HAL
open science

Etude des distributions angulaires d'absorption et d'autodoublage de fréquence du cristal biaxe monoclinique YCa4O(BO3)3 dopé avec des ions Nd 3+

Simon Joly

To cite this version:

Simon Joly. Etude des distributions angulaires d'absorption et d'autodoublage de fréquence du cristal biaxe monoclinique YCa4O(BO3)3 dopé avec des ions Nd 3+. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2009. Français. NNT : . tel-00486685

HAL Id: tel-00486685

https://theses.hal.science/tel-00486685v1

Submitted on 26 May 2010

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

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

INSTITUT POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

THESE

présentée et soutenue publiquement par

SIMON JOLY

Le 18 décembre 2009

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Institut National Polytechnique de Grenoble
Spécialité : Optique et Radiofréquence

préparée au laboratoire

Matière Condensée, Matériaux et Fonctions de l'Institut Néel/CNRS de Grenoble

dans le cadre de l'Ecole Doctorale

« Electronique, Electrotechnique, Automatisme, Traitement du Signal »

Etude des distributions angulaires d'absorption et d'autodoublage de fréquence du cristal biaxe monoclinique $YCa_4O(BO_3)_3$ dopé avec des ions Nd^{3+}

JURY

M. Gérard AKA	Professeur à l'ENSCP	**Président**
M. Alain BRENIER	Directeur de Recherche au LPCML	**Rapporteur**
M. Richard MONCORGE	Professeur à l'Université de Caen	**Rapporteur**
M. Gabriel MENNERAT	Ingénieur CEA au CESTA	**Examinateur**
Mme Patricia SEGONDS	Maître de Conférences à l'UJF	**Directrice de thèse**
M. Benoît BOULANGER	Professeur à l'UJF	**Directeur de thèse**

Avant-propos

Je tiens avant tout à remercier chaleureusement mes directeurs de thèse, Patricia Segonds et Benoît Boulanger. Ils ont su apporter les éléments subtils et indispensables qui amènent au dépassement de soi. Outre leur rigueur scientifique, je pense notamment à leur infinie disponibilité, à la confiance qu'ils savent donner, l'énergie et la bonne humeur qu'ils communiquent. Je leur suis aussi extrêmement reconnaissant pour m'avoir offert cette seconde chance, cette thèse en deux ans, à un moment clef où tout semblait perdu. Ils ont cette grandeur d'âme que d'autres n'ont pas. Je tiens à les assurer de ma profonde gratitude et de ma plus sincère amitié.

Il me faut évidemment remercier tous les autres membres du laboratoire pour les échanges scientifiques, les soutiens techniques et pour leur sympathie. Je pense bien sûr à Bertrand Ménaert, le roi des sphères, en plus de son immense savoir-faire, j'ai particulièrement apprécié sa disponibilité et sa jovialité imperturbable. Je n'oublie pas Jérôme Debray qui m'a transmis une petite partie de ses secrets de polissage. Un immense merci à Corinne Félix-Mathon, pour son soutien optique mais aussi concernant la bestiole à trois bras, son aide fut précieuse et déterminante pour la mesure de ces fameuses "cacahuètes" ! J'ai une pensée chaleureuse pour Yannick Petit, je le remercie pour tous ces échanges fructueux et pour le beau travail qu'il m'a transmis.

J'exprime ma plus profonde gratitude envers mes rapporteurs de thèse Alain Brenier et Richard Moncorgé ainsi que mes examinateurs Gérard Aka et Gabriel Mennerat qui ont accepté de donner de leur temps afin d'évaluer ce travail. Les échanges scientifiques furent fructeux et instructifs.

Il faut à tout prix que je salue la joyeuse petite équipe de thésards qui a rendu cette thèse si conviviale, les bons moments sont nombreux, que ce soit pendant les repas, les

sorties ou les soirées. Je dois commencer par mon ami Pierre, avec nos thèses en quasi tandem, qui a été le malicieux complice et a su transformer les longs temps de manips en véritables moments de fêtes. Je continue avec mon ami Julien l'optimiste, Houmed le djiboutien, Issam le Marocain, Marcio le Brésilien, Oana la Roumaine, Audrey... la Parisienne, Sandra l'espagnole (Catalane pardon), Marta l'espagnole (Basque pardon), et bien sûr tous les autres : Vinicius, Yan, Greg, Noélie, Emilie, Cécile, Mariana,... Je tiens à remercier vivement les secrétaires et les techniciens du département MCMF de l'institut Néel, qui en plus de leurs grandes compétences et de leur disponibilité participent à cette ambiance si sereine et chaleureuse qui règne dans le bâtiment F.

Je ne peux oublier tout ceux qui me sont chers, mes amis et ma famille : mes parents Jean Pierre et Odile avec leur confiance et leur soutien légendaire, mes frères et soeurs Marie, Cécile, Gabriel et Albin, nièces et neveux Camille et Antonin. Les amis : Paco, Romain, Audrey, Johann, Céline...

Enfin, le plus important, mes pierres précieuses, sans qui tout cela ne serait pas : Caroline pour son soutien éternel et son amour et mon fils Maxence, la fine fleur.

A ma femme, Caroline

A mon fils, Maxence

A mes parents.

Table des matières

Table des matières **7**

Introduction **13**

1 Introduction sur les liens entre partie réelle et partie imaginaire du tenseur de permittivité diélectrique des milieux anisotropes **15**

1.1 Introduction 15

1.2 Ondes électromagnétiques 16

1.3 Equations constitutives 17

1.4 Repère diélectrique 18

1.5 Surface des indices 21

1.5.1 Milieux uniaxes 22

1.5.2 Milieux biaxes 24

1.6 Modes propres de polarisation 26

1.6.1 Milieux uniaxes 27

1.6.2 Milieux biaxes 28

1.7 Absorption et fluorescence dans les cristaux de haute symétrie 29

1.7.1 Equations générales 29

1.7.2 Cristaux uniaxes 32

1.7.3 Cristaux biaxes orthorhombiques 32

1.8 Absorption et fluorescence dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ des cristaux monocliniques : le cas de $YCOB : Nd$ 36

1.8.1 Introduction 36

1.8.2 Mesure de l'orientation des axes optiques 36

1.8.3 Mesure de l'orientation des axes d'absorption et de fluorescence . . 38

1.9 Conclusion 41

2 Mesure de la distribution angulaire d'absorption dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ de $YCOB : Nd$ en fonction de la transition électronique 43

2.1 Introduction 43

2.2 Propriétés spectroscopiques de l'ion Nd^{3+} 44

2.3 Choix des bandes d'absorption pour les mesures 46

2.4 Mesure de la distribution angulaire du coefficient d'absorption 48

2.4.1 Banc expérimental 48

2.4.1.1 Principe de l'expérience 48

2.4.1.2 Source laser 50

2.4.1.3 Procédure d'alignement des faisceaux 51

2.4.1.4 Détection 51

2.4.1.5 Mesure 52

2.4.2 Résultats 52

2.5 Interpolation et interprétation des résultats 58

2.6 Conclusion 64

3 Mesure de la distribution angulaire d'absorption hors du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ de $YCOB : Nd$ 65

3.1 Introduction 65

3.1.1 Prédiction théorique 65

3.1.2 Banc de mesure et procédure expérimentale 67

3.1.2.1 Choix du dispositif goniométrique 67

3.1.2.2 Banc de mesure 75

3.1.2.3 Protocole lié à la polarisation 75

3.1.2.3.1 Détermination des modes propres de polarisation

3.1.2.3.2 Evolution de l'orientation des modes propres de polarisation dans un plan de balayage quelconque. 79

3.1.3 Mesures et analyse 80

3.1.4 Définition d'une méthode simplifiée pour l'étude de la distribution angulaire d'absorption des cristaux monocliniques 85

3.1.5 Conclusion 90

4 Mesures directes des propriétés laser et d'autodoublage de fréquence de $YCOB : Nd$ 93

4.1 Introduction 93

4.2 Etude théorique d'une cavité avec un milieu à gain sphérique 94

4.2.1 Géométrie de la cavité 94

4.2.2 Les éléments optiques de la cavité et leur modélisation 95

4.2.3 Domaines de stabilité 96

4.2.4 Structure du faisceau Gaussien intracavité 98

4.2.5 Cavité symétrique 99

4.3 Mesure de la propriété laser 100

4.3.1 Conditions de pompage 100

4.3.2 Réalisation expérimentale de la cavité symétrique du laser sphérique 101

4.3.3 Caractérisitiques du faisceau laser 102

4.4 Caractérisation de l'autodoublage de fréquence 104

4.4.1 Rappels théoriques d'optique non linéaire 104

4.4.1.1 Polarisation non linéaire 104

4.4.1.2 Equations couplées 106

4.4.1.3 Rendement de conversion en SHG 107

4.4.2 Etude expérimentale de l'autodoublage 110

4.4.2.1 Signatures spectrales et directions d'accord de phase . . . 110

4.4.2.2 Puissance générée 112

4.5 Conclusion 114

Conclusion **115**

Bibliographie **117**

Annexes 121

A Simon Joly, Yannick Petit, Benoît Boulanger, Patricia Segonds, Corinne Félix, Bertrand Ménaert, Gérard Aka. ***Singular topology of optical absorption in biaxial crystals*** **Opt. Express Vol 17, N 22 (2009)** **123**

B Patricia Segonds, Simon Joly, Benoît Boulanger, Yannick Petit, Corinne Félix, Bertrand Ménaert, Gérard Aka. ***Laser and self-doubling properties of a Nd :YCOB crystal cut as a sphere and inserted in a cavity*** **JOSAB Vol 26, N 4 (2009)** **131**

C Programme : Recherche de triplets de solutions d'angles Kappa à partir d'un couple d'angles de coodonnées sphériques (θ, ϕ) **137**

Introduction

Les sources laser et optiques non linéaires paramétriques présentent aujourd'hui un vif intérêt. En effet, elles émettent un rayonnement cohérent utile dans de nombreux domaines comme le piégeage des atomes, l'information quantique, la spectroscopie, la télémétrie, l'ophtalmologie, l'usinage industriel ou la fusion thermonucléaire par exemple.

Cette thèse s'inscrit dans le cadre de l'étude des cristaux à propriétés laser et optiques non linéaires. De fait, ce travail présente un nouvelle approche en optique cristalline, avec des aspects méthodologiques et théoriques sur l'absorption et l'autodoublage de fréquence, cette dernière propriété combinant à la fois l'effet laser et la génération de second harmonique au sein du même cristal.

Tout ces travaux ont été menés sur le cristal monoclinique biaxe $YCOB : Nd$. Les résultats obtenus sont de portée générale.

Le chapitre I donne les éléments théoriques en optique cristalline linéaire indispensables à la bonne compréhension des thèmes abordés dans les chapitres suivants. Il s'agit notamment du formalisme établissant le lien entre partie réelle et partie imaginaire du tenseur de permittivité diélectrique relative en vue de décrire la distribution angulaire du coefficient d'absorption en lumière polarisée dans les cristaux biaxes.

Ce formalisme sera exploité dans le chapitre II qui présente une expérience permettant de mesurer l'influence de la transition électronique sur la distribution angulaire du coefficient d'absorption dans le plan miroir de $YCOB : Nd$ usiné en forme de sphère. Les résultats obtenus sont originaux et spécifiques, non seulement aux cristaux monocliniques, mais également tricliniques.

Le chapitre III concerne l'étude de la distribution angulaire d'absorption hors du

plan miroir du cristal $YCOB : Nd$. Là encore les résultats obtenus sont originaux et généralisables à tout cristal biaxe, qu'il soit orthorhombique, monoclinique ou triclinique.

Enfin le chapitre IV présente la conception d'une méthode de caractérisation directe des propriétés laser et d'autodoublage de fréquence des cristaux anisotropes.

L'ensemble de ces travaux a conduit à la publication de deux articles donnés en annexe :

- S. Joly, Y. Petit, B. Boulanger, P. Segonds, C. Félix, B. Ménaert, G. Aka *"Singular topology of optical absorption in biaxial crystals"* Optics Express Vol 17, N 22 (2009)

- P. Segonds, S. Joly, B. Boulanger, Y. Petit, C. Félix, B. Ménaert, G. Aka *"Laser and self-doubling properties of a Nd :YCOB crystal cut as a sphere and inserted in a cavity"* JOSA B Vol 26, N 4 (2009)

Chapitre 1

Introduction sur les liens entre partie réelle et partie imaginaire du tenseur de permittivité diélectrique des milieux anisotropes

1.1 Introduction

Ce premier chapitre donne des bases théoriques en optique cristalline relatives aux thèmes abordés dans les chapitres suivants, et surtout ceux qui concernent l'absorption dans les milieux anisotropes.

Il débute par une description des propriétés optiques linéaires des cristaux transparents sur la base des équations de Maxwell, avec l'introduction du repère diélectrique et de la surface des indices, ainsi qu'avec les problématiques liées aux modes propres de polarisation. Ce formalisme est ensuite appliqué à la permittivité diélectrique relative des cristaux anisotropes absorbants, avec un développement sur les liens entre partie réelle et partie imaginaire du tenseur de permittivité diélectrique relative qu'il est conseillé de lire attentivement. Ces notions non "standard" permettent une bonne compréhension des chapitres qui suivront.

Ce chapitre se termine par une synthèse des travaux antérieurs qui avaient porté sur l'étude des propriétés d'absorption et de fluorescence d'un cristal de symétrie monocli-

nique, $YCOB : Nd$, et sur la base duquel s'appuient les travaux menés dans le cadre de cette thèse.

1.2 Ondes électromagnétiques

Une onde électromagnétique est constituée d'un champ électrique $\overrightarrow{E}$ et d'un champ magnétique $\overrightarrow{H}$ qui sont perpendiculaires entre eux et qui vibrent en phase dans la direction de propagation repérée par le vecteur d'onde $\overrightarrow{k}$. La fréquence d'oscillation ν est directement reliée à sa longueur d'onde λ, qui est la distance parcourue par l'onde pendant sa période d'oscillation, soit $\lambda = c/\nu$ où c est la célérité de la lumière dans le vide.

Le spectre des ondes électromagnétiques est représenté figure (1.1). Dans le cadre de ce travail, nous nous intéressons aux domaines du visible et du proche infrarouge, soit : $400\,nm < \lambda < 1100\,nm$.

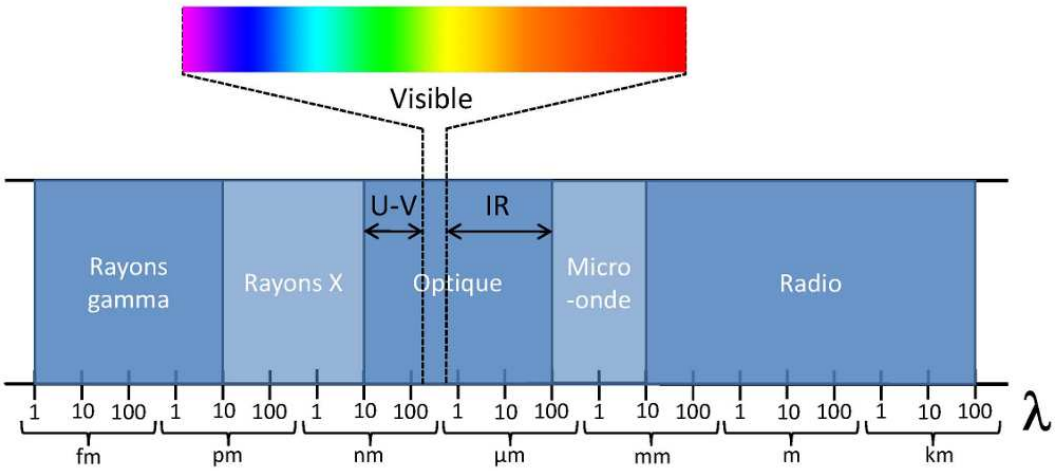


FIGURE 1.1 – *Spectre des ondes électromagnétiques*

La propagation des champs $\overrightarrow{E}$ et $\overrightarrow{H}$ est décrite par les équations de Maxwell, soit [1] :

$$\begin{cases} \vec{rot}\vec{E} = -\dfrac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ \vec{rot}\vec{H} = \dfrac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{J} \\ div\vec{B} = 0 \\ div\vec{D} = \rho \end{cases} \tag{1.1}$$

où $\vec{D}$, $\vec{B}$ et $\vec{J}$ sont respectivement le déplacement électrique, l'induction magnétique et la

densité de courant ; ρ est la densité de charges du milieu.

Dans le cadre de ce travail, nous étudions des milieux diélectriques, qui sont définis par $\rho = 0$ et $\vec{J} = \vec{0}$. D'autre part, les milieux considérés ne sont pas magnétiques, de sorte que $\vec{B} = \mu_0.\vec{H}$, où $\mu_0 = 4\pi 10^{-7}\ H.m^{-1}$ est la perméabilité magnétique du vide. La résolution des équations de Maxwell (1.1) permet d'établir l'équation de propagation du champ électrique dans le milieu considéré [2].

1.3 Equations constitutives

L'interaction entre le rayonnement et la matière se manisfeste par une polarisation du milieu, $\vec{P}$, induite sous l'action du champ électrique de la lumière, $\vec{E}$, de pulsation $\omega = 2\pi\nu$. Les origines de cette polarisation peuvent être multiples, comme la déformation du nuage électronique, le déplacement ionique, ou la mise en ordre électrique de composantes dipolaires présentes dans le milieu. Cependant, compte-tenu de la gamme de longueurs d'onde considérée ici, seule la déformation des couches externes du nuage électronique est impliquée [3]. Il s'agit donc principalement d'une interaction entre le champ électrique de la lumière et les électrons de valence.

Lorsque le champ électrique est de faible intensité, alors la polarisation $\vec{P}$ varie linéairement avec le champ électrique $\vec{E}$, et s'écrit, à la pulsation ω :

$$\vec{P}^{(1)}(\omega) = \epsilon_0 \left[\hat{\chi}(\omega)\right]^{(1)} \vec{E}(\omega) \tag{1.2}$$

où $\epsilon_0 = 1/(36\pi 10^{-9})$ en F/m est la permittivité diélectrique du vide, et $[\widehat{\chi}(\omega)]^{(1)}$ est le premier ordre de la susceptibilité électrique complexe du milieu à la pulsation ω. $[\widehat{\chi}(\omega)]^{(1)}$ est un tenseur polaire de rang 2 qui est représenté dans un repère trirectangulaire quelconque $(\vec{U}, \vec{V}, \vec{W})$ par une matrice (3×3), soit 9 éléments indépendants. Elle s'écrit :

$$[\widehat{\chi}(\omega)]^{(1)} = \begin{bmatrix} \widehat{\chi}^{(1)}_{UU} & \widehat{\chi}^{(1)}_{UV} & \widehat{\chi}^{(1)}_{UW} \\ \widehat{\chi}^{(1)}_{VU} & \widehat{\chi}^{(1)}_{VV} & \widehat{\chi}^{(1)}_{VW} \\ \widehat{\chi}^{(1)}_{WU} & \widehat{\chi}^{(1)}_{WV} & \widehat{\chi}^{(1)}_{WW} \end{bmatrix} \tag{1.3}$$

Chaque élement du tenseur $[\widehat{\chi}(\omega)]^{(1)}$ s'écrit $\widehat{\chi}_{ij}^{(1)} = \chi_{ij}^{(1)} + j\chi_{ij}^{\prime(1)}$, où la partie réelle $\chi_{ij}^{(1)}$ et la partie imaginaire $\chi_{ij}^{\prime(1)}$ sont reliées par la relation de Kramers-Krönig [4,5]. La partie réelle gouverne la propagation, alors que la partie imaginaire est relative aux processus d'absorption et de fluorescence.

Le vecteur déplacement électrique $\vec{D}$ est relié à la polarisation $\vec{P}$ par :

$$\vec{D}(\omega) = \epsilon_0 \vec{E}(\omega) + \vec{P}(\omega) \tag{1.4}$$

Compte-tenu de la relation (1.2), la relation (1.4) s'écrit :

$$\vec{D}(\omega) = \epsilon_0 \left[1 + [\widehat{\chi}(\omega)]^{(1)}\right] \vec{E}(\omega) \tag{1.5}$$

Le terme $\left[1 + [\widehat{\chi}(\omega)]^{(1)}\right]$ est la permittivité diéletrique relative du milieu. Elle est notée $[\widehat{\epsilon_r}(\omega)]$, et sa matrice représentative dans un repère trirectangulaire quelconque $(\vec{U}, \vec{V}, \vec{W})$ est :

$$[\widehat{\epsilon_r}(\omega)] = \begin{bmatrix} \widehat{\epsilon}_{rUU} & \widehat{\epsilon}_{rUV} & \widehat{\epsilon}_{rUW} \\ \widehat{\epsilon}_{rVU} & \widehat{\epsilon}_{rVV} & \widehat{\epsilon}_{rVW} \\ \widehat{\epsilon}_{rWU} & \widehat{\epsilon}_{rWV} & \widehat{\epsilon}_{rWW} \end{bmatrix} \tag{1.6}$$

où $\widehat{\epsilon}_{rJJ} = \epsilon_{rJJ} + j\epsilon_{rJJ}^{\prime}$ avec $(I, J) = (U, V, W)$, ϵ_{rJJ} étant la partie réelle et $\epsilon_{rJJ}^{\prime}$ la partie imaginaire de $\widehat{\epsilon}_{rJJ}$.

Les équations (1.1) à (1.5) permettent d'établir l'équation de propagation du champ électrique en régime linéaire, soit [6] :

$$\vec{\nabla}^2 \vec{E}(\omega, \vec{r}) - \mu_0 \epsilon_0 \omega^2 \left[\widehat{\epsilon_r}(\omega)\right] \vec{E}(\omega, \vec{r}) = 0 \tag{1.7}$$

1.4 Repère diélectrique

Le « repère diélectrique », appelé aussi « repère optique », est le repère orthonormé qui diagonalise la partie réelle du tenseur de permittivité diélectrique relative $[\widehat{\epsilon_r}]$. Ce repère est noté $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$. Une direction quelconque de propagation est alors représentée par son

vecteur d'onde de vecteur unitaire $\vec{u}$. Les coordonnées cartésiennes sont (u_x, u_y, u_z) dans le repère diélectrique, comme le montre la figure (1.2) ; elles sont reliées aux angles de coordonnées sphériques (θ, ϕ) par les relations suivantes :

$$\begin{cases} u_x = sin(\theta)cos(\phi) \\ u_y = sin(\theta)sin(\phi) \\ u_z = cos(\theta) \end{cases} \tag{1.8}$$

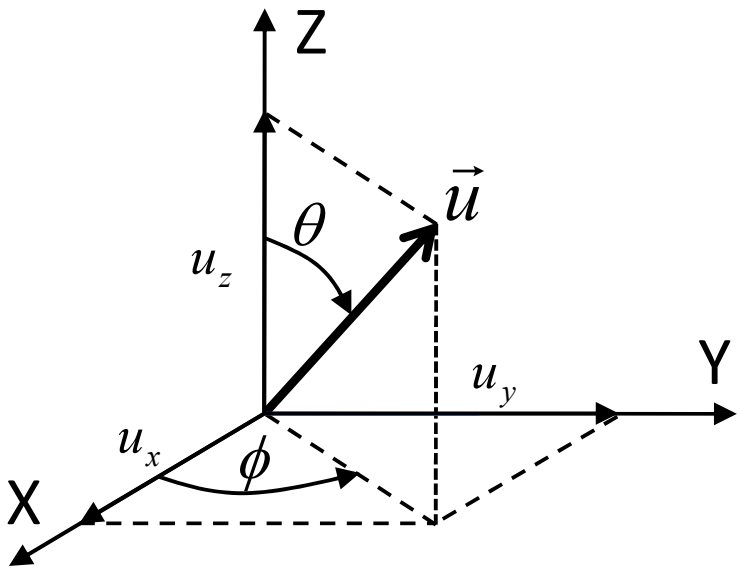


FIGURE 1.2 – *Orientation du vecteur unitaire $\vec{u}$ dans le repère diélectrique $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$. θ et ϕ sont les angles de coordonnées sphériques.*

Les cristaux sont classés selon sept systèmes cristallins : cubique, rhomboédrique, quadratique, hexagonal, orthorhombique, monoclinique et triclinique.

Le repère diélectrique étant orthogonal, il n'est pas forcément confondu avec le repère cristallographique [7]. Trois situations relatives au degré de dépendance entre le repère cristallographique et le repère diélectrique peuvent être distinguées.

- Les repères sont confondus et entièrement liés, ce qui est le cas des systèmes cubique, quadratique et orthorhombique (groupe 1).

- Les repères sont non confondus mais liés : systèmes rhomboédrique et hexagonal (groupe 2).

- Les repères ne sont ni confondus ni liés dans le cas des systèmes monoclinique et

triclinique (groupe 3).

Pour ces trois groupes, la matrice qui représente la partie réelle du tenseur $[\widehat{\epsilon_r}]$ est une matrice diagonale quand elle est exprimée dans le repère diélectrique $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$. Elle s'écrit :

$$[\epsilon_r] = \begin{bmatrix} \epsilon_{rxx} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{ryy} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{rzz} \end{bmatrix} \tag{1.9}$$

En vertu du principe de Neuman [7], le nombre d'éléments indépendants de $[\epsilon_r]$ dépend de la symétrie d'orientation du milieu considéré, ce qui conduit à la définition des trois classes optiques : 1) isotrope, dans le cas des classes cristallines cubiques ; 2) uniaxe, pour les classes rhomboédriques, quadratiques et hexagonales ; 3) biaxe, correspondant aux classes orthorhombiques, monocliniques et tricliniques. La symétrie du tenseur $[\epsilon_r]$ est donnée dans le tableau (1.1) en fonction de la classe optique.

Système cristallin	Groupe	Classe optique	Coefficients non nuls du tenseur $[\epsilon_r]$
Cubique	1	Isotrope	$\epsilon_{rxx} = \epsilon_{ryy} = \epsilon_{rzz}$
Rhomboédrique	2	Uniaxe	$\epsilon_{rxx} = \epsilon_{ryy} \neq \epsilon_{rzz}$
Quadratique	1		
Hexagonal	2		
Orthorhombique	1	Biaxe	$\epsilon_{rxx} \neq \epsilon_{ryy} \neq \epsilon_{rzz}$
Monoclinique	3		
Triclinique	3		

TABLE 1.1 – *Systèmes cristallins, groupes, classes optiques et coefficients de la partie réelle du tenseur de permittivité diélectrique relative associés.*

L'équation de propagation (1.7) peut être projetée sur les axes principaux $\vec{X}$, $\vec{Y}$ et $\vec{Z}$ du repère diélectrique. En tenant compte que de la partie réelle de la permittivité

diélectrique relative, donnée par (1.9), l'équation (1.7) s'écrit sous la forme du système de 3 équations couplées suivant :

$$\begin{cases} \left[\epsilon_{rxx} - \widehat{n}^2\left(u_y^2 + u_z^2\right)\right] E_x = 0 \\ \left[\epsilon_{ryy} - \widehat{n}^2\left(u_x^2 + u_z^2\right)\right] E_y = 0 \\ \left[\epsilon_{rzz} - \widehat{n}^2\left(u_x^2 + u_y^2\right)\right] E_z = 0 \end{cases} \tag{1.10}$$

où u_i $(i = x, y, z)$ représente les coordonées cartésiennes de la direction de propagation et ϵ_{rii} les valeurs principales de la partie réelle du tenseur de permittivité diélectrique relative..

$\widehat{n}^2$ est la grandeur complexe définie par $\widehat{n}^2 = \widehat{\epsilon_r}$ où $\widehat{n}$ est l'indice complexe : il s'écrit $\widehat{n} = n + jn^{'}$ où n est l'indice de réfraction du milieu. Dans le cadre de ce travail, nous étudions des situations telles que $n >> n^{'}$, de sorte que $\widehat{n}^2 = (n^2 - n^{'2}) + 2jnn^{'} \approx n^2 + 2jnn^{'}$. Et comme en général $\widehat{\epsilon_r} = \epsilon_r + j\epsilon_r^{'} = \widehat{n}^2$, il vient [6] :

$$\begin{cases} n^2 = \epsilon_r \\ 2nn^{'} = \epsilon_r^{'} \end{cases} \tag{1.11}$$

1.5 Surface des indices

Compte tenu des définitions données au paragraphe (1.4), un cristal uniaxe possède deux indices de réfraction principaux indépendants : l'indice dit « ordinaire », $n_x = n_y = \sqrt{\epsilon_{rxx}} = \sqrt{\epsilon_{ryy}}$ noté $n_o = \sqrt{\epsilon_{ro}}$; et l'indice « extraordinaire », $n_z = \sqrt{\epsilon_{rzz}}$ noté $n_e = \sqrt{\epsilon_{re}}$. Un cristal biaxe a trois indices de réfraction principaux distincts notés : $n_x = \sqrt{\epsilon_{rxx}}$, $n_y = \sqrt{\epsilon_{ryy}}$ et $n_z = \sqrt{\epsilon_{rzz}}$. Que ce soit en optique linéaire ou non linéaire, il est important de connaître la distribution angulaire de l'indice de réfraction $n(\theta, \phi)$. Celle-ci est obtenue en calculant le déterminant du système (1.10), ce qui aboutit à l'équation de Fresnel [6] :

$$\frac{u_x^2(\theta,\phi)}{n(\theta,\phi)^{-2} - n_x^{-2}} + \frac{u_y^2(\theta,\phi)}{n(\theta,\phi)^{-2} - n_y^{-2}} + \frac{u_z^2(\theta,\phi)}{n(\theta,\phi)^{-2} - n_z^{-2}} = 0 \tag{1.12}$$

Pour toute direction $\vec{u}(\theta, \phi)$, l'équation de Fresnel réelle possède deux solutions en général disctinctes, notées $n^+(\theta, \phi)$ et $n^-(\theta, \phi)$, et dont les expressions sont données par

[8] :

$$\begin{cases} n^{\pm}(\theta,\phi) = \left[\dfrac{2}{-B(\theta,\phi) \mp \left(B^2(\theta,\phi) - 4C(\theta,\phi)\right)^{1/2}}\right]^{1/2} \\ B = -u_x^2(\theta,\phi)\,[b+c] - u_y^2(\theta,\phi)\,[a+c] - u_z^2(\theta,\phi)\,[a+b] \\ C = u_x^2(\theta,\phi)bc + u_y^2(\theta,\phi)ac + u_z^2(\theta,\phi)ab \\ a = n_x^{-2}, \qquad b = n_y^{-2}, \qquad c = n_z^{-2} \end{cases} \tag{1.13}$$

avec $n^+(\theta,\phi) \geq n^-(\theta,\phi)$.

La biréfringence dans la direction $\vec{u}(\theta,\phi)$ est définie par la grandeur $n^+(\theta,\phi) - n^-(\theta,\phi)$. La distribution angulaire des deux solutions de l'équation de Fresnel réelle, $n^+(\theta,\phi)$ et $n^-(\theta,\phi)$, s'appelle la « surface des indices ». Elle forme deux nappes dont la topologie décrite ci-après est propre à chaque classe optique.

1.5.1 Milieux uniaxes

Dans le cas des milieux uniaxes, les équations (1.13) montrent que la surface des indices est formée d'une nappe sphérique de rayon n_o, et d'une nappe éllipsoïdale de révolution autour de l'axe $\vec{Z}$, soit :

$$\begin{cases} n^{\pm}(\theta,\phi) = n_o \\ n^{\mp}(\theta,\phi) = n_e(\theta,\phi) = \left(\dfrac{cos^2(\theta)}{n_o^2} + \dfrac{sin^2(\theta)}{n_e^2}\right)^{-1/2} \end{cases} \tag{1.14}$$

Les sections des nappes ordinaire et extraordinaire sont représentées dans le plan $(\vec{X},\vec{Z})$ sur la figure (1.3)(a) dans le cas d'une cristal uniaxe négatif, soit $n_o = n^+ > n_e = n^-$, et sur la figure (1.3)(b) dans le cas d'un cristal uniaxe positif, soit $n_e = n^+ < n_o = n^-$.

Les figures (1.3)(a) et (1.3)(b) montrent que les deux nappes sont en contact tangentiel selon l'axe $\vec{Z}$, qui est appelé aussi "Axe Optique", noté AO. Il est à noter que la biréfringence est nulle selon cet axe. Ainsi, l'appellation "uniaxe" fait référence à l'unicité de ce contact, dont la mise en évidence apparaît également clairement dans la représentation tridimensionnelle de la surface des indices donnée sur la figure (1.3)(c) et calculée à partir de (1.13) en prenant $n_x = 2$, $n_y = 2$ et $n_z = 4$.

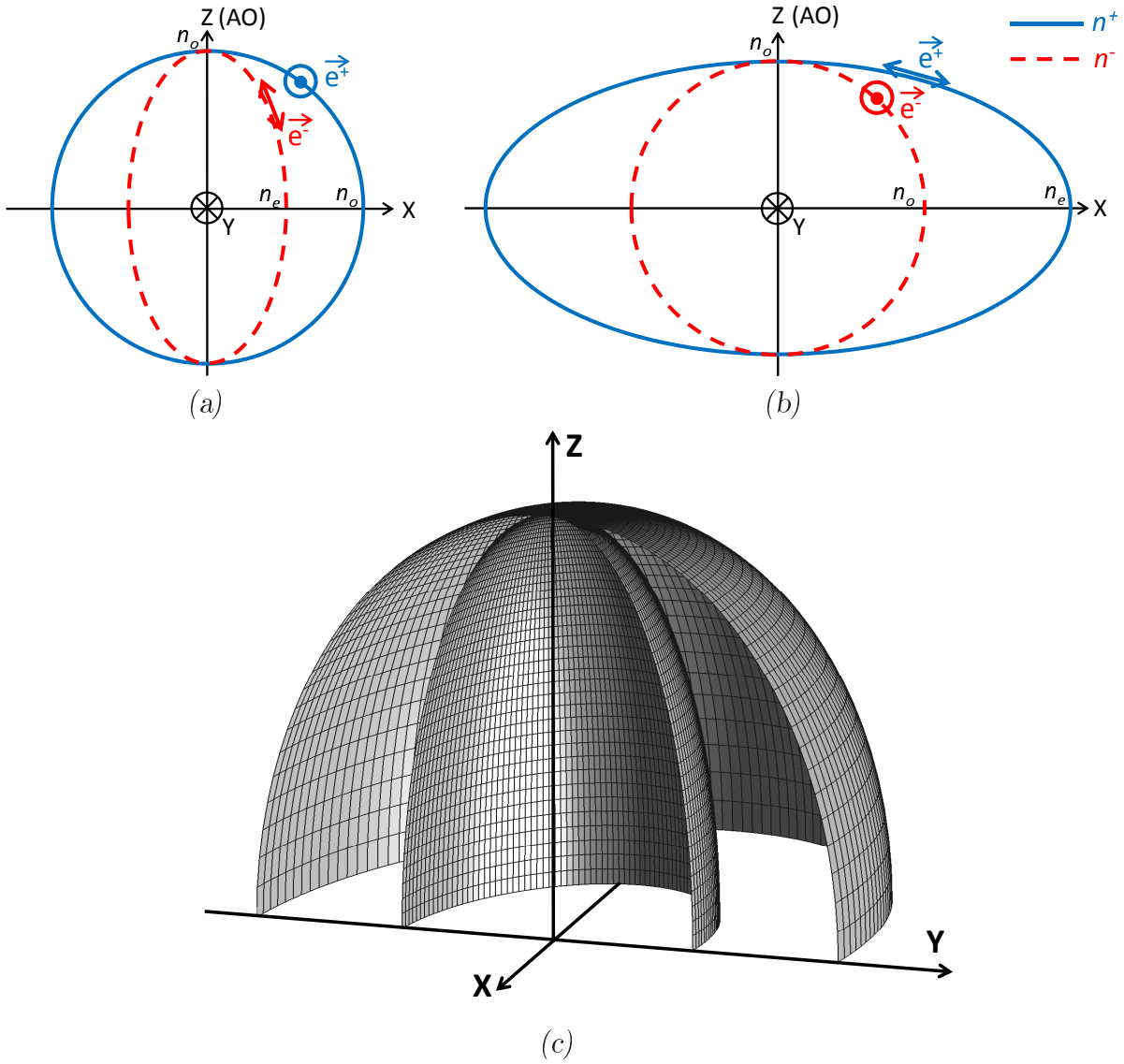


FIGURE 1.3 – *Surface des indices d'un milieu uniaxe : section dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ d'un uniaxe négatif (a), et d'un uniaxe positif (b) ; $\odot$ et $\leftrightarrow$ dénotent les directions des modes propres de polarisation $\vec{e^+}$ ou $\vec{e^-}$ relatifs aux différentes nappes ; représentation tridimentionnelle dans un quart d'espace d'un milieu uniaxe négatif (c). $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$ est le repère diélectrique.*

1.5.2 Milieux biaxes

Nous utilisons dans ce travail la relation d'ordre suivante pour les trois indices de réfraction principaux du cristal biaxe : $n_x < n_y < n_z$. La figure (1.4)(a) montre la section de le nappe externe (+) et interne (−) dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. C'est dans ce plan qu'il existe quatre directions particulières pour lesquelles l'équation de Fresnel admet une solution double, d'où l'appellation "biaxe" [9]. Ces directions particulières sont appelées « axes optiques » et notées AO, comme dans le cas des uniaxes, et font un angle V_Z avec l'axe $\vec{Z}$.

