle proposé implique la génération de centres colorés (préférentiellement par 532 nm), et la formation des endommagements à partir des centres colorés (préférentiellement par 1064 nm).

#### REFERENCES

[1] http://www.bccresearch.com/report/SMC019C.html

[2] A. Hildenbrand, F. R. Wagner, H. Akhouayri, J. Y. Natoli, M. Commandré, F. Théodore, and H.

Albrecht, "Laser induced damage investigation at 1064 nm in KTiOPO<sub>4</sub> crystals and its analogy with RbTiOPO<sub>4</sub>," Appl. Opt., vol. 48, pp. 4263-4269, 2009.

[3] P. DeMange, R. A. Negres, A. M. Rubenchik, H. B. Radousky, M. D. Feit, and S. G. Demos, "The energy coupling efficiency of multiwavelength laser pulses to damage initiating defects in deuterated KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> nonlinear crystals," J. Appl. Phys., vol. 103, pp. 083122, 2008.

### A LA LUMIERE DU LASER : LA BRETAGNE UNIT SES FORCES POUR FETER LE CINQUANTENAIRE DU LASER

# Thierry Chartier<sup>1,2</sup>, Esther Heinrich<sup>1,2</sup>, Sylvain Fève<sup>1,2</sup>, Pascal Besnard<sup>1,2</sup>, Danielle Graviou<sup>1,2</sup>, Jean-Claude Simon<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Université européenne de Bretagne, 5 Boulevard Laënnec, 35000 Rennes, France <sup>2</sup> CNRS, Foton (UMR 6082), Enssat, 6 rue de Kerampont, 22300 Lannion, France

thierry.chartier@enssat.fr

L'année 2010 fut l'année des 50 ans de l'invention du laser. Le laboratoire CNRS Foton et l'Enssat ont saisi cette opportunité exceptionnelle pour rassembler des acteurs régionaux complémentaires [1]. Tout au long de l'année 2010, l'opération « A la lumière du laser » [2] a proposé une programmation dense et diversifiée, adaptée à chaque catégorie de public : scolaires, étudiants, enseignants, chercheurs, entreprises et grand public. Différents outils pédagogiques et des moyens de communication spécifiques ont été développés. Citons par exemple :

- des valises pédagogiques, des expositions itinérantes et une maquette laser ;
- un site web de ressources pédagogiques sur les lasers [3];
- un ouvrage : « Le laser et ses applications, 50 ans après son invention » sous la direction de P. Besnard et P.-N. Favennec, Hermes Science Publications, 2010 ;
- des conférences (pour la formation des enseignants, des étudiants, des professionnels et du grand public) dont certaines sont disponibles en vidéo [4];
- un colloque scientifique national « Du laser aux systèmes fibrés, 50 ans d'innovation au service de tous ! » ;
- un documentaire de 52 min : « Laser et chercheurs : des protagonistes discrets» de Nicola Satta et Maud Gicquel-Guezo ;
- des spectacles de théâtre scientifique ;
- des éditions spéciales (Sciences Ouest, Amplitel) ;
- etc.

Le bilan de l'opération fait état de plus de 100 actions proposées dans 22 villes bretonnes (Brest, Lannion, Rennes, St Brieuc, ....). Au final, ce sont quelques 33 000 personnes qui ont été touchées par l'opération « A la lumière du laser ».

#### REMERCIEMENTS

Cette opération a bénéficié du soutien du Conseil Régional de Bretagne, de Lannion-Trégor-Agglomération, du Conseil Général des Côtes d'Armor, de Rennes Métropole, de l'Université de Rennes 1, du CNRS, de la Chambre de Commerce et d'Industrie des Côtes d'Armor, de l'Insa de Rennes, du pôle Images & Réseaux, de Captronic, de Keopsys, d'Idil, de Yenista, de Manlight, d'Ixfiber, de Quantel, de Laseo, d'Oxxius et de la Ville de Lannion.

#### Références

- [1] Les partenaires de l'opération sont : Enssat, Foton, Adit, Abret la clé des sciences, Apast, Cité des télécoms, CNRS, Enib, Espace des sciences, pôle Images et Réseaux, Insa Rennes, IPR, IUT de Lannion, Lycée Félix Le Dantec, Institut Maupertuis, Meito, Perfos, Université de Bretagne Occidentale, Université de Bretagne Sud, Université de Rennes 1.
- [2] www.laser50ans-bretagne.fr
- [3] www.abret.asso.fr/50ansdulaser/pages\_web/page\_titre.html
- [4] http://www.canal-u.education.fr/producteurs/enssat/

# Transmission d'un signal par voie optique

*N. Chateur et L. Gallais Ecole Centrale Marseille* 

Les télécommunications sont un domaine en plein essor du fait de la multiplication des services et des besoins accrus en transmission de débit. Le choix d'un support de transmission est un critère important dans la phase de conception d'un système de communication. En effet la conception d'un système de communication passe, avant toute chose, par la définition des performances que doit avoir le support de transmission : distance de communication, bande passante et immunité électromagnétique sont autant de grandeurs qui caractérisent ces supports.

Ce support de transmission peut être le cuivre avec les câbles coaxiaux, la silice ou le plastique avec les fibres optiques ou bien encore l'air dans le cas des liaisons hertziennes ou en espace libre. Les systèmes de télécommunications par fibre optique se sont imposés du fait de leur propriétés exceptionnelles en termes de bande-passante, d'atténuation,...et sont actuellement massivement utilisées.

Le montage proposé a pour objectif de présenter aux élèves de collège et de lycée les principes de base du fonctionnement d'un système de transmission optique, par le biais de plusieurs démonstrations : transmission d'un signal audio ou vidéo (voix ou image des étudiants) par fibre optique plastique, silice ou en espace libre. Ces montages simples sont utilisés lors de manifestations et permettent de discuter des propriétés des fibres en terme de bande passante, atténuation,...