La section de la surface des indices dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ doit être décrite par parties, de part et d'autre de l'angle V_Z, compte tenu de la discontinuité introduite par les axes optiques. Ainsi, d'après les équations (1.13) il vient :

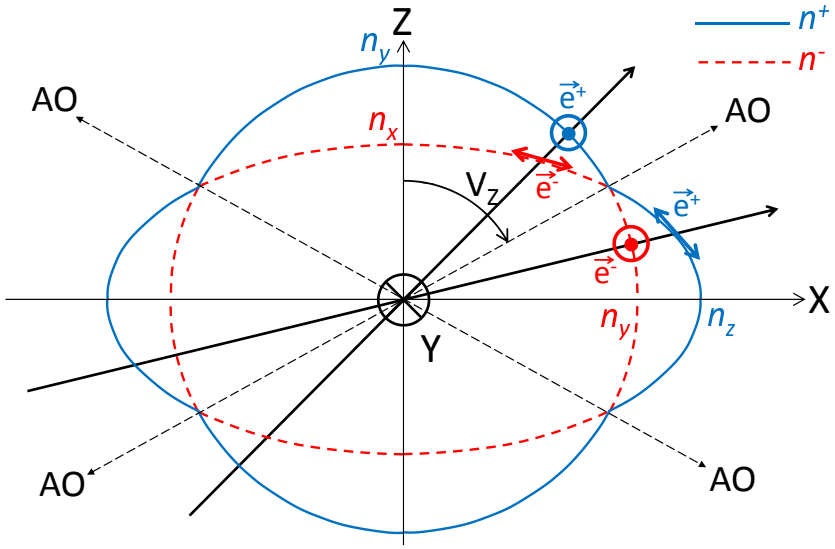
$$n^+(\theta) = n_y \quad \text{et} \quad n^-(\theta) = \left(\frac{cos^2(\theta)}{n_x^2} + \frac{sin^2(\theta)}{n_z^2}\right)^{-1/2} \quad \text{pour} \quad 0^\circ < \theta < V_Z \tag{1.15}$$

$$n^+(\theta) = \left(\frac{cos^2(\theta)}{n_x^2} + \frac{sin^2(\theta)}{n_z^2}\right)^{-1/2} \quad \text{et} \quad n^-(\theta) = n_y \quad \text{pour} \quad V_Z < \theta < 90^\circ \tag{1.16}$$

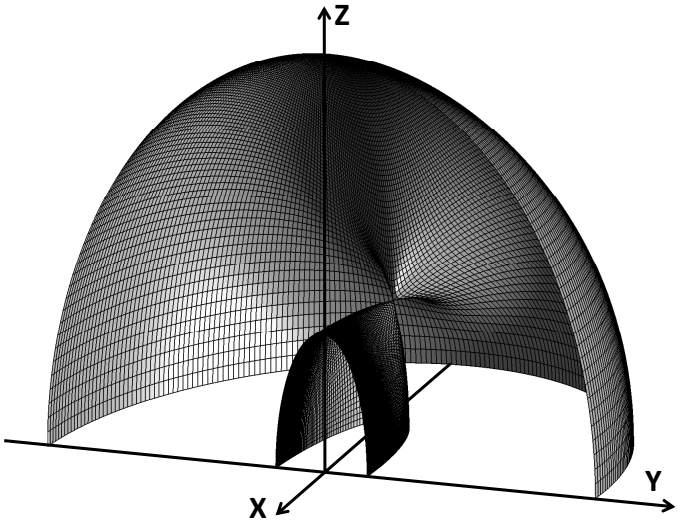
Les solutions sont similaires dans les trois autres quadrants du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, qui sont symétriques par rapport aux axes principaux. L'angle V_z se calcule en écrivant la condition d'égalité entre n^+ et n^-, soit $n^+(\theta = V_Z, \phi = 0) = n^-(\theta = V_Z, \phi = 0)$ ce qui donne [2] :

$$V_Z = arcsin\left(\sqrt{\frac{n_x^{-2} - n_y^{-2}}{n_x^{-2} - n_z^{-2}}})\right) \tag{1.17}$$

La figure (1.4)(b) donne la représentation tridimentionnelle d'un cristal biaxe pour lequel la biréfringence a été volontairement exagérée afin de mieux appréhender la topologie des surfaces autour des axes optiques.



(a)



(b)

FIGURE 1.4 – *Surface des indices d'un milieu biaxe : section dans le plan* $(\vec{X}, \vec{Z})$ *(a) ;* $\odot$ *et* $\leftrightarrow$ *dénotent les directions des modes propres de polarisation* $\vec{e^+}$ *ou* $\vec{e^-}$ *relatifs aux différentes portions de nappes ; représentation tridimentionnelle dans un quart d'espace (b).* $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$ *est le repère diélectrique.*

1.6 Modes propres de polarisation

A chaque direction de propagation, il correspond deux modes de propagation du champ électrique de l'onde électromagnétique. Leur état de polarisation est repéré par les vecteurs unitaires notés $\vec{e^+}(\theta,\phi)$ et $\vec{e^-}(\theta,\phi)$, correspondant respectivement aux indices de réfraction $n^+(\theta,\phi)$ et $n^-(\theta,\phi)$ comme indiqué figures (1.3) et (1.4) de la partie précédente. Ce sont les deux modes propres de polarisation du champ électrique de vecteur d'onde $\vec{k}^+(\theta,\phi) = \omega c^{-1} n^+(\theta,\phi)\vec{u}$ et $\vec{k}^-(\theta,\phi) = \omega c^{-1} n^-(\theta,\phi)\vec{u}$ où $\vec{u}$ est le vecteur unitaire du vecteur d'onde [1].

Dans le cas général, $\vec{e^+}(\theta,\phi)$ et $\vec{e^-}(\theta,\phi)$ ne sont pas orthogonaux entre eux. Cependant, ils sont contenus dans les plans de polarisation Π^+ et Π^- qui eux, par contre, sont orthogonaux entre eux. Les vecteurs unitaires de déplacement électrique, $\vec{d^+}(\theta,\phi)$ et $\vec{d^-}(\theta,\phi)$, sont également orthogonaux entre eux, et orthogonaux à la direction de propagation $\vec{u}$, comme le montre la figure (1.5).

La direction de propagation de l'énergie de l'onde électromagnétique est donnée par le vecteur de Poynting $\vec{S} = \vec{E} \wedge \vec{H}$. Son module donne la densité de puissance ($W.m^{-2}$) transportée par l'onde. Les vecteurs $\vec{S^\pm}$ et $\vec{e^\pm}$ sont orthogonaux entre eux comme le montre la figure (1.5). Corrélativement à la remarque sur $\vec{e^+}$ et $\vec{e^-}$, les vecteurs $\vec{S^+}$ et $\vec{S^-}$ ne sont pas colinéaires dans le cas général, ce qui correspond au phénomène de double réfraction, caractérisé par les angles ρ^+ et ρ^-. Ce phénomène peut se traduire par un dédoublement d'image comme le montre la photo de la figure (1.6).

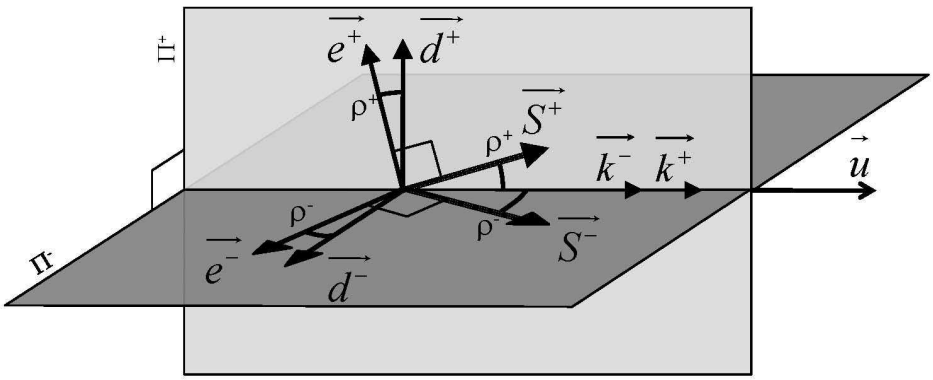


FIGURE 1.5 – *Représentation des deux plans de vibrations Π^+ et Π^- contenant chacun leur composante de déplacement électrique $\vec{d^\pm}$, de champ électrique $\vec{e^\pm}$ et de vecteur de Poynting $\vec{S^\pm}$ dans une direction de propagation quelconque $\vec{u}$ d'un milieu anisotrope.*

FIGURE 1.6 – *Dédoublement d'une image à travers un cristal de Calcite par le phénomène de double réfraction.*

Les vecteurs $\vec{e^+}$, $\vec{d^+}$, $\vec{S^+}$, $\vec{u}$, d'une part et les vecteurs $\vec{e^-}$, $\vec{d^-}$, $\vec{S^-}$ et $\vec{u}$ d'autre part sont coplanaires.

Il est à noter que les deux vecteurs unitaires $\vec{e^\pm}(\theta, \phi)$ sont tangents aux points courants $n^\pm(\theta, \phi)$ de la surface des indices [2].

1.6.1 Milieux uniaxes

Le vecteur unitaire $\vec{e^o}$ associé à la surface sphérique $n_o(\theta, \phi) = n_o$ est orthogonal à la direction de propagation $\vec{u}$, et s'exprime par :

$$\begin{cases} e_x^o = -sin(\phi) \\ e_y^o = cos(\phi) \\ e_z^o = 0 \end{cases} \tag{1.18}$$

L'équation (1.18) montre que l'onde ordinaire présente un angle ρ qui est nul. Le vecteur unitaire $\vec{e^e}$ associé à la surface ellipsoïdale $n_e(\theta, \phi)$ n'est pas orthogonal à la direction de propagation $\vec{u}$ en général ; il forme un angle ρ avec le déplacement électrique $\vec{d^e}$ associé, et s'exprime par [10] :

$$\begin{cases} e_x^e = -cos(\theta \pm \rho(\theta))cos(\phi) \\ e_y^e = -cos(\theta \pm \rho(\theta))sin(\phi) \\ e_z^e = sin(\theta \pm \rho(\theta)) \end{cases} \tag{1.19}$$

avec $-\rho(\theta)$ pour un uniaxe positif et $+\rho(\theta)$ dans le cas d'un uniaxe négatif. $\rho(\theta)$ est donné

par [10] :

$$\rho(\theta) = arccos\left(\vec{d^e}.\vec{e^e}\right) = arccos\left(\left[\frac{cos^2\theta}{n_o^2} + \frac{sin^2\theta}{n_e^2}\right]\left[\frac{cos^2\theta}{n_o^4} + \frac{sin^2\theta}{n_e^4}\right]^{-1/2}\right) \tag{1.20}$$

Le mode de polarisation $\vec{e^+}(\theta, \phi)$ est associé à la nappe ordinaire pour un uniaxe négatif et à la nappe extraordinaire pour un uniaxe positif, et inversement pour le mode $\vec{e^-}(\theta, \phi)$.

Les systèmes d'équation (1.18) et (1.19) montrent ainsi que $\vec{e^+}(\theta, \phi)$ et $\vec{e^-}(\theta, \phi)$ sont toujours orthogonaux entre eux dans un cristal uniaxe.

1.6.2 Milieux biaxes

Dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ d'un cristal biaxe, les nappes externes et internes sont alternativement circulaires et elliptiques de part et d'autre des axes optiques, comme le montre la figure (1.4) du paragraphe (1.5). La description des coordonnées cartésiennes de $\vec{e^\pm}(\theta)$ dans ce plan doit donc être réalisée par parties, en correspondance avec la section considérée de la nappe de la surface des indices, soit [10] :

- pour $0^\circ < \theta < V_Z$

$$\begin{cases} e_x^+ = 0 \\ e_y^+ = 1 \\ e_z^+ = 0 \end{cases} \tag{1.21}$$

$$\begin{cases} e_x^- = -cos(\theta - \rho(\theta)) \\ e_y^- = 0 \\ e_z^- = sin(\theta - \rho(\theta)) \end{cases} \tag{1.22}$$

- pour $V_Z < \theta < 90^\circ$

$$\begin{cases} e_x^+ = -cos(\theta - \rho(\theta)) \\ e_y^+ = 0 \\ e_z^+ = sin(\theta - \rho(\theta)) \end{cases} \tag{1.23}$$

$$\begin{cases} e_x^- = 0 \\ e_y^- = 1 \\ e_z^- = 0 \end{cases} \tag{1.24}$$

où ρ est donné par l'équation (1.20) dans laquelle n_o doit être remplacé par n_x, et n_e par n_z. Les axes optiques créant une discontinuité dans l'allure des nappes internes et externes de la surface des indices, il s'ensuit corrélativement une discontinuité sur les modes de polarisation $\vec{e^{\pm}}$. En effet, les équations (1.21)-(1.24) montrent qu'il y a une rotation de $\pi/2$ des plans de vibration Π^+ et Π^+ de part et d'autre de V_Z. La figure (1.4)(a) montre les états de polarisation associés aux nappes + et - pour deux directions de propagation $\vec{u}$ situées de part et d'autre de l'axe optique (AO) d'un cristal biaxe [11] : pour $0 < \theta < V_Z$, la nappe externe a un état de polarisation normal au plan $(\vec{X}, \vec{Z})$; et pour $90^\circ > \theta > V_Z$, la polarisation relative à cette nappe est parallèle au plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. Cet effet est à la base de la réfraction conique intérieure [9].

Pour toute direction de propagation hors des plans principaux, les coordonnées cartésiennes des deux modes propres de polarisation $\vec{e^+}(\theta, \phi)$ et $\vec{e^-}(\theta, \phi)$ doivent être déterminées à partir du système d'équation suivant, déduit des équations de Maxwell. Il s'écrit [10] :

$$e_i^{\pm}(\theta, \phi) = \frac{n^{\pm^2}(\theta, \phi)}{n^{\pm^2}(\theta, \phi) - n_i^2} u_i \left[\vec{u}.\vec{e^{\pm}}(\theta, \phi)\right] \tag{1.25}$$

où $i = x, y$ ou z.

Le système d'équation (1.25) permet de montrer que $\vec{e^+}.\vec{e^-} \neq 0$ hors des plans principaux.

1.7 Absorption et fluorescence dans les cristaux de haute symétrie

1.7.1 Equations générales

Ce paragrahe s'intéresse uniquement à la classe optique uniaxe, c'est à dire aux cristaux des classes cristallines rhomboédriques, quadratiques et hexagonales, ainsi qu'aux

cristaux biaxes orthorhombiques. Dans tous ces cristaux, la symétrie impose que le repère diélectrique diagonalise à la fois la partie réelle $[\epsilon_r]$ et la partie imaginaire $[\epsilon'_r]$ du tenseur de permittivité diélectrique relative complexe $[\widehat{\epsilon_r}]$ qui s'écrit [6, 7] :

$$[\widehat{\epsilon_r}] = [\epsilon_r] + j[\epsilon'_r] = \begin{bmatrix} \epsilon_{rxx} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{ryy} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{rzz} \end{bmatrix} + j \begin{bmatrix} \epsilon'_{rxx} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon'_{ryy} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon'_{rzz} \end{bmatrix} \tag{1.26}$$

où ϵ_{rii} et ϵ'_{rii} pour $(i = x, y, z)$ sont respectivement la partie réelle et la partie imaginaire. Le nombre d'éléments diagonaux indépendants de $[\epsilon'_r]$ est lié aussi à la classe optique. Ils sont donnés dans le tableau (1.2) pour les cristaux isotropes, uniaxes et biaxes orhorhombiques.

Système cristallin	Groupe	Classe optique	Coefficients non nuls du tenseur $[\epsilon'_r]$
Cubique	1	Isotrope	$\epsilon'_{rxx} = \epsilon'_{ryy} = \epsilon'_{rzz}$
Rhomboédrique	2	Uniaxe	$\epsilon'_{rxx} = \epsilon'_{ryy} \neq \epsilon'_{rzz}$
Quadratique	1		
Hexagonal	2		
Orthorhombique	1	Biaxe	$\epsilon'_{rxx} \neq \epsilon'_{ryy} \neq \epsilon'_{rzz}$

TABLE 1.2 – *Systèmes cristallins, groupes définis au* (1.4)*, classes optiques et coefficients de la partie imaginaire du tenseur de permittivité diélectrique relative associés.*

La transmission T d'un milieu faiblement absorbant suit la loi de Beer-Lambert, qui s'écrit :

$$T = \frac{I(L)}{I(o)} = T_F^2 e^{-\alpha L} \tag{1.27}$$

$I(L)$ et $I(o)$ sont respectivement les intensités à la sortie et à l'entrée du milieu de longueur L ; α est le coefficient d'absorption linéaire en m^{-1} et T_F est la transmission de Fresnel. Nous étudierons des cristaux de quelques millimètres d'épaisseur, et de coefficient α de l'ordre de quelques cm^{-1} [12].

De manière duale, considérons un milieu diélectrique fluorescent subissant un pompage optique et dans lequel se propage une onde d'intensité incidente $I(o)$. L'intensité de l'onde amplifiée $I(L)$ par émission stimulée croît en fonction de la distance d'interaction L du milieu. Dans l'approximation des faibles gains, T s'écrit [13] :

$$T = \frac{I(L)}{I(o)} = T_F^2 e^{+GL} \tag{1.28}$$

où G (m^{-1}) est le gain du milieu.

Absorption et fluorescence sont gouvernées par la partie imaginaire de la permittivité diélectrique relative ϵ'_r, et donc, d'après (1.11), par la partie imaginaire de l'indice complexe n'. Ainsi, les coefficients d'absorption α et d'amplification G s'écrivent [3] :

$$\alpha = \frac{4.\pi.n'}{\lambda} \qquad \text{et} \qquad G = \frac{4.\pi.n'}{\lambda} \tag{1.29}$$

Comme pour l'étude de la partie réelle de l'indice de réfraction, le calcul du déterminant du système d'équations couplées (1.10) permet d'établir l'équation suivante, qui est l'équation de Fresnel imaginaire [6, 14] :

$$\frac{n'_x}{n_x^3}.\frac{u_x^2(\theta,\phi)}{\left(n'(\theta,\phi)^{-2} - n_x^{-2}\right)^2} + \frac{n'_y}{n_y^3}.\frac{u_y^2(\theta,\phi)}{\left(n'(\theta,\phi)^{-2} - n_y^{-2}\right)^2} + \frac{n'_z}{n_z^3}.\frac{u_z^2(\theta,\phi)}{\left(n'(\theta,\phi)^{-2} - n_y^{-2}\right)^2} = 0 \tag{1.30}$$

Les solutions de l'équation (1.30) sont :

$$n'^{\pm}(\theta,\phi) = \frac{\left(n^{\pm}(\theta,\phi)\right)^3}{2}\left(I_B \pm \frac{I_B B + 2I_C}{\sqrt{B^2 - 4C}}\right) \tag{1.31}$$

avec :

$$I_B = u_x^2\left(b\frac{n'_y}{n_y} + c\frac{n'_z}{n_z}\right) + u_y^2\left(a\frac{n'_x}{n_x} + c\frac{n'_z}{n_z}\right) + u_z^2\left(a\frac{n'_x}{n_x} + b\frac{n'_y}{n_y}\right)$$
$$I_C = u_x^2 bc\left(\frac{n'_y}{n_y} + \frac{n'_z}{n_z}\right) + u_y^2 ac\left(\frac{n'_z}{n_z} + \frac{n'_x}{n_x}\right) + u_z^2 ab\left(\frac{n'_x}{n_x} + \frac{n'_y}{n_y}\right)$$

où $n^{\pm}(\theta,\phi)$, B, C, a, b et c sont les grandeurs réelles de l'équation (1.13) ; et $n'_x = \sqrt{\epsilon'_{rxx}}$, $n'_y = \sqrt{\epsilon'_{ryy}}$ et $n'_z = \sqrt{\epsilon'_{rzz}}$ sont les valeurs propres imaginaires de l'indice complexe.

Soulignons que les expressions (1.13) des indices de réfraction qui décrivent la surface des indices $n^{\pm}(\theta,\phi)$ ne dépendent pas des indices imaginaires $n'^{\pm}(\theta,\phi)$, alors que le

contraire n'est pas vrai. Cette non dualité est due au fait que nous avons considéré un milieu faiblement absorbant, soit $n' << n$.

1.7.2 Cristaux uniaxes

Dans le cas des milieux uniaxes, les équations (1.31) montrent que la surface des indices imaginaires est formée d'une nappe sphèrique de rayon $n'_o = n'_x = n'_y$, et d'une nappe bilobaire, $n'_e(\theta, \phi)$, de révolution autour de l'axe $\vec{Z}$. Ces nappes sont décrites par les expressions suivantes :

$$\begin{cases} n'^{\pm}(\theta, \phi) = n'_o \\ n'^{\mp}(\theta, \phi) = n'_e(\theta, \phi) = \dfrac{\frac{n'_o}{n_o^3} cos^2(\theta) + \frac{n'_e}{n_e^3} sin^2(\theta)}{\left(\frac{cos^2(\theta)}{n_o^2} + \frac{sin^2(\theta)}{n_e^2}\right)^{3/2}} \end{cases} \tag{1.32}$$

Les figures (1.7)(a) et (1.7)(b) donnent respectivement les sections de ces deux nappes dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ d'un uniaxe négatif, soit $n_o > n_e$ et $n'_o > n'_e$, et d'un uniaxe positif, $n_o < n_e$ et $n'_o < n'_e$.

Comme dans le cas des nappes de la surface des indices réels, les nappes imaginaires d'un cristal uniaxe sont en contact tangentiel selon l'axe $\vec{Z}$ qui représente ce que nous avons appelé l'« axe optique imaginaire », noté AO'. Il est confondu avec l'axe optique AO de la surface des indices. L'autre point commun est qu'une des deux nappes est circulaire. Il existe cependant une différence, tenant au fait que la nappe non circulaire est bilobaire (cf figure (1.7)(a) et (1.7)(b)), alors qu'elle est elliptique dans le cas de la partie réelle (cf figure (1.3)(a) et (1.3)(b)). La figure (1.7)(d) donne la représentation tridimentionnelle de la surface des indices imaginaires.

1.7.3 Cristaux biaxes orthorhombiques

Du fait de la discontinuité de polarisation de part et d'autre des axes optiques d'un cristal biaxe, la section de la surface des indices imaginaires doit être décrite par parties de part et d'autre de ces axes, avec une nappe qui sera nommée n'^{+}, relative à la polarisation

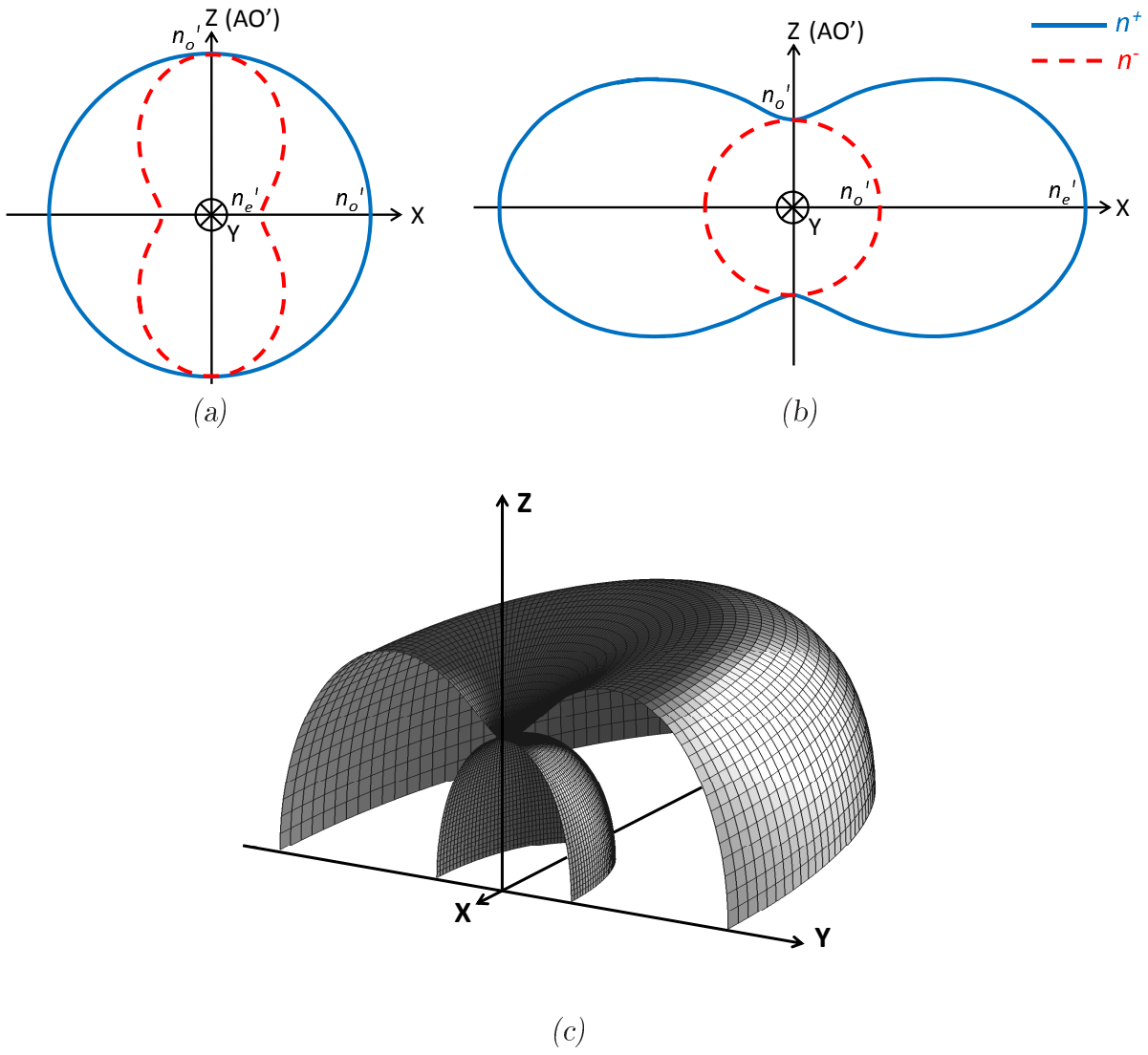


FIGURE 1.7 – *Surface des indices imaginaires : section dans le plan* $(\vec{X}, \vec{Z})$ *d'un uniaxe négatif (a), et d'un uniaxe positif (b) ; représentation tridimentionnelle dans un quart d'espace d'un milieu uniaxe positif.*

$\vec{e^{+}}$, et une nappe n'^{-} relative à $\vec{e^{-}}$, soit d'après (1.31) :

$$n'^{+}(\theta) = n'_y \qquad et \qquad n'^{-}(\theta) = \frac{\frac{n'_x}{n_x^3}cos^2(\theta) + \frac{n'_z}{n_z^3}sin^2(\theta)}{\left(\frac{cos^2(\theta)}{n_x^2} + \frac{sin^2(\theta)}{n_z^2}\right)^{3/2}} \quad \text{pour : } 0^\circ < \theta < V_Z \tag{1.33}$$

$$n'^{+}(\theta) = \frac{\frac{n'_x}{n_x^3}cos^2(\theta) + \frac{n'_z}{n_z^3}sin^2(\theta)}{\left(\frac{cos^2(\theta)}{n_x^2} + \frac{sin^2(\theta)}{n_z^2}\right)^{3/2}} \qquad et \qquad n'^{-}(\theta) = n'_y \quad \text{pour : } V_Z < \theta < 90^\circ \tag{1.34}$$

Afin de mieux apréhender la topologie de la partie imaginaire, les sections des nappes $n'^{\pm}$ sont "éclatées" en trois sous-figures : (1.8)(a) correspondant à $n'^{+}(\theta, \phi = 0)$, (1.8)(b) à $n'^{-}(\theta, \phi = 0)$, et (1.8)(c) à la supperposition de $n'^{+}(\theta, \phi)$ et $n'^{-}(\theta, \phi)$.

Il existe quatre directions pour lesquelles l'équation de Fresnel imaginaire a une solution double $n'^{+} = n'^{-}$. Elles forment par paires les deux "axes optiques imaginaires" (AO'), faisant un angle V'_Z avec l'axe $\vec{Z}$ [14]. Notons que les angles V_Z et V'_Z n'ont *a priori* aucune raison d'être confondus : ainsi n'^{+} peut etre supérieure à n'^{-} et inversement. Rappelons que la notation $n'^{\pm}$ fait uniquement référence aux états de polarisation $\vec{e}^{\pm}$ liés aux nappes externes et internes n^{+} et n^{-}. Cela impose une relation d'ordre au niveau de la partie réelle, soit $n^{+} > n^{-}$, mais nullement au niveau de la partie imaginaire.

Les axes optiques imaginaires sont des directions remarquables car elles présentent une indépendance de l'absorption ou de la fluorescence vis à vis de la polarisation.

La figure (1.9) donne dans un quart d'espace la représentation tridimentionnelle de la surface des indices imaginaires calculée à partir des équations (1.30) et (1.31).

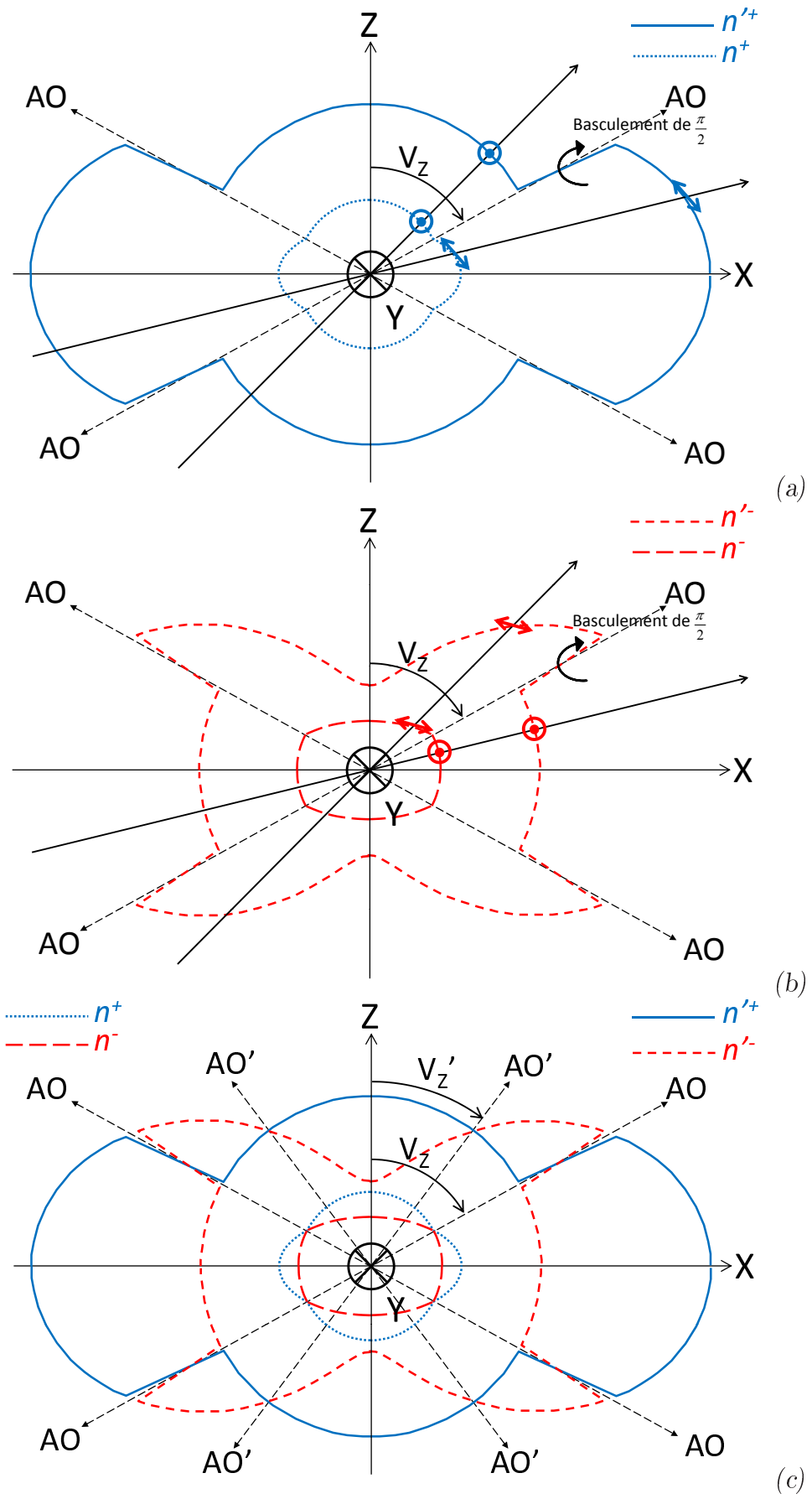


FIGURE 1.8 – *Sections de la surface des indices imaginaires dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ d'un cristal biaxe orthorhombique. Les sections $n^+(\theta, \phi = 0)$ et $n^-(\theta, \phi = 0)$ sont rappelées au coeur des figures pour bien montrer la correspondance d'états de polarisation $\odot$ et $\leftrightarrow$ entre partie réelle et partie imaginaire.*

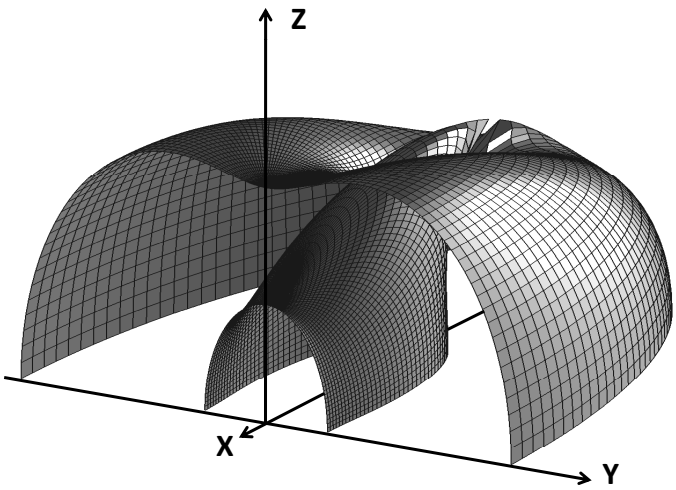


FIGURE 1.9 – *Représentation tridimentionnelle de la surface des indices imaginaires dans un quart d'espace d'un cristal biaxe orthorhombique.*

1.8 Absorption et fluorescence dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ des cristaux monocliniques : le cas de $YCOB : Nd$

1.8.1 Introduction

Ce paragraphe rend compte des travaux réalisés précédemment dans le cadre de la thèse de Yannick Petit [14,15]. Ce travail portait entre autre sur les méthodes de caractérisation de nouveaux cristaux laser, avec l'étude des propriétés d'absorption et de fluorescence. Le cristal considéré était $YCa_4O(BO_3)_3$ dopé Nd^{3+}, noté $YCOB : Nd$, qui est un biaxe monoclinique [12].

1.8.2 Mesure de l'orientation des axes optiques

Il a été montré que l'absorption et la fluorescence possèdent chacune leur propre repère diagonalisant les matrices associées, ces deux repères étant différents du repère diélectrique. La situation est donc différente de celle décrite dans le paragraphe (1.7), où nous avions considéré le cas des cristaux pour lesquels ces trois repères coïncident.

La mesure de l'orientation du repère diélectrique $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$ par rapport au repère cristallographique $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$ de $YCOB : Nd$ a été réalisée en utilisant la méthode de la sphère.

Un échantillon $YCOB : Nd$ a donc été usiné sous la forme d'une sphère de $7,44\,mm$ de diamètre. Ce cristal appartient à la classe de symétrie d'orientation $C_s(m\perp\vec{b})$ du système cristallin monoclinique, un des axes du repère cristallographique $(\vec{b})$ coïncidant avec un axe du repère diélectrique $(\vec{Y})$. L'orientation aux rayons X par la méthode de Laue permet de connaître avec une précision de l'ordre $0,01^\circ$ la position des axes cristallographiques. Grâce à l'utilisation d'une méthode optique qui utilise un faisceau Laser HeNe à $632,8\,nm$ et la mise en rotation de la sphère autour de l'axe $\vec{Y}$, il est possible de déterminer directement et avec précision la position des axes optiques par la visualisation du phénomène de réfraction conique intérieure [9, 16, 17]. La bissectrice des deux axes optiques permet alors de déterminer la position exacte des axes du repère diélectrique. La figure (1.10) résume la position des différents axes de $YCOB : Nd$.

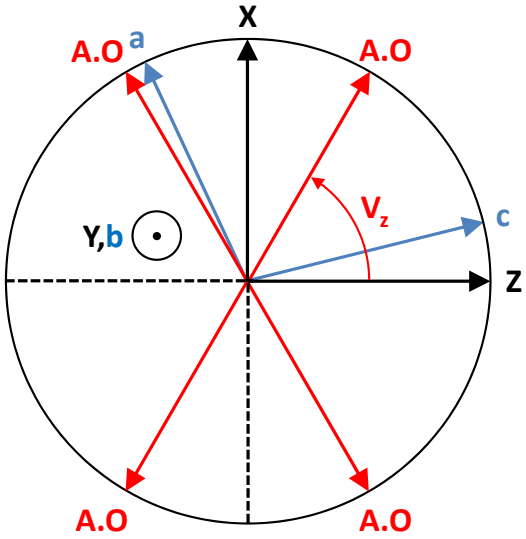


FIGURE 1.10 – *Orientation du repère diélectrique par rapport au repère cristallographique dans le cristal monoclinique $YCOB : Nd$.*

Les mesures cristallographiques ont montré que les angles $\widehat{ab} = \widehat{bc} = 90^\circ$, et $\widehat{ac} = 101 \pm 0,2^\circ$ [12]. L'observation et le relevé des positions des directions de réfraction conique intérieure a conduit à déterminer les angles $\widehat{aX} = 24,4 \pm 0,5^\circ$ et $\widehat{cZ} = 13,4 \pm 0,5^\circ$ à $632,8\,nm$ [16].

D'autre part, en utilisant une source accordable de $0,4\,\mu m$ à $2,4\,\mu m$, à la place du laser $HeNe$, il a été montré que l'orientation du repère diélectrique ne change pas sur cette plage de longueur d'onde, à la précision angulaire près des mesures, qui était de

l'ordre de $\pm 0,5^{\circ}$ [16].