#### **Rencontres pédagogiques - Posters**

#### Une mallette pédagogique pour l'holographie Alexandre Escarguel

Espace Science et Culture de l'Université de Provence (ESCUP), case 1, 3 place Victor Hugo, 13331 Marseille Cedex 3 / Laboratoire PIIM, UMR 6633 CNRS, case 321, Université de Provence, av. Escadrille Normandie-Niemen, 13397 Marseille Cedex 20, France. alexandre.escarguel@univ-provence.fr

Résumé

J'ai réalisé une mallette pédagogique dédiée à l'holographie dans le cadre des actions de diffusion scientifique de l'Espace Science et Culture de l'Université de Provence (ESCUP). La mallette comprend le matériel complet pour réaliser des hologrammes avec un montage simple, particulièrement robuste vis à vis des vibrations. Ce dispositif est utilisé pour l'enseignement à l'université (licence et master), lors des rencontres entre chercheurs et élèves du secondaire (ateliers ESCUP), ainsi que dans le cadre de la formation continue des enseignants du secondaire. Elle est aussi prêtée à des enseignants qui veulent développer un projet pédagogique sur ce thème.

**Mots-clefs :** holographie ; interférences ; laser ; pédagogie

Le principe de l'holographie a été inventé par D. Gabor en 1948 alors qu'il cherchait à améliorer la résolution des microscopes électroniques [1]. Les images en trois dimensions obtenues par cette technique sont réalisées à l'aide d'une source de lumière cohérente (laser) et sont particulièrement réalistes et impressionnantes. Les hologrammes intriguent et permettent d'aborder de nombreux principes physiques d'un niveau variable selon le public visé (propriétés des lasers, couleurs, cohérence, interférences, interférométrie, HVD,...). Cependant, la technique est en général extrêmement sensible aux vibrations parasites.

La mallette holographique présentée à ce congrès est très facilement transportable dans une petite valise et permet de réaliser des hologrammes à peu près n'importe où, pour peu qu'on dispose d'un peu d'obscurité, d'un accès à l'électricité et d'un point d'eau à proximité. Le montage est simple et est optimisé pour être extrêmement robuste vis à vis des vibrations [2]. Il s'inspire de la technique mise au point par Youri Denysiuk [3], lui même s'inspirant des travaux de Gabriel Lippmann sur la photographie interférentielle [4].

Le dispositif est prévu pour être utilisé par des enseignants ayant suivi une formation d'une journée sur l'holographie. Il est aussi utilisé lors de démonstrations devant des élèves du secondaire, ou dans le cadre de filières licence et master de l'université. Une démonstration au cours du congrès permettra de voir son fonctionnement. Le montage permet de faire des hologrammes par réflexion observables en lumière blanche, et il et possible d'illustrer le principe de l'interférométrie holographique, du multiplexage angulaire utilisé dans les HVD, et des filtres holographique « notch » utilisés notamment en spectroscopie Raman.

#### Références

[1] D. Gabor, "A new microscopic principle," Nature 161, pp. 777-778, 1948

[2] A. Escarguel, accepté pour publication au « Journal sur l'enseignement des sciences et technologies de l'information et des systèmes », mars 2011.

- [3] Denisyuk, Yu. N., "Photographic Reconstruction of the Optical Properties of an Object in its Own Scattered Radiation", Dokl. Akad. Nauk. SSR, 144, 1275- 1278 (1962)
- [4] G. Lippmann, "La photographie des couleurs," *Comptes Rendues des Scéances de l'Académie des Sciences*, Paris, **112**, pp. 274-275, 1891

#### L'OPTIQUE POUR LA PROMOTION DES SCIENCES DANS LE SCIENTIBUS Frédéric Louradour, Dominique Pagnoux.

#### Faculté des Sciences et Techniques de Limoges, 123 avenue Albert Thomas, 87060 Limoges cedex frederic.louradour@xlim.fr

SCIENTIBUS est un laboratoire ambulant opérationnel depuis 2003 dont les objectifs sont la promotion des filières d'enseignement scientifique, la promotion de la recherche scientifique et la diffusion de la culture scientifique. Cette initiative menée par la Faculté des Sciences de Limoges est soutenue par l'université de Limoges, par RECREASCIENCES-CCSTI Limousin, par le Conseil Régional du Limousin et par le CNAM Limousin. Elle profite également de collaborations fréquentes avec les équipes de recherche, les pôles de compétitivité et les PME de haute technologie de la région Limousin. L'équipe d'animation de SCIENTIBUS comprend une trentaine de personnes dont des chercheurs CNRS, des enseignants-chercheurs et des doctorants moniteurs. SCIENTIBUS permet à ces professionnels de la recherche scientifique d'aller vers les scolaires et le grand public au rythme d'une trentaine de journées par an.

L'optique est particulièrement présente dans SCIENTIBUS. Science diffusante, l'optique est parfaitement adaptée pour la mise en scène directe et spectaculaire des autres disciplines comme la chimie (expérience de chimiluminescence ou de cristallisation), la biologie (expérience de fluorescence), la géologie (expérience d'imagerie entre polariseur et analyseurs croisé et fluorescence de minéraux), la physique (expérience de stroboscopie appliquée à des systèmes vibrants) ...



*Exemples d'expériences d'optique présentes dans le* SCIENTIBUS : (a) guidage de la lumière dans un filet d'eau par réflexion totale ; (b) excitation sélective des modes d'une fibre optique ; (c) synthèse trichrome ; (d) franges d'égale épaisseur en lumière blanche à la surface d'un fil de savon ; (e) fluorescence d'une souris GFP ; (f) balayage laser. A découvrir aussi dans SCIENTIBUS : un hologramme monumental, les fibres optiques, l'usinage laser, la phosphorescence, le spectre de la lumière visible, le photochromisme et les ultraviolets, la photoélasticimétrie, etc. ...

En 2010 SCIENTIBUS a participé de façon très active à la célébration des 50 ans du laser en partenariat avec les pôles de compétitivité Elopsys et ALPHA Route des Lasers à travers l'organisation d'actions phares à l'extérieur de son périmètre habituel d'intervention (une semaine en région bordelaise, une journée à l'Ecole Polytechnique à Palaiseau et 6 mois d'exposition au Musée des Arts et Métiers à Paris). De nombreuses expériences spécifiques issues de la recherche ont été installées dans SCIENTIBUS à cette occasion : mesure de la vitesse de la lumière, communications optiques en espace libre et par fibre optique, génération d'un continuum de lumière blanche (laser microchip et fibre non linéaire microstructurée), doublage de fréquence optique, modes transverses d'un laser Hene, exposition de composants optiques, usinage et prototypage laser, imagerie de fluorescence par balayage, thermographie infrarouge 10 microns. Dans cette configuration très « optique » SCIENTIBUS a accueilli de nombreux visiteurs parmi lesquels M. Thomas BAER, directeur du département Photonique de l'université de Stanford en Californie et président de la Société d'Optique américaine (OSA). Cet hôte prestigieux a affirmé dans un reportage télévisé « n'avoir jamais rien vu de tel aux USA ». « C'est unique ce bus qui voyage pour présenter ces formidables expériences. » a t'il conclu.

#### Accompagnement, suivi et insertion professionnelle des étudiants

Agnès Maître, Université Pierre et Marie Curie

agnes.maitre@insp.upmc.fr

Dans la dernière année d'étude, l'insertion professionnelle des étudiants est un point clé dans le pilotage d'une formation et dans les préoccupations des étudiants. Les choix assez déterminants visà-vis de leur orientation qu'ils sont amenés à faire cette année là peuvent être difficiles. Aussi l'accompagnement de l'équipe pédagogique peut jouer un rôle important dans leur avenir. Après leur insertion dans la vie professionnelle, le lien entre les anciens, l'équipe pédagogique et les étudiants est un atout important aussi bien pour les jeunes que pour les diplômés.

Ce poster présentera certains des outils mis en place en master 2<sup>(a)</sup> pour accompagner les étudiants et les diplômés :

-des outils d'ordre pédagogique (formulation du projet professionnel, recherche et suivi de stages) seront abordés.

-des outils d'ordre social : constitution du réseau des anciens (suivi des cohortes, réseau social (viadeo), rencontres intergenerationelles)

-des outils personnels : questionnaires de personnalités utilisés par les recruteurs (SOSIE)

<sup>(a)</sup> Master recherche « LUmière, Matière : Mesures Extrêmes » et master professionnel « Lasers, Matériaux, Milieux Biologiques » de la spécialité Optique Matière Plasmas

#### UN LASER A IMPULSIONS ULTRA-BREVES POUR L'ENSEIGNEMENT

#### Florent Margaillan, Catherine Schwob

Centre d'Instrumentation Laser, Master de Physique et Applications, Université Pierre et Marie Curie, 4 place Jussieu, 75252 Paris cedex 05, France

schwob@insp.jussieu.fr

#### Résumé

Le Centre d'Instrumentation Laser de l'UPMC, service d'enseignement dédié aux lasers et à leurs applications, a récemment acquis un laser Ti :Sa femtoseconde. Notre objectif est d'initier les étudiants, principalement au niveau master, à la manipulation d'un appareil de haute technologie, semblable à ceux utilisés dans les laboratoires de recherche, et à la découverte de sa physique et des applications associées.

MOTS-CLEFS : laser femtoseconde, auto-corrélateur en intensité, supercontinuum

Nous avons acquis un laser Ti :Sa femtoseconde (MIRA 900 – Cohérent) pompé par un laser Nd :YAG doublé (Verdi 5W- Cohérent) et délivrant des impulsions de l'ordre de 100 fs . Sa cavité ouverte permet l'accès aux différents éléments optiques qui la composent et donc à l'étude des phénomènes physiques qui régissent ce type de laser (prismes pour la compensation de la dispersion de la vitesse de groupe, fente d'ouverture variable pour l'autofocalisation, filtre de Lyot pour la sélection de la fréquence centrale d'émission). Les modes de fonctionnement continu et impulsionnel peuvent être étudiés indépendamment.



Fig 1 : Laser femtoseconde MIRA 900 (Cohérent)

Les différentes grandeurs caractéristiques de l'émission sont accessibles : mesure de la puissance moyenne, du taux de répétition, du spectre d'émission. De plus, afin de mesurer la durée de l'impulsion, un autocorrélateur en intensité a été développé à l'occasion d'un projet expérimental au niveau M1.

Notre objectif à terme est de développer des applications autour de ce laser. La première étape dans cette direction a consisté à coupler le faisceau de sortie dans une fibre à cristaux photoniques afin de générer un super-continuum.

# L'ABRET la clé des sciences présente " A LA LUMIERE DES LASERS "

#### Victor Riche, Michel Tréheux

ABRET, la clé des sciences, Cosmopolis, 22560 Pleumeur Bodou – France victor.riche@abret.asso.fr

#### Le laser vient de fêter ses 50 ans en 2010.

Loin de n'être qu'un objet de science-fiction, nous le croisons tous les jours et l'utilisons sans le savoir. Il nous est même devenu indispensable.

A l'occasion de cet anniversaire, l'ABRET<sup>1</sup>, la clé des sciences, CCSTI<sup>2</sup> labellisé, basé à Lannion, a décidé de réaliser, avec le soutien de ses partenaires scientifiques<sup>3</sup>, différents outils pédagogiques.