1.8.3 Mesure de l'orientation des axes d'absorption et de fluorescence

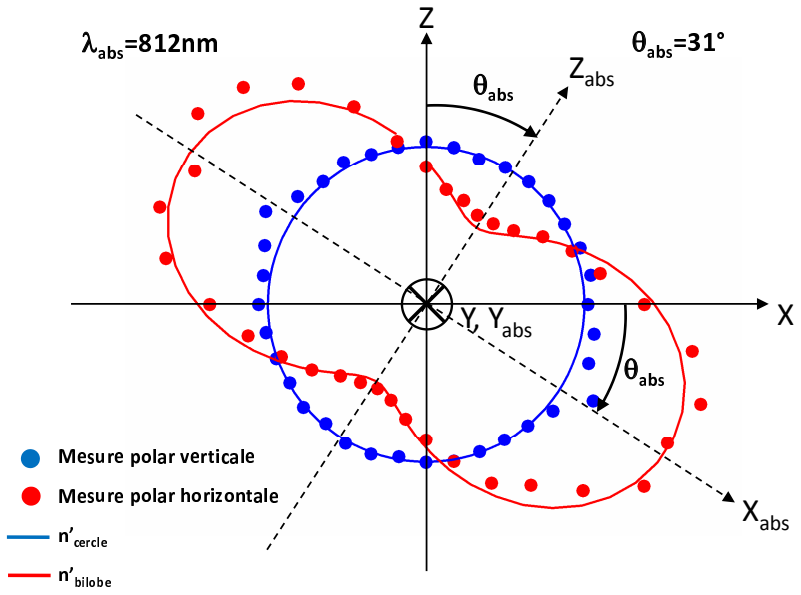
Le coefficient d'absorption et la puissance émise par fluorescence ont été mesurés sur sphère pour tout un ensemble de directions de propagation contenues dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ de $YCOB : Nd$, et ce pour chaque mode de polarisation [15].

Les courbes de la figure (1.11) montrent que les valeurs extrêmales de l'absorption ou de la fluorescence ne se trouvent pas selon les axes principaux du repère diélectrique. Cela remet en question les méthodes classiques de caractérisation des propriétés d'absorption ou d'émission de fluorescence puisque, jusqu'alors, elles reposaient sur l'utilisation de cristaux parallélépipèdiques taillés et polis optiquement selon six faces orientées selon les axes propres du repère diélectrique. Autant ces méthodes sont correctes dans le cas des cristaux de haute symétrie évoqué au paragraphe (1.7), autant elles ne sont plus valables dans le cas des monocliniques, et *a fortiori* dans le cas des tricliniques.

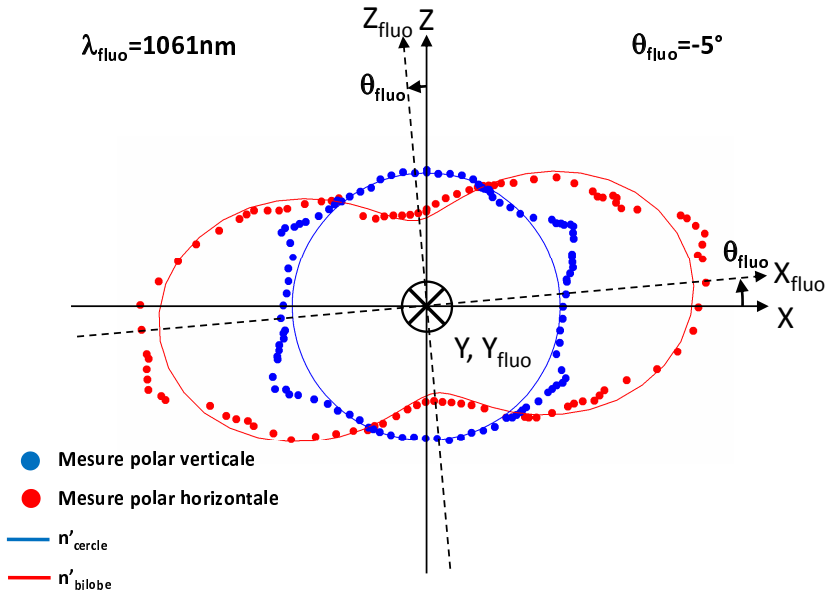
Du fait de la non coïncidence observée entre les repères propres de la partie réelle et de la partie imaginaire de la permittivité diélectrique des cristaux monocliniques, il a été nécessaire d'écrire le système d'équations (1.10) en incluant des termes non diagonaux, comme indiqué ci-dessous [14] :

$$\begin{cases} \left(\left(\epsilon_{rxx} + j\epsilon'_{rxx}\right) - \widehat{n}^2\left(u_y^2 + u_z^2\right)\right) E_x + \left(\left(\epsilon_{rxy} + j\epsilon'_{rxy}\right) + \widehat{n}^2 u_x u_y\right) E_y + \left(\left(\epsilon_{rxz} + j\epsilon'_{rxz}\right) + \widehat{n}^2 u_x u_z\right) E_z = 0 \\ \left(\left(\epsilon_{ryx} + j\epsilon'_{ryx}\right) + \widehat{n}^2 u_y u_x\right) E_x + \left(\left(\epsilon_{ryy} + j\epsilon'_{ryy}\right) - \widehat{n}^2\left(u_x^2 + u_z^2\right)\right) E_y + \left(\left(\epsilon_{ryz} + j\epsilon'_{ryz}\right) + \widehat{n}^2 u_y u_z\right) E_z = 0 \\ \left(\left(\epsilon_{rzx} + j\epsilon'_{rzx}\right) + \widehat{n}^2 u_z u_x\right) E_x + \left(\left(\epsilon_{rzy} + j\epsilon'_{rzy}\right) + \widehat{n}^2 u_z u_y\right) E_y + \left(\left(\epsilon_{rzz} + j\epsilon'_{rzz}\right) - \widehat{n}^2\left(u_x^2 + u_y^2\right)\right) E_z = 0 \end{cases} \quad (1.35)$$

(E_x, E_y, E_z) sont les coordonnées cartésiennes du champ électrique du mode de polarisation considéré dans la direction de propagation $\vec{u}(\theta, \phi)$ avec les coordonnées : $u_x = sin(\theta)cos(\phi)$, $u_y = sin(\theta)sin(\phi)$ et $u_z = cos(\theta)$. Les coefficients ϵ_{rij} et ϵ'_{rij}, avec $(i, j) = (x, y, z)$, sont respectivement relatifs à la partie réelle et imaginaire du tenseur de permittivité complexe. Nous sommes dans le cas de tenseurs symétriques qui vérifient toujours



(a)



(b)

FIGURE 1.11 – *Mesures et interpolations dans le plan* $(\vec{X}, \vec{Z})$ *de la distribution angulaire du coefficient d'absorption à* $\lambda_{abs} = 812\,nm$ *et de la puissance émise par fluorescence à* $\lambda_{fluo} = 1061\,nm$ *dans* $YCOB : Nd$ *[15].*

$\epsilon_{rij} = \epsilon_{rji}$ et $\epsilon'_{rij} = \epsilon'_{rji}$ [7]. La symétrie d'orientation monoclinique impose l'annulation des termes suivants : $\epsilon_{rxy} = \epsilon_{ryx} = \epsilon_{ryz} = \epsilon_{rzy} = 0$ et $\epsilon'_{rxy} = \epsilon'_{ryx} = \epsilon'_{ryz} = \epsilon'_{rzy} = 0$ [7].

D'autre part, le choix ayant été fait d'exprimer les tenseurs dans le repère diélectrique qui est le repère propre de la surface des indices, les termes non diagonaux de la partie réelle sont tous nuls, soit : $\epsilon_{rxz} = \epsilon_{rzx} = 0$. Le tenseur de permittivité diélectrique relative

s'écrit alors :

$$[\widehat{\epsilon_r}] = \begin{bmatrix} \epsilon_{rxx} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{ryy} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{rzz} \end{bmatrix} + j \begin{bmatrix} \epsilon'_{rxx} & 0 & \epsilon'_{rxz} \\ 0 & \epsilon'_{ryy} & 0 \\ \epsilon'_{rzx} & 0 & \epsilon'_{rzz} \end{bmatrix} \tag{1.36}$$

L'approximation des milieux faiblement absorbants, $\epsilon'_r << \epsilon_r$, permet de réaliser une approximation au premier ordre comme cela avait été fait pour établir les équations (1.11). Dans le cas d'un cristal monoclinique, les relations entre valeurs propres des indices de réfraction et coefficients du tenseur de permittivité diélectrique relative sont données ci-dessous [14, 15] :

$$\begin{aligned} &\epsilon_{rxx} = n_x^2 && \epsilon_{ryy} = n_y^2 && \epsilon_{rzz} = n_z^2 \\ &\epsilon'_{rxx} = 2\, n'_{xx} n_x && \epsilon'_{ryy} = 2\, n'_{yy} n_y && \epsilon'_{rzz} = 2\, n'_{zz} n_z \\ &\epsilon'_{rxz} = n'_{xz}\,(n_x + n_z) = \epsilon'_{rzx} = n'_{zx}\,(n_z + n_x) \end{aligned} \tag{1.37}$$

Les seuls termes non diagonaux sont donc purement imaginaires. L'interpolation des données expérimentales a pu être réalisée en considérant les deux fonctions suivantes [14, 15] :

$$\begin{cases} n'_{cercle} = n'_{yy} \\ n'_{bilobe} = \dfrac{\frac{n'_{xx}}{n_x^3} cos^2(\theta) + \frac{n'_{zz}}{n_z^3} sin^2(\theta) - \frac{n'_{xz}(n_x+n_z)}{n_x^2 n_z^2} cos(\theta) sin(\theta)}{\left(\frac{cos^2(\theta)}{n_x^2} + \frac{sin^2(\theta)}{n_z^2}\right)^{3/2}} \end{cases} \tag{1.38}$$

où n'_{cercle} et n'_{bilobe} représentent respectivement les points courants de la partie circulaire et de la partie bilobaire des distributions angulaires. La rotation du repère imaginaire par rapport au repère diélectrique est due au terme $\frac{n'_{xz}(n_x+n_z)}{n_x^2 n_z^2} cos(\theta) sin(\theta)$.

Le calcul de l'interpolation des données expérimentales nécessite au préalable de connaître la valeur des indices de réfractions principaux, ceux-ci pouvant être calculés à partir des équations de Sellmeier à la longueur d'onde considérée [16]. Ainsi il vient : $n_x = 1.6462$, $n_y = 1.7008$ et $n_z = 1.7190$ à $812\, nm$; et $n_x = 1.6377$, $n_y = 1.6904$ et $n_z = 1.7081$ à $1061\, nm$. Avec ces données, l'interpolation des mesures d'absorption et de fluorescence à partir de l'équation (1.38) donnent : $n'_{xx} = 2,1.10^{-5} \pm 0,3.10^{-5}$, $n'_{yy} =$

$2,3.10^{-5} \pm 0,3.10^{-5}$, $n'_{zz} = 3,3.10^{-5} \pm 0,4.10^{-5}$ et $n'_{xz} = 1,2.10^{-5} \pm 0,2.10^{-5}$ à $812\,nm$; et $n'_{xx} = 0,67.10^{-5} \pm 0,02.10^{-5}$, $n'_{yy} = 1.10^{-5} \pm 0,02.10^{-5}$, $n'_{zz} = 1,99.10^{-5} \pm 0,02.10^{-5}$ et $n'_{xz} = -0,15.10^{-5} \pm 0,02.10^{-5}$ à $1061\,nm$.

L'angle de rotation θ_0 entre le repère diélectrique et le repère d'absorption ou de fluorescence peut être calculé à partir d'une matrice de rotation autour de l'axe $\vec{Y}$ soit [18] :

$$\theta_{im} = Arctan\left(\frac{-n'_{xz}(\omega)}{\frac{n'_{xx}(\omega)-n'_{zz}(\omega)}{2} - \sqrt{\left(\frac{n'_{xx}(\omega)-n'_{zz}(\omega)}{2}\right)^2 + \left(n'_{xz}(\omega)\right)^2}}\right) \tag{1.39}$$

D'après (1.39) et l'interpolation des courbes de la figure (1.11), il vient :
$\theta_{im}(\lambda_{abs} = 812\,nm) = \theta_{abs} = 31,1^\circ \pm 0,7^\circ$ et $\theta_{im}(\lambda_{fluo} = 1061\,nm) = \theta_{fluo} = -6,4^\circ \pm 0,9^\circ$.

1.9 Conclusion

Ce chapitre présente les fondements théoriques de l'optique cristalline linéaire avec la description des propriétés de propagation décrites par la partie réelle du tenseur de permittivité diélectrique relative, et la description des propriétés d'absorption et de fluorescence qui elles sont gouvernées par sa partie imaginaire. Dans le cas des cristaux de symétries cubiques, hexagonales, quadratiques, rhomboédriques et orthorhombiques, il y a coïncidence entre repère diélectrique, repère d'absorption et repère de fluorescence. Dans le cas des cristaux monocliniques, il a été montré que chaque repère a son orientation propre, comme cela est résumé dans la figure (1.12). Pour des raisons de symétrie, il en sera de même dans le cas des cristaux tricliniques.

Il a été également montré que le formalisme permettant de décrire la distribution angulaire de la partie imaginaire était fiable, de sorte que nous l'utiliserons dans les chapitres suivants concernant l'évolution de l'orientation du repère d'aborption θ_{abs} en fonction de différentes transitions électroniques de l'ion Nd^{3+} dans la matrice $YCOB$, ansi que pour l'étude expérimentale hors du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ de l'absorption à $\lambda_{abs} = 812\,nm$.

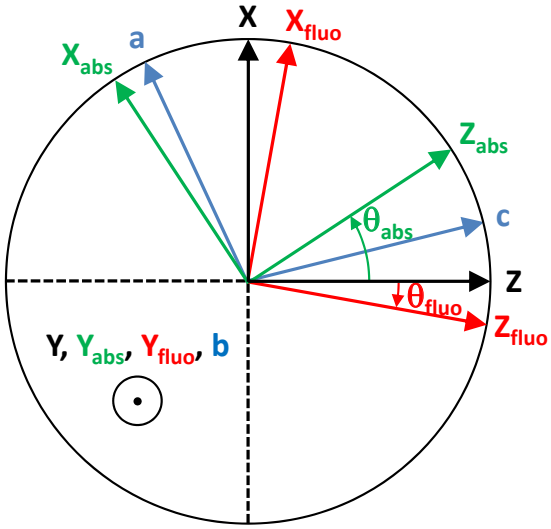


FIGURE 1.12 – *Orientation du repère diélectrique par rapport au repère cristallographique, au repère d'absorption à 812 nm et au repère de fluorescence à 1061 nm dans le cristal monoclinique $YCOB : Nd$.*

Chapitre 2

Mesure de la distribution angulaire d'absorption dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ de $YCOB : Nd$ en fonction de la transition électronique

2.1 Introduction

Comme expliqué au chapitre I, l'étude de la distribution angulaire de l'absorption et de la fluorescence dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ du cristal monoclinique $YCOB : Nd$ avait permis de montrer que le repère propre d'absorption $(\vec{X_{abs}}, \vec{Y}_{abs}, \vec{Z}_{abs})$ ne coïncide ni avec le repère propre de la fluorescence $(\vec{X}_{fluo}, \vec{Y}_{fluo}, \vec{Z}_{fluo})$, ni avec le repère diélectrique $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$. Ces trois repères orthonormés ont pour seul axe commun l'axe $\vec{b}$ du repère cristallographique $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$. Ainsi les plans $(\vec{a}, \vec{b})$, $(\vec{X}_{abs}, \vec{Z}_{abs})$, $(\vec{X}_{fluo}, \vec{Z}_{fluo})$ et $(\vec{X}, \vec{Z})$ sont tous coplanaires au plan miroir cristallographique m du cristal, où ils n'ont aucun axe en commun.

D'autre part, les mesures d'absorption et de fluorescence concernaient des transitions électroniques différentes de l'ion Néodyme Nd^{3+} : à savoir ${}^4I_{9/2} \mapsto ({}^4F_{5/2} + {}^2H_{9/2})$ pour l'absorption à $812\,nm$, et ${}^4F_{3/2} \mapsto {}^4I_{11/2}$ concernant la fluorescence à $1061\,nm$ [12].

Ainsi, nous avons cherché à savoir qu'elle pouvait être le rôle de la transition électronique sur l'orientation du repère propre de la propriété visée. C'est l'objet même de ce deuxième chapitre. Nous y présentons l'étude de la distribution angulaire du coefficient

d'absorption en lumière polarisée dans le plan miroir du cristal $YCOB : Nd$ pour différentes transitions électroniques de l'ion Nd^{3+}. L'étude de l'absorption a été privilégiée car, contrairement à la fluorescence, elle présente l'avantage d'un grand choix de transitions électroniques dont les longueurs d'onde associées sont réparties aussi bien dans le domaine visible qu'infra-rouge.

Pour ces études, nous avons développé une nouvelle version du banc expérimental qui avait été utilisé lors des travaux de la thèse de Yannick Petit [15]. Il nous a permis d'améliorer le protocole des acquisitions des points expérimentaux et la précision du repérage des directions de propagation dans le cristal. Nous avons augmenté aussi le nombre de longueurs d'onde accessibles. Se faisant, il nous a été permis d'étudier la distribution angulaire du coefficient d'absorption relative à sept bandes d'absorption.

2.2 Propriétés spectroscopiques de l'ion Nd^{3+}

Le Néodyme appartient à la famille des « lanthanides », appelée aussi « terres rares ». Cette appellation provient du fait que ces éléments à l'état naturel sont présents sous forme très dispersée. Les lanthanides recouvrent les quatorze éléments qui suivent le lanthane dans le tableau périodique.

Les propriétés optiques des lanthanides sont très intéressantes car elles présentent des raies d'absorption et de fluorescence très fines variant peu d'une matrice à une autre. Ces caractéristiques proviennent des propriétés des électrons appartenant aux couches électroniques $4f$. En effet, les orbitales $4f$ se comportent comme des orbitales de coeur et subissent un écrantage des couches electroniques supérieures $5s$ et $5p$. La faible interaction avec leur environnement explique d'une part leur invariance en fonction de la matrice, et d'autre part leur fine résolution spectrale [19].

Les niveaux d'énergie des lanthanides sont dégénérés en $14!/(14-N)!N!$ micro-états, où N varie de 0 à 14 du lanthane au lutécium. Cependant, cette dégénérescence est partiellement levée par diverses interactions, comme la répulsion coulombienne ou le couplage spin-orbite par exemple [12]. Au final, dans le cas de l'ion Nd^{3+}, il y a 41 états différents notés $^{2S+1}L_J$ où L est le moment orbital total : $L = 0, 1, 2, 3, 4, 5, 6, ...$ correspondant aux états $S, P, D, F, G, H, I, ...$, S étant définit comme le moment de spin total. $\vec{L} = \sum \vec{l_i}$ et

$\vec{S} = \sum \vec{s_i}$, où l_i est le nombre quantique orbital et s_i est le nombre quantique de spin de l'électron i. Le terme $2S+1$ est la multiplicité de spin, et J est le moment total, avec $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$. La règle de composition des moments cinétiques donne pour J la variation suivante : $|L-S|, |L-S|+1, ..., |L+S|$, le nombre de combinaisons étant égal à $2S+1$. Enfin, chaque niveau $^{2S+1}L_J$ peut être décomposé par le biais du champ cristallin en sous niveaux Stark. Cependant cette décomposition dépend de la symétrie du champ cristallin et du fait que J soit un entier ou un demi-entier.

Le niveau fondamental de l'ion Nd^{3+} est $^4I_{9/2}$. Il est composé au maximum de cinq sous niveaux Stark. Il est représenté figure (2.1) avec tous les niveaux excités d'énergie comprise entre 0 et 30000 cm^{-1} à partir du niveau fondamental. La théorie de Judd-Ofelt [20, 21] permet de calculer la probabilité d'absorption des transitions.

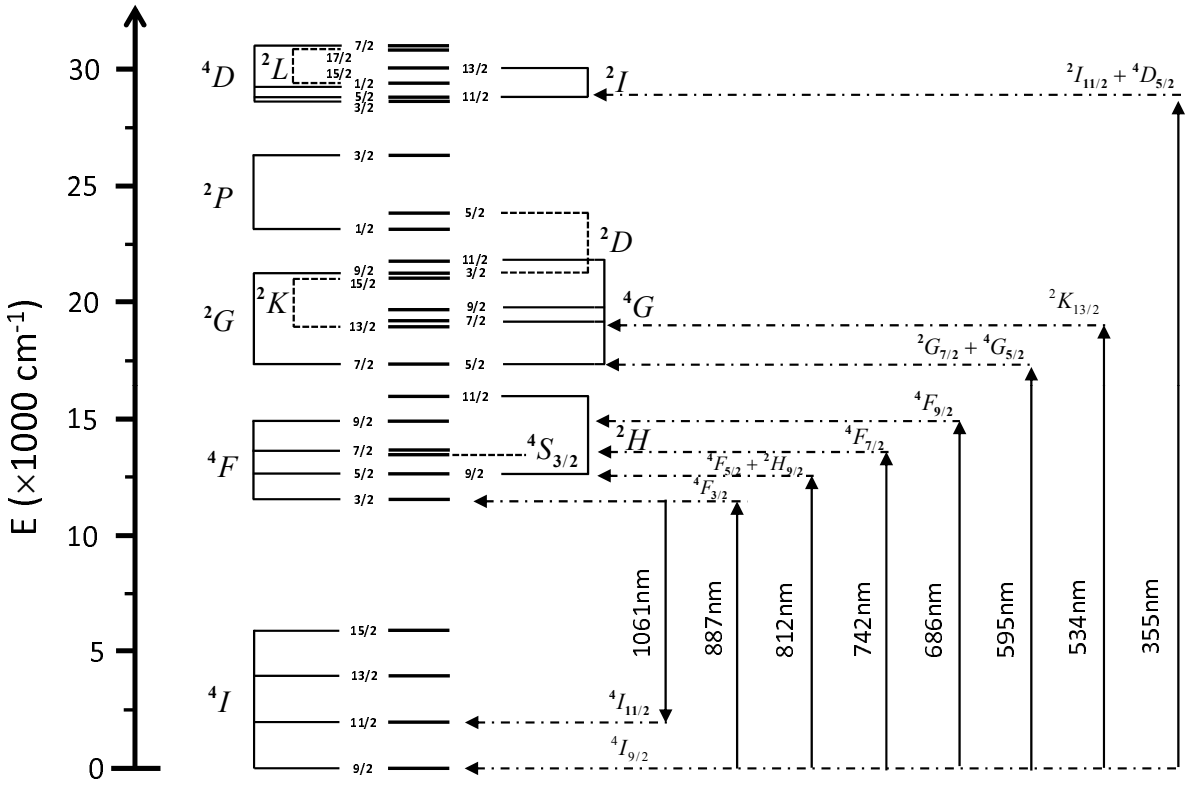


FIGURE 2.1 – *Niveaux d'énergie de l'ion Nd^{3+} à partir du niveau fondamental $^4I_{9/2}$; les flèches indiquent les transitions qui seront considérées pour la mesure de la distribution angulaire du coefficient d'absorption.*

2.3 Choix des bandes d'absorption pour les mesures

Le choix des transitions électroniques a été fait à partir du spectre de transmission de $YCOB : Nd$ mesuré à l'aide d'un spectromètre commercial Perkin Elmer. Ce dernier est équipé de lampes permettant de couvrir les domaines de longueur d'onde comprises entre $300\,nm$ et $3000\,nm$. La précision de la mesure peut atteindre $0,01\,nm$, sachant qu'une résolution de $0,5\,nm$ a suffit à résoudre la structure des bandes d'absorption. Les spectres ont été enregistrés en lumière polarisée par le biais de deux polariseurs de Glan-Taylor placés devant les détecteurs, l'un sur le trajet de la lumière qui a traversé l'échantillon et l'autre sur le trajet de référence.

Pour ces mesures, nous avons usiné un échantillon parallélépipédique de $YCOB : Nd$ de $8,25\,mm \times 8,1\,mm \times 4,11\,mm$ à partir de la même boule de croissance dans laquelle est taillée la sphère utilisée pour les mesures de distribution angulaire du coefficient d'absorption. Ce cristal a été synthétisé à l'ENSCP dans le groupe de Gérard Aka. Le parallélépipède est orienté de telle manière que les normales à ses six faces correspondent par paires aux trois axes du repère diélectrique $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$ comme le montre la figure (2.2).

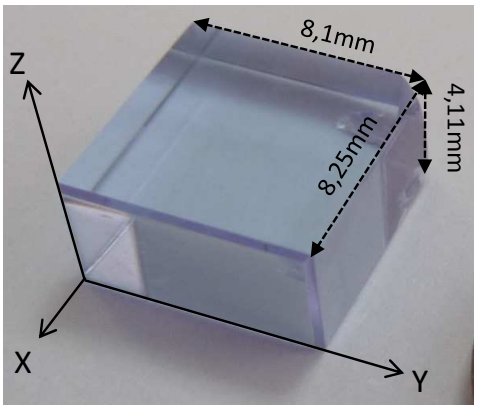


FIGURE 2.2 – *Photographie de l'échantillon parallélépipèdique de $YCOB : Nd$ utilisé pour la mesure des spectres de transmission. $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$ est le repère diélectrique.*

La première étape d'usinage de ce parallélépipède a consisté à dresser une face de référence, normale à l'axe $\vec{b}$ du repère cristallographique coïncidant avec l'axe $\vec{Y}$ du repère diélectrique. Cette face a été orientée aux rayons X au moyen d'un goniomètre $\theta - 2\theta$. Les deux autres axes du repère diélectrique, $\vec{X}$ et $\vec{Z}$, ne coïncident pas avec les axes du repère cristallographique $\vec{a}$ et $\vec{b}$, et seule une méthode optique par lumière polarisée

convergente, appelée "méthode conoscopique", permet de les orienter [6]. Finalement, la précision angulaire de l'orientation du repère diélectrique $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$ est inférieure à $0,1^{\circ}$. Les six faces du parallélépipède ont ensuite été polies. Ces travaux d'usinage ont été réalisés à l'Institut Néel avec l'aide de Jérome Debray et Bertrand Ménaert.

Les spectres de tansmission de cet échantillon sont présentés figure (2.3) pour une propagation selon l'axe $\vec{Z}$ relativement aux deux modes de polarisation. La figure (2.3) montre un large domaine de transparence, entre 1000 nm et 2200 nm. Il est limité dans l'infrarouge par trois larges bandes d'aborption localisées à 2700nm, 2900nm et 3200nm, et dont l'amplitude dépend de la polarisation considérée. Il apparaît, en dessous de 1000 nm, de nombreuses bandes d'absorption très fines qui ont pu être mesurées jusqu'à 300 nm.

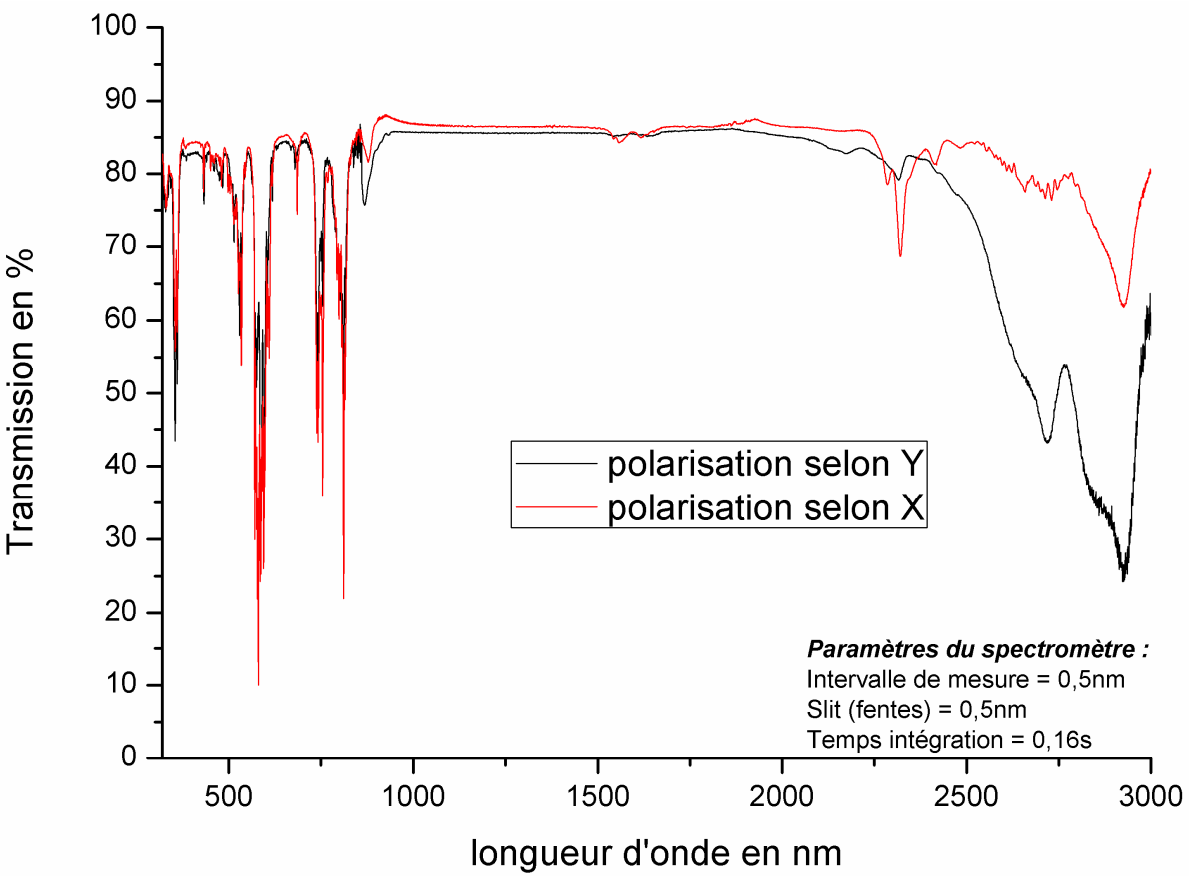


FIGURE 2.3 – *Spectres de transmission en lumière polarisée du cristal $YCOB : Nd$ dans la direction de propagation $\vec{Z}$.*

La figure (2.4) est un élargissement de la figure (2.3) entre 350nm et 1000nm. Elle nous a permis de sélectionner sept bandes d'absorption profondes, de transmission inférieure à $50^{\circ}\%$, repérées par des flèches.

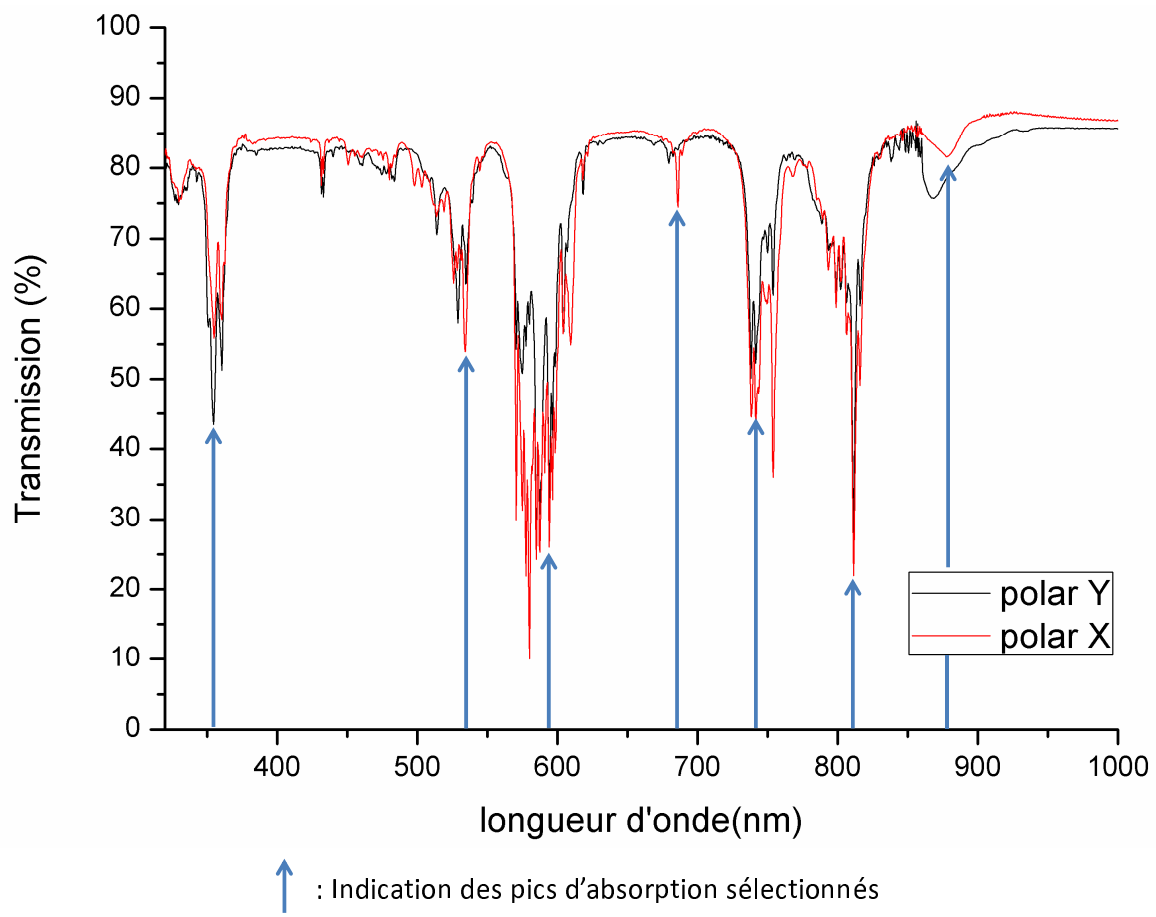


FIGURE 2.4 – *Spectre de transmission du cristal $YCOB : Nd$ en lumière polarisée entre 350 nm et 1000 nm.*

Les transitions correspondantes sont également repérées sur le diagramme d'énergie de la figure (2.1).

2.4 Mesure de la distribution angulaire du coefficient d'absorption

2.4.1 Banc expérimental

2.4.1.1 Principe de l'expérience

La figure (2.5) donne un schéma du banc expérimetal utilisé pour la mesure de la distribution angulaire du coefficient d'absorption dans le plan miroir de $YCOB : Nd$. La transmission d'un faisceau laser accordable est mesurée à partir du rapport de l'intensité laser incidente, prélevée sur le détecteur 1 placé à l'entrée du montage, et de l'intensité

qui a traversé l'échantillon prélevée par le détecteur 2 placé en fin de montage. Une lame demi-onde permet d'ajuster l'état de polarisation du laser de façon à pouvoir le propager successivement selon les deux états de polarisation relatifs à la direction de propagation considérée.

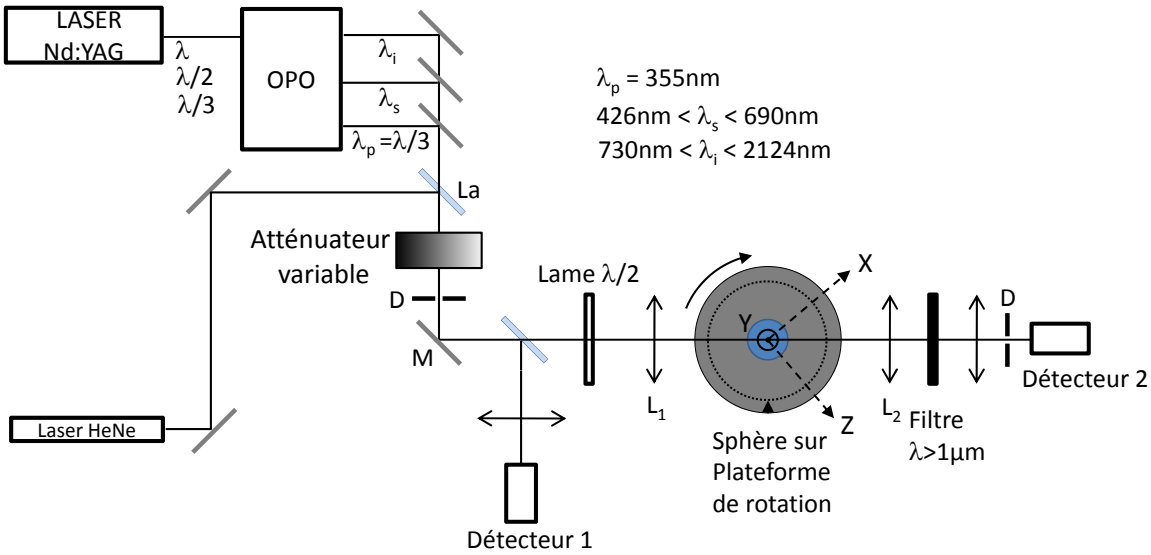


FIGURE 2.5 – *Schéma du banc expérimental mis en place pour la mesure de la distribution angulaire du coefficient d'absorption de $YCOB : Nd$ dans son plan miroir. La source laser OPO délivre des impulsions de longueur d'onde comprise entre 355 nm et 2124 nm.*

La sphère, d'un diamètre de $7,44\ mm$, a été usinée à l'Institut Néel par Bertrand Ménaert. C'est la même sphère qui avait servi pour les études menées lors de la thèse de Yannick Petit [15]. Elle a été polie et collée sur une tête goniométrique selon l'axe $\vec{Y}$, comme le montre la figure (2.6). Le contrôle de l'orientation de la sphère est assuré par un dispositif aux rayons X qui permet de déterminer précisément la position de l'axe cristallographique $\vec{b}$ coïncidant avec l'axe $\vec{Y}$.

La tête goniométrique est ensuite placée sur une platine de rotation manuelle. Elle permet au laser d'accéder à toutes les directions de propagation du cristal avec une précision d'angle inférieure à la minute d'arc. Ces directions de propagation sont repérées sur 360° dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ du repère diélectrique. L'échantillon est placé derrière une lentille L1 qui permet au faisceau laser de se propager en incidence normale parallèlement au diamètre de la sphère, et ce pour toutes les orientations de l'échantillon. La lentille de reprise L2 permet au faisceau de retrouver ses caractéristiques de propagation initiales.

Un filtre dichroique permet d'éliminer du détecteur 2 toute composante de fluorescence

FIGURE 2.6 – *Photographie de la sphère de $YCOB : Nd$ collée sur sa tête goniométrique.*

qui pourrait être générée dans le cristal. Une lentille placée devant chaque détecteur permet d'adapter la taille du faisceau à celle du détecteur. Deux diaphragmes D placés en début et fin du montage permettent de contrôler l'axe du faisceau de mesure à travers l'ensemble de l'expérience.