Ceux-ci présentent, de façon simple et ludique, les particularités des lasers ainsi que leurs applications les plus courantes ou les plus surprenantes.

A ce titre, deux expositions posters «A la lumière des lasers»<sup>(4)</sup> et «Les Hommes de la lumière»<sup>(5)</sup>, neuf valises pédagogiques et expérimentales<sup>(6)</sup>, une maquette de laser<sup>(7)</sup> et un site internet ressources<sup>(8)</sup> ont été mis en place par nos services.

Ces différentes ressources, finalisées en septembre 2010, ont été présentées depuis, aussi bien par les animateurs que par nos partenaires scientifiques, dans de nombreux établissements scolaires bretons (écoles, collèges et lycéens) ou lors des festivals de Culture Scientifique (Fête de la science, Griffons la science) organisés par nos services.

A ce jour, plus de 20 000 personnes et 160 classes ont ainsi pu découvrir, par l'intermédiaire de ces outils, les enjeux et progrès liés à la technologie Laser.

#### REMERCIEMENTS

Les auteurs souhaitent remercier les personnels du laboratoire Foton et de l'Enssat (coordination des "50 ans du lasers Bretagne, validation scientifique des expositions, cahier des charges de 3 valises pédagogiques), des Ecoles supérieures et Instituts Enib, Insa, IPR et IUFM de Saint-Brieuc (cahier des charges des 6 autres valises pédagogiques) ainsi que l'Apast (validation scientifique des expositions).

Ces réalisations ont bénéficié du soutien financier du Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche, du Conseil Régional de Bretagne, du Conseil génral des Côtes d'Armor.

#### Références

- [1] ABRET = Association Bretonne pour la Recherche Et la Technologie
- [2] CCSTI = Centre de Culture Scientifique, Technique et Industrielle
- [3] Partenaires scientifiques : spécialistes bretons de la photonique (CNRS Foton, Enssat, Enib, Insa, IPR)
- [4] Exposition « A la lumière des lasers » composée des panneaux suivants : Titre | Remerciements | Les hommes de la lumière | Bretagne et laser | La lumière en 2 mots | Propriétés de la lumière | Lumière et couleurs | Propriétés de la lumière (2) | LASER | Fonctionnement d'un laser | La puissance d'un laser | Les différents types de laser | Des lasers si différents | Le laser et ses applications | Télécoms et disque compact | Industrie et médecine | Recherche et défense | ...et dans notre vie quotidienne
- [5] Exposition « Les Hommes de la lumière » composée des panneaux suivants : Titre | Remerciements | Descartes | Huygens | Newton | Young | Fresnel | Maxwell | Planck | Bohr | Einstein | Kastler | Townes | Schawlow | Maiman
- [6] Valises pédagogiques proposant les thèmes suivants : Fontaine lumineuse | Optique géométrique | Diffraction | Couleur | Laser et lumière blanche | Holographie | Fonctionnement du CD Laser | Transmission d'informations par fibre optique | Application du laser
- [7] Maquette de laser «Tu lases ou tu looses ?»
- [8] Site internet ressources = www.abret.asso.fr

# **EXPÉRIENCE DE DÉMONSTRATION D'UNE PHASE GÉOMÉTRIQUE :** LA PHASE DE **PANCHARATNAM**

# Jérémy Riquet, Hugo Bitard, Gérard Trénec, Alexandre Gauguet, Matthias Büchner, Jacques Vigué et Cécile Robillard

Laboratoire Collisions, Agrégats, Réactivité, IRSAMC, Université de Toulouse-UPS et CNRS - UMR 5589, 31062 Toulouse France

En 1956, S. Pancharatnam [1] a étudié de manière générale les interférences en lumière polarisée. Il a montré l'existence d'une phase supplémentaire quand un faisceau revient à son état de polarisation original après trois changements de polarisation. Cette phase est égale à  $-\Omega/2$  où  $\Omega$  est l'angle solide découpé par le trajet de la polarisation sur la sphère de Poincaré. Ce résultat est un précurseur direct de la phase de Berry [2] pour l'évolution adiabatique. L'analogie entre évolution d'un spin 1/2 en présence d'un champ magnétique de module constant mais de direction variable et évolution de la polarisation d'un faisceau lumineux en présence de lames cristallines est complète. La connexion entre les deux domaines a été faite par M. Berry [3] en 1987.

Nous avons reproduit une expérience très simple de T.H. Chyba et collaborateurs [4] utilisant un interféromètre de Michelson illuminé en lumière polarisée linéairement. Dans un des bras, on place deux lames quart d'onde, l'une fixe avec ses axes à 45° de la polarisation incidente, et l'autre tournant à vitesse constante dans son plan. Chaque fois que la lame tournante effectue 1/2 tour, la phase de Pancharatnam augmente de  $2\pi$ , et on voit défiler une frange sur le faisceau de sortie de l'interféromètre. Ce défilement des franges, qui se produit sans aucune discontinuité, peut continuer indéfiniment et donner l'illusion d'un mouvement perpétuel !



Fig. 1 : (à gauche) L'interféromètre de Michelson.

(à droite) Evolution de la polarisation sur la sphère de Poincaré. Le faisceau initialement polarisé linéairement (P1) est transformé en polarisation circulaire (P2) puis redevient linéaire (P3) après passage dans la deuxième lame : l'angle entre P1 et P3 dépend directement de l'orientation de la deuxième lame. Le passage au retour dans les deux lames permet de revenir à la polarisation initiale (P1).