2.4.1.2 Source laser

Nous avons utilisé une source laser accordable entre 400 nm et 2400 nm. C'est un Oscillateur Paramétrique Optique (OPO) Panther de la société Continuum. Il délivre des impulsions avec un taux de répétition de 10 Hz et une durée d'impulsion (FWHM) de $5\,ns$. Nous avons utilisé plusieurs des faisceaux générés par cette source pour la mesure de l'absorption de $YCOB : Nd$. Le faisceau UV, à $\lambda_P = 355\,nm$, provient de la génération de troisième harmonique de la source Nd :YAG à $1064nm$ dans un cristal non linéaire de KDP. Sa polarisation est rectiligne et verticale au plan de l'expérience. Ce faisceau sert de rayonnement pompe pour l'OPO. Ses caractéristiques, tant au niveau spatial que temporel, sont excellentes mais son énergie, de l'ordre de $100\,mJ$, est surabondante pour nos mesures. Elle doit donc être atténuée fortement par le biais de densités optiques afin de ne pas endommager le cristal $YCOB : Nd$. Nous avons également utilisé le faisceau signal, λ_S, et complémentaire, λ_C, émis par l'OPO : λ_S et λ_C vérifient la conservation de l'énergie, soit : $\lambda_P^{-1} = \lambda_S^{-1} + \lambda_C^{-1}$. La gamme du faisceau complémentaire s'étend de $730\,nm$ à $2124\,nm$, et sa polarisation est rectiligne et perpendiculaire au plan de l'expérience. La gamme spectrale du faisceau Signal s'étend de $426\,nm$ à $690\,nm$, et sa polarisation est

parallèle au plan l'expérience. Les faisceaux présentent un certain astigmatisme.

Le miroir M permet à ces trois faisceaux, UV, Signal et Complémentaire, d'être injectés dans la sphère. Un jeu de miroirs pivotants permet de les utiliser individuellement, et des densités optiques placées après la lame La permettent de régler continuement leur intensité.

2.4.1.3 Procédure d'alignement des faisceaux

Pour une longueur d'onde d'émission située au delà de 780 nm, l'oeil ne peut pas voir un faisceau laser. C'est donc le cas pour toutes les longueurs d'ondes du faisceau Complémentaire. Il faut alors utiliser un laser visible afin d'aligner les éléments optiques du montage. Nous avons utilisé un laser continu $HeNe$ émettant à $632,8\,nm$. Ce faisceau est mis en coïncidence avec les faisceaux UV, Signal ou Complémentaire sur la lame La, l'objectif étant d'avoir tous les faisceaux confondus. Le faisceau $HeNe$ peut alors servir de référence pour aligner tous les éléments du montage. La procédure d'alignement consiste, dans un premier temps, à enlever du banc expérimental l'échantillon sphèrique et les deux lentilles L1 et L2 afin de repérer l'axe de l'expérience par les deux diaphragmes D situés après la lame La et devant le détecteur 2. Ensuite, les faisceaux UV, Signal et HeNe sont minutieusement mis en coïncidence selon cet axe. Concernant le faisceau Complémentaire, il est nécessaire d'utiliser une carte de visualisation. La sphère est ensuite placée sur le trajet commun à tous les faisceaux ; elle est alors centrée, et sa précession est annulée par le biais de réglages sur la tête goniométrique où elle est collée.

Cette procédure d'alignement est délicate et doit être réalisée avec beaucoup de soin afin d'obtenir une bonne précision de mesure.

2.4.1.4 Détection

Deux photodiodes Hamamatsu en silicium $S2281$ sensibles de $190nm$ à $1100nm$ constituent les détecteurs 1 et 2 du montage. Elles ont une surface de détection qui permet de recevoir tout le faisceau. C'est uniquement dans ces condtions que des mesures absolues peuvent être envisagées. Le signal des photodiodes est analysé simultanément sur deux voies d'un oscilloscope numérique TEKTRONIX DPO3034 de bande passante 300MHz. Les mesures sont déclenchées à la cadence du laser, soit 10 Hz, et moyennées sur une

centaine d'impulsions du laser afin de palier à leur instabilité qui peut atteindre près de 20 %. Le régime de fonctionnement des détecteurs doit être linéaire, ce qui est assuré par des densités optiques accollées à leur surface.

2.4.1.5 Mesure

Pour chaque direction de propagation du plan miroir de la sphère de $YCOB : Nd$, et pour chaque direction de polarisation $\vec{e^+}$ et $\vec{e^-}$ de la direction considérée, le coefficient d'absorption est déterminé à partir de la mesure du coefficient de transmission, corrigée du coefficient de Fresnel, T_F, qui prend en compte les pertes par réfexion aux faces d'entrée et de sortie de la sphère, soit compte tenu de (1.27) :

$$\alpha^{\pm}(\theta) = -\frac{1}{L} ln \left(\frac{T^{\pm}(\theta)}{T_F^{\pm}(\theta)} \right) \tag{2.1}$$

où L représente le diamètre de la sphère et θ l'angle de coordonnées sphériques dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. La redondance d'information entre la direction à θ et celle à $\theta + \pi$ nous permet de réaliser une moyenne sur deux mesures, soit : $\alpha(\theta) = \frac{1}{2}\left[\alpha(\theta) + \alpha(\theta + \pi)\right]$. La précision des mesures est de l'ordre de $\pm\, 0,05\, cm^{-1}$ sur α et $\pm\, 0,5^{\circ}$ sur θ.

2.4.2 Résultats

Les sept figures de (2.7) à (2.13) montrent les distributions angulaires du coefficient d'absorption en lumière polarisée repérées dans plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ du repère diélectrique aux sept longueurs d'ondes correspondant aux sept transitions sélectionnées de l'ion Nd^{3+}. Les représentations sont en coordonnées polaires : elles dépendent de l'angle θ repéré par rapport à l'axe $\vec{Z}$, et mesuré par pas de 5° sur les 360° du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$.

Nous avons également mesuré, dans les mêmes conditions expérimentales, la distribution angulaire du coefficient d'absorption à $2915\, nm$ montrée figure (2.14). Pour cette mesure, nous avons utilisé un générateur paramétrique optique accordable jusqu'à cette longueur d'onde. Cette longueur d'onde ne correspond pas à une bande d'absorption des ions Nd^{3+} mais de la matrice même de $YCOB$ [16].

Les figures (2.7)-(2.14) montrent que certains domaines angulaires sont abîmés du fait de piqures sur la surface de la sphère, et de fait, l'erreur sur la mesure est d'autant

importante que le coefficient d'absorption est faible.

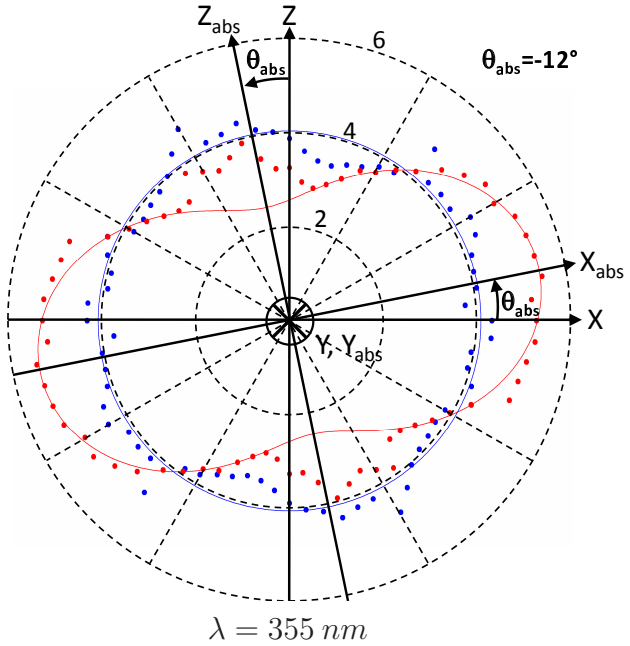


FIGURE 2.7 – *Mesure en lumière polarisée (points) et interpolation (lignes en trait plein) dans le plan miroir de $YCOB$: Nd de la distribution angulaire du coefficient d'absorption à $\lambda = 355\,nm$ correspondant à la transition ${}^4I_{9/2} \mapsto {}^2I_{11/2} +^4 D_{5/2}$ du Nd^{3+}. Les cercles concentriques à 2, 4 et 6 cm^{-1} représentent l'échelle d'amplitude du coefficient d'absorption.*

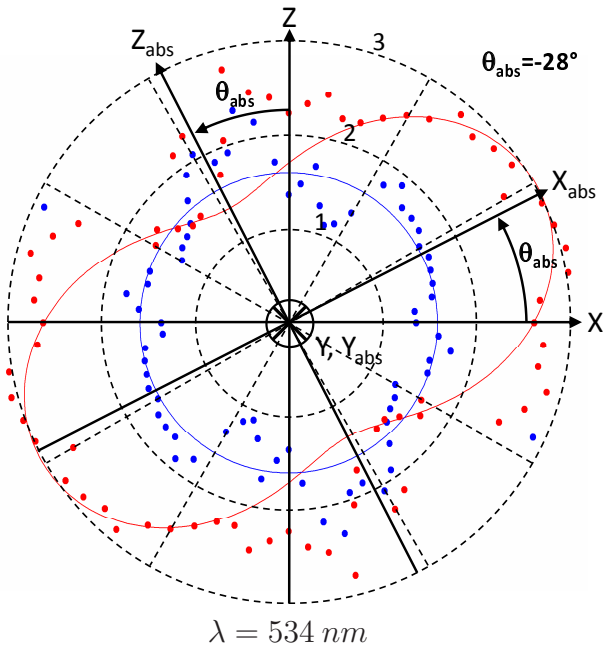


FIGURE 2.8 – *Mesure en lumière polarisée (points) et interpolation (lignes en trait plein) dans le plan miroir de $YCOB$: Nd de la distribution angulaire du coefficient d'absorption à $\lambda = 534\,nm$ correspondant à la transition ${}^4I_{9/2} \mapsto {}^2K_{13/2}$ du Nd^{3+}. Les cercles concentriques à 1, 2 et 3 cm^{-1} représentent l'échelle d'amplitude du coefficient d'absorption.*

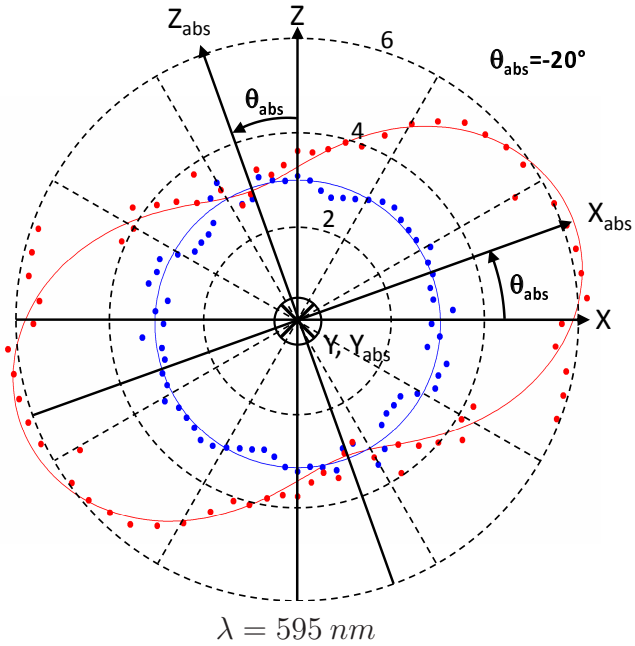


FIGURE 2.9 – *Mesure en lumière polarisée (points) et interpolation (lignes en trait plein) dans le plan miroir de $YCOB$: Nd de la distribution angulaire du coefficient d'absorption à $\lambda = 595\,nm$ correspondant à la transition ${}^4I_{9/2} \mapsto {}^2G_{7/2} +^4 G_{5/2}$ du Nd^{3+}. Les cercles concentriques à 2, 4 et 6 cm^{-1} représentent l'échelle d'amplitude du coefficient d'absorption.*

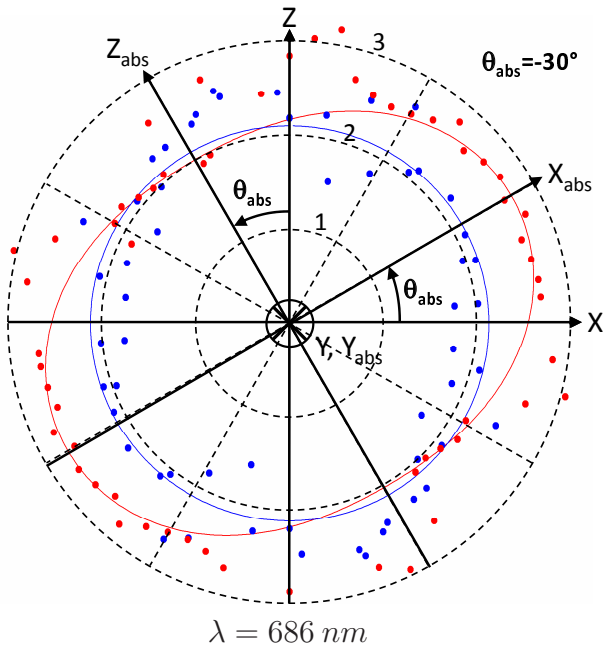


FIGURE 2.10 – *Mesure en lumière polarisée (points) et interpolation (lignes en trait plein) dans le plan miroir de $YCOB$: Nd de la distribution angulaire du coefficient d'absorption à $\lambda = 686\,nm$ correspondant à la transition ${}^4I_{9/2} \mapsto {}^4F_{9/2}$ du Nd^{3+}. Les cercles concentriques à 1, 2 et 3 cm^{-1} représentent l'échelle d'amplitude du coefficient d'absorption.*

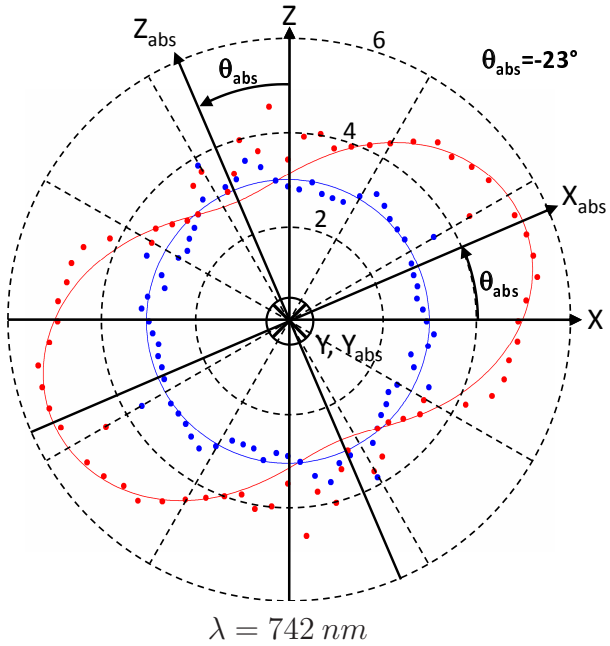


FIGURE 2.11 – *Mesure en lumière polarisée (points) et interpolation (lignes en trait plein) dans le plan miroir en de $YCOB$: Nd de la distribution angulaire du coefficient d'absorption à $\lambda = 742\,nm$ correspondant à la transition ${}^4I_{9/2} \mapsto {}^4F_{7/2}$ du Nd^{3+}. Les cercles concentriques à 2, 4 et 6 cm^{-1} représentent l'échelle d'amplitude du coefficient d'absorption.*

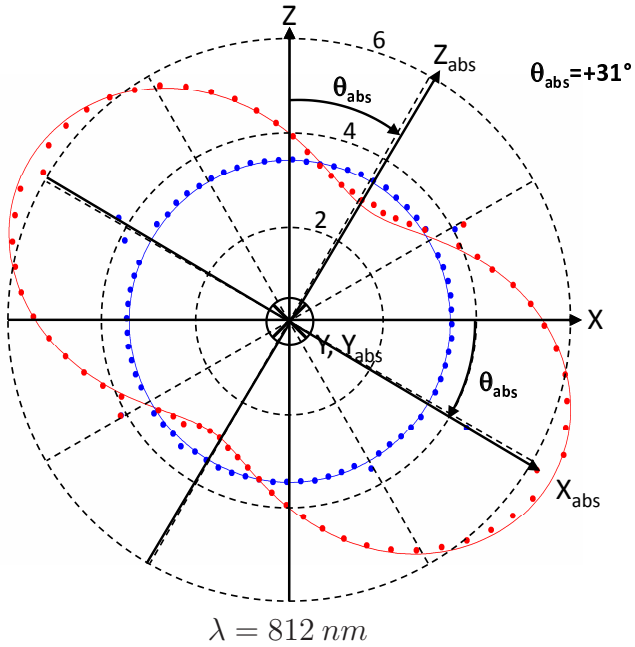
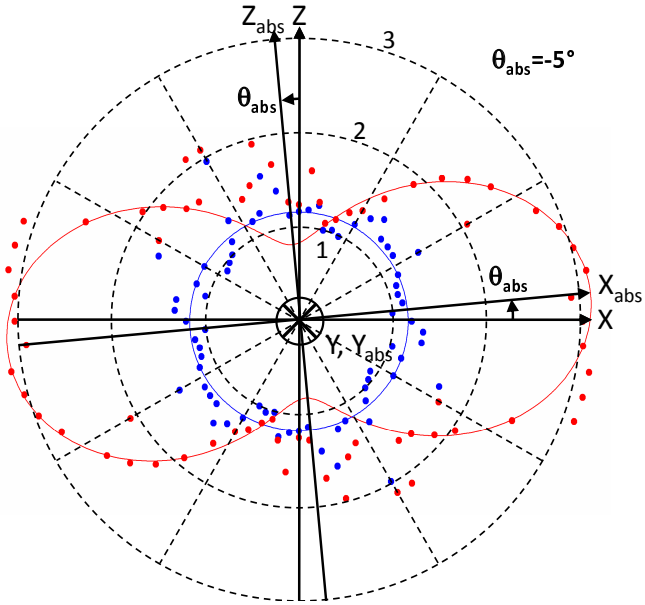
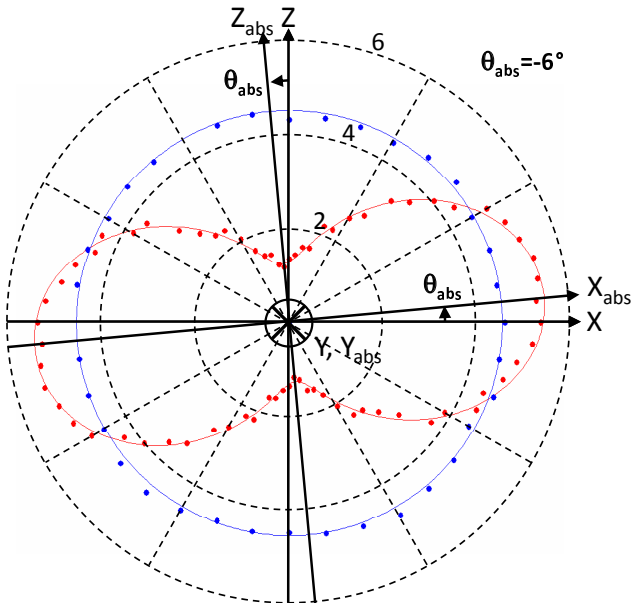


FIGURE 2.12 – *Mesure en lumière polarisée (points) et interpolation (lignes en trait plein) dans le plan miroir en de $YCOB$: Nd de la distribution angulaire du coefficient d'absorption à $\lambda = 812\,nm$ correspondant à la transition ${}^4I_{9/2} \mapsto {}^4F_{5/2} +^2 H_{9/2}$ du Nd^{3+}. Les cercles concentriques à 2, 4 et 6 cm^{-1} représentent l'échelle d'amplitude du coefficient d'absorption.*



$\lambda = 887\,nm$

FIGURE 2.13 – *Mesure en lumière polarisée (points) et interpolation (lignes en trait plein) dans le plan miroir de $YCOB : Nd$ de la distribution angulaire du coefficient d'absorption à $\lambda = 887\,nm$ correspondant à la transition ${}^4I_{9/2} \mapsto {}^4F_{3/2}$ du Nd^{3+}. Les cercles concentriques à 1, 2 et 3 cm^{-1} représentent l'échelle d'amplitude du coefficient d'absorption.*



$\lambda = 2915\,nm$

FIGURE 2.14 – *Mesure en lumière polarisée (points) et interpolation (lignes en trait plein) dans le plan miroir de $YCOB : Nd$ de la distribution angulaire du coefficient d'absorption à $\lambda = 2915\,nm$ correspondant à une bande d'absorption de la matrice $YCOB$. Les cercles concentriques à 2, 4 et 6 cm^{-1} représentent l'échelle d'amplitude du coefficient d'absorption.*

2.5 Interpolation et interprétation des résultats

L'interpolation des mesures de la distribution angulaire du coefficient d'absorption $\alpha(\theta)$ a été réalisé pour chaque longueur d'onde considérée selon la procédure détaillée au chapitre I : à partir des équations (1.29) pour le passage de $\alpha(\theta)$ à $n'(\theta)$, et de (1.38) pour l'interpolation de $n'(\theta)$, les paramètres imaginaires d'interpolation étant n'_{xx}, n'_{yy}, n'_{zz} et n'_{xz}. Nous avons utilisé une méthode classique d'interpolation par moindres carrés, les valeurs des indices de réfraction aux différentes longueurs d'onde ayant été calculées au moyen des équations de Sellmeier [16,17]. Les courbes correspondantes sont figurées en trait plein sur les figures (2.7) à (2.14). Les valeurs des quatre paramètres d'interpolation aux huit longueurs d'onde de mesure sont rassemblées dans le tableau (2.1).

Le tableau (2.1) donne également la valeur de l'angle θ_{abs} entre le repère d'absorption et le repère diélectrique, calculé à partir des valeurs de n'_{xx}, n'_{yy}, n'_{zz} et n'_{xz} en utilisant l'équation (1.39) ; la précision sur θ_{abs} est de $\pm 2^{\circ}$. Les valeurs de θ_{abs} ont ensuite permis de déterminer l'orientation précise des axes propres d'absorption $\vec{X}_{abs}$ et $\vec{Z}_{abs}$ relatifs à chacune des huit transitions considérées. Les valeurs propres n'_{Xabs}, n'_{Yabs} et n'_{Zabs} de l'indice imaginaire sont également données dans le tableau (2.1). Elles ont été calculées à partir des éléments du tenseur de permittivité diélectrique relative imaginaire $[\epsilon'_r]$ par la méthode décrite ci-après. La matrice décrivant la partie imaginaire $[\epsilon'_r]$ étant hermitique, comme c'est d'ailleurs le cas pour la partie réelle $[\epsilon_r]$, il existe alors un repère orthonormé dans lequel cette matrice est diagonale. Nous noterons R_{abs} ce repère. Le repère diélectrique est, quant à lui, noté R_{diel}. Les axes principaux de ces repères sont notés : $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$ pour le repère R_{diel}, $(\vec{X}_{abs}, \vec{Y}_{abs}, \vec{Z}_{abs})$ pour R_{abs}.

Dans le repère propre R_{abs}, la matrice décrivant la partie imaginaire de la constante de permittivité diélectrique relative est donc diagonale, alors qu'elle ne l'est pas dans R_{diel}, soit :

$$[\epsilon'_r] = \begin{bmatrix} \epsilon'_{rxx} & 0 & \epsilon'_{rxz} \\ 0 & \epsilon'_{ryy} & 0 \\ \epsilon'_{rzx} & 0 & \epsilon'_{rzz} \end{bmatrix}_{R_{diel}} = \begin{bmatrix} \epsilon'_{rXabs} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon'_{rYabs} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon'_{rZabs} \end{bmatrix}_{R_{abs}} \tag{2.2}$$

Les écritures tensorielles de $[\epsilon'_r]$ dans les repères R_{diel} et R_{abs} sont reliées par la matrice $\Re_Y(\tilde{\theta})$ décrivant la rotation d'un angle algébrique θ_{abs} autour de l'axe $\vec{Y}$. Le changement de repère vérifie la relation de passage : $\epsilon'_r(\omega)_{R_{diel}} = \Re_Y(\theta_{abs})\epsilon'_r(\omega)_{R_{abs}}\Re_Y(-\theta_{abs})$ et $\epsilon'_r(\omega)_{R_{abs}} = \Re_Y(-\theta_{abs})\epsilon'_r(\omega)_{R_{diel}}\Re_Y(\theta_{abs})$, où la matrice de rotation $\Re_Y(\theta_{abs})$ dans le repère diélectrique est donnée par l'expression [15] :

$$\Re_Y(\theta_{abs}) = \begin{bmatrix} cos\,\theta_{abs} & 0 & sin\,\theta_{abs} \\ 0 & 1 & 0 \\ -sin\,\theta_{abs} & 0 & cos\,\theta_{abs} \end{bmatrix}_{R_{diel}} \tag{2.3}$$

Ainsi, en utilisant l'équation (1.37) et la matrice (2.3), il est possible de calculer les valeurs propres n'_{Xabs}, n'_{Yabs} et n'_{Zabs} de l'indice imaginaire dans le repère d'absorption R_{abs}, en fonction des coefficients de l'indice imaginaire dans le repère diélectrique R_{diel}, soit :

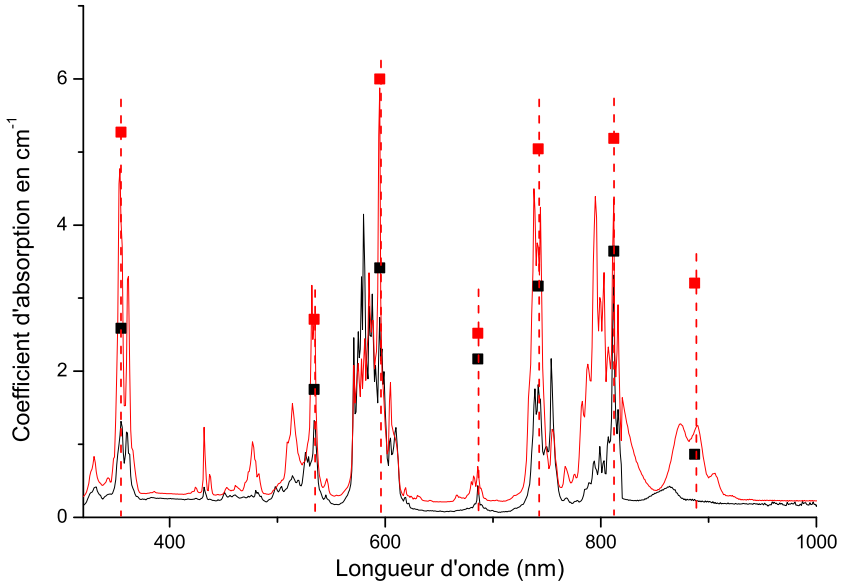
$$\begin{cases} n'_{Xabs}(\omega) = \dfrac{n'_{xx}(\omega) + n'_{zz}(\omega)}{2} - \sqrt{\left(\dfrac{n'_{xx}(\omega) - n'_{zz}(\omega)}{2}\right)^2 + (n'_{xz}(\omega))^2} \\ n'_{Yabs}(\omega) = n'_{yy}(\omega) \\ n'_{Zabs}(\omega) = \dfrac{n'_{xx}(\omega) + n'_{zz}(\omega)}{2} + \sqrt{\left(\dfrac{n'_{xx}(\omega) - n'_{zz}(\omega)}{2}\right)^2 + (n'_{xz}(\omega))^2} \end{cases} \tag{2.4}$$

Les valeurs correspondantes α_{Xabs}, α_{Yabs} et α_{Zabs} sont ensuite calculées à partir de l'expression (1.29), et sont données dans le tableau (2.1).

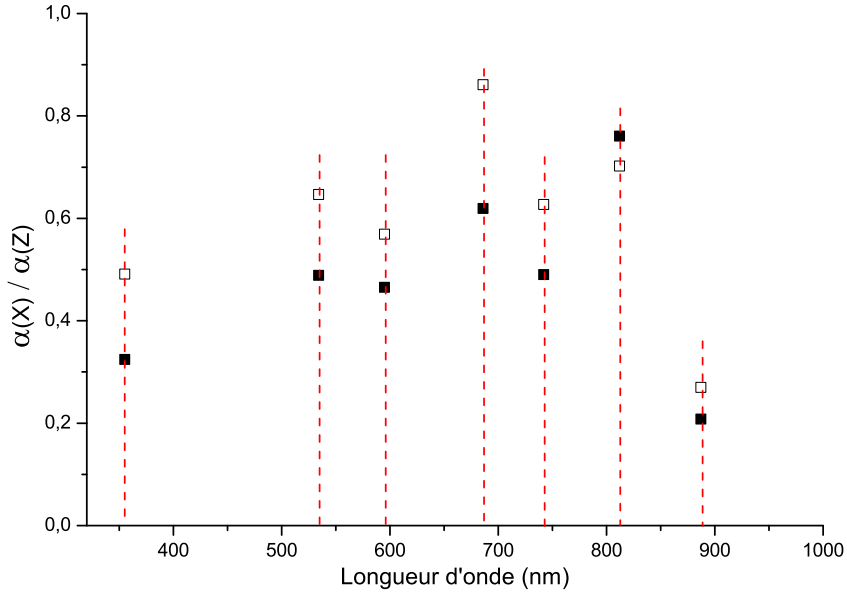
$\lambda_{abs}(nm)$	Niveaux sollicités à partir de $^4I_{9/2}$	n			n' dans R_{diel} ($\times 10^{-5}$)				$\theta_{abs}(°)$	n' dans R_{abs} ($\times 10^{-5}$)			α dans R_{abs} en cm^{-1}		
		n_x	n_y	n_z	n'_{xx}	n'_{yy}	n'_{zz}	n'_{xz}		n'_x	n'_y	n'_z	$\alpha_{x_{abs}}$	$\alpha_{y_{abs}}$	$\alpha_{z_{abs}}$
355	$^2I_{11/2} +^4 D_{5/2}$	1,73	1,7909	1,8108	0,76	1,15	1,49	−0,17	−12	0,7	1,15	1,53	2,48	4,07	5,42
534	$^2K_{13/2}$	1,6709	1,728	1,7475	0,76	0,7	1,17	−0,3	−28	0,6	0,7	1,33	1,41	1,65	3,13
595	$^2G_{7/2} +^4 G_{5/2}$	1,6625	1,7188	1,7379	1,64	1,48	2,86	−0,51	−20	1,45	1,48	3,05	3,06	3,13	6,44
686	$^4F_{9/2}$	1,6538	1,7093	1,728	1,2	1,15	1,39	−0,16	−30	1,1	1,15	1,48	2,01	2,11	2,71
742	$^4F_{7/2}$	1,65	1,705	1,7235	1,89	1,8	3	−0,58	−23	1,65	1,8	3,25	2,79	3,05	5,5
812	$^4F_{5/2} +^2 H_{9/2}$	1,6462	1,7008	1,719	2,55	2,15	3,35	0,9	31	1,97	2,15	3,93	3,05	3,33	6,08
887	$^4F_{3/2}$	1,643	1,697	1,715	0,61	0,85	2,27	−0,15	−5	0,6	0,85	2,28	0,85	1,2	3,23
2915	Matrice YCOB	1,604	1,6341	1,6474	2,97	10,4	12,43	−0,83	−5	2,9	10,4	12,5	1,25	4,48	5,39

TABLE 2.1 – *Tableau récapitulatif des différents paramètres relatifs aux interpolations des mesures des distributions angulaires du coefficient d'absorption dans le plan miroir de $YCOB$: Nd aux huit longueurs d'onde considérées. Les incertitudes sont de 1.10^{-4} sur les indices de réfraction réels, de $0,05.10^{-5}$ sur les indices imaginaires, de $2°$ sur les angles et de $0,05\,cm^{-1}$ sur les coefficients d'absorption.*

Les figures (2.15)(a) et (b) permettent de comparer directement l'absorption mesurée sur sphère à celle extraite des spectres de transmission de la figure (2.4) déterminés à l'aide du spectromètre Perkin Elmer sur un échantillon parallélépipèdique.



(a)



(b)

FIGURE 2.15 – *Comparaison entre les valeurs de l'absorption mesurées en lumière polarisée sur sphère et parallélépipède au Perkin Elmer. La direction de propagation est $\vec{Y}$ et les directions de polarisation considérées sont selon les axes $\vec{X}$ et $\vec{Z}$. Figure (a) : les carrés rouges et noirs corrspondent aux données mesurées sur sphère pour une polarisation selon $\vec{X}$, $\alpha(\vec{X})$, et selon $\vec{Z}$, $\alpha(\vec{Z})$, respectivement ; les traits continus correspondent aux spectres mesurés sur parallélépipède au Perkin Elmer. Figure (b) : les carrés blancs sont relatifs aux rapports $\alpha(\vec{X})/\alpha(\vec{Z})$ calculés à partir des mesures sur sphère, et les carrés noirs sont relatifs au même rapport issu des mesures sur parallélépipède. Les lignes verticales en pointillés sont des guides pour l'oeil.*

La figure (2.15)(a) montre que les valeurs mesurées sur sphère sont systématiquement supérieures d'au minimum 50% à celles mesurées sur parallélépipède au Perkin Elmer. Par contre, la figure (2.15)(b) indique que les deux méthodes conduisent à des résultats voisins concernant les rapports entre les coéfficients d'absorption relatifs aux deux modes de polarisation considérés.

Là aussi, nos mesures mettent en évidence un comportement radicalement différent entre partie réelle et partie imaginaire de la permittivité diélectrique. En effet, les études antérieures avaient montré que l'orientation du repère diélectrique de $YCOB : Nd$ ne dépendait pas de la longueur d'onde, comme rappelé au paragraphe (1.8.2) [14, 15]. Ici, nous montrons que, dans le cas du repère d'absorption, il y a une forte variation de son orientation avec la longueur d'onde, et que cette variation ne semble pas suivre une loi de dispersion monotone, comme le montre bien la figure (2.16).

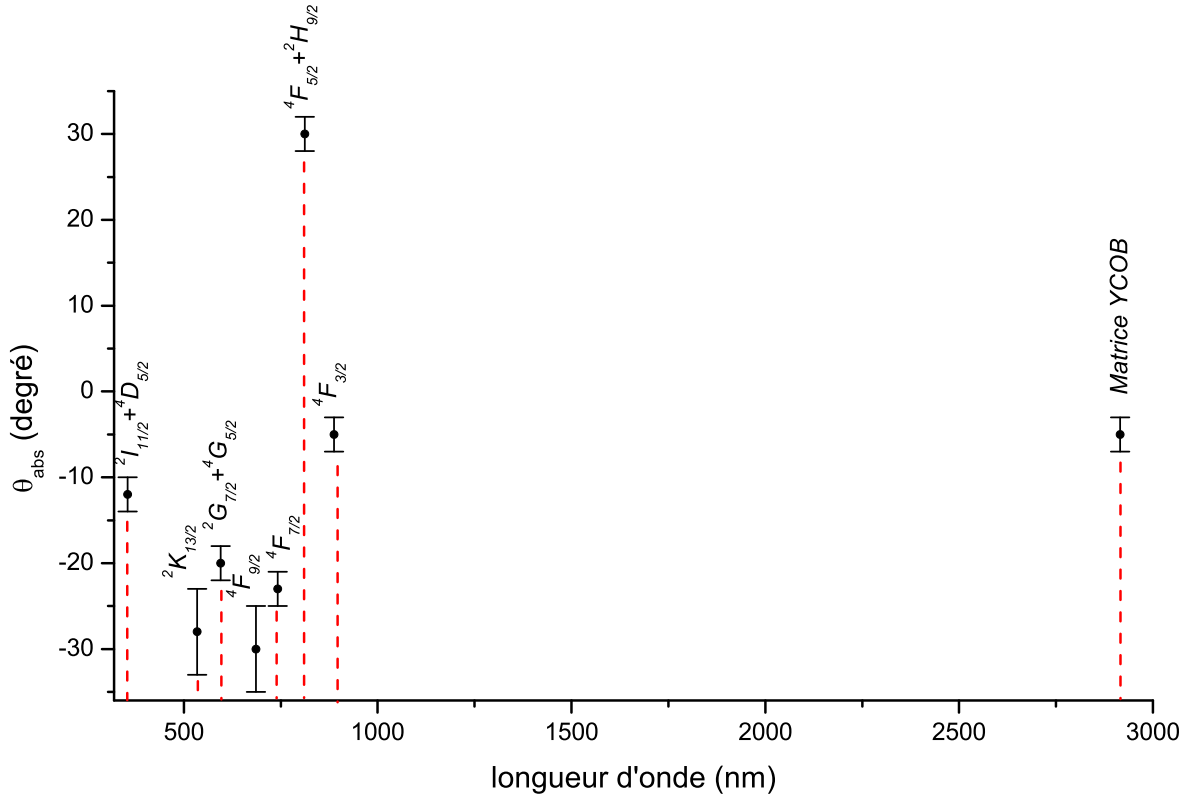
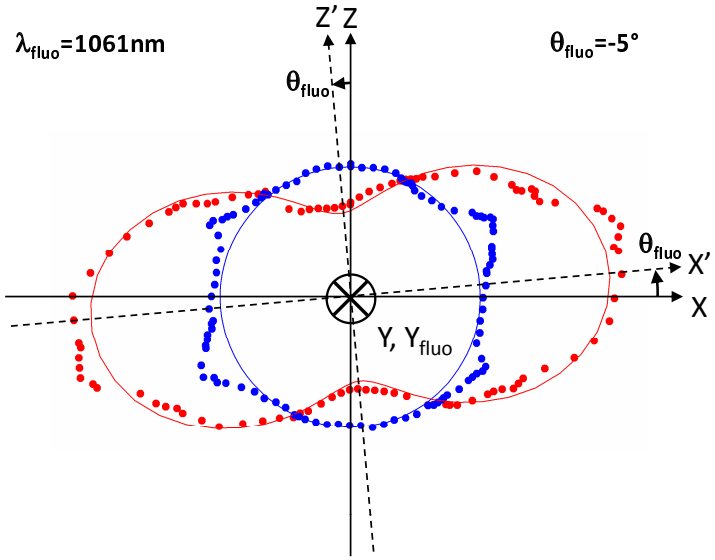


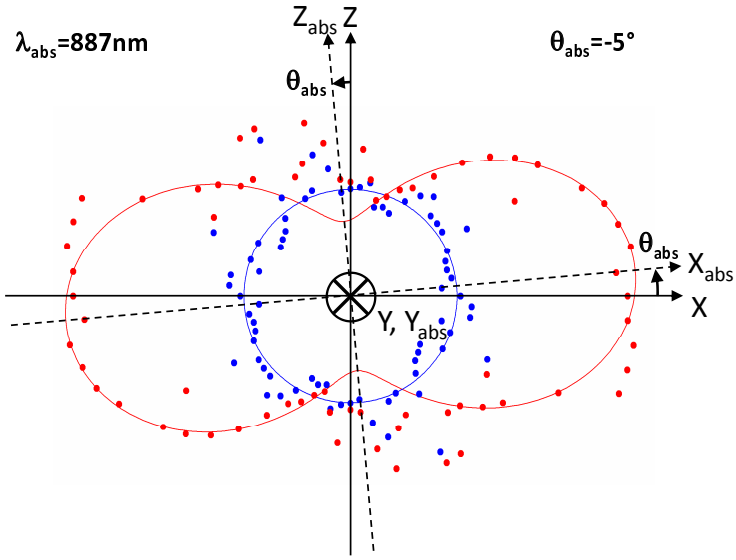
FIGURE 2.16 – *Evolution de l'angle θ_{abs} entre le repère d'absorption et le repère diélectrique en fonction de différentes longueurs d'ondes correspondant à différentes transitions dans $YCOB : Nd$.*

Cela suggère que l'orientation du repère propre d'absorption dépende des fonctions d'onde de la transition considérée. Il devrait en être de même de la fluorescence, qui est

également gouvernée par la partie imaginaire de la permittivité diélectrique. Et d'ailleurs, il ne devrait pas y avoir de différence entre absorption et fluorescence du moment que les transitions considérées sont identiques. C'est ce que nous avons tenté d'établir en comparant l'absorption à 887 nm à la fluorescence à 1061 nm, qui sont deux transitions impliquant le même niveau excité, en l'occurence $^4F_{3/2}$. La figure (2.17) montre que les deux repères correspondants sont identiques, soit : $\theta_{abs}(887\,nm) \approx \theta_{fluo}(1061\,nm) \approx -5^\circ$



(a)



(b)

FIGURE 2.17 – *Comparaison entre l'orientation du repère de fluorescence à $\lambda = 1061\,nm$ et du repère d'absorption à $\lambda = 887\,nm$, ces deux processus sollicitant le même niveau excité $^4F_{3/2}$.*

2.6 Conclusion

Grâce à cette étude de la distribution angulaire de l'absorption dans $YCOB : Nd$, nous avons montré, pour la première fois à notre connaissance, que dans un cristal monoclinique l'angle entre le repère d'absorption et le repère diélectrique dépend fortement de la transition électronique considérée. Une publication sur ces résultats est en cours de rédaction.

Pour expliquer ce phénomène, il sera nécessaire de modéliser la partie imaginaire de la permittivité diélectrique à partir des fonctions d'onde de la transition considérée et de la symétrie du site cristallographique dans lequel se situe l'ion absorbant.

C'est donc une problématique fondamentale qui est encore ouverte. Elle a également des conséquences pratiques importantes : en effet, il sera nécessaire de connaître l'orientation du repère d'absorption ou de fluorescence pour chaque longueur d'onde considérée lorsqu'il s'agira de concevoir un laser à partir d'un matériau monoclinique.

Chapitre 3

Mesure de la distribution angulaire d'absorption hors du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ de $YCOB : Nd$

3.1 Introduction

Ce chapitre vient compléter utilement l'étude du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ de $YCOB : Nd$, puisqu'il s'agit de la mesure de la distribution angulaire du coefficient d'absorption hors de ce plan. C'est la première fois à notre connaissance qu'une telle étude est menée. Nous avons pris l'exemple de la transition ${}^4I_{9/2} \mapsto ({}^4F_{5/2} + {}^2H_{9/2})$ de l'ion Nd^{3+} ($\lambda = 812\,nm$). Le cristal choisi appartient à une classe cristalline monoclinique, mais les résultats sont de portée beaucoup plus générale puisqu'ils concernent tout cristal biaxe. Cette étude a fait l'objet d'une publication à paraître dans Optics Express 2009 présentée en annexe A [22].

3.1.1 Prédiction théorique

Hors des plans principaux d'un cristal biaxe, il n'y a pas d'expression analytique de la dépendance angulaire des indices imaginaires $n'^{\pm}(\theta, \phi)$. Il est alors nécessaire de résoudre le déterminant du système d'équations (1.35) du chapitre I pour toute direction $\vec{u}(\theta, \phi)$. Pour mener ce calcul, nous avons considéré les valeurs numériques des coefficients tensoriels de la permittivité diélectrique relative ϵ_{rxx}, ϵ_{ryy}, ϵ_{rzz}, ϵ'_{rxx}, ϵ'_{ryy}, ϵ'_{rzz} et $\epsilon'_{rxz} = \epsilon'_{rzx}$ calculés à

partir des coefficients n_x, n_y, n_z, n'_{xx}, n'_{yy}, n'_{zz}, $n'_{xz} = n'_{zx}$ à 812 nm donnés dans le tableau (2.1) du chapitre II ; pour cela, nous avons utilisé les équations (1.37) du chapitre I, nous permettant d'effectuer le passage de n et n' à ϵ_r et ϵ'_r.

La résolution du déterminant de (1.35) conduit alors aux deux solutions complexes non nulles $[\widehat{n}^+(\theta,\phi)]^2 = [n^+(\theta,\phi) + jn'^+(\theta,\phi)]^2$ et $[\widehat{n}^-(\theta,\phi)]^2 = [n^-(\theta,\phi) + jn'^-(\theta,\phi)]^2$ fonctions de la direction de propagation $\vec{u}(\theta,\phi)$. Les solutions retenues sont celles dont la partie réelle est positive, l'indice de réfraction étant nécessairement positif.

La figure (3.1) donne la représentation tridimentionnelle correspondante de $n'^+(\theta,\phi)$ et $n'^-(\theta,\phi)$ dans un quart d'espace en utilisant le logiciel Matlab.

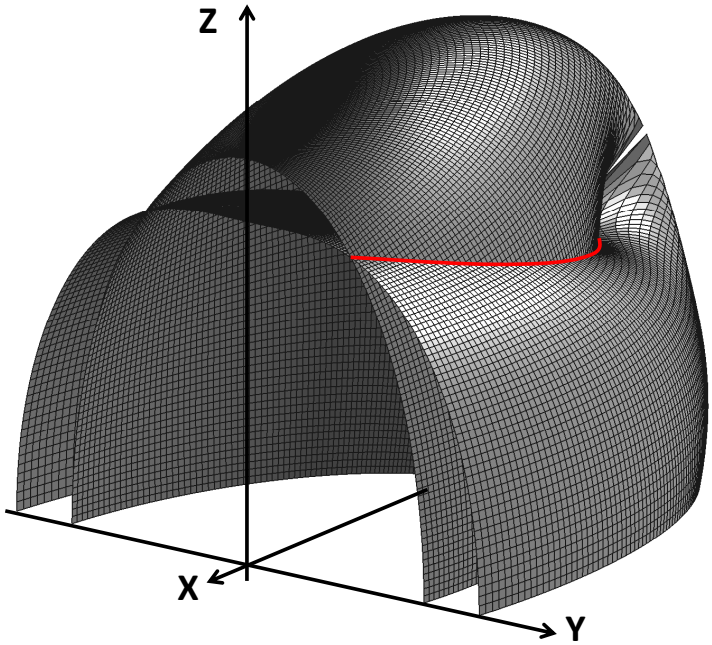


FIGURE 3.1 – *Distribution angulaire des indices imaginaires $n'^+(\theta,\phi)$ et $n'^-(\theta,\phi)$ de $YCOB : Nd$ calculée à 812 nm. $(\vec{X},\vec{Y},\vec{Z})$ est le repère diélectrique. La ligne continue rouge indique le croisement entre les deux nappes de la distribution angulaire.*

La figure (3.1) montre que la distribution angulaire du coefficient d'absorption à $\lambda = 812\,nm$ de $YCOB : Nd$ est constituée de nappes qui sont imbriquées l'une dans l'autre, formant une ligne de contact continue entre $n'^+(\theta,\phi)$ et $n'^-(\theta,\phi)$. Ce comportement est très différent de celui de la partie réelle de l'indice complexe, pour laquelle la surface des indices d'un cristal biaxe ne présente que quatre points de contact entre $n^+(\theta,\phi)$ et $n^-(\theta,\phi)$, comme le montre la figure (1.4) du chapitre I.

Les travaux présentés dans le présent chapitre portent sur la vérification expérimentale

de ces prédictions théoriques.

3.1.2 Banc de mesure et procédure expérimentale

Nous avons conçu un banc de mesure de la distribution angulaire de l'absorption nous permettant d'une part d'accéder à toute direction de propagation $\vec{u}(\theta, \phi)$, et d'autre part de définir les deux modes de polarisation $\vec{e^{+}}(\theta, \phi)$ et $\vec{e^{-}}(\theta, \phi)$ associés auxquels sera mesuré l'absorption.

3.1.2.1 Choix du dispositif goniométrique

L'objectif est de pouvoir mesurer la distribution angulaire des coefficients d'absorption $\alpha^{+}(\theta, \phi)$ et $\alpha^{-}(\theta, \phi)$ en considérant un balayage angulaire en θ de 360° par pas de 5°, et ce pour plusieurs plans à angle ϕ constant. Nous avons considéré les plans suivants : $\phi = 20°$, $\phi = 40°$, $\phi = 60°$ et $\phi = 90°$ qui correspond au plan $(\vec{Y}, \vec{Z})$, comme le montre la figure (3.2). Les plans considérés ont tous en commun l'axe $\vec{Z}$ du repère diélectrique.

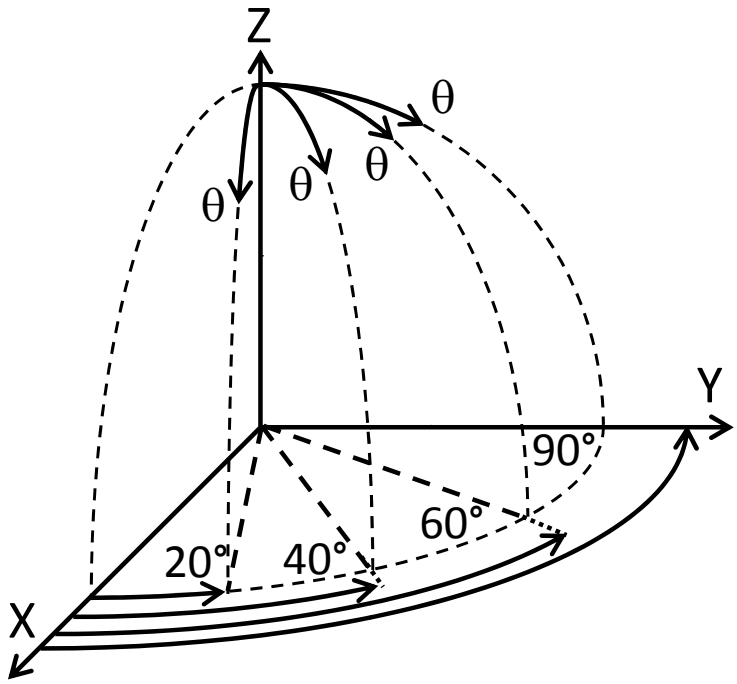


FIGURE 3.2 – *Définition des plans d'angle ϕ constant de balayage en fonction de l'angle θ pour la mesure de la distribution angulaire de l'absorption.*

Dans un premier temps, nous avons travaillé au choix du dispositif goniométrique. Il en existe principalement deux : le cercle d'Euler et le cercle Kappa, ces dispositifs étant

généralement utilisés pour les etudes structurales par diffraction des rayons X ou des neutrons [23–25].

Le cercle d'Euler est constitué de trois axes de rotations orthogonaux entre eux, comme le montre la figure (3.3). Ce système présente l'avantage d'être simple d'utilisation.

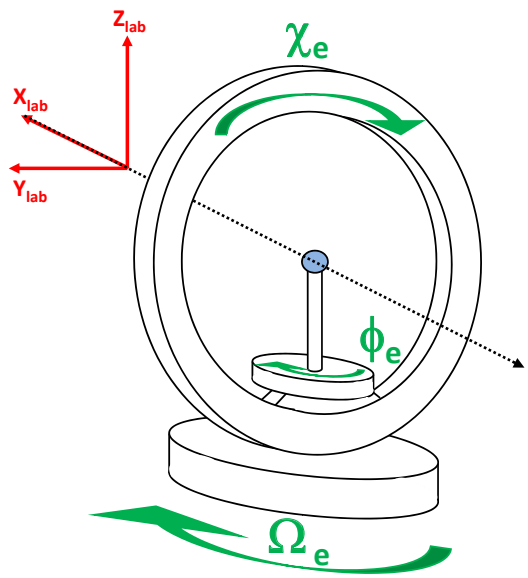


FIGURE 3.3 – *Représentation schématique du cercle d'Euler ; χ_e, ϕ_e et Ω_e sont les trois angles de rotation. $(\vec{X}_{lab}, \vec{Y}_{lab}, \vec{Z}_{lab})$ est le repère du laboratoire.*

Le repère du laboratoire $(\vec{X}_{lab}, \vec{Y}_{lab}, \vec{Z}_{lab})$ est défini de la façon suivante : la direction normale au plan de l'expérience est attribuée à l'axe $\vec{Z}_{lab}$; l'axe $\vec{X}_{lab}$ est selon la direction de propagation du faisceau ; et $\vec{Y}_{lab} = \vec{X}_{lab} \wedge \vec{Z}_{lab}$. Quand le cercle d'Euler est au repos, soit $\chi_e = \phi_e = \Omega_e = 0^\circ$, l'échantillon est réglé de façon à mettre en coïncidence le repère du laboratoire et le repère diélectrique.

Les calculs d'interpolation des mesures de $\alpha^+(\theta, \phi)$ et $\alpha^-(\theta, \phi)$ en fonction de la direction de propagation $\vec{u}(\theta, \phi)$ seront menés avec les angles de coordonnées sphériques (θ, ϕ) repérés dans le repère diélectrique $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$, mais les mesures au cercle d'Euler sont données par les trois angles χ_e, ϕ_e et Ω_e définies dans le repère du laboratoire $(\vec{X}_{lab}, \vec{Y}_{lab}, \vec{Z}_{lab})$. Le schéma de l'orientation relative de $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$ et $(\vec{X}_{lab}, \vec{Y}_{lab}, \vec{Z}_{lab})$ est donné figure (3.4).

Il sera donc nécessaire d'effectuer un changement de repère de façon à passer des angles $(\Omega_e, \chi_e, \phi_e)$ aux angles (θ, ϕ). Ce changement de repère s'effectue en considérant tout d'abord la relation entre les coordonnées cartésiennes (u_x, u_y, u_z) de $\vec{u}(\theta, \phi)$ dans $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$ et les coordonnées cartésiennes $(u_{x_{lab}}, u_{y_{lab}}, u_{z_{lab}})$ de $\vec{u}$ dans $(\vec{X}_{lab}, \vec{Y}_{lab}, \vec{Z}_{lab})$,

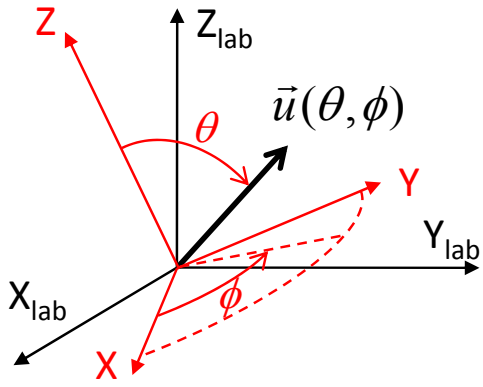


FIGURE 3.4 – $(\vec{X_{lab}}, \vec{Y_{lab}}, \vec{Z_{lab}})$ *est le repère du laboratoire. Les angles de coordonnées sphériques* (θ, ϕ) *sont relatifs à la direction de propagation* $\vec{u}(\theta, \phi)$ *repérée dans le repère diélectrique* $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$.

soit :

$$\begin{bmatrix} u_x \\ u_y \\ u_z \end{bmatrix} = M \begin{bmatrix} u_{x_{lab}} \\ u_{y_{lab}} \\ u_{z_{lab}} \end{bmatrix} \tag{3.1}$$

M est la matrice de changement de repère définie par :

$$M = \Re_{Z_{lab}}(\phi_e).\Re_{X\,lab}(\chi_e).\Re_{Z_{lab}}(\Omega_e) \tag{3.2}$$

où $\Re(\phi_e)$, $\Re(\chi_e)$ et $\Re(\Omega_e)$ sont les matrices de rotations autour des axes du cercle d'Euler [26]. Dans la configuration au repos, soit $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$ en coïncidence avec $(\vec{X}_{lab}, \vec{Y}_{lab}, \vec{Z}_{lab})$, les matrices de rotations $\Re_{Z_{lab}}(\phi_e)$ et $\Re_{Z_{lab}}(\Omega_e)$ sont défines autour de l'axe $\vec{Z}_{lab}$, alors que la matrice de rotation $\Re_{X\,lab}(\chi_e)$ est autour de l'axe $\vec{X}_{lab}$. Les expressions de ces matrices sont :

$$\Re_{Z_{lab}}(\phi_e) = \begin{bmatrix} cos\,\phi_e & -sin\,\phi_e & 0 \\ sin\,\phi_e & cos\,\phi_e & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$

$$\Re_{X_{lab}}(\chi_e) = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & cos\,\chi_e & -sin\,\chi_e \\ 0 & sin\,\chi_e & cos\,\chi_e \end{bmatrix} \tag{3.3}$$

$$\Re_{X_{lab}}(\Omega_e) = \begin{bmatrix} cos\,\Omega_e & -sin\,\Omega_e & 0 \\ sin\,\Omega_e & cos\,\Omega_e & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$

Connaissant alors la valeurs des angles d'Euler $(\chi_e, \phi_e, \Omega_e)$ et la position du repère du laboratoire, l'équation (3.1) mène aux angles de coordonnées sphériques, soit :

$$\begin{cases} \theta = arccos\,(u_z) \\ \phi = arctan\left(\dfrac{u_y}{u_x}\right) \end{cases} \tag{3.4}$$

Notons que le changement de repère se simplifie si l'axe de rotation ϕ_e est fixé, de sorte que la relation soit directe entre (Ω_e, χ_e) et (θ, ϕ).

Le cercle d'Euler présente bien les propriétés géométriques requises, mais il a le défaut de comporter des "angles morts". Cet inconvenient pourrait être surmonté par des phases successives de décollage et recollage de la sphère dans différentes directions, mais une telle procédure serait trop fastidieuse.

Nous nous sommes alors tourné vers le cercle Kappa, schématisé par la figure (3.5). Ses trois rotations, Ω_k, κ et ϕ_k, sont disposées de telle manière que l'axe de rotation κ est positionné à un angle non nul par rapport à la verticale. Ceci a pour effet de multiplier les combinaisons entre les trois axes du berceau pour une même direction de mesure, ce qui constitue un avantage certain pour la recherche de directions sans "angle mort" comme cela sera expliqué ultérieurement.

De manière analogue au cercle d'Euler, il convient d'effectuer un changement de repère afin de connaître la relation entre les angles de coordonnées sphériques (θ, ϕ) et les angles Kappa $(\Omega_k, \kappa, \phi_k)$. Nous utilisons à nouveau l'équation (3.1) où la matrice M de changement de repère s'écrit :

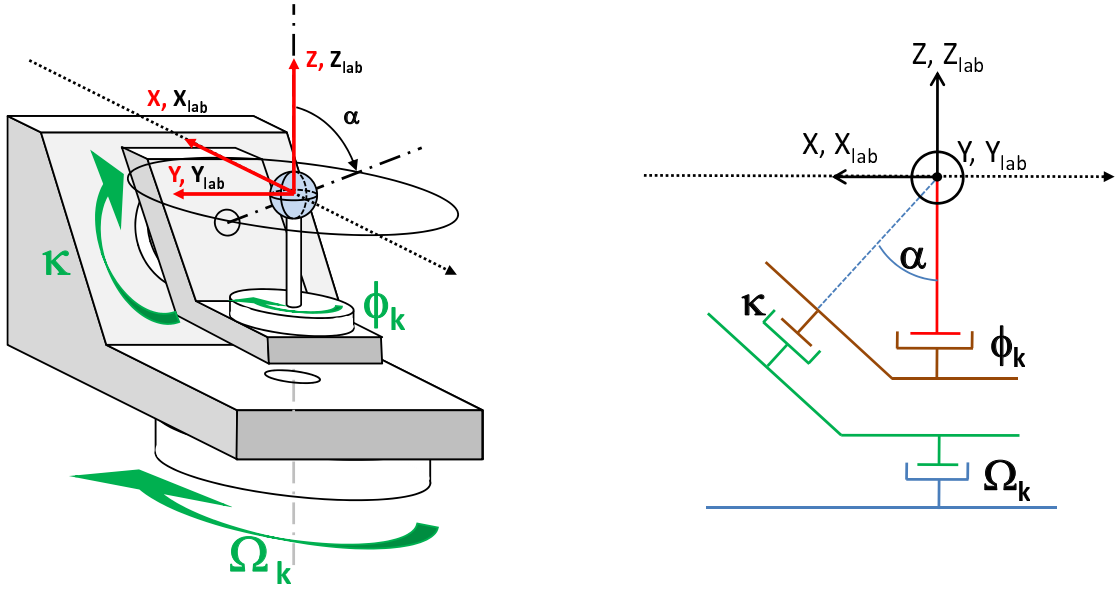


FIGURE 3.5 – *Représentations schématiques, tridimentionnelle et de profil, du cercle Kappa ; κ, ϕ_k et Ω_k sont les trois angles de rotation.*

$$M = \Re_{Z_{lab}}(\phi_k).\Re_{Y_{lab}}(\alpha).\Re_{Z_{lab}}(\kappa).\Re_{Y_{lab}}(-\alpha).\Re_{Z_{lab}}(\Omega_k) \tag{3.5}$$

avec :

$$\begin{aligned} \Re_{Z_{lab}}(\phi_k) &= \begin{bmatrix} cos\,\phi_k & -sin\,\phi_k & 0 \\ sin\,\phi_k & cos\,\phi_k & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \\ \Re_{Y_{lab}}(\alpha) &= \begin{bmatrix} cos\,\alpha & 0 & -sin\,\alpha \\ 0 & 1 & 0 \\ sin\,\alpha & 0 & cos\,\alpha \end{bmatrix} \end{aligned} \tag{3.6}$$

$$\Re_{Z_{lab}}(\kappa) = \begin{bmatrix} cos\,\kappa & -sin\,\kappa & 0 \\ sin\,\kappa & cos\,\kappa & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$
$$\Re_{Z_{lab}}(\Omega_k) = \begin{bmatrix} cos\,\Omega_k & -sin\,\Omega_k & 0 \\ sin\,\Omega_k & cos\,\Omega_k & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \tag{3.7}$$

Nous avons écrit un programme d'interfaçage du cercle Kappa pratique d'utilisation, la commande du système consistant à demander un positionnement des moteurs pour une direction (θ, ϕ) choisie. Ce programme, donné en annexe C, va alors fonctionner en mode "recherche de solution". Pour toutes les combinaisons $(\Omega_k, \kappa, \phi_k)$ possibles, il calcule : les coordonnées de $\vec{u}(\theta, \phi)$ dans le repère diélectrique grâce à l'équation de changement de repère (3.1) qui utilise les matrices de rotation (3.6) et (3.7) ; puis le couple correspondant de solutions (θ, ϕ) par les équations (3.4), avec pour chaque combinaison, le test sur la correspondance des solutions avec la commande. Le temps de calul peut être infini si le pas d'incrémentation en angle est trop fin. Par exemple, pour un pas de 1° le nombre de combinaisons est $360^3 \approx 46.10^6 \Rightarrow$, soit un temps de calcul de l'ordre de $15min$, et ce pour obtenir une solution qui peut présenter un écart de 1° par rapport à la commande. Pour palier à ce problème, nous avons mis en place une procédure de recherche de solutions par itération permettant de cibler rapidement l'une d'entre elles : le programme parcourt l'espace $(\Omega_k, \kappa, \phi_k)$ avec un pas d'incrémentation large, et dès qu'il trouve une solution aprochée, il réduit son pas d'incrémentation et resserre l'espace $(\Omega_k, \kappa, \phi_k)$ autour de la solution précédemment trouvée. Le programme réitère cette opération jusqu'à ce que la précision de la solution soit bonne vis à vis de la commande.

L'intérêt du cercle Kappa est qu'il existe un grand nombre de combinaisons $(\Omega_k, \kappa, \phi_k)$ correspondant à un même couple (θ, ϕ), comme le montre la figure (3.6) dans le cas particulier correspondant à $(\theta = 20^\circ, \phi = 20^\circ)$. Notons que les différentes courbes sont des solutions images entre elles, avec par exemple : $(\Omega_k, \kappa, \phi_k) \equiv (\Omega_k + \pi, \kappa, \phi_k)$. Cette particularité s'avère être un point clé pour une mesure résolue angulairement. En effet, si

le bras d'un berceau vient à occulter le faisceau laser, ce qui correspond à une situation d'angle mort, il y a alors la possibilité de se déplacer sur les lignes de solutions jusqu'à ce que les angles $(\Omega_k, \kappa, \phi_k)$ correspondent à une position du système sans écrantage.

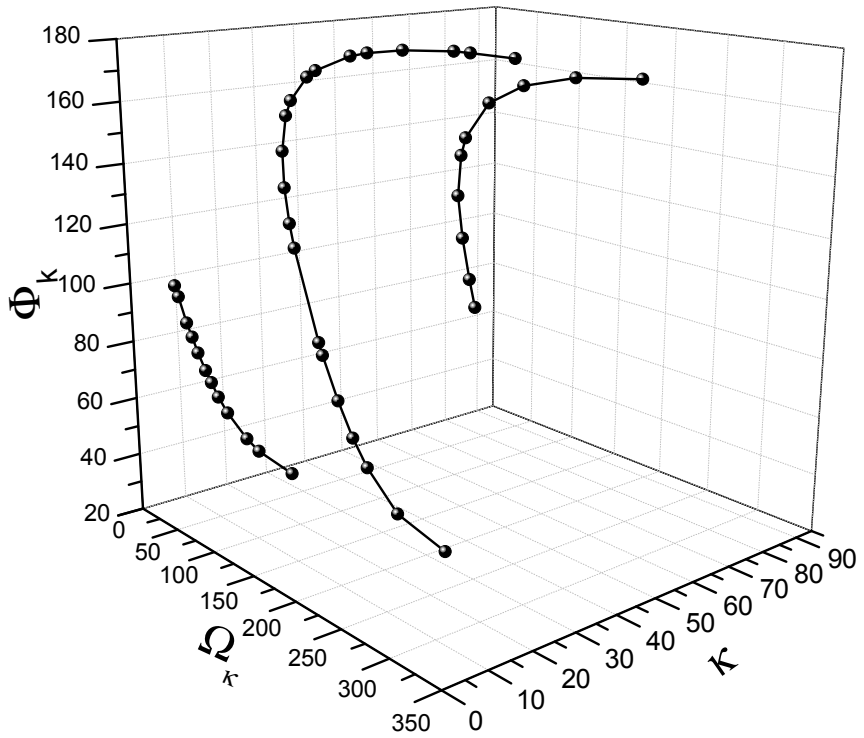


FIGURE 3.6 – *Représentation dans l'espace $(\omega_k, \kappa, \phi_k)$ des solutions de positionnement du système Kappa pour un seul couple de solutions d'angle $(\theta = 20^\circ, \phi = 20^\circ)$.*

Notre cercle Kappa est montré sur la photographie de la figure (3.7). Il est motorisé par des moteurs pas à pas, de résolution proche de la seconde d'arc, et piloté par une électronique adaptée. Une perspective instrumentale est envisagée afin d'automatiser le système, et ce grâce à un connexion RS232 entre l'électronique de pilotage et un ordinateur sous environnement LabVIEW.

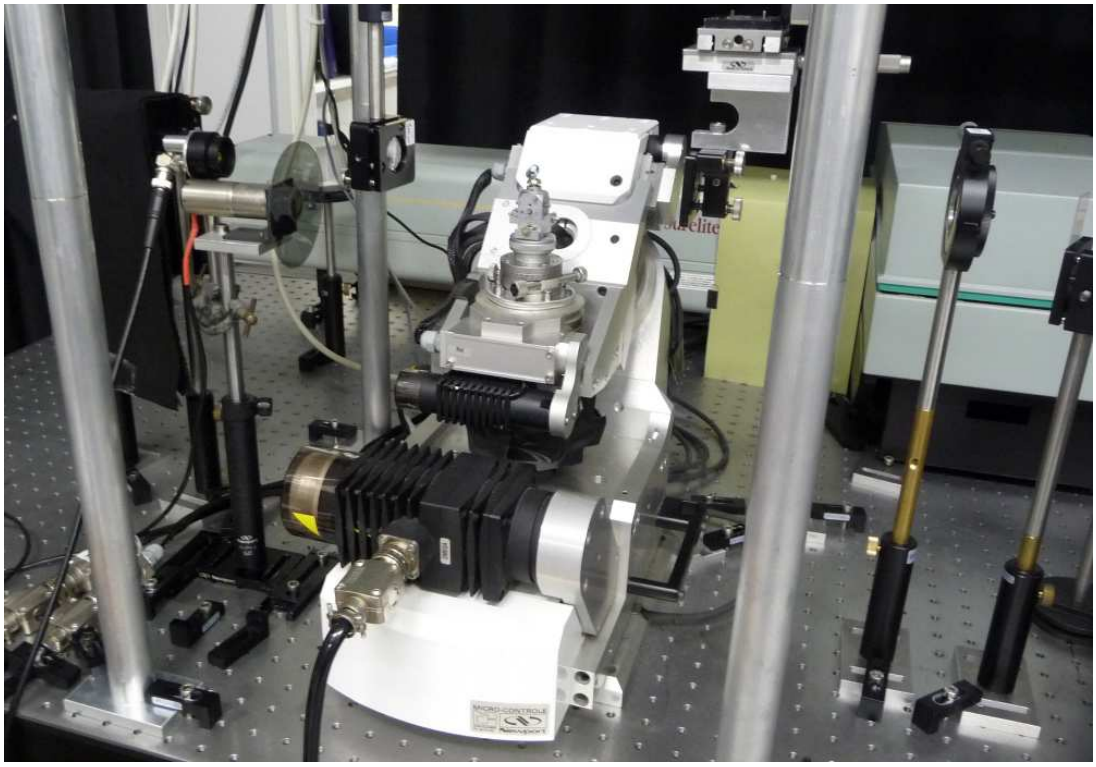


FIGURE 3.7 – *Photographie du montage expérimental « Kappa ».*

3.1.2.2 Banc de mesure

Hormis la problématique liée à la polarisation qui sera détaillée au paragraphe suivant, le protocole expérimental est le même que celui décrit dans le chapitre II pour la mesure de la distribution angulaire d'absorption du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. Afin d'explorer les directions hors de ce plan, la sphère est collée de telle sorte que le repère diélectrique et le repère du laboratoire soit définis comme indiqué sur le schéma de la figure (3.8).

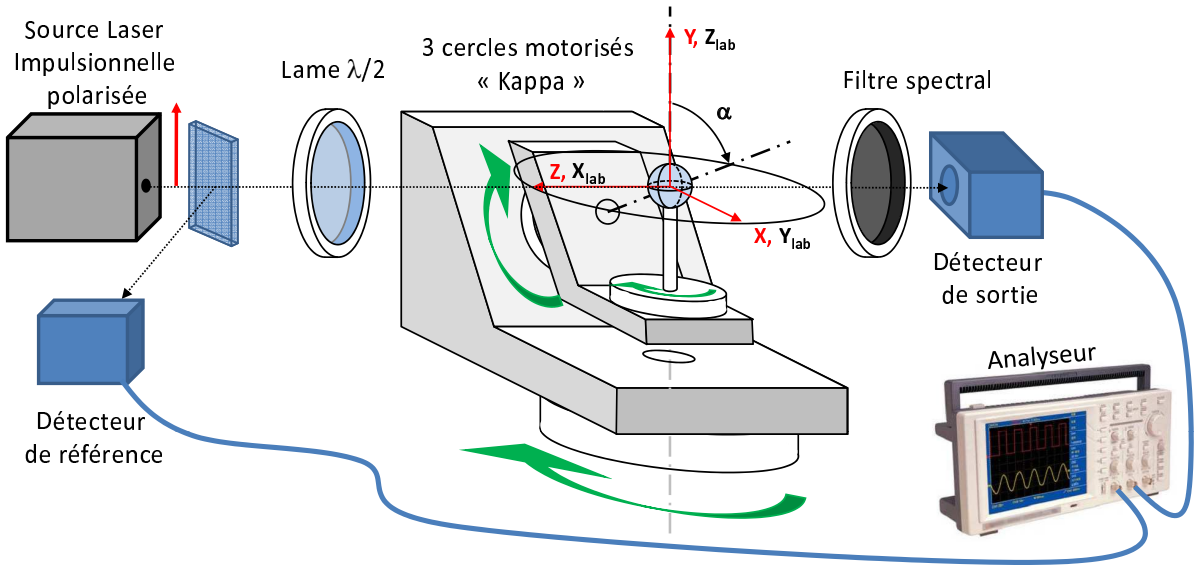


FIGURE 3.8 – *Schéma de principe du banc de mesure de la distribution angulaire d'absorption.*

3.1.2.3 Protocole lié à la polarisation

C'est un point clé de notre problématique, la distribution angulaire d'absorption devant être mesurée pour chacun des deux modes de polarisation, $\vec{e^+}(\theta, \phi)$ et $\vec{e^-}(\theta, \phi)$, relatifs à la direction de propagation considérée $\vec{u}(\theta, \phi)$.

3.1.2.3.1 Détermination des modes propres de polarisation

La figure (3.9) décrit le schéma de principe de la méthode permettant de déterminer l'orientation des deux modes propres de polarisation relatifs à une direction de propagation $\vec{u}(\theta, \phi)$ quelconque. Le faisceau incident est polarisé, et une lame $\lambda/2$ permet d'en tourner la polarisation. Un analyseur tournant est placé en sortie devant le détecteur.