#### Références

S. Pancharatnam, Proceedings of the Indian Academy of Sciences A Vol XLIV, 247-262 (1956) reproduit dans A. Shapere and F. Wilczek, Geometric phases in physics (World Scientific ed. 1989)
 M.V. Berry, Proc. Royal Soc. London A, **392**, 45-57 (1984)

- [2] M.V. Berry, J. Modern Optics **34**, 1401-1407 (1987)
- [4] T.H. Chyba, L.J. Wang, L. Mandel and R. Simon, Opt. Lett. **13**, 562-564 (1988)

# **INDEX DES AUTEURS**

Abdou-Ahmed, M.	39
Aït-Ameur, K.	82, 100
Aka, G 15	5, 68, 86, 92
Albert, O	59
Alexandrou, A	25
Amans, D.	102
Andriamiadamanana, C.	35
Antipov, O.	109
Aubry, N	5
Auffray, E.	27, 102
Baida, F.	107
Baldeck, P	8
Baldi, P.	19
Balembois, F.	. 5, 42, 111
Bazzan, M.	
Beauchene, P.	105
Bejet, M.	105
Belsky, A.	102
Benayad, A.	66
Bencheikh, K.	51
Bernal, MP.	107
Besnard, P.	117
Bessière, A.	
Bitard, H.	124
Blahuta, S	
Blanc, W.	
Bois, L.	23
Bonacina, L.	
Bonville, O	61
Boukenter. A.	
Boulanger, B.	13. 51. 113
Bourdet, G.	
Bourezzou, M.	68. 92
Bourson, P.	
Bousquet, B.	
Brasse, G.	37.66
Braud. A.	31. 66
Brenier. A.	5. 11. 70
Bretenaker. F.	
Brignon, A.	
Büchner. M.	124
Cagniot. E.	
Camy. P.	. 31. 37. 66
Canalias. C.	
Canioni L	
Cardinali, V.	
Catunda, T.	
Chambaret, J.P.	11.46
Chartier, T	117
Chassagneux, F.	23
Chateur. N	118
Chavez, A.	
Chériaux G	
Ciapponi, A.	
Commandré. M	
Couriaud. A.	
Crespo-Monteiro. N.	23.74
Cruz. R.A.	100
Daux, JC.	105
De Micheli, M.	
Debray, J.	
Decourt, R.	10

Delagnes, JC.	
Délen, X	
Denoeud, A	53
Destouches, N	23, 74
Dethare, P	103
Devaux, F.	50
Dherbecourt, JB.	53, 78
Didierjean, J.	
Digonnet, M	
Dot, A	
Doualan, J.L.	31, 37, 66, 100, 109
Douissard, PA.	
Drag, C	
Druon, F	5, 39, 66, 111
Dubois, F	۸ ۸ 11
Duiardin C	102
Dussardier B	
Fichhorn M	48 84
Fremevkin O	109
Escarguel A	119
Extermann. J.	
Fave. D	
Félix, C	
Ferrier, A.	
Fève, S	117
Fontana, M.	
Forget, N.	59
Fourmigué, JM.	5
Fromager, M.	82, 100
Galez, C.	88
Gallais, L	118
Gamet, E	23, 74
Gauguet, A.	
Georges, P.	5, 39, 42, 66, 111
Gerard, B	48, 84
Gilbert, L.	
Gnon, D.	88
Godard, A	53, 78, 80, 105
Godin, I	82, 100
Goldner P	
Graviou D	
Grisard A	48 84
Guillemoles I-F	
Heinrich E	117
Hildenbrand, A	48.84.115
Huant. S.	
Huignard, JP.	109
Ibanez, A	8, 17
Ilas, S	15, 86
Ivakin, E	
Jackson, S.	
Jaffrès, A.	15, 111
Joudrier, AL.	35
Joulaud, C	88
Jubera, V	
Jullien, A	59
Kieleck, C.	48, 84
Kippenberg, T	
Kokanyan, E.	
Kourtev, S.	