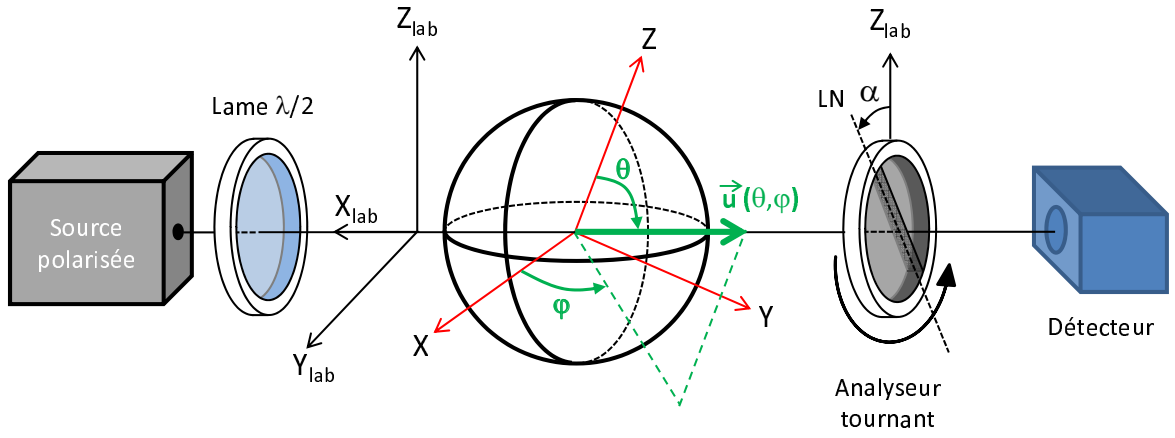
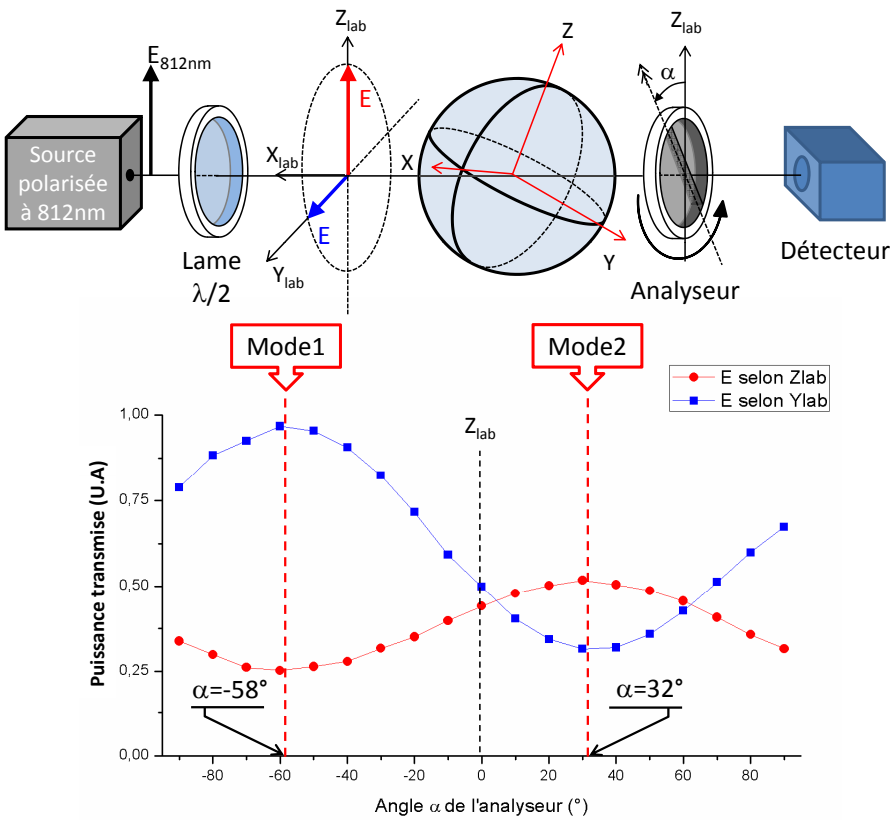


FIGURE 3.9 – *Schéma expérimental permettant de trouver les états de polarisation* $\vec{e^+}(\theta,\phi)$ *et* $\vec{e^-}(\theta,\phi)$ *correspondant à une direction de propagation* $\vec{u}(\theta,\phi)$ *quelconque.*

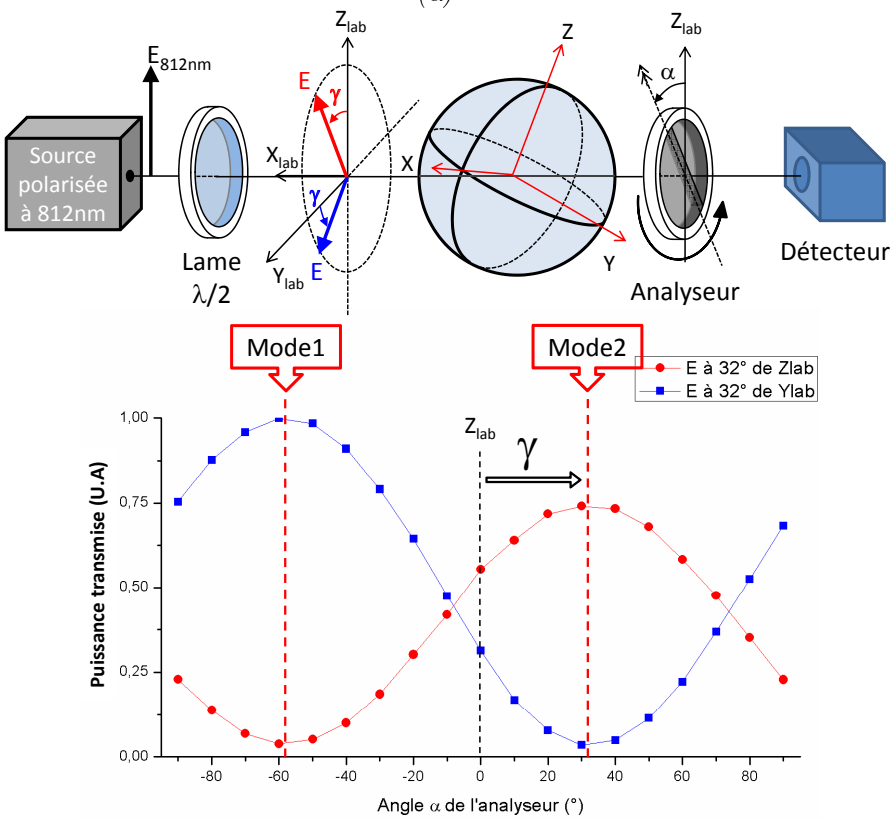
La polarisation du faisceau incident est rectiligne ; quand son angle d'incidence est quelconque par rapport aux plans de vibrations Π^+ et Π^-, il y a alors projection de cette polarisation sur les deux modes propres $\vec{e^+}$ et $\vec{e^-}$ de la direction considérée.

La figure (3.10) donne l'exemple d'une propagation à $(\theta = 40^\circ, \phi = 20^\circ)$ dans $YCOB$: Nd, le faisceau incident étant émis par un OPO à $812\,nm$. La lame $\lambda/2$ permet d'orienter la polarisation horizontalement, suivant $\vec{Y}_{lab}$, ou verticalement, suivant $\vec{Z}_{lab}$. La méthode consiste à mesurer la puissance transmise par un analyseur mis en rotation, mesure réalisée pour chacune des deux polarisations incidentes, soit selon $\vec{Y}_{lab}$ et $\vec{Z}_{lab}$. La figure (3.10)(a) donne l'évolution de la puissance transmise en fonction de l'angle α que fait la ligne neutre de l'analyseur avec l'axe $\vec{Z}_{lab}$. Ces courbes suivent la « loi de Malus », de sorte que les *extrema* relatifs aux deux états de polarisation sont situés aux mêmes angles, qui donnent directement l'orientation des deux modes de polarisation : soit $\alpha = -58^\circ$ pour une polarisation (Mode1), et $\alpha = 32^\circ$ pour l'autre (Mode2).

Nous remarquons sur la figure (3.10)(a) aussi que nous ne sommes pas dans une configuration d'extinction. Ceci est dû au fait que la polarisation de l'onde incidente selon $\vec{Y}_{lab}$ ou $\vec{Z}_{lab}$ n'est pas en coïncidence parfaite avec une ligne neutre de la direction considérée. Il convient alors d'optimiser la polarisation du faisceau incident grâce à l'angle de la lame $\lambda/2$, de façon à obtenir une modulation angulaire dont les *minima* passent bien



(a)



(b)

FIGURE 3.10 – *Détermination de l'orientation des deux modes popres de polarisation Mode1 et Mode2, correspondant à la direction de propagation* ($\theta = 40^\circ, \phi = 20^\circ$) *dans* $YCOB : Nd$. ($\vec{X_{lab}}, \vec{Y_{lab}}, \vec{Z_{lab}}$) *est le repère du laboratoire ;* ($\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z}$) *est le repère diélectrique ; (a) polarisation incidente quelconque ; (b) polarisation incidente optimisée.*

par zero. Il faut alors, par exemple, appliquer une rotation d'un angle γ à la polarisation du faisceau incident par rapport à l'axe $\vec{Z}lab$, correspondant à une des positions relevées en α d'un des deux *maxima*, comme le montre la figure (3.10)(b).

Nous pouvons vérifier par la même occasion que les modes 1 et 2 sont bien orthogonaux entre eux, mettant en évidence l'orthogonalité des deux plans de vibration Π^+ et Π^- comme décrit au paragraphe (1.6) du chapitre I. Notons que l'écart d'amplitude entre les *maxima* des deux modes donne déjà une indication sur la différence des coefficients d'absorption correspondants.

Pour être capable de dire si le mode1 correspond à $\vec{e^+}$ ou $\vec{e^-}$, et réciproquement pour le mode2, il est nécessaire de partir d'un axe principal du repère diélectrique. En effet, nous savons, par exemple, que pour une direction de propagation selon $\vec{Z}$, la polarisation orientée selon $\vec{Y}$ va correspondre à la nappe externe $\vec{n^+}$, et donc à la polarisation $\vec{e^+}$, et que, selon $\vec{X}$, il s'agira de la nappe interne $\vec{n^-}$, donc de la polarisation $\vec{e^-}$. Par continuité à partir des axes principaux, il est alors possible de "suivre" continûment chaque mode de polarisation $\vec{e^+}$ ou $\vec{e^-}$ en fonction de la direction de propagation.

3.1.2.3.2 Evolution de l'orientation des modes propres de polarisation dans un plan de balayage quelconque.

Le protocole décrit précédemment permet donc de déterminer dans le repère du laboratoire l'orientation de $\vec{e^+}$ et $\vec{e^-}$ correspondant à une direction de propagation quelconque $\vec{u}$, puis par changement de repère, de connaître cette orientation dans le repère diélectrique.

Nous avons vu au paragraphe (1.6) du chapitre I que, dans les trois plans principaux du repère diélectrique d'un cristal biaxe, il est possible d'avoir des expressions analytiques des composantes cartésiennes $e_i^{\pm}$, $i = x, y, z$ des modes de polarisation. Par contre, hors des plans principaux, il faut passer par une résolution numérique. Il est alors nécessaire de convertir le système (1.25) du chapitre I sous une forme d'équation matricielle à second membre nul comme suit :

$$\begin{bmatrix} e_x \\ e_y \\ e_z \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} A_x.u_x - 1 & A_x.u_y & A_x.u_z \\ A_y.u_x & A_y.u_y - 1 & A_y.u_z \\ A_z.u_x & A_z.u_y & A_z.u_z - 1 \end{bmatrix} = 0 \tag{3.8}$$

avec

$$A_i = \frac{n^{\pm^2}}{n^{\pm^2} - n_i^2} u_i \tag{3.9}$$

et $i = x, y, z$.

Notons que nous sommes dans le cas d'un système linéaire homogène, avec comme solution, autre que la solution triviale $e_x = e_y = e_z = 0$, un sous espace vectoriel. Autrement dit, la solution de ce système est une droite passant par zero dans le repère diélectrique. Donc, nous pouvons donner comme valeurs aux composantes e_x, e_y et e_z les composantes du vecteur unitaire $\vec{s}$ de la droite solution du système (3.8), soit : $s_x = e_x, s_y = e_y, s_z = e_z$. Les logiciels de calculs numériques ou matriciels classiques permettent de déterminer directement le noyau de telles matrices. Une fois les coordonnées cartésiennes des modes de polarisations connues, nous devons calculer l'angle γ contenu dans le plan normal à la

direction de propagation, angle fait $\vec{Z}_{lab}$ et la projection de $\vec{e^{+}}$.

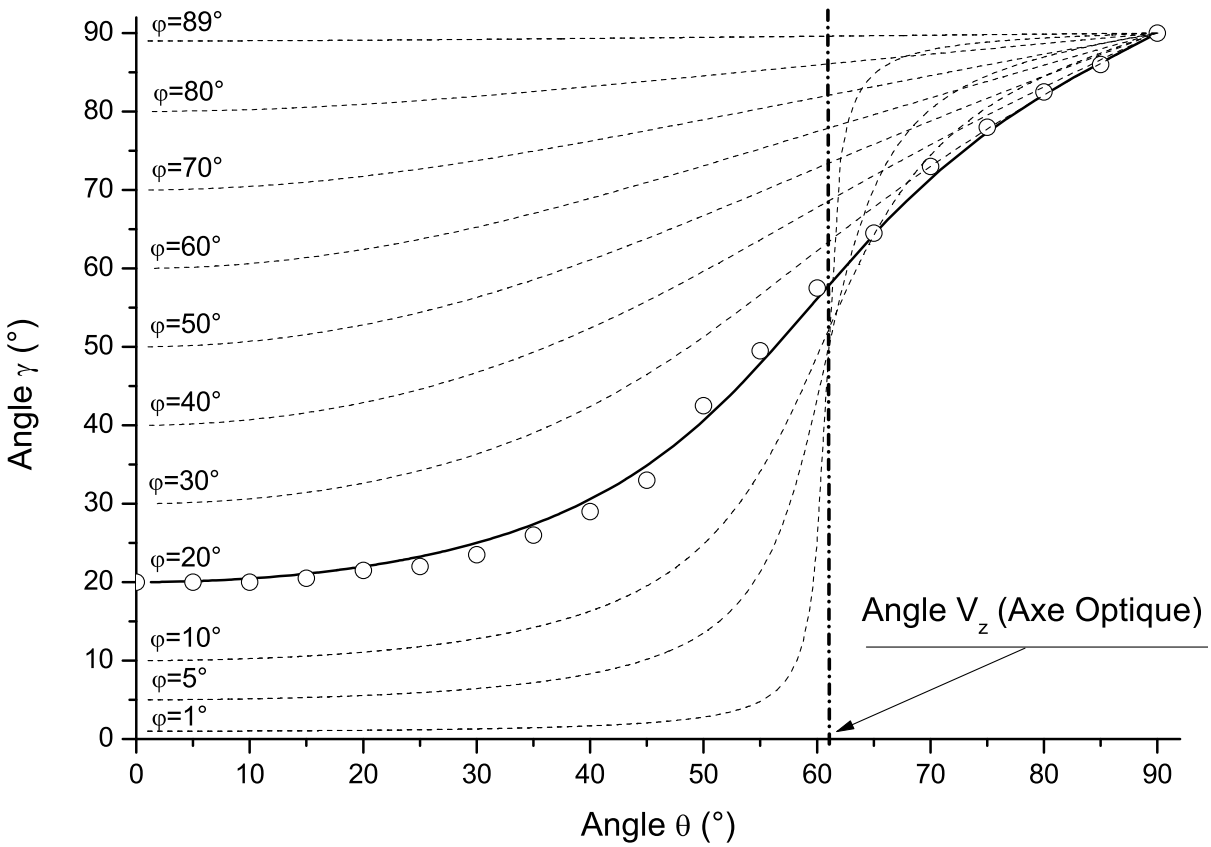


FIGURE 3.11 – *Rotation γ du mode de polarisation $\vec{e^{+}}$ de $YCOB : Nd$ pour différentes directions de propagation θ dans plusieurs plans ϕ. Les traits pointillés représentent le calcul de l'angle γ pour différentes coupes ϕ; le trait continu correspond au calcul à $\phi = 20^{\circ}$; les cercles correspondent aux mesures pour la coupe $\phi = 20^{\circ}$.*

La figure (3.11) montre l'exemple d'une prospection expérimentale du plan $\phi = 20^{\circ}$ comparés aux calculs théorique de l'angle γ. Il y a un très bon accord entre la prédiction et les mesures. Il apparaît notamment un basculement de la polarisation de part et d'autre de l'angle V_Z correspondant aux axes optiques. Ce basculement est d'autant plus "brusque" que le plan ϕ est proche de $\phi = 0^{\circ}$, correspondant au plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. Ceci est cohérent avec le fait que le basculement se produit de façon discontinue dans ce plan, ce qui correspond au phénomène de réfraction conique intérieure [9, 11].

3.1.3 Mesures et analyse

Le protocole décrit précédemment a été mis à profit pour la mesure de la distribution angulaire des coefficients d'absorption $\vec{\alpha^{+}}(\theta, \phi)$ et $\vec{\alpha^{-}}(\theta, \phi)$ relatifs aux deux modes de polarisation $\vec{e^{+}}(\theta, \phi)$ et $\vec{e^{-}}(\theta, \phi)$ respectivement. Pour chaque direction de propagation

$\vec{u}(\theta, \phi)$ considérée, les étapes de mesure sont alors les suivantes : injection d'un faisceau polarisé d'orientation quelconque ; visualisation de la modulation d'intensité par le biais d'un analyseur tournant ; optimisation de la polarisation incidente à l'aide d'une lame $\lambda/2$ afin que la modulation d'intensité ait une amplitude maximale de façon à déterminer l'orientation des deux modes propres de polarisation ; enfin mesure du coefficient de transmission correpondant à chacun des deux modes propres de polarisation. Cette procédure est renouvelée à chaque modification directionnelle.

Les quatre figures suivantes, de (3.12) à (3.15), donnent les distributions angulaires d'absorption $\vec{\alpha^+}(\theta)$ et $\vec{\alpha^-}(\theta)$ dans les plans $\phi = 20^\circ$, 40°, 60° et 90° mesurées dans la sphère de $YCOB : Nd$.

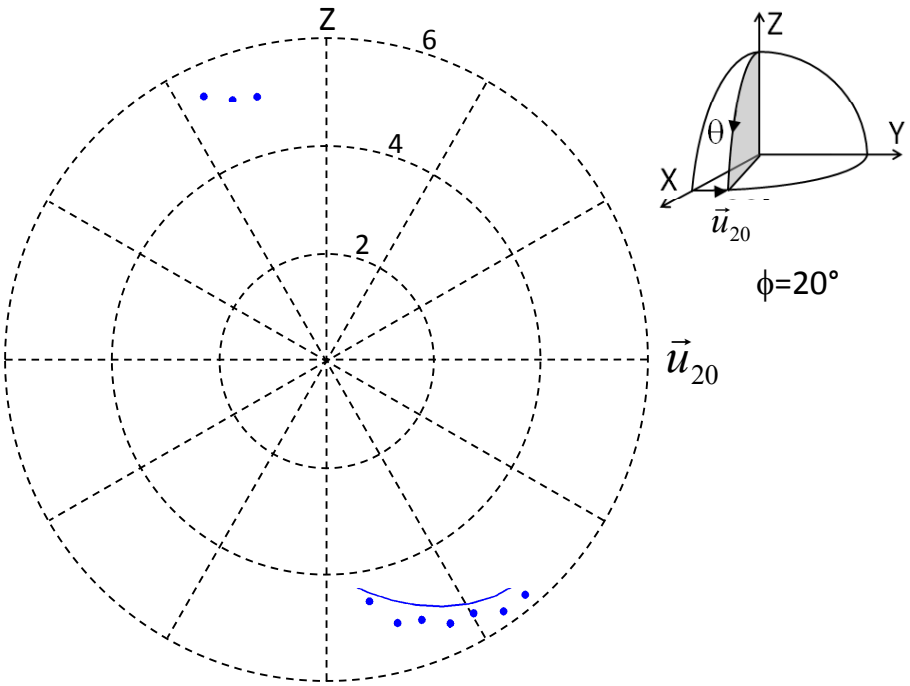


FIGURE 3.12 – *Mesure et calcul de la distribution angulaire du coefficient d'absorption* $\alpha^{\pm}(\theta)$ *dans le plan* $\phi = 20^{\circ}$ *de* $YCOB : Nd$ *à* $\lambda = 812\,nm$. $\vec{u}_{20}$ *est la direction à* $(\theta = 90^{\circ}, \phi = 20^{\circ})$. *Les cercles concentriques représentent l'échelle polaire pour* 2, 4 *et* 6 cm^{-1} *permettant ainsi de lire l'amplitude du coefficient d'absorption.*

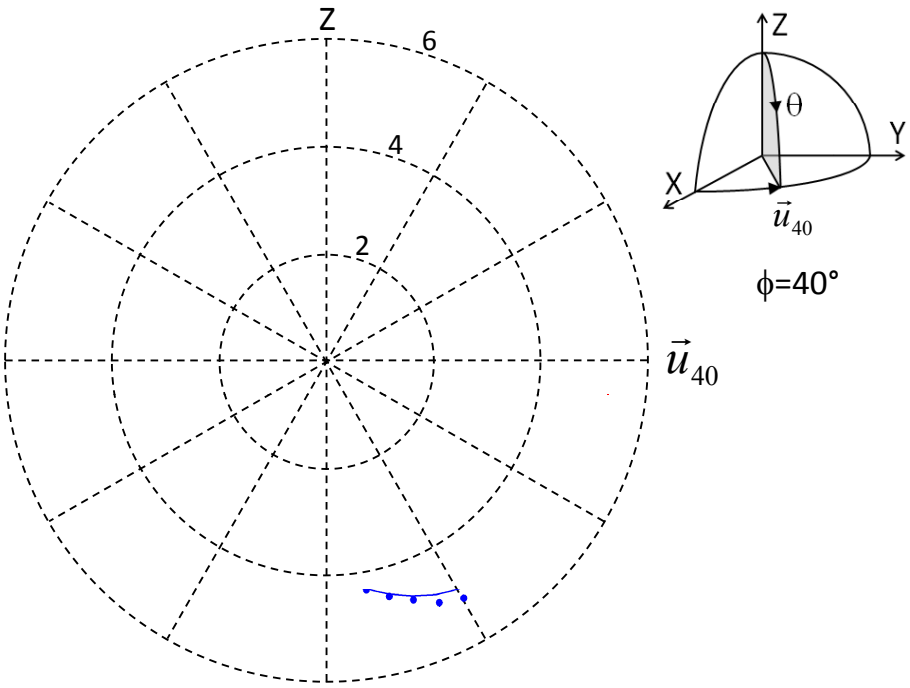


FIGURE 3.13 – *Mesure et calcul de la distribution angulaire du coefficient d'absorption* $\alpha^{\pm}(\theta)$ *dans le plan* $\phi = 40^{\circ}$ *de* $YCOB : Nd$ *à* $\lambda = 812\,nm$. $\vec{u}_{40}$ *est la direction à* $(\theta = 90^{\circ}, \phi = 40^{\circ})$. *Les cercles concentriques représentent l'échelle polaire pour* 2, 4 *et* 6 cm^{-1} *permettant ainsi de lire l'amplitude du coefficient d'absorption.*

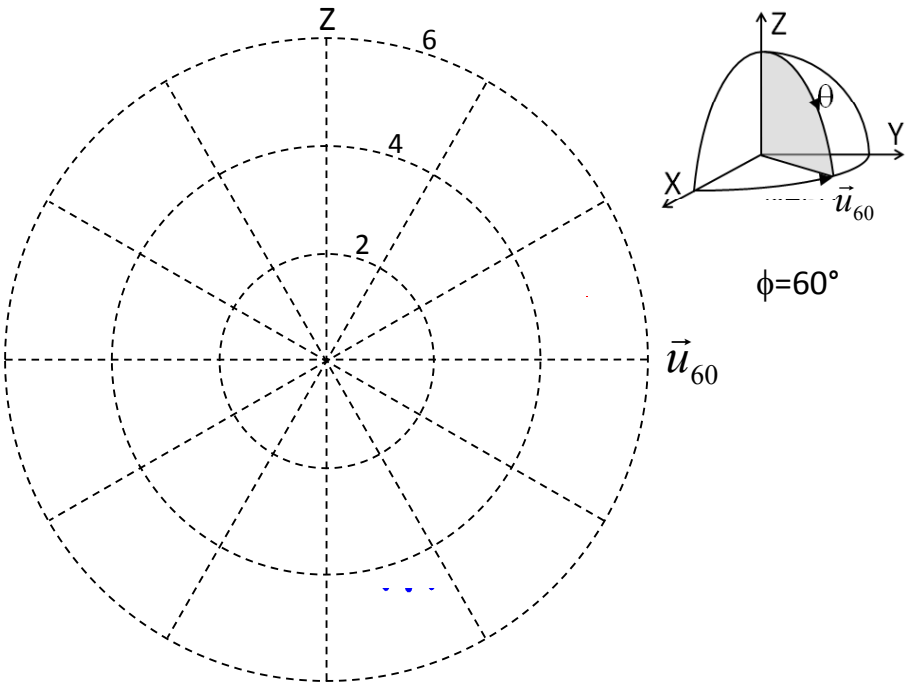


FIGURE 3.14 – *Mesure et calcul de la distribution angulaire du coefficient d'absorption* $\alpha^{\pm}(\theta)$ *dans le plan* $\phi = 60^{\circ}$ *de* $YCOB$: Nd *à* $\lambda = 812\,nm$. $\vec{u}_{60}$ *est la direction à* $(\theta = 90^{\circ}, \phi = 60^{\circ})$. *Les cercles concentriques représentent l'échelle polaire pour* 2, 4 *et* 6 cm^{-1} *permettant ainsi de lire l'amplitude du coefficient d'absorption.*

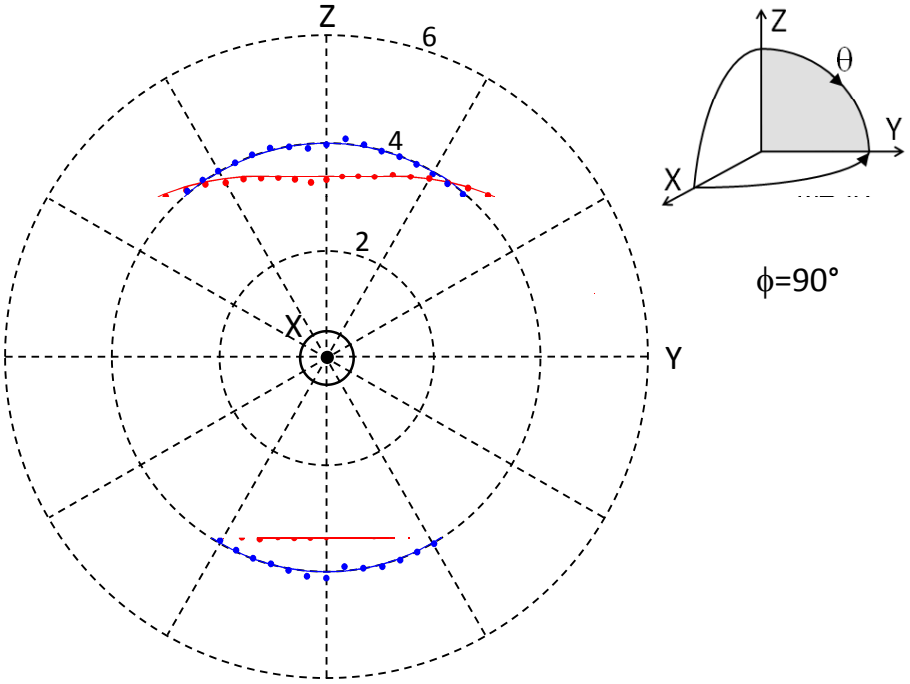


FIGURE 3.15 – *Mesure et calcul de la distribution angulaire du coefficient d'absorption* $\alpha^{\pm}(\theta)$ *dans le plan* $(\vec{Y}, \vec{Z})$, *soit* $\phi = 90^{\circ}$ *de* $YCOB$: Nd *à* $\lambda = 812\,nm$. *Les cercles concentriques représentent l'échelle polaire pour* 2, 4 *et* 6 cm^{-1} *permettant ainsi de lire l'amplitude du coefficient d'absorption.*

Les points rouges et bleus sont les points expérimentaux, et les lignes continues correspondent au calcul de $\alpha^{\pm}(\theta, \phi)$ décrit dans le paragraphe (2.5) du chapitre II. Ce calcul a été réalisé en extrayant les paramètres non nuls du tenseur de permittivité diélectrique relative imaginaire à partir de l'interpolation des mesures dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, puis en résolvant le déterminant du système d'équation (1.35) du chapitre I avec les données du tableau (2.1), et ce, pour toute direction $\vec{u}(\theta)$ dans le plan à angle ϕ constant considéré.

Les mesures ont toutes été réalisées de manière relative entre les deux modes de polarisation. Ensuite, une mesure d'absorption en absolu selon l'axe $\vec{Z}$, axe commun à chaque plan, a permis de déterminer le facteur de correction applicable à chaque plan.

Nous constatons que l'accord entre les mesures et le calcul à partir des données extraites du plan miroir $(\vec{X}, \vec{Z})$ sont excellentes. Nous sommes donc capables de remonter à toute valeur de $\alpha^{\pm}(\theta, \phi)$, uniquement à partir de la mesure de la distribution angulaire d'absorption dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$.

Les quatre plans relèvent tous des intersections entre les nappes α^{+} et α^{-}, conformément à la distribution angulaire théorique de la figure (3.1). Nous avons mesuré ces intersections avec un pas plus serré que les balayages précédents. Les mesures sont rassemblées figure (3.16).

Les mesures correspondantes sont comparées au calcul réalisé numériquement comme suit : parcours de tout l'espace (θ, ϕ) ; résolution du déterminant du système d'équation (1.35) pour chaque direction (θ, ϕ) afin de déterminer les solutions $n'^{+}(\theta, \phi)$ et $n'^{-}(\theta, \phi)$; et test de la condition $n'^{+}(\theta, \phi) = n'^{-}(\theta, \phi)$. Chaque fois que c'est le cas, les valeurs des angles (θ, ϕ) des directions correpondantes sont sauvegardées dans une liste et reportées sur la figure (3.16).

Outre un intérêt fondamental pour l'optique cristalline, ces directions particulières pourraient s'avérer intéressantes puiqu'elles ont la spécificité de présenter une totale indépendance de l'absorption vis à vis de la polarisation.

L'existence de directions de propagation hors du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ pour lesquelles $n'^{+}(\theta, \phi) = n'^{-}(\theta, \phi)$ n'est pas spécifique au cas des cristaux monocliniques. En considérant le système (1.35) dans le cas des classes orthorhombiques ou tricliniques, il est facile de voir que de telles directions existent aussi. Nous avons donc là une spécificité des cristaux biaxes.

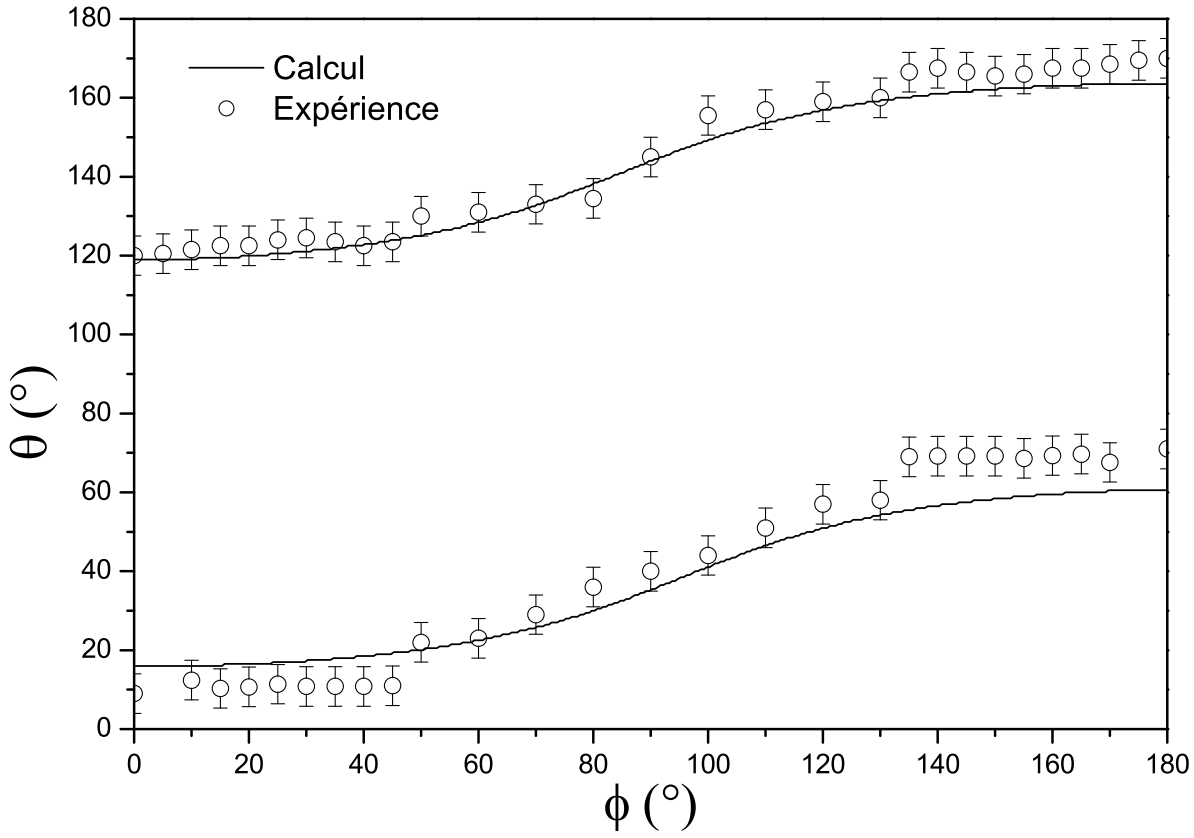


FIGURE 3.16 – *Cordonnées* (θ, ϕ) *des directions de propagation dans* $YCOB$: Nd *à* $812\,nm$ *pour lesquelles* $\alpha^+(\theta, \phi) = \alpha^-(\theta, \phi)$.

3.1.4 Définition d'une méthode simplifiée pour l'étude de la distribution angulaire d'absorption des cristaux monocliniques

L'utilisation de la sphère pour l'étude de l'absorption a permis de mettre en évidence un grand nombre de résultats tout à fait originaux : rotation du repère d'absorption par rapport au repère diélectrique, dépendance de cette rotation avec la transition électronique, et *continuum* de directions insensibles à la polarisation.

Mais le protocole expérimental est lourd, de sorte que nous avons travaillé à une procédure plus simple qui serait plus adaptée pour une caractérisation standard et "routinière"de nouveaux matériaux.

Notre idée est de déterminer le nombre minimum de points de mesures d'absorption dans le matériau biaxe considéré pour décrire la distribution angulaire totale de son absorption. Si ce cristal est orthorhombique, il suffit de réaliser des mesures selon deux des trois axes du repère cristallographique, reprère qui coïncide avec le repère diélectrique et

le repère d'absorption. Ainsi dans ce cas, il n'y a aucune difficulté particulière. Par contre, dans le cas d'un cristal monoclinique, nous avons vu qu'il était nécessaire de connaître les paramètres n'_{xx}, n'_{yy}, n'_{zz} et n'_{xz} pour décrire l'ensemble de la distribution angulaire de l'aborption. A l'aide de la sphère, nous avons mesuré la distribution angulaire de l'absorption en considérant 72 directions dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, ce qui nous avait permis de déterminer tous ces paramètres.

L'idée maintenant est de voir s'il est possible d'avoir à considérer moins de directions, de sorte qu'un échantillon parallélépipédique par exemple puisse être utilisé. L'orientation de ce parallélépipède doit être judicieusement choisie. Pour cela, il est nécessaire de s'intéresser aux équations (1.38) du chapitre I qui décrivent la forme bilobaire et la forme circulaire de l'absorption dans le plan principal $(\vec{X}, \vec{Z})$. Nous notons alors que, selon les directions $\vec{X}$ et $\vec{Z}$, nous avons directement accès au valeurs n'_{xx}, n'_{zz} et n'_{yy} ; cependant le terme non diagonal n'_{xz} n'est pas sollicité. Ainsi, dans le cas d'un cristal monoclinique, il est exclu d'effectuer des mesures d'absorption à l'aide d'un parallélépipède usiné selon les directions du repère diélectrique $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$.

Par exemple, nous avons considéré les trois normales aux faces d'un parallélépipède de $YCOB : Nd$ usiné selon les axes cristallographiques $\vec{b}$ et $\vec{c}$, et selon $\vec{a*} = \vec{b} \wedge \vec{c}$ comme schématisé figure (3.17).

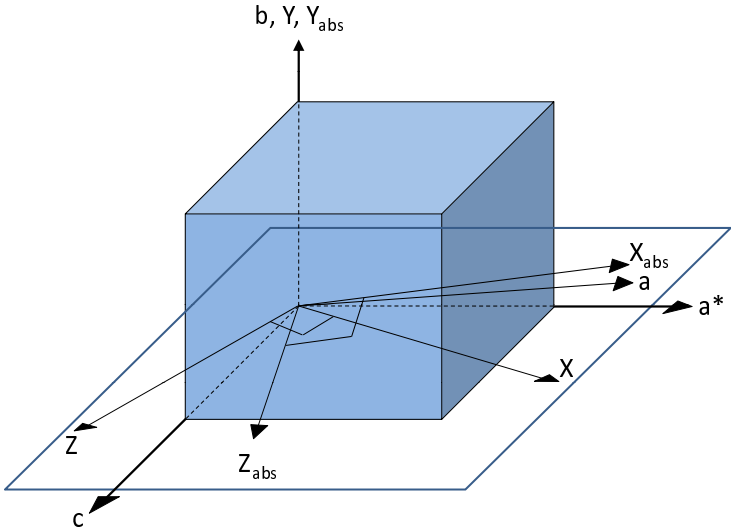
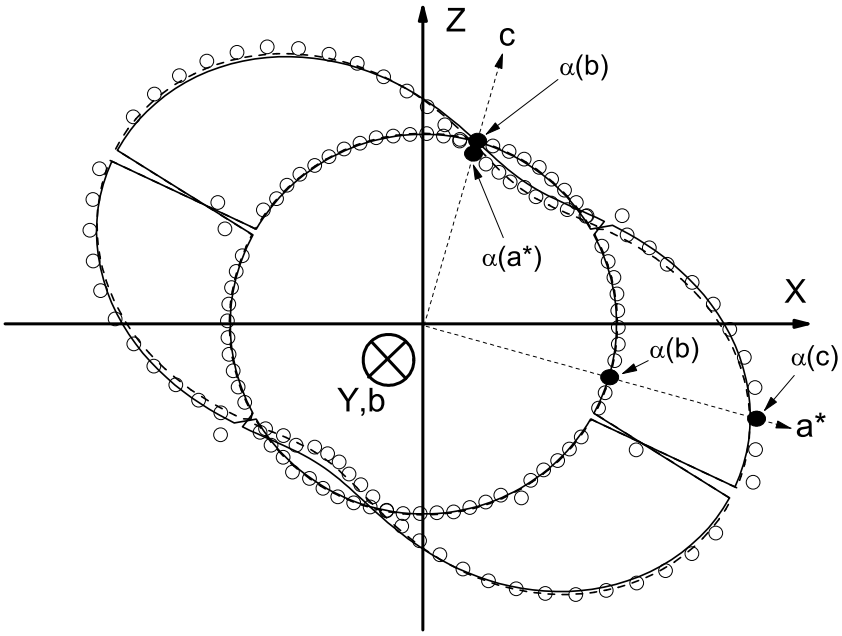
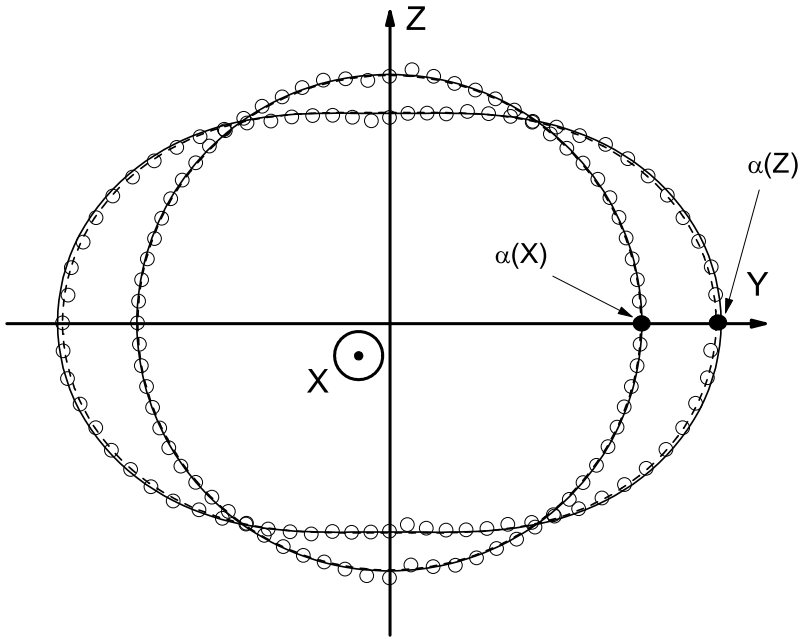


FIGURE 3.17 – *Parallélépipède de $YCOB : Nd$ orienté pour l'étude simplifiée de la distribution angulaire d'absorption. $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$ est le repère cristallographique ; $\vec{a*} = \vec{b} \wedge \vec{c}$; $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$ est le repère diélectrique ; $(\vec{X}_{abs}, \vec{Y}_{abs}, \vec{Z}_{abs})$ est le repère d'absorption, qui n'est pas connu a priori.*

Afin de valider notre méthode, nous n'avons pas utilisé un parallélépipède, mais les valeurs des coefficients d'absorption mesurées sur sphère dans les directions correspondantes aux normales des faces du parallélépipède qu'il aurait fallu usiner. Ces directions sont repérées par les cercles noirs de la figure (3.18).



(a)



(b)

FIGURE 3.18 – *Distribution angulaire de l'absorption à* 812 *nm dans les plans* $(\vec{X}, \vec{Z})$ *(a) et* $(\vec{Y}, \vec{Z})$ *(b) de* $YCOB : Nd$. *Les cercles sont les points expérimentaux ; ceux en noirs correspondent aux directions choisies pour la méthode simplifiée. les lignes en trait plein correspondent au calcul mené dans le cadre de la méthode sur sphère et ceux en pointillés dans le cadre la méthode simplifiée.*

L'axe $\vec{b}$ est colinéaire à l'axe du repère diélectrique $\vec{Y}$, et donne : $\alpha(\vec{X}) = 3,93 \pm 0,02\,cm^{-1}$ et $\alpha(\vec{Z}) = 5,11 \pm 0,02\,cm^{-1}$; en utilisant alors l'expression (1.29), il vient : $n'_{xx} = 2,54.10^{-5} \pm 0,01.10^{-5}$ et $n'_{zz} = 3,3.10^{-5} \pm 0,01.10^{-5}$.

L'axe $\vec{c}$ qui fait un angle $\theta_{\vec{c}}$ avec l'axe $\vec{Z}$ conduit à : $\alpha(\vec{Y}) = \alpha_{cercle}(\theta = \theta_{\vec{c}}) = 3,33 \pm 0,02\,cm^{-1}$ et $\alpha(\vec{a*}) = \alpha_{bilobe}(\theta = \theta_{\vec{c}}) = 3,24 \pm 0,02\,cm^{-1}$, ce qui conduit à : $n'_{yy}(\theta = \theta_{\vec{c}}) = 2,15.10^{-5} \pm 0,01.10^{-5}$ et $n'_{bilobe}(\theta = \theta_{\vec{c}}) = 2,094.10^{-5} \pm 0,01.10^{-5}$ en utilisant (1.29).

La troisième direction $\vec{a*}$ conduit à : $\alpha(\vec{Y}) = \alpha_{cercle}(\theta = \theta_{\vec{c}} + \pi/2) = 3,36 \pm 0,02\,cm^{-1}$ et $\alpha(\vec{c}) = \alpha_{bilobe}(\theta = \theta_{\vec{c}} + \pi/2) = 5,9 \pm 0,02\,cm^{-1}$; soit $n'_{yy}(\theta = \theta_{\vec{c}} + \pi/2) = 2,17.10^{-5} \pm 0,01.10^{-5}$ et $n'_{bilobe}(\theta = \theta_{\vec{c}} + \pi/2) = 3,81.10^{-5} \pm 0,01.10^{-5}$.

Les mesures selon les axes $\vec{b}$ et $\vec{c}$ conduisent donc à la détermination des paramètres n'_{xx}, n'_{zz} et n'_{yy}. Il reste ensuite à déterminer le terme non diagonal n'_{xz}. Cette donnée peut être obtenue conjointement à celle de l'orientation du repère d'absorption, en considérant les valeurs de $n'_{bilobe}(\theta = \theta_{\vec{c}})$ et $n'_{bilobe}(\theta = \theta_{\vec{c}} + \pi/2)$, soit compte tenu de (1.38) du chapitre I :

$$\begin{cases} n'_{bilobe}(\theta = \theta_{\vec{c}}) = 2,094.10^{-5} = \dfrac{\frac{n'_{xx}}{n_x^3} cos^2(\theta_{\vec{c}}) + \frac{n'_{zz}}{n_z^3} sin^2(\theta_{\vec{c}}) - \frac{n'_{xz}(n_x+n_z)}{n_x^2 n_z^2} cos(\theta_{\vec{c}}) sin(\theta_{\vec{c}})}{\left(\frac{cos^2(\theta_{\vec{c}})}{n_x^2} + \frac{sin^2(\theta_{\vec{c}})}{n_z^2}\right)^{3/2}} \\ n'_{bilobe}(\theta = \theta_{\vec{c}} + \pi/2) = 3,81.10^{-5} = \dfrac{\frac{n'_{xx}}{n_x^3} sin^2(\theta_{\vec{c}}) + \frac{n'_{zz}}{n_z^3} cos^2(\theta_{\vec{c}}) + \frac{n'_{xz}(n_x+n_z)}{n_x^2 n_z^2} sin(\theta_{\vec{c}}) cos(\theta_{\vec{c}})}{\left(\frac{sin^2(\theta_{\vec{c}})}{n_x^2} + \frac{cos^2(\theta_{\vec{c}})}{n_z^2}\right)^{3/2}} \end{cases} \tag{3.10}$$

où n_x et n_z sont les valeurs des indices de réfraction principaux, considérés comme connus ; n'_{xx}, n'_{zz} sont les indices imaginaires déterminées par la mesure selon les direction $\vec{b}$ et $\vec{c}$.

La résolution du système (3.10) conduit alors à : $n'_{xz} = 0,97.10^{-5} \pm 0.05.10^{-5}$ et $\theta_{\vec{c}} = 17^\circ \pm 2^\circ$.

Les valeurs des différents paramètres d'interpolation sont rassemblés dans le tableau (3.1). Ces valeurs sont comparées à celles extrapolées à partir des 72 directions réparties sur les 360° du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$.

Coefficient tensoriels	Interpolation1 : 72 directions dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$	Interpolation2 : 3 directions $\vec{a*}$, $\vec{b}$ et $\vec{c}$	$\frac{\Delta(n',\alpha)}{(n',\alpha)}$ en %
n'_{xx} $(\times 10^{-5})$	$2,55 \pm 0,03$	$2,54 \pm 0,01$	$0,4$
α_{xx} en (cm^{-1})	$3,946 \pm 0,05$	$3,93 \pm 0,02$	
n'_{yy} $(\times 10^{-5})$	$2,15 \pm 0,05$	$2,16 \pm 0,01$	$0,45$
α_{yy} en (cm^{-1})	$3,327 \pm 0,07$	$3,34 \pm 0,02$	
n'_{zz} $(\times 10^{-5})$	$3,35 \pm 0,03$	$3,3 \pm 0,01$	$1,5$
α_{zz} en (cm^{-1})	$5,184 \pm 0,05$	$5,11 \pm 0,02$	
n'_{xz} $(\times 10^{-5})$	$0,9 \pm 0,05$	$0,97 \pm 0,05$	$7,2$
α_{xz} en (cm^{-1})	$1,393 \pm 0,08$	$1,5 \pm 0,06$	
θ_{abs} (°)	31 ± 2	$34,3 \pm 2$	$9,6$

TABLE 3.1 – *Coefficients tensoriels n'_{ij} et α_{ij} relatifs à la partie imagaginaire de la permittivité diélectrique de $YCOB : Nd$ à $812\,nm$.*

Les valeurs comparées dans le tableau (3.1) sont proches. Les figures (3.18)(a) et (b) permettent la comparaison entre les deux interpolations de la distribution angulaire dans les plans menés à partir des deux jeux de paramètres du tableau (3.1) : l'accord est excellent. La figure (3.19) présente les angles de coordonnées sphériques (θ, ϕ) des directions telles que $\alpha^+(\theta, \phi) = \alpha^-(\theta, \phi)$ calculées à partir des deux jeux de données du tableau (3.1). Là encore, les courbes correspondantes sont très proches.

Nous pouvons donc conclure que les deux interpolations mènent à des résultats similaires. Cette possiblité métrologique se révèle être un avantage expérimental certain pour la caractérisation de tout matériau monoclinique. En effet, l'orientation aux rayons X fixe aisément les directions cristallographiques, et la découpe et le polissage d'un parallélépipède est plus rapide et moins délicat que dans le cas d'une sphère.

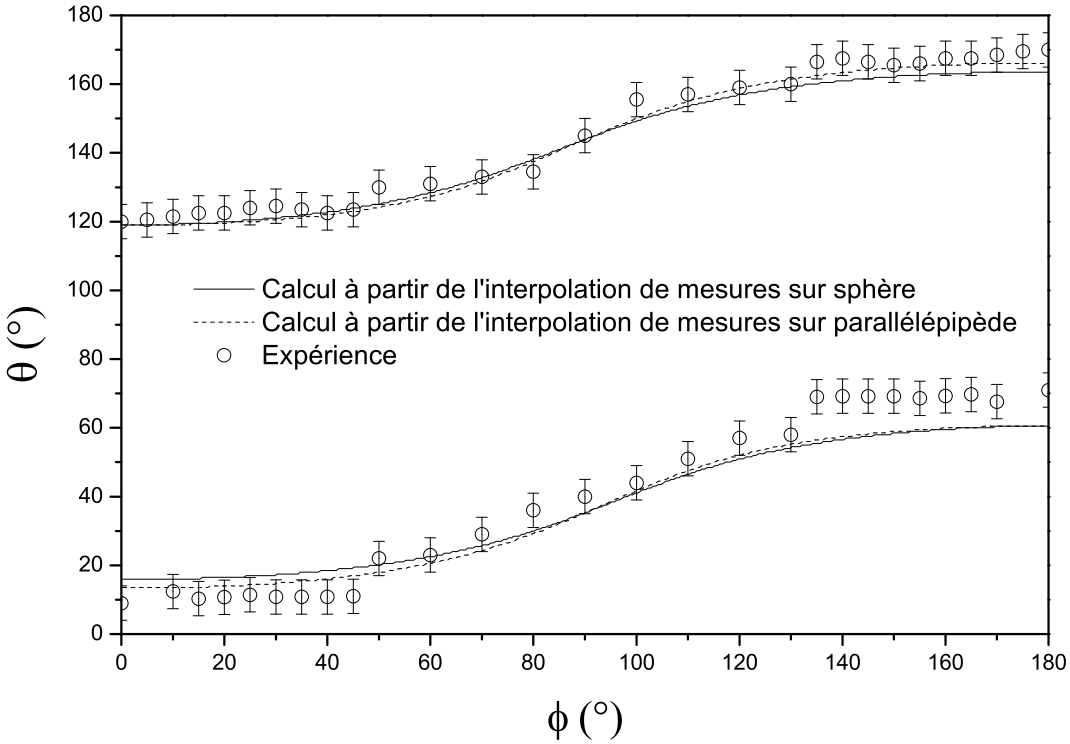


FIGURE 3.19 – *Cordonnées* (θ, ϕ) *des directions de propagation dans* $YCOB : Nd$ *telles que* $\alpha^+(\theta, \phi) = \alpha^-(\theta, \phi)$.

3.1.5 Conclusion

Cette étude est à notre connaissance la première détermination expérimentale de l'entière distribution angulaire de l'absorption d'un cristal biaxe. La topologie obtenue est décrite par deux nappes relatives aux deux modes de polarisation, nappes qui sont en contact selon des lignes continues définissant ainsi un *continuum* de directions pour lesquelles l'absorption ne dépend pas de la polarisation. Ces directions particulières pourraient trouver un intérêt dans le cadre de la gestion de la thermique dans les cristaux biaxes.

L'approche simplifiée nous ouvre des perspectives pour l'étude d'autres monocliniques comme $KLu(WO_4)_2 : Yb$, qui appartient à la classe $2/m$ [27,28] ou $KGd(PO_3)_4 : Nd$ qui cristallise dans la classe 2 [29, 30]. $YCOB : Nd$ appartenant à la classe m, nous aurons ainsi validé la méthode pour les trois classes de symétrie d'orientation du système cristallin monoclinique.

Concernant les tricliniques, tous les termes du tenseur de la permittivité diélectrique sont non nuls, de sorte que des développements méthodologiques sont encore à prévoir

pour déterminer expérimentalement et par le calcul ces termes non nuls. La sphère restera probablement la seule géométrie qui conviendra.

Chapitre 4

Mesures directes des propriétés laser et d'autodoublage de fréquence de $YCOB : Nd$

4.1 Introduction

Les sources laser tout solide qui émettent dans le visible utilisent classiquement un cristal laser dopé par des ions luminescents de lanthanides, comme le Néodyme (Nd^{3+}), l'Erbium (Er^{3+}) ou l'Ytterbium (Yb^{3+}). Il est souvent associé à un cristal à propriétés optiques non linéaires assurant par exemple la génération de second harmonique (SHG) du laser. Dans ces conditions un faisceau à la pulsation double de celle de l'émission laser est généré.

Mais il existe aussi des cristaux dits "autodoubleurs" qui permettent à eux seuls la SHG de leur propre fluorescence [31–33]. L'intérêt de tels cristaux est qu'ils permettent de réaliser des sources laser plus compactes, et par conséquent plus robustes. Les cristaux autodoubleurs les plus répandus sont des cristaux anisotropes uniaxes, comme par exemple $GdAlO(BO_3)_4 : Nd^{3+}$ ($GAB : Nd$), $YAl_3(BO_3)_4 : Nd^{3+}$ ($YAB : Nd$), $YAB : Yb$, ou des cristaux anisotropes biaxes comme le monoclinique YCOB :Nd [32,34,35].

L'évaluation des potentialités d'un cristal autodoubleur repose sur une caractérisation très précise de ses propriétés d'absorption, de fluorescence et de SHG, cette dernière propriété dépendant directement des indices de réfraction en ce qui concerne l'accord

de phase. Les résultats présentés dans les chapitres 1 à 3 pour $YCOB : Nd$ laissent déjà imaginer à quel point la caractérisation de cristaux monocliniques autodoubleurs est extrêmement compliquée, du fait de l'existence d'un repère propre spécifique à chacune des trois propriétés citées précédemment [14, 17].

Nous avons voulu être pragmatiques en étudiant directement la propriété d'autodoublage du cristal monoclinique, sur la base d'un échantillon taillé sous la forme d'une sphère et inséré entre deux miroirs plans. Pompée à une longueur d'onde qui correspond à son maximum d'absorption, la sphère devient alors le milieu à gain d'une cavité laser. Cette sphère a été préalablement collée après orientation aux rayons X sur une tête goniométrique et placée au centre d'un dispositif goniométrique, ce qui permet à l'expérimentateur de faire tourner la sphère sur elle même de façon à propager le rayonnement dans n'importe quelle direction du cristal. Une émission laser est attendue quand la configuration géométrique de la cavité est stable. Dans la première partie de ce chapitre, nous présentons l'étude théorique des configurations géométriques stables d'un "laser sphérique". Nous décrivons ensuite sa réalisation expérimentale avec la sphère de $YCOB : Nd$, et donnons des mesures de ses propriétés. Dans un deuxième temps, après avoir rappelé les caractéritisques essentielles de la propriété optique non linéaire de génération de second harmonique, nous présentons les premières mesures directes d'un ensemble de directions d'autodoublage et des rendements de conversion associés dans la sphère du cristal autodoubleur $YCOB : Nd$ [36]. La publication relative à ces travaux est en annexe B [36].

4.2 Etude théorique d'une cavité avec un milieu à gain sphérique

4.2.1 Géométrie de la cavité

La cavité est constituée d'une sphère de rayon R placée entre deux miroirs plans, comme illustré dans la figure (4.1). La distance entre le miroir d'entrée de la cavité, M_1, et la sphère est d_1 ; c'est par ce miroir que le faisceau qui assure le pompage de la sphère pénètre dans la cavité. La distance entre le miroir de sortie M_2 et la sphère est d_2. C'est par ce miroir que le faisceau laser sort de la cavité. La cavité a donc pour longueur

géométrique totale : $L = d_1 + d_2 + 2R$.

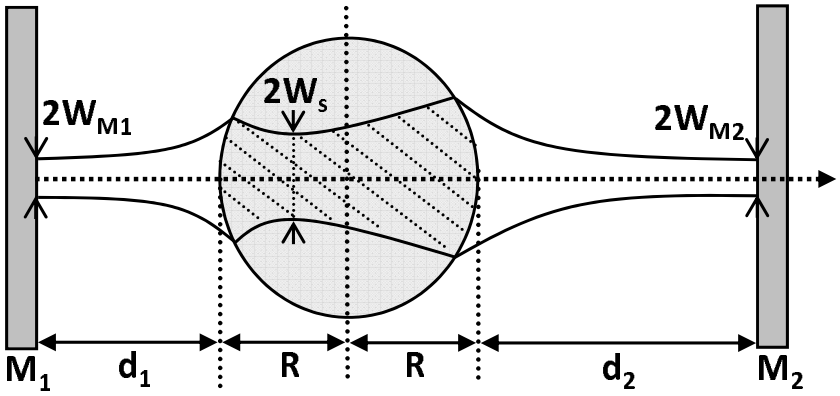


FIGURE 4.1 – *Schéma de la géométrie de la "cavité sphérique". Le milieu à gain est sphérique, et les deux miroirs M_1 et M_2 sont plans. W_s est à la distance z du centre de la sphère.*

Nous utilisons la même sphère de $YCOB : Nd$ que celle qui a servi aux études décrites dans les chapitres II et III. Nous avons fait le choix de ne pas recycler le faisceau de pompage dans la cavité, de sorte que les chemins optiques peuvent dépendre uniquement des trois indices de réfraction principaux de $YCOB : Nd$, soit $n_x = 1,6377$, $n_y = 1,6904$ et $n_z = 1,7081$ à $1061\,nm$, qui est la longueur d'onde d'émission laser [17].

4.2.2 Les éléments optiques de la cavité et leur modélisation

La cavité a trois éléments optiques : deux miroirs plans et la sphère. Cette dernière est équivalente à une lentille boule de distance focale $f_{sphere} = Ra^{-1}$, où $a = 2(n-1)n^{-1}$, avec n représentant l'indice de réfraction considéré. A titre d'exemple, nous décrirons la cavité uniquement pour $n = n_y = 1,6904$. Notons que les plans principaux d'une lentille boule sont confondus et situés au centre de la sphère, et que ses foyers sont situés symétriquement de part et d'autre de ce centre, à la distance f_{sphere}. Pour $YCOB : Nd$, nous obtenons $a = 0,817$ et $f_{sphere} = 4,55\,mm$. La sphère de $3,72\,mm$ de rayon est donc équivalente à une lentille convergente et ses foyers sont situés à l'extérieur. Notons que dans nos études, aucun faisceau laser n'a une énergie telle qu'il puisse induire une lentille thermique dans la sphère de $YCOB : Nd$, comme cela est classiquement observé dans les lasers $YAG : Nd$ de puissance [37].

Chaque élément optique de la cavité peut être décrit dans l'approximation paraxiale

par une matrice de transfert, notée $M = \left[\begin{smallmatrix} A & B \\ C & D \end{smallmatrix}\right]$, qui s'écrit $M_{miroir} = \left[\begin{smallmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{smallmatrix}\right]$ pour un miroir plan, et $M_{boule} = \left[\begin{smallmatrix} 1-a & 2R/n \\ -a/R & 1-a \end{smallmatrix}\right]$ pour la lentille boule [38].

4.2.3 Domaines de stabilité

En "dépliant" la cavité le long de son axe longitudinal, les éléments optiques rencontrés successivement par le faisceau qui s'y propage, forment un motif périodique de matrice $M_{motif} = \left[\begin{smallmatrix} A & B \\ C & D \end{smallmatrix}\right]$. Une cavité laser est stable, c'est à dire susceptible de produire une émission laser, si la trace de la matrice M_{motif} du motif choisi, soit $A+D$, verifie l'inégalité suivante : $-1 < \frac{1}{2}(A+D) < 1$ [38].

Bien que le choix du motif soit infini et multiplie les formes possibles de la matrice de transfert associée M_{motif}, sa trace et l'inégalité précédente restent inchangées. En calculant la matrice ABCD du motif délimité par les deux miroirs plans M_1 et M_2 de la cavité représentée figure (4.1), il vient les expressions suivantes pour les paramètres A et D [36] :

$$A = D = (1-a^2) - \frac{2a(1-a)}{R}(d_1+d_2) + \frac{2a^2}{R^2}(d_1 d_2) - \frac{2a}{n} \tag{4.1}$$

Dans ces conditions, l'inégalité $-1 < \frac{1}{2}(A+D) < 1$ s'écrit encore :

$$0 < g_1 g_2 < 1 \tag{4.2}$$

avec $g_i = a\frac{d_i}{R} + a - 1$, où $\quad i = 1, 2$

L'expression (4.2) a pour solutions tous les couples de valeurs des distances (d_1, d_2) possibles permettant à la cavité de la figure (4.1) d'être stable. Nous les avons reportées sur la figure (4.2) dans le cas de la sphère $YCOB : Nd$, dans le quart positif de l'espace (d_1, d_2) qui correspond aux portions physiquement accessibles expérimentalement. La figure (4.2) représente l'évolution de la distance d_2 en fonction de la distance d_1, et ce uniquement lorsque la cavité est stable : c'est le domaine de stabilité qui est représenté figure (4.1) en hachuré et délimité par des lignes continues. Il est complètement symétrique en fonction de d_1 ou d_2, et peut être séparé en deux domaines suivant la valeur des distances d_1 et d_2 par rapport à une distance caractéristique $d_0 = R(1-a)a^{-1}$. Le premier domaine, appelé

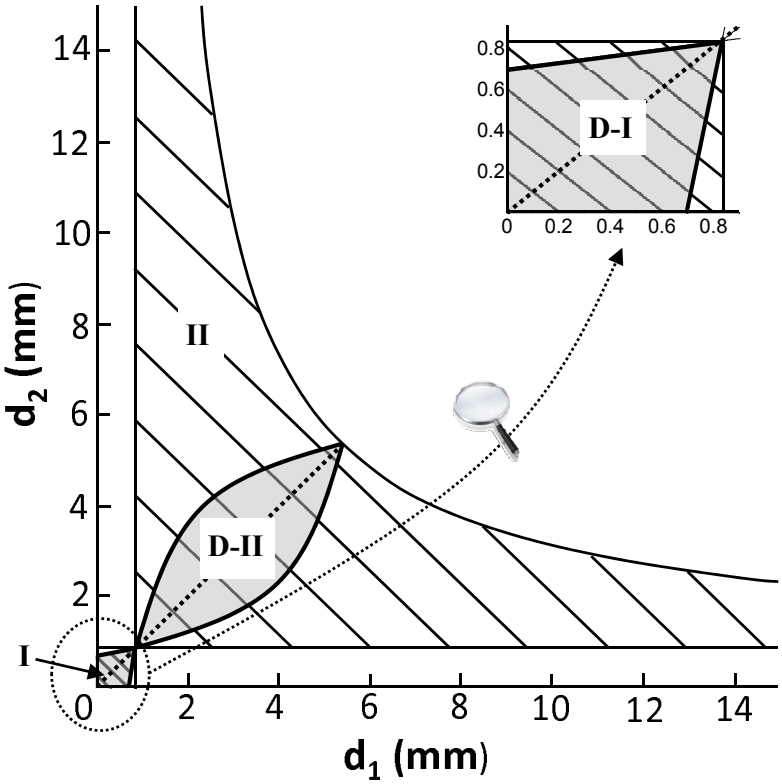


FIGURE 4.2 – *Domaines de stabilité d'une cavité laser avec $YCOB$: Nd comme milieu à gain sphérique : domaines de stabilité I et II en hachuré délimités par des lignes continues ; sous domaines D-I et D-II délimités par les zones grisées. Les lignes en pointillés correspondent aux configurations d'une cavité symétrique avec $d = d_1 = d_2$ [36].*

I, correspond à $0 < d_i < d_0$ avec $i = 1$ ou 2 ; le second domaine, appelé II, est défini par les inégalités $d_0 < d_1$ et $d_0 < d_2 < d_0 + (Ra^{-1})^2(d_1 - d_0)^{-1}$. Comme les dimensions du domaine I s'avèrent bien plus petites que celles du domaine II, un agrandissement en encart de la figure (4.2) permet de détailler sa structure. Les distances d_1, d_2 et d_0 étant reliées au rayon R de la sphère, leurs dimensions sont milimétriques pour la cavité shérique $YCOB : Nd$. En particulier, la distance d_0 qui marque la frontière entre les domaines I et II est égale à $0,833\,mm$.

4.2.4 Structure du faisceau Gaussien intracavité

De tous les faisceaux laser pouvant être générés à partir des configurations stables de la cavité de la figure (4.1), nous nous intéréssons uniquement au faisceau fondamental Gaussien TEM_{00}, dont nous avons calculé les caractéristiques dans l'approximation paraxiale à partir du formalisme des matrices $ABCD$ [38].

Nos calculs ont montré que le faisceau gaussien a toujours deux cols, localisés sur les deux miroirs plan M_1 et M_2 (voir figure (4.1)). Nous avons obtenu pour les rayons correspondants, notés respectivement W_{M_1} et W_{M_2}, l'expression analytique suivante :

$$W_{M_i} = \left[\frac{\lambda_f B_i}{\pi\sqrt{(1-A^2)}}\right]^{1/2} \tag{4.3}$$

avec

$$B_i = \frac{1}{R}\left[4(1-a)\left[\frac{R^2}{n} - ad_1d_2 + \frac{R(1-a)}{2}(d_1+d_2)\right] + 2a\left(\frac{ad_1d_2}{R} - \frac{2R}{n}\right)d_i - 2a(1-a)d_i^2\right]$$

où $i = 1$ ou 2, A est donné par l'expression (4.1), et λ_f est la longueur d'onde de fluorescence de la sphère.

Les cols, de rayon W_{M_1} et W_{M_2}, existent pour toutes les configurations du domaine de stabilité de la cavité du laser.

Nos calculs ont montré qu'un troisième col de faisceau est situé à l'intérieur de la sphère, à la distance z de son centre, pour des valeurs (d_1, d_2) des domaines I et II restreintes aux deux sous domaines $D - I$ et $D - II$ qui sont délimités figure (4.2) par des

zones grisées. Son rayon $W_s(z)$ dépend de la distance z, il s'écrit [36] :

$$W_s(z) = \frac{W_{M_i} R}{\sqrt{[(1-n)d_i + R]^2 + \left[(1-n)\left(\frac{\pi W_{M_i}^2}{\lambda_f}\right)\right]^2}} \tag{4.4}$$

où $i = 1$ ou 2, et W_{M_i} défini par (4.3).

4.2.5 Cavité symétrique

Nous nous sommes intéressés à une configuration de cavité telle que la sphère soit à égale distance $d = d_1 = d_2$ des deux miroirs plans. Le domaine de stabilité correspondant est représenté figure (4.2) par la bissectrice tracée en traits pointillés, qui sépare en deux parties égales les deux sous domaines $D - I$ et $D - II$. Nos calculs montrent que la cavité symétrique est stable si la distance d entre la sphère et les miroirs M_1 ou M_2 vérifie l'inégalité suivante : $0 < d < d_0 + Ra^{-1}$. La longueur de la cavité sphérique symétrique devient alors : $L(d) = 2(R + d)$, et se restreint à $2R < L(d) < 4Ra^{-1}$ pour la cavité stable. Dans le cas de la sphère de $YCOB : Nd$, ces paramètres ont pour valeur : $d_0 = 0,833\,mm$, $0 < d < 5,39\,mm$ et $0 < L < 18,22\,mm$, ce qui est parfaitemnt réalisable expérimentalement.

Dans une cavité symétrique stable, les conditions de propagation de l'onde fondamentale gaussienne sont entièrement symétriques : le rayon des deux cols de faisceaux situés sur les miroirs plans est le même, soit $W_{M_1} = W_{M_2} = W_M$, et il existe toujours un troisième col de faisceau de rayon W_s, situé au centre de la sphère (à $z = 0$). La figure (4.3) représente les valeurs numériques de W_M et W_s en fonction de la distance d ; elles ont été calculées à partir des expressions (4.3) et (4.4), après avoir considéré que $d_1 = d_2 = d$ et $z = 0$ [36].

Dans cette cavité, la propagation dans la sphère se fait parallèlement à son diamètre pour toutes les orientations du cristal. De plus, la longueur de Rayleigh, $Z_R = n\pi W_S^2 \lambda_f^{-1}$, est supérieure au rayon de la sphère R pour toutes les valeurs de la distance d du domaine de stabilité.

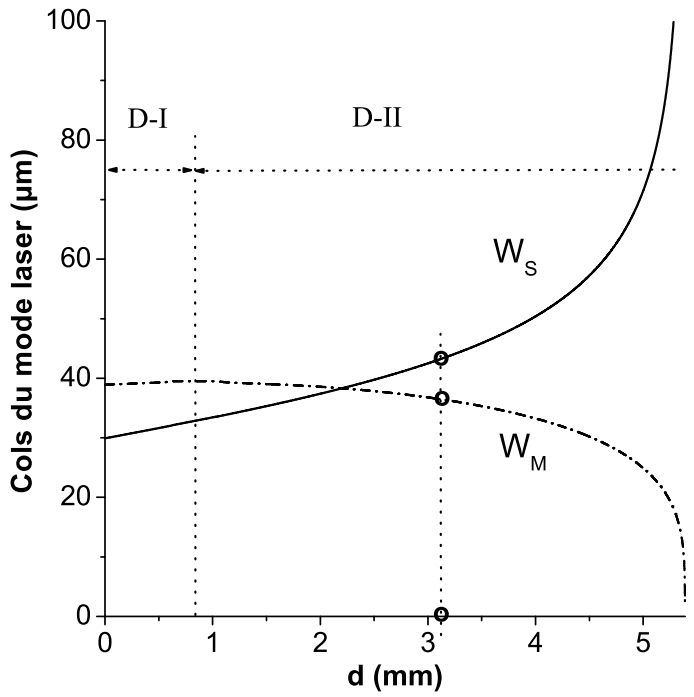


FIGURE 4.3 – *Rayons W_S et W_M des cols du faisceau laser Gaussien en fonction de la distance d de la cavité symétrique. Les cercles indiquent les valeurs retenues pour la cavité laser expérimentale.*

4.3 Mesure de la propriété laser

4.3.1 Conditions de pompage

Nous avons choisi de pomper la sphère de $YCOB : Nd$ à $812\,nm$, longueur d'onde qui correspond à la bande d'absorption de plus forte section efficace, comme vu sur le spectre (2.4) du chapitre II. Ce faisceau est émis par l'Oscillateur Paramétrique Optique (OPO) utilisé dans les chapitres II et III. Son principe de fonctionnement est décrit au paragraphe (2.4.1.2) du chapitre II. Nous rappelons que son taux de répétition est de $10\,Hz$, et sa durée d'impulsion (FWHM) de $5\,ns$. L'OPO peut délivrer une énergie de $3\,mJ$ à $812\,nm$.

Nous pouvons ajuster continuement la polarisation du faisceau à $812\,nm$ par le biais d'une lame demi-onde, de manière à ce que la polarisation corresponde au maximum d'absorption. A ce propos, le lecteur peut se reporter aux mesures de distributions angulaires décrites au chapitre III.

Le profil spatial transverse de notre OPO est de mauvaise qualité, comme le montre l'image de la figure (4.4) enregistrée à l'aide d'une caméra CCD bidimensionnelle SPI-

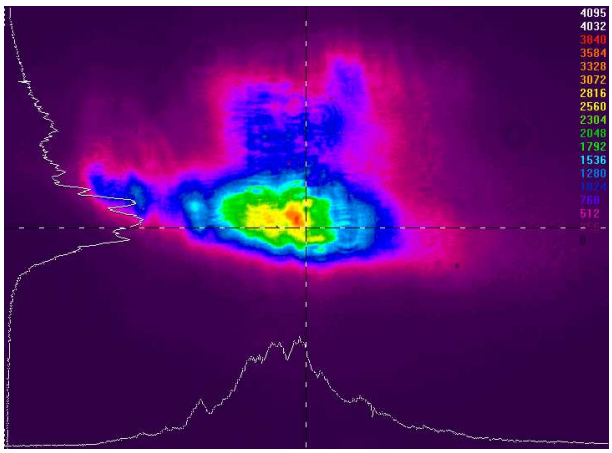


FIGURE 4.4 – *Profil spatial enregistré avec une caméra CCD SPIRICON du faisceau à* $812\,nm$ *émis par l'OPO.*

RICON. Ce faisceau présente une forte divergence et un fort astigmatisme : $M_v^2 = 16$ dans le plan vertical, et $M_h^2 = 4$ dans le plan horizontal. L'insertion d'un télécope afocal constitué de deux lentilles convergentes cylindriques permet de corriger partiellement ce défaut : la première lentille a pour distance focale verticale $f_v = +75\,mm$, et la deuxième une distance focale horizontale $f_h = +50\,mm$. Nous avons obtenu, à $\lambda_{pompe} = 812\,nm$, un col vertical $W_v^{OPO} = 83\,\mu m$, et un col horizontal de rayon $W_h^{OPO} = 33\,\mu m$, distants uniquement de $0,3\,mm$. Dans ces conditions, le recouvrement entre le faisceau de pompage et le mode intracavité, est de l'ordre de 40 %, ce qui détermine la fraction utile de l'énergie de pompage effectivement injectée dans la sphère. [15]. Nous avons alors dû injecter dans la sphère une énergie de pompage proche du seuil de dommage de $YCOB : Nd$.

4.3.2 Réalisation expérimentale de la cavité symétrique du laser sphérique

Nous avons selectionné la configuration de la cavité symétrique qui correpond à une distance $d = 3,11mm$. Elle a l'avantage d'être située au centre du sous domaine de stabilité $D - II$. Compte tenu de la figure (4.3), nous avons pour cette cavité : $L = 13,66\,mm$, $W_S = 43,2\,mm$, $W_M = 36,5\,mm$ et $Z_R = 9,3\,mm$.

La sphère de $YCOB : Nd$ n'a subit aucun traitement de surface. Elle est collée sur une tête goniométrique qui est placée sur des platines de rotation. L'ensemble est visible sur la photographie de la figure (4.5), tout comme les miroirs de la cavité qui entourent

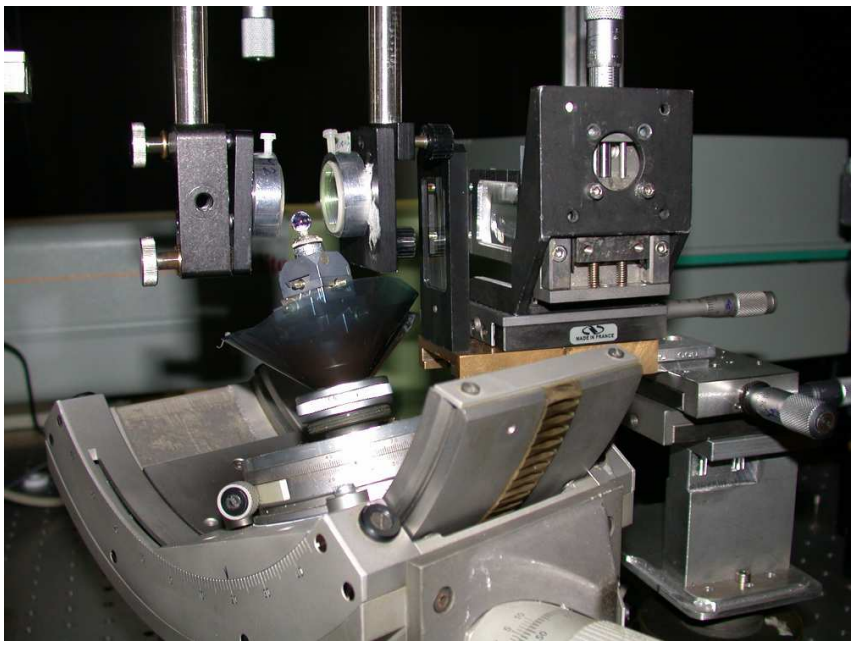


FIGURE 4.5 – *Montage expérimental de la cavité symétrique plan-plan avec la sphère* $YCOB : Nd$.

la sphère. Ils sont montés sur des pièces mécaniques de précision permettant de changer leur orientation.

La réflectivité du miroir d'entrée M_1 est de 100% à $\lambda_f = 1,061\mu m$ et $\lambda_f/2 = 530,5nm$; il a une transmission de 93 % à $\lambda_{pompe} = 812\,nm$. La réflectivité du miroir de sortie M_2 est de 99 % uniquement à λ_f ; Il admet un coefficient de transmission supérieur à 90% aux autres longueurs d'onde, $\lambda_{f/2}$ et λ_{pompe}.

La procédure d'alignement de la cavité utilise une caméra CCD et un laser continu visible HeNe à $632,8\,nm$, qui a été préalablement mis en coïncidence avec le faisceau issu de l'OPO. Quand tous les éléments optiques de la cavité ont été alignés, nous avons observé une émission laser à $\lambda_f = 1061\,nm$ pour toutes les orientations de la sphère que nous avons considérées, et ce sans réajustement de l'orientation des miroirs M_1 et M_2.

4.3.3 Caractérisitiques du faisceau laser

La figure (4.6)(a) montre que le profil spatial du faisceau laser émis est Gaussien, avec paramètre un M^2 proche de 1.

Le profil spatial Gaussien de la figure (4.6)(a) a été obtenu pour un axe de cavité parallèle à l'axe $\vec{X}$ du repère diélectrique de $YCOB : Nd$.