Lallier, E
Lamaignere, L 21
Landais, S 103
Lantz, E
Laporte, C
Laurell, F
Le Dantec, R
Le Garrec, B
Lebbou, K 5, 11, 102
Lecoq, P 102
Ledoux, G 102
Lefebvre, M 53, 78, 80, 105
Legal, H 11
Lejay, J 15, 68, 92
Leroudier, J 17
Levenson, A 51
Loiseau, P 15, 68, 86, 92
Lopez-Martens, R 59
Louradour, F 120
Lu, H
Lunel, JL
Lupinski, D 61
Maillard, A 15, 68, 92
Maillard, R 68, 92
Maire, G 4
Mairesse, Y 43
Maitre, A 121
Manek-Hönninger, I 76
Margaillan, F 122
Marino, R 103
Marmois, E 41
Martial, I
Martin, T 29
Martin, T
Martin, T.         29           Mathieu, E.         29           Maurin, M.         8
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Motay, E.       5, 39, 66
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Mottay, E.       5, 39, 66         Mounaix, P.       76
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Mottay, E.       5, 39, 66         Mounaix, P.       76         Mugnier, Y.       88
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Mottay, E.       5, 39, 66         Mounaix, P.       76         Mugnier, Y.       88         Nadar, L.       23, 74
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Mottay, E.       5, 39, 66         Mounaix, P.       76         Mugnier, Y.       88         Nadar, L.       23, 74         Natoli, JY.       115
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Mottay, E.       5, 39, 66         Mounaix, P.       76         Mugnier, Y.       88         Nadar, L.       23, 74         Natoli, JY.       115         Nehari, A.       11
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Mottay, E.       5, 39, 66         Mounaix, P.       76         Mugnier, Y.       88         Nadar, L.       23, 74         Natoli, JY.       115         Nehari, A.       11         Nguyen, L.       94
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Mottay, E.       5, 39, 66         Mounaix, P.       76         Mugnier, Y.       88         Nadar, L.       23, 74         Natoli, JY.       115         Nehari, A.       11         Nguyen, L.       94         Pabœuf, D.       96
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Mottay, E.       5, 39, 66         Mounaix, P.       76         Mugnier, Y.       88         Nadar, L.       23, 74         Natoli, JY.       115         Nehari, A.       11         Nguyen, L.       94         Pabeouf, D.       96         Paibeouf, D.       96         Paibeouf, D.       120
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Mottay, E.       5, 39, 66         Mounaix, P.       76         Mugnier, Y.       88         Nadar, L.       23, 74         Natoli, JY.       115         Nehari, A.       11         Nguyen, L.       94         Pabeouf, D.       96         Painris, S.       13
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Mottay, E.       5, 39, 66         Mounaix, P.       76         Mugnier, Y.       88         Nadar, L.       23, 74         Natoli, JY.       115         Nehari, A.       11         Nguyen, L.       94         Pabœuf, D.       96         Pagnoux, D.       120         Pairis, S.       13         Papadopoulos, D.       66
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Mottay, E.       5, 39, 66         Mounaix, P.       76         Mugnier, Y.       88         Nadar, L.       23, 74         Natoli, JY.       115         Nehari, A.       11         Nguyen, L.       94         Pabœuf, D.       96         Pagnoux, D.       120         Pairis, S.       13         Papadopoulos, D.       66         Papon, G.       76
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Mottay, E.       5, 39, 66         Mounaix, P.       76         Mugnier, Y.       88         Nadar, L.       23, 74         Natoli, JY.       115         Nehari, A.       11         Nguyen, L.       94         Pabœuf, D.       96         Pagnoux, D.       120         Pairis, S.       13         Papadopoulos, D.       66         Papon, G.       76         Parmether W.       132
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Mottay, E.       5, 39, 66         Mounaix, P.       76         Mugnier, Y.       88         Nadar, L.       23, 74         Natoli, JY.       115         Nehari, A.       11         Nguyen, L.       94         Pabœuf, D.       96         Pagnoux, D.       120         Pairis, S.       13         Papadopoulos, D.       66         Papon, G.       76         Pauwels, K.       102         Varies, S.       13
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Mottay, E.       5, 39, 66         Mounaix, P.       76         Mugnier, Y.       88         Nadar, L.       23, 74         Natoli, JY.       115         Nehari, A.       11         Nguyen, L.       94         Pabeouf, D.       96         Papadopoulos, D.       120         Pairis, S.       13         Papadopoulos, D.       66         Papon, G.       76         Pastevicius, V.       13         Pauwels, K.       102         Péalat, M.       80
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Motay, E.       5, 39, 66         Mounaix, P.       76         Mugnier, Y.       88         Nadar, L.       23, 74         Natoli, JY.       115         Nehari, A.       11         Nguyen, L.       94         Pabeuf, D.       96         Papadopoulos, D.       120         Pairis, S.       13         Papadopoulos, D.       16         Pauwels, K.       102         Péalat, M.       80         Pechev, S.       10
Martin, T.       29         Mathieu, E.       29         Maurin, M.       8         Mauroy, V.       94         Melkonian, JM.       53, 78, 105         Ménaert, B.       13         Ménard, V.       66         Mennerat, G.       61, 113         Mhibik, O.       96         Michalon, JY.       74         Michel, AM.       80         Mignoni, S.       98         Minkovski, N.       59         Moncorgé, R.       11, 31, 37, 66, 82, 100, 109         Mottay, E.       5, 39, 66         Mugnier, Y.       88         Nadar, L.       23, 74         Natoli, JY.       115         Nehari, A.       11         Nguyen, L.       94         Pabœuf, D.       96         Pagnoux, D.       120         Pairis, S.       13         Papadopoulos, D.       66         Papon, G.       76         Pauwels, K.       102         Péalat, M.       80         Pechev, S.       10         Pelie, F.       35

FELLO(111) 17 7 10	02
	02
Petit, J 103, 10	05
Petit, PO 15, 1	11
Petit V	76
	00
Petrosyan, A I	02
Philippot, C	8
Quidant, R.	63
Quillier E	10
	17
Raybaut, M 53, 78, 80, 10	05
Reichel, J.	65
Revnaud, S 23.	74
Piceud S 30.66.1	11
Kicauu, S	11
Ricci, A	59
Riche, V	23
Riede W	72
Diquet I 1/	, <u> </u>
	24
Ritti, MH 10	03
Ritz, D	39
Robilliard C	24
Rosencher, E.	55
Royon, A	76
Rytz, D 15, 68, 9	92
Sadani B 11	07
	10
Salvestrini, J.P.	19
Sangla, Damien	5
Schröder, H.	72
Schweb C 1	
	22 <b>-</b> 1
Segonds, P 13, 4	51
Sergent, A 10	03
Serrano D	31
	~
Siedola, M	00
Simon, J.C 1	17
Soulard, R	09
0/ 1' E	
NTOPOCV1 H	37
	37
Stärecki, F	37 48
Starecki, F	37 48 11
Starecki, F	37 48 11 55
Starecki, F	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>10</li> </ul>
Starecki, F	<ol> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> </ol>
Starecki, F. Stöppler, G. Suganuma, A. 15, 1 Taira, T. Tascu, S. Tillement, O.	37 48 11 55 19 5
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         15, 1         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         12	<ol> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> </ol>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         15, 1         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         12         Trénec, G.         12	<ol> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> </ol>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         15, 1         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         12         Trénec, G.         12         Targarian S.	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>24</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         15, 1         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         12         Trénec, G.         12         Trezesien, S.         9	<ol> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> </ol>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         15, 1         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         12         Trénec, G.         12         Trezesien, S.         9         Trombert, S.	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         15, 1         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         12         Trénec, G.         12         Trezesien, S.         10         Trombert, S.         10         Trophème, B.	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>13</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         15, 1         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         12         Trénec, G.         11         Trezesien, S.         12         Trombert, S.         10         Torphème, B.         11         Tzeremes G	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>13</li> <li>72</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         Trénec, G.         Trezesien, S.         Trombert, S.         Torphème, B.         Tzeremes, G.	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>13</li> <li>72</li> <li>04</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         Trénec, G.         Trénec, G.         Trombert, S.         Trophème, B.         Tzeremes, G.         Ude, M.	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>13</li> <li>72</li> <li>94</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         Trénec, G.         Trezesien, S.         Trombert, S.         Torophème, B.         Tzeremes, G.         Ude, M.         Ulliac, G.	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>13</li> <li>72</li> <li>94</li> <li>07</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         Trénec, G.         Trezesien, S.         Trombert, S.         Torophème, B.         Tzeremes, G.         Ulde, M.         Ulliac, G.         Van Den Sanden, B.	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>13</li> <li>72</li> <li>94</li> <li>07</li> <li>8</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         15, 1         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         12         Trénec, G.         12         Trombert, S.         10         Trophème, B.         11         Tzeremes, G.         Ulliac, G.         Van Den Sanden, B.	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>13</li> <li>72</li> <li>94</li> <li>07</li> <li>8</li> <li>10</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         15, 1         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         12         Trénec, G.         12         Trombert, S.         10         Trophème, B.         11         Tzeremes, G.         Ullac, G.         Valle, A.	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>13</li> <li>72</li> <li>94</li> <li>07</li> <li>8</li> <li>10</li> <li>02</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         Trénec, G.         Trombert, S.         Trombert, S.         Itzeremes, G.         Ulliac, G.         Ulliac, G.         Veber, P.         Vedda, A.	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>13</li> <li>72</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>10</li> <li>02</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         Trénec, G.         Trombert, S.         Trophème, B.         Tzeremes, G.         Ulliac, G.         Ulliac, G.         Veber, P.         Vedda, A.         Velazquez, M.	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>13</li> <li>72</li> <li>94</li> <li>07</li> <li>8</li> <li>10</li> <li>02</li> <li>10</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         Trénec, G.         Trombert, S.         Trophème, B.         Tzeremes, G.         Ulliac, G.         Ulliac, G.         Veber, P.         Vedda, A.         Vernhet, L.	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>13</li> <li>72</li> <li>94</li> <li>07</li> <li>8</li> <li>10</li> <li>02</li> <li>10</li> <li>03</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         Trénec, G.         Trombert, S.         Trophème, B.         Tzeremes, G.         Ude, M.         Ulliac, G.         Veber, P.         Vedda, A.         Vernhet, L.         10         Viana, B.         15, 33, 39, 103, 1	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>13</li> <li>72</li> <li>94</li> <li>07</li> <li>8</li> <li>10</li> <li>02</li> <li>10</li> <li>03</li> <li>11</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         15, 1         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         12         Trénec, G.         12         Trombert, S.         10         Trophème, B.         11         Tzeremes, G.         12         Vulliac, G.         10         Van Den Sanden, B.         Vedda, A.         Velazquez, M.         Vernet, L.         10         Viana, B.         15, 33, 39, 103, 1	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>13</li> <li>72</li> <li>94</li> <li>07</li> <li>8</li> <li>10</li> <li>02</li> <li>10</li> <li>03</li> <li>11</li> <li>11</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         15, 1         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         12         Trénec, G.         12         Trombert, S.         10         Trophème, B.         11         Tzeremes, G.         12         Vulliac, G.         10         Van Den Sanden, B.         Vedda, A.         Vernhet, L.         10         Viana, B.         15, 33, 39, 103, 1         Vigué, J.	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>13</li> <li>72</li> <li>94</li> <li>007</li> <li>8</li> <li>10</li> <li>02</li> <li>10</li> <li>03</li> <li>11</li> <li>24</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         15, 1         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         12         Trénec, G.         11         Trénec, G.         12         Trezesien, S.         13         Tophème, B.         14         Tzeremes, G.         15         16         Van Den Sanden, B.         Veber, P.         Vedda, A.         Vernhet, L.         10         Viana, B.         15, 33, 39, 103, 1         Vigué, J.         17	<ul> <li>37</li> <li>48</li> <li>11</li> <li>55</li> <li>19</li> <li>5</li> <li>23</li> <li>24</li> <li>94</li> <li>03</li> <li>13</li> <li>72</li> <li>94</li> <li>007</li> <li>8</li> <li>10</li> <li>02</li> <li>10</li> <li>03</li> <li>11</li> <li>24</li> <li>92</li> </ul>
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         Trénec, G.         Trombert, S.         Trombert, S.         Illiac, G.         Ulliac, G.         Veber, P.         Vedda, A.         Vernhet, L.         Viana, B.         15, 33, 39, 103, 1         Vigué, J.         Viraphong, O.	37 48 11 55 19 5 23 24 94 03 13 72 94 07 8 10 02 10 03 11 24 92 10
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         Trénec, G.         Trombert, S.         Trophème, B.         Tzeremes, G.         Ulliac, G.         Veber, P.         Vedda, A.         Vernhet, L.         Viana, B.         15, 33, 39, 103, 1         Vigué, J.         Viraphong, O.	37 48 11 55 19 5 23 24 94 03 13 72 94 07 8 10 02 10 03 11 24 92 10 74
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         15, 1         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         12         Trénec, G.         12         Trezesien, S.         Trombert, S.         10         Trophème, B.         11         Tzeremes, G.         Ude, M.         Ulliac, G.         Veber, P.         Vedda, A.         Venhet, L.         Viana, B.         15, 33, 39, 103, 1         Vigué, J.         17         Villeval, P.         61, 68, 9         Viraphong, O.         Vocanson, F.         23, 7	37 48 11 55 19 5 23 24 94 03 13 72 94 07 8 10 02 10 03 11 24 92 10 74
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         15, 1         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         12         Trénec, G.         12         Trombert, S.         10         Trophème, B.         11         Tzeremes, G.         12         Vulliac, G.         10         Van Den Sanden, B.         Vedda, A.         Velazquez, M.         Vernhet, L.         10         Viana, B.         15, 33, 39, 103, 1         Vigué, J.         17         Villeval, P.         61, 68, 9         Viraphong, O.         Vocanson, F.         23, 7	37 48 11 55 19 5 23 24 94 03 13 72 94 07 8 10 02 10 03 11 24 92 10 74 15
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         15, 1         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         12         Trénec, G.         12         Trezesien, S.         13         Trombert, S.         14         Trezesien, S.         15         16         Trophème, B.         17         Tzeremes, G.         18         19         Vela, M.         Velazquez, M.         Vernhet, L.         10         Viana, B.         15, 33, 39, 103, 1         Vigué, J.         11         Villeval, P.         10         Vocanson, F.         23,         Wagner, F.         11         Weichelt, B.	37 48 11 55 19 5 23 24 94 03 13 72 94 07 8 10 02 10 03 11 24 92 10 74 15 39
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         Trénec, G.         Trombert, S.         Trombert, S.         Torophème, B.         Tzeremes, G.         Ulliac, G.         Ulliac, G.         Veber, P.         Vedda, A.         Vernhet, L.         Uviana, B.         15, 33, 39, 103, 1         Vigué, J.         Viraphong, O.         Vocanson, F.         23,         Wagner, F.         10         Wolf, J. P.	37 48 11 55 19 5 23 24 90 3 13 72 94 07 8 10 02 10 03 11 24 92 10 74 15 39 88
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         Trénec, G.         Trombert, S.         Torophème, B.         Tzeremes, G.         Ulliac, G.         Ulliac, G.         Veber, P.         Vedda, A.         Vernhet, L.         Viraphong, O.         Vocanson, F.         Van Be         Viraphong, O.         Vocanson, F.         Van Be	37 48 11 55 19 5 23 24 90 72 90 70 8 10 02 10 03 11 24 910 74 15 38 8 37
Starecki, F.         Stöppler, G.         Suganuma, A.         Taira, T.         Tascu, S.         Tillement, O.         Tréheux, M.         Trénec, G.         Trombert, S.         Trophème, B.         Tzeremes, G.         Ulliac, G.         Velde, M.         Veber, P.         Vedda, A.         Vernhet, L.         Viraphong, O.         Viraphong, O.         Vocanson, F.         Van B.         Viraphong, O.         Viraphong, N.         Viraphong, N.	37 48 11 55 19 52 24 90 313 72 94 07 80 02 00 311 24 910 74 15 39 88 7
Starecki, F.       Stöppler, G.       Stöppler, G.         Suganuma, A.       15, 1         Taira, T.       Tascu, S.         Tascu, S.       Tillement, O.         Tréheux, M.       12         Trénec, G.       12         Trezesien, S.       16         Trombert, S.       16         Trophème, B.       1         Tzeremes, G.       10         Ude, M.       9         Ulliac, G.       10         Van Den Sanden, B.       10         Verhet, L.       10         Verhet, L.       10         Viana, B.       15, 33, 39, 103, 1         Vigué, J.       12         Villeval, P.       61, 68, 9         Viraphong, O.       23, 7         Wagner, F.       1         Weichelt, B.       1         Wolf, J.P.       3         Xu, B.       2         Zaccaro, J.       1	37 48 11 55 19 5 23 4903 13 72 94 002 103 11 2492 10 74 15 398 37 17
Starecki, F.       Stöppler, G.       Stöppler, G.         Suganuma, A.       15, 1         Taira, T.       Tascu, S.         Tascu, S.       Tillement, O.         Tréheux, M.       12         Trénec, G.       12         Trezesien, S.       9         Trombert, S.       10         Trophème, B.       1         Tzeremes, G.       10         Ulde, M.       9         Ulliac, G.       10         Van Den Sanden, B.       10         Vedda, A.       10         Velazquez, M.       10         Veilaquez, M.       10         Viana, B.       15, 33, 39, 103, 1         Vigué, J.       12         Villeval, P.       61, 68, 9         Viraphong, O.       23, 7         Wagner, F.       1         Weichelt, B.       1         Wolf, J.P.       3         Xu, B.       2         Zaccaro, J.       2         Zaouter, Y.       1	37 48 11 55 19 5 23 494 03 13 72 94 07 8 10 210 0311 24 2910 74 15 398 37 17 5 398 37 17 5 398 37 17 5 398 37 17 5 398 37 17 5 398 37 17 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 398 377 5 5 398 377 5 5 398 377 5 5 398 377 5 5 398 377 5 5 398 377 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5
Stärecki, F.       Stöppler, G.       Stöppler, G.         Suganuma, A.       15, 1         Taira, T.       Taira, T.         Tascu, S.       Tillement, O.         Tréheux, M.       12         Trénec, G.       12         Trezesien, S.       16         Trombert, S.       16         Trophème, B.       1         Tzeremes, G.       10         Ule, M.       9         Ulliac, G.       10         Van Den Sanden, B.       10         Veber, P.       10         Vedda, A.       10         Velazquez, M.       10         Viana, B.       15, 33, 39, 103, 1         Vigué, J.       11         Villeval, P.       61, 68, 9         Viraphong, O.       10         Vocanson, F.       23, 7         Wagner, F.       11         Weichelt, B.       11         Wolf, J.P.       23         Xu, B.       22         Zacuer, Y.       10         Zinoviev A       10	37 48 11 55 19 5 23 4903 13 72 94 07 8 10 210 03112 292 10 74 15 398 37 17 5 99 10 10 10 10 10 10 10 10



Ce congrès a été organisé avec le soutien de :



