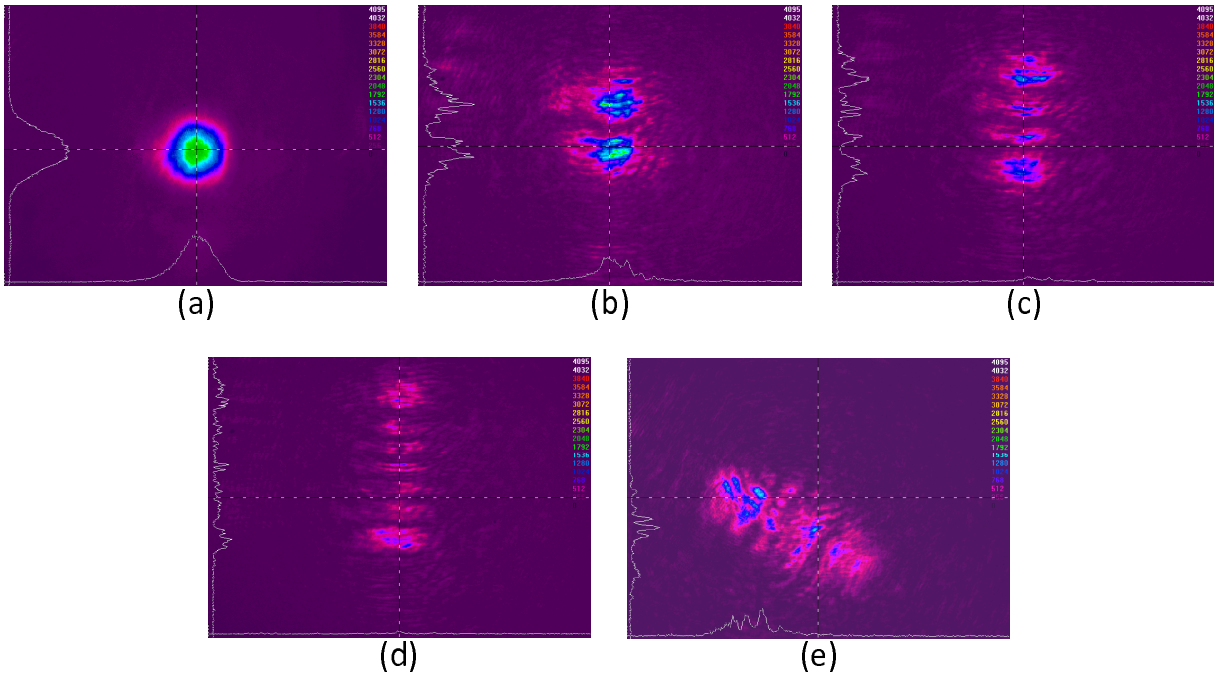


FIGURE 4.6 – *Images du faisceau laser enregistré par une caméra CCD SPIRICON : il passe du mode TEM_{00} (a) à des modes d'odre plus élévé en fonction de l'inclinaison du miroir de sortie M_2 (b,c,d,e).*

Il est attendu que l'émission laser à 1061 nm dépende de la polarisation compte tenu des mesures de distribution angulaire de fluorescence décrites figure (2.17)(a) du chapitre II. Ainsi, grâce à un polariseur placé en sortie de cavité, nous avons mesuré l'énergie du faisceau laser en fonction de celle du faisceau de pompage, pour les deux états de polarisation du faisceau à 1061 nm. Les résultats correspondants sont reportés sur la figure (4.7). Ils montrent que le seuil Laser est faible de l'ordre 278 μJ, et ce pour les deux états de polarisation. Par contre, le gain, défini comme la pente des courbes de la figure (4.7), est de $0,29\,\%$ dans la polarisation ordinaire (selon l'axe $\vec{Y}$), et de $1,45\,\%$ en extraordinaire (selon l'axe $\vec{Z}$).

La figure (4.6)(a) correspond à un alignement de la cavité où les miroirs M_1 et M_2 sont tout les deux perpendiculaires à l'axe de la cavité ; dans les figures (4.6)(b) à (d), le miroir M_2 est déréglé verticalement. La figure (4.6)(e) correspond à un déréglage à la fois vertical et horizontal du miroir M_2.

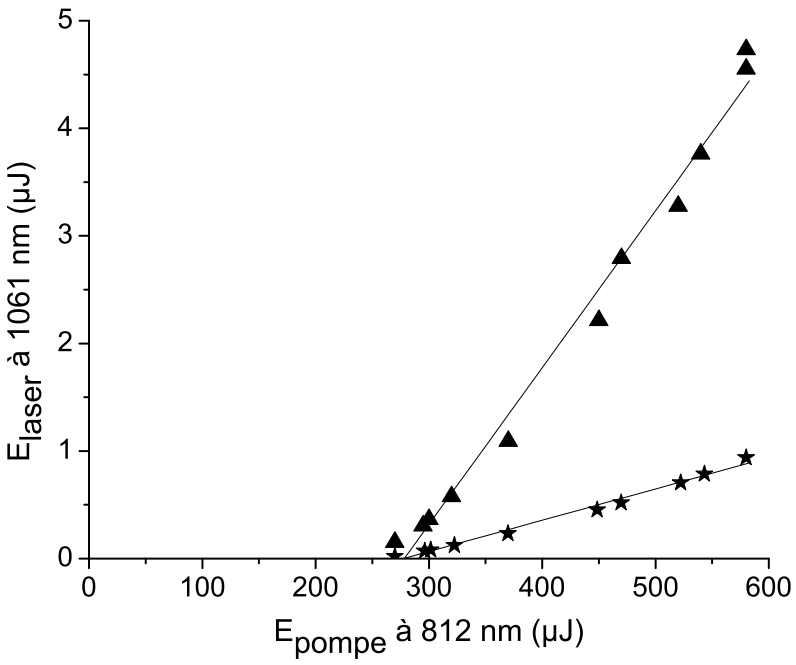


FIGURE 4.7 – *Caractéristiques énergétiques du laser à $YCOB : Nd$: pour une propagation selon l'axe $\vec{X}$. Energie à 1061 nm selon les polarisations $\vec{Z}$ (triangles) et $\vec{Y}$ (étoiles) en sortie de cavité en fonction de l'énergie de pompe à 812 nm.*

4.4 Caractérisation de l'autodoublage de fréquence

4.4.1 Rappels théoriques d'optique non linéaire

4.4.1.1 Polarisation non linéaire

Lorsque l'énergie transportée par une onde électromagnétique devient importante, typiquement de l'ordre du $MW.cm^{-2}$, des effets non linéaires apparaissent, ce qui peut se traduire par l'apparition de nouvelles composantes spectrales par rapport à l'onde incidente [39]. De tels phénomènes n'ont pu être observés et décrits qu'avec l'apparition des sources lumineuses intenses que sont les laser [40–42].

Une des manières de modéliser ce phénomène est de décrire la susceptibilité électrique du milieu par une série de Taylor en puissance du champ électrique de sorte que la polarisation totale s'écrit [39] :

$$\vec{P}(\omega) = \vec{P}^{(1)}(\omega) + \vec{P}^{(2)}(\omega) + \vec{P}^{(3)}(\omega) + ... \tag{4.5}$$

avec [10] :

$$\begin{cases} \vec{P}^{(1)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) . \vec{E}(\omega) \\ \vec{P}^{(2)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2) : \left\{ \vec{E}(\omega_1) \otimes \vec{E}(\pm\omega_2) \right\} \\ \vec{P}^{(3)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3) \vdots \left\{ \vec{E}(\omega_1) \otimes \vec{E}(\pm\omega_2) \otimes \vec{E}(\pm\omega_3) \right\} \\ \quad \ldots \end{cases} \tag{4.6}$$

où les $\vec{E}(\omega_i)$ sont les composantes de Fourier aux pulsations ω_i des champs électriques en intéraction avec le milieu. Il est important de rappeler que nous nous intéressons à des milieux anisotropes, de sorte que les grandeurs physiques sont décrites par des tenseurs. Ainsi $\chi^{(1)}$,$\chi^{(2)}$ et $\chi^{(3)}$ sont respectivement des tenseurs polaires de rangs 2, 3 et 4. Les notations ., :, $\vdots$ correspondent aux produits contractés d'ordre 1, 2 et 3 respectivement. $\otimes$ représente le produit tensoriel. Les termes $\vec{P}^{(2)}$, $\vec{P}^{(3)}$ font apparaître des composantes de Fourier dont les pulsations peuvent se sommer ou se différencier, ce qui correspond respectivement aux phénomènes non linéaires de somme et de différence de fréquences.

Dans le cadre de notre travail, nous ne considérons que les processus de second ordre qui correspondent à l'interaction de trois ondes couplées par le tenseur $\chi^{(2)}$. C'est un tenseur polaire de rang 3, qui possède donc 27 éléments indépendants notés $\chi^{(2)}_{ijk}$, où i, j, k font référence aux indices cartésiens du repère diélectrique. Un certain nombre d'hypothèses concernant le milieu considéré permettent de réduire le nombre d'éléments non nuls et indépendants selon les principes donnés ci-dessous [39].

- *Symétrie d'ABDP*

Lorsque le milieu est transparent aux fréquences des ondes en intéraction, le tenseur $\chi^{(2)}$ est invariant par permutation concomittante de la pulsation et de l'indice cartésien correspondant, soit : $\chi^{(2)}_{ijk}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi^{(2)}_{jik}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) = \chi^{(2)}_{kij}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1)$. C'est la symétrie d'ABDP pour « Armstrong, Bloembergen, Ducuing, Pershan ». [42].

- *Symétrie de Kleinmann*

Lorsque les fréquences des ondes en intéraction sont éloignées des fréquences propres du milieu, le tenseur $\chi^{(2)}$ est totalement symétrique, soit [43] : $\chi^{(2)}_{ijk}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi^{(2)}_{ikj}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi^{(2)}_{jik}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi^{(2)}_{jki}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi^{(2)}_{kij}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) =$

$\chi^{(2)}_{kji}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)$.

- *Symétrie due à la symétrie d'orientation du cristal*

Le principe de Neumann indique que si le milieu est invariant vis à vis d'un certain nombre d'opérateurs de symétrie, alors toute propriété physique de ce milieu est nécessairement invariante par rapport aux mêmes opérateurs de symétrie [7]. Il est alors possible de démontrer par exemple que tous les éléments du tenseur $\chi^{(2)}$ sont nuls dans le cas des cristaux centrosymétriques. L'application de ce principe conduit à déterminer le nombre d'éléments non nuls et indépendants de tout tenseur en fonction de la symétrie d'orientation du milieu considéré.

Par exemple, pour la classe de symétrie d'orientation m, à laquelle appartient $YCOB$: Nd avec le miroir perpendiculaire à l'axe $\vec{b}$ du repère cristallographique, les éléments non nuls du tenseur $\chi^{(2)}$ sont : $\chi^{(2)}_{xxx}$; $\chi^{(2)}_{xyy} = \chi^{(2)}_{yxy} = \chi^{(2)}_{yyx}$; $\chi^{(2)}_{xzz} = \chi^{(2)}_{zxz} = \chi^{(2)}_{zzx}$; $\chi^{(2)}_{yyz} = \chi^{(2)}_{yzy} = \chi^{(2)}_{zyy}$; $\chi^{(2)}_{zzz}$; $\chi^{(2)}_{zxx} = \chi^{(2)}_{xxz} = \chi^{(2)}_{xzx}$ où x, y et z sont les indices cartésiens relatifs au repère diélectrique du cristal [7, 10].

4.4.1.2 Equations couplées

En prenant en compte la polarisation non linéaire $\vec{P}^{(2)}$, il est possible d'établir, de manière similaire à la description linéaire, les équations de propagation relatives aux composantes $\vec{E}(\omega_i, \vec{u})$ dans la direction $\vec{u}$, soit [39] :

$$\vec{rot}\,\vec{rot}\vec{E}(\omega_i, \vec{u}) - \frac{\omega_i^2}{c^2}\epsilon_r(\omega_i, \vec{u})\,\vec{E}(\omega_i, \vec{u}) = \omega_i^2 \mu_0\,\vec{P}^{(2)}(\omega_i, \vec{u}) \tag{4.7}$$

Le facteur de droite est le terme source permettant le couplage non linéaire. Il est possible de résoudre analytiquement cette équation dans l'approximation de l'enveloppe lentement décroissante, soit : $\frac{\partial^2 E}{\partial u^2} << \frac{\partial E}{\partial u}$, où u est la coordonnée d'espace dans la direction de propagation. Ainsi, dans le cas d'un milieu transparent, c'est à dire en considérant la symétrie ABDP, et dans le cas où les vecteurs d'onde des trois ondes en interaction sont

colinéaires entre eux, selon la direction $\vec{u}$, il vient :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial E(\omega_1,u)}{\partial u} = j\kappa(\omega_1=\omega_3-\omega_2)\chi_{eff}E(\omega_3,u)E^*(\omega_2,u)e^{j\Delta ku} \\ \dfrac{\partial E(\omega_2,u)}{\partial u} = j\kappa(\omega_2=\omega_3-\omega_1)\chi_{eff}E(\omega_3,u)E^*(\omega_1,u)e^{j\Delta ku} \\ \dfrac{\partial E(\omega_3,u)}{\partial u} = j\kappa(\omega_3=\omega_1+\omega_2)\chi_{eff}E(\omega_1,u)E(\omega_2,u)e^{-j\Delta ku} \end{cases} \tag{4.8}$$

où u correspond à la variable de différenciation selon $\vec{u}$, et$\kappa(\omega_i) = \pi/[n(\omega_i)\lambda_i\, cos^2(\rho(\omega_i))]$

$n(\omega_i)$ est l'indice de réfraction à la pulsation ω_i, λ_i est la longueur d'onde correspondant à la pulsation ω_i, $\rho(\omega_i)$ est l'angle entre le vecteur de Poynting et le vecteur d'onde ; $E^*(\omega_i)$ est le conjugué complexe de $E(\omega_i)$. Le système (4.8) fait également apparaître deux termes présents dans chacune des trois équations : χ_{eff} et Δk. Le coefficient effectif χ_{eff} dépend du tenseur $\chi^{(2)}$ et des vecteurs unitaires des champs électriques $\vec{e}(\omega_i)$ des ondes en intéraction, soit [10] :

$$\chi_{eff} = \chi^{(2)}\vdots\vec{e}(\omega_3)\otimes\vec{e}(\omega_1)\otimes\vec{e}(\omega_2) = \sum_{ijk}\chi^{(2)}_{ijk}e_i(\omega_3)e_j(\omega_1)e_k(\omega_2) \tag{4.9}$$

Le désaccord de phase Δk est relié aux modules des vecteurs d'onde $k(\omega_i) = \frac{\omega_i}{C}n(\omega_i)$, soit :

$$\Delta k = k(\omega_3) - k(\omega_1) - k(\omega_2) \tag{4.10}$$

Le système (4.8) est général. Il permet de décrire aussi bien une différence de fréquences : $(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2)$ ou $(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1)$, que la somme de fréquences $(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)$. La génération de second harmonique (SHG) correspond à une somme de fréquence dégénérée en pulsation, soit $\omega_1 = \omega_2 = \omega$. C'est cette interaction que nous exploitons dans l'autodoublage de fréquence.

4.4.1.3 Rendement de conversion en SHG

Les solutions générales du système (4.8) sont des fonctions elliptiques de Jacobi [39]. Les expressions de ces solutions se simplifient lorsque la variation d'énergie de l'onde à la pulsation fondamentale ω peut être considérée comme négligeable, ce qui constitue l'approximation de la pompe non dépeuplée, soit : $\frac{\partial E(\omega,u)}{\partial u} = 0$. Dans ce cas, et en considérant

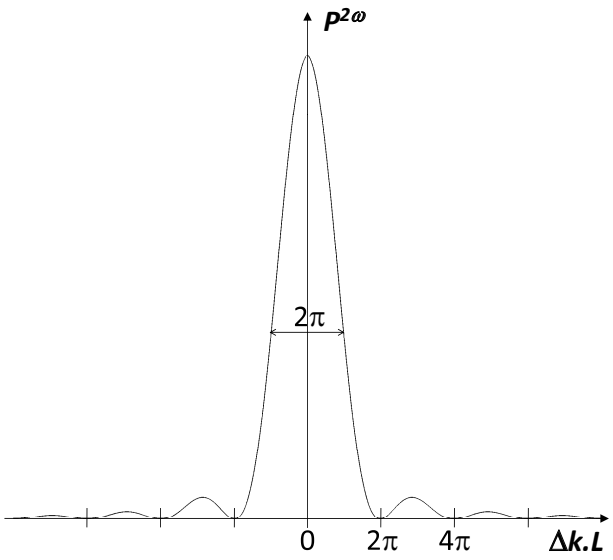


FIGURE 4.8 – *Evolution de la puissance émise par génération de second harmonique $P^{2\omega}$ en fonction du terme de désaccord de phase, à P^{ω} constante.*

un faisceau Gaussien parallèle de rayon W_o à la pulsation fondamentale ω_i, la puissance émise par SHG à 2ω à la sortie du milieu non linéaire de longueur L est donnée par [44] :

$$P^{2\omega}(L) = BG(\rho, L, W_o)(P^{\omega}(0))^2 \frac{L^2}{W_o^2} sinc^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \tag{4.11}$$

avec $B = \frac{9\pi}{2\epsilon_o C}\frac{2N-1}{N}\frac{\chi^{(2)}_{eff}(2\omega)}{\lambda/2}\frac{T_{2\omega}T_{\omega}T_{\omega}}{n(2\omega)n(\omega)n(\omega)}$; $G(\rho, L, w_o)$ est le coefficient d'atténuation dû à la double réfraction d'angle ρ. N correspond au nombre de modes longitudinaux à la pulsation ω, et les coefficients T_{ω} et $T_{2\omega}$ sont les transmissions de Fresnel du cristal à ω et à 2ω ; $P^{\omega}(0)$ est la puissance fondamentale à l'entrée du cristal.

L'expression (4.11) montre que la puissance générée est d'autant plus grande que le coefficent effectif χ_{eff} est grand.

L'expression (4.11) montre également que la puissance générée est maximale lorsque $\Delta k = 0$. C'est la condition dite « d'accord de phase », qui correspond à une interférence constructive entre la polarisation non linéaire et le champ qu'elle rayonne. Dans ce cas, la puissance générée à 2ω varie quadratiquement avec L, comme le montre la figure (4.9). Dans le cas contraire, soit $\Delta k \neq 0$, $P^{2\omega}$ varie sinusoïdalement avec L, mettant en évidence le fait que ce qui a été généré sur une certaine distance, appelée longueur de cohérence, définie par $l_c = \pi/\Delta k$, est détruit sur la longueur de cohérence suivante.

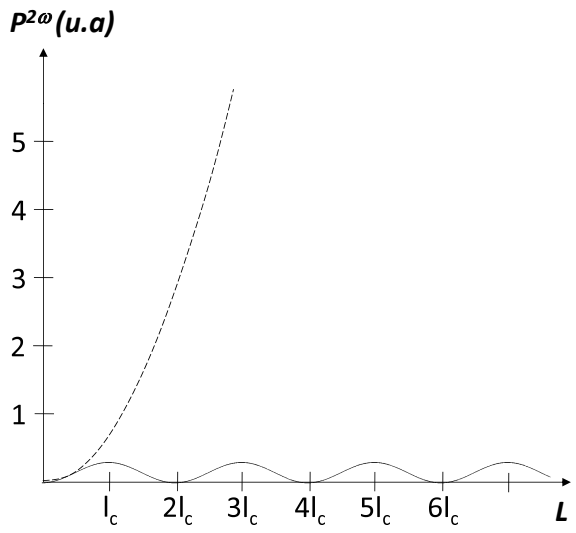


FIGURE 4.9 – *Evolution de la puissance générée par génération de second harmonique $P^{2\omega}$ en fonction de la longueur d'intération L dans le cas de l'accord de phase (trait pointillé) et hors accord de phase (trait plein).*

L'accord de phase est donc une situation tout à fait remarquable puisqu'il y a un transfert continu d'énergie de l'onde fondamentale vers l'onde de second harmonique au cours de la propagation. Pour un cristal donné, les directions d'accord de phase et les configurations de polarisation correspondantes peuvent être déterminées en utilisant conjointement les relations de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement [10]. Il est alors possible de montrer qu'il n'existe que deux situations possibles pour l'accord de phase par SHG :

$$\begin{cases} I : n^-(2\omega,\theta,\phi)2\omega = n^+(\omega,\theta,\phi)\omega + n^+(\omega,\theta,\phi)\omega \\ II : n^-(2\omega,\theta,\phi)2\omega = n^-(\omega,\theta,\phi)\omega + n^+(\omega,\theta,\phi)\omega \end{cases} \tag{4.12}$$

$n^+(\omega,\theta,\phi)$ et $n^-(\omega,\theta,\phi)$ sont les deux solutions de l'équation de Fresnel dans la direction d'accord de phase considérée d'angles de coordonnées sphériques (θ,ϕ).

4.4.2 Etude expérimentale de l'autodoublage

Notre objectif est la mesure directe des directions d'accord de phase d'autodoublage de fréquence sur la base du laser à milieu à gain sphérique décrit au paragraphe (4.3).

4.4.2.1 Signatures spectrales et directions d'accord de phase

La cavité symétrique décrite au paragraphe (4.2) et (4.3) est particulièrement adaptée à la génération de l'autodoublage dans $YCOB : Nd$ car elle est simple à mettre en oeuvre et a conduit à une émission laser mesurable.

Dans une direction d'accord de phase, l'autodoublage est possible si la polarisation de l'effet laser est compatible avec la configuration de polarisation requise par la SHG de type I ou II donnée par les équations (4.12). Dans le premier cas, l'autodoublage est de type I, dans le second, il est de type II.

En mettant la sphère en rotation dans un quart d'espace, nous avons été capables d'observer directement l'autodoublage de type I à la longueur d'onde de $530,5nm$. Comme le montre le spectre de la figure (4.10), le profil du mode transverse du faisceau généré à $530,5\,nm$ est de bonne qualité.

Nous avons déterminé tout un ensemble de directions d'accord de phase, (θ_{AP}, ϕ_{AP}), en condition d'autodoublage de type I, rassemblées figure (4.11). Nous constatons un très bon accord entre l'expérience et le calcul mené à partir des équations de dispersions des indices de réfraction principaux de $YCOB : Nd$ [17]. Les autres directions d'accord de phase auraient pu être mesurées si nous avions utilisé un dispositif goniométrique compatible avec la présence des miroirs de la cavité. En effet, compte tenu de la taille des optiques, de leur support mécanique, et de la tête goniométrique, nous restons limités aux mesures que nous présentons ici. Un décollage et recollage de la sphère dans une autre direction aurait pu également nous permettre d'accéder au reste de la courbe d'accord de phase. Une autre configuration de maintien des miroirs de cavité ainsi que l'utilisation du cercle Kappa décrit au chapitre III permettra une description complète de la distribution angulaire d'accord de phase de l'autodoublage de fréquence.

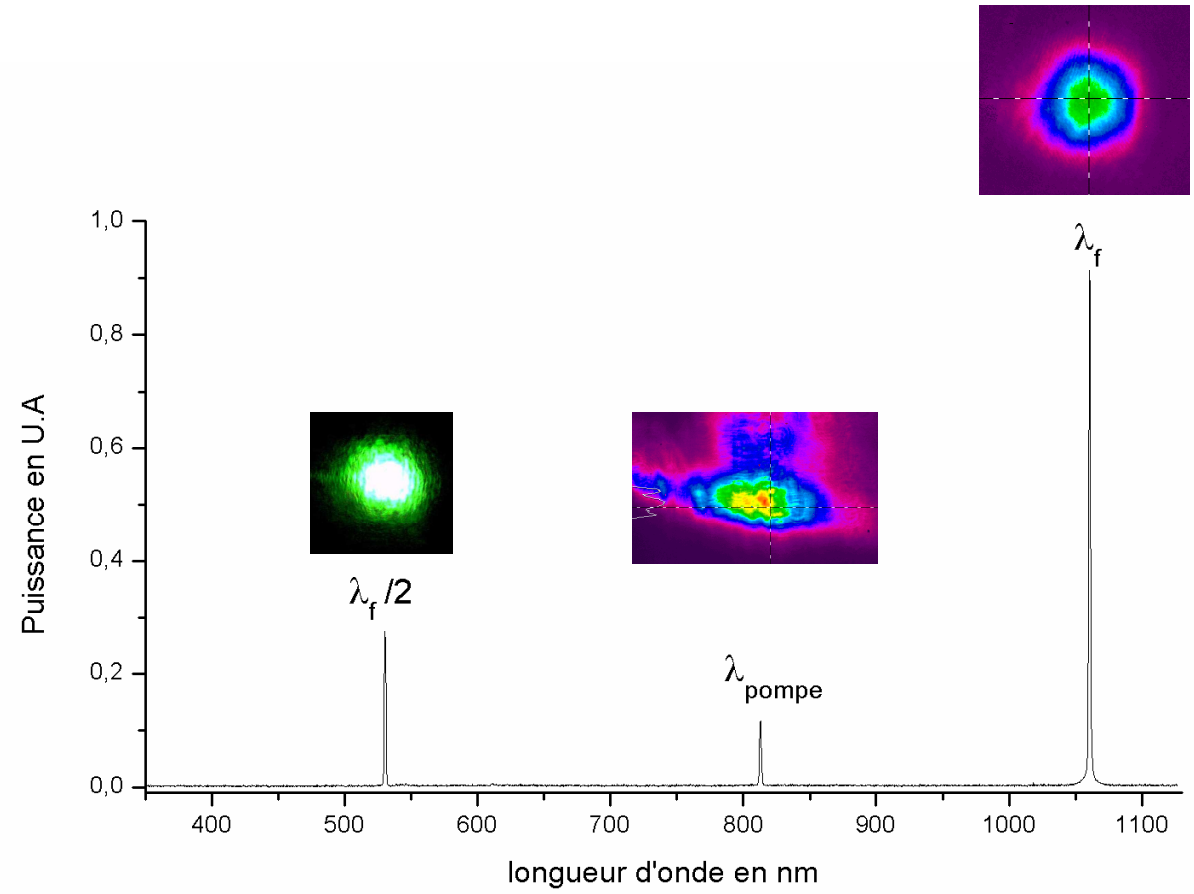


FIGURE 4.10 – *Spectre réalisé en condition d'autodoublage avec un monochromateur compact fibré OCEAN OPTICS, où la longueur d'onde de pompe est à* $812\,nm$*, de l'effet laser à* $1061\,nm$*, et de l'autodoublage à* $530,5\,nm$*. Les images, réalisées à partir d'une caméra CCD SPIRICON, correspondent au profil transverse des trois faisceaux.*

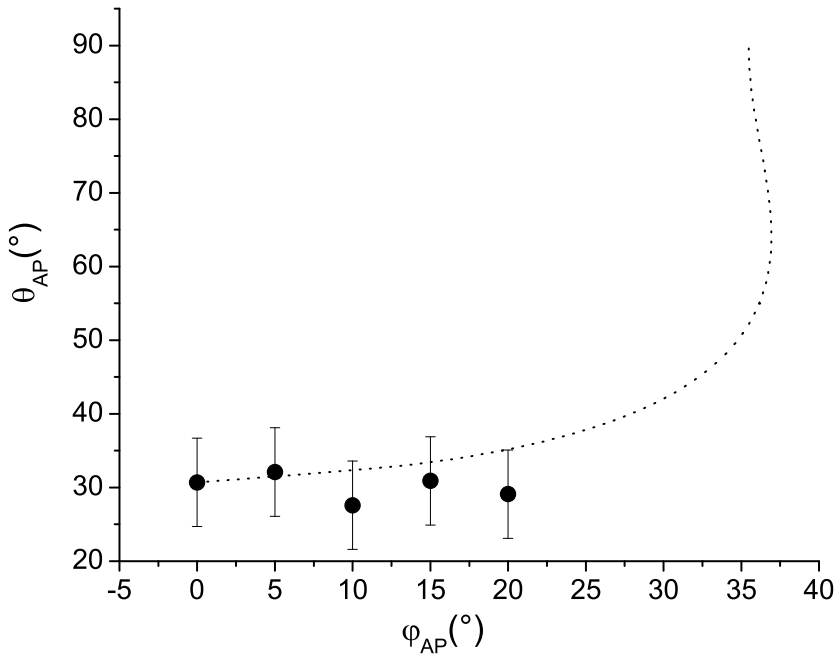


FIGURE 4.11 – *Mesures directes d'angles d'accord de phase* (θ_{AP}, ϕ_{AP}) *en condition d'autodoublage de type I dans une sphère de* $YCOB : Nd$ *mise en cavité.*

4.4.2.2 Puissance générée

La figure (4.12) donne, à titre d'exemple, l'évolution de la puissance générée à $530,5nm$ dans la direction d'accord de phase $(\theta_{AP} = 29,1^{\circ}, \phi_{AP} = 20^{\circ})$ en fonction du carré de la puissance à $1061\,nm$.

La variation est linéaire conformément à l'expression (4.11). Nous avons également comparé le calcul et la mesure concernant la puissance générée à $530,5nm$ dans la direction d'accord de phase $(\theta_{AP} = 30,7^{\circ}, \phi_{AP} = 0^{\circ})$. Les paramètres pour le calcul à partir de l'équation (4.11) sont rassemblés dans le tableau (4.1).

Notons que la longueur d'intéraction est $L = 2 \times 7,44\,mm$, soit deux fois la longueur du milieu non linéaire, compte tenu du fait que le miroir de fond de cavité est totalement réfléchissant à $530,5\,nm$ et que le miroir de sortie est totalement transmettant à cette même longueur d'onde [45].

Pour une puissance fondamentale intracavité à $1061\,nm$ de $20\,\mu W$, le calcul de la puissance à $530,5\,nm$ conduit à $P^{2\omega} = 80\,nW$, et l'expérience à $P^{2\omega} = 50\,nW$, soit un écart relatif de $37,5\%$. Une telle différence entre calcul et expérience n'est pas surprenante ; elle provient probablement d'une erreur sur l'estimation du rayon du faisceau fondamental

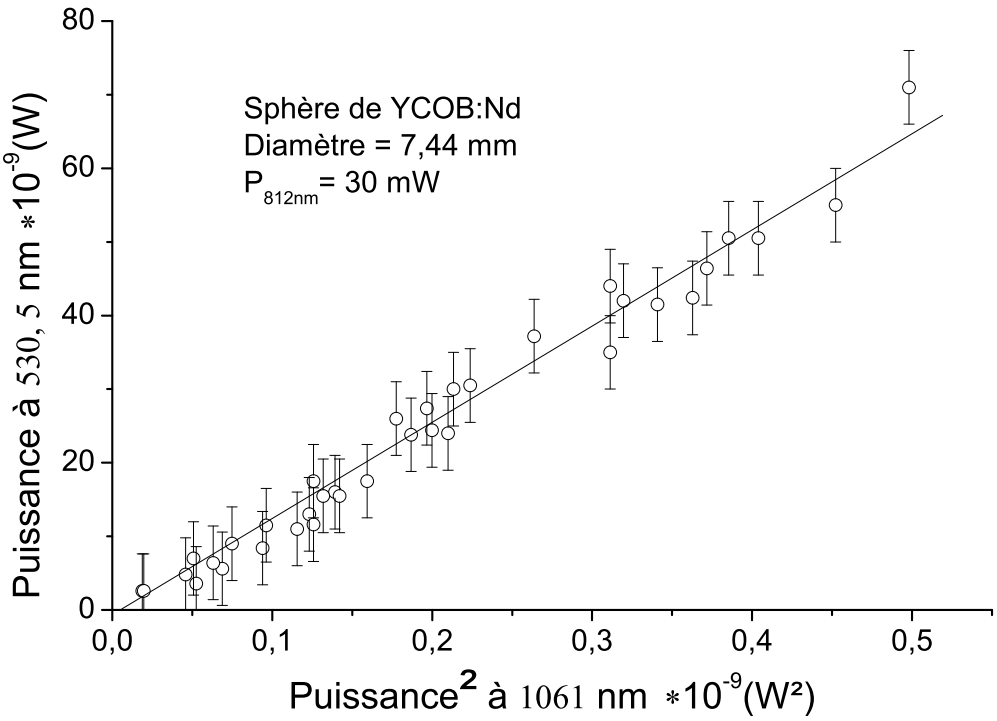


FIGURE 4.12 – *Puissance générée par autodoublage à* $530,5\,nm$ *dans la direction d'accord de phase* ($\theta_{AP} = 29,1^{\circ}, \phi_{AP} = 20^{\circ}$) *en fonction de la puissance fondamentale à* $1061\,nm$. *Les cercles correspondent aux relevés expérimentaux, le trait continu est un guide pour l'oeil.*

intracavité.

Grâce à cette mesure, il est également possible d'estimer le rendement global d'autodoublage rapporté à la puissance de pompe à $812\,nm$, soit :

$$\eta_{global} = \frac{P_{530,5\,nm}}{P_{812\,nm}} = \frac{50.10^{-9}}{30.10^{-3}} = 1,7.10^{-6} \tag{4.13}$$

Ce rendement global est très faible, mais nos expériences ne cherchaient en aucun cas à l'optimiser. Sa faiblesse n'est pas imputable au processus de génération de second harmonique, comme l'a montré la proximité entre les valeurs mesurées et calculées de la puissance à $530,5\,nm$ repérée figure (4.12), mais plutôt à l'effet laser. En effet, il y a eu une chute de performance de l'effet laser par rapport aux expériences décrites au chapitre III du fait de piqûres en volume qui sont apparues depuis lors dans la sphère $YCOB : Nd$.

Direction d'accord de phase	$\theta = 30,7^{\circ} \qquad \phi = 0^{\circ}$
Longueur d'interaction	$L = 2 \times 7,44\, mm$
Indices de réfraction	$n(530,5\, nm) = 1,6947$ $n(1061\, nm) = 1,6917$
Transmission de Fresnel	$T_F(530,5\, nm) = 0,933$ $T_F(1061\, nm) = 0,934$
Coefficient effectif	$\chi_{eff} = 0,565\, pm/V$
Nombre de modes longitudinaux	$N \approx 45$
Puissance fondamentale intracavité	$P^{\omega}(0) = 20\, \mu W$
Rayon du faisceau à 1061 nm	$W_o = 40\, \mu m$
Coefficient d'atténuation dû à la double réfraction	$G = 0,13$

TABLE 4.1 – *Paramètres utilisés pour le calcul de la puissance générée à* $530,5\, nm$ *dans* $YCOB : Nd$ *par autodoublage de fréquence.*

4.5 Conclusion

Ces travaux relatent, pour la première fois à notre connaissance, des calculs et des mesures relatifs à un laser basé sur un milieu à gain taillé sous la forme d'une sphère. De plus, le gain laser s'est révèlé être suffisant pour des mesures directes d'angles d'accord de phase d'autodoublage, ce qui constituait l'objectif de ce travail.

Conclusion

Ce travail de thèse a été motivé par l'amélioration des sources laser paramétriques. L'ensemble de l'étude, qu'il s'agisse de l'absorption, de l'effet laser ou de l'autodoublage de fréquence, a été mené avec le cristal monoclinique $YCOB : Nd$. Nous avons considéré ce cristal pour ses propriétés laser et optiques non linéaires intéressantes mais également parce qu'il est parfaitement adapté comme cristal "modèle" pour l'établissement de résultats d'optique cristalline fondamentale de portée générale.

Dans le cas des cristaux de symétries cubique, hexagonale, quadratique, rhomboédrique et orthorhombique, le repère diélectrique, le repère d'absorption et le repère de fluorescence sont tous trois liés au repère cristallographique. Dans le cas des cristaux monocliniques ou tricliniques, chaque repère a son orientation propre. Le résultat original que nous avons apporté dans ce contexte est que ces repères dépendent de la transition électronique considérée. Nous avons établi ce résultat dans le cas de l'absorption, mais il en serait évidemment de même pour la fluorescence. La suite à donner à ce travail va consister à modéliser la partie imaginaire de la permittivité diélectrique à partir des fonctions d'onde de la transition électronique considérée et de la symétrie du site cristallographique dans lequel se situe l'ion absorbant. Ces résultats originaux auront des répercussions vis à vis des applications laser. En effet, il sera nécessaire de connaître les repères d'absorption et de fluorescence de chaque transition considérée afin de déterminer les directions optimales de fonctionnement, ceci ne concernant que les cristaux monocliniques et tricliniques.

De plus, la mise en place d'un nouveau banc de mesure a permis d'étendre l'étude de la distribution angulaire d'absorption à toute direction de l'espace. Cette étude générale a démontré qu'il existe un continuum de directions pour lesquelles l'absorption ne dépend pas de la polarisation. Ces directions particulières pourraient trouver un intérêt pratique

indéniable, que ce soit pour des considérations thermiques ou de pompage laser longitudinal non polarisé. Cette étude originale de la topologie tridimensionnelle de l'absorption est valable pour tout cristal appartenant à la classe optique biaxe, qu'il soit orthorhombique, monoclinique ou triclinique.

Enfin, ayant conscience de la complexité d'optimiser à la fois les propriétés d'absorption, de fluorescence et d'accord de phase, nous avons conçu une méthode de caractérisation directe des propriétés d'autodoublage de fréquence. Le cristal étudié est usiné en forme de sphère puis placé entre deux miroirs plans. Nous avons réalisé ainsi le premier laser utilisant un milieu à gain sphérique. Nous avons également montré qu'il était possible de mesurer directement les directions d'accord de phase d'autodoublage de fréquence, limitant ainsi le nombre d'étapes nécessaires à son étude.

Les perspectives faisant suite à cette thèse vont porter sur l'étude de cristaux appartenant aux deux autres classes de symétrie d'orientation du système cristallin monoclinique, à savoir $KLu(WO_4)_2$ dopé Yb^{3+} pour la classe $2/m$, et $KGd(PO_3)_4$ dopé Nd^{3+} pour la classe 2.

Bibliographie

[1] J.D. Jackson. *Electrodynamique Classique.* Editions Dunod, 2001.

[2] A. Yariv and P. Yeh. *Optical Waves in Crystals : Propagation and Control of Laser Radiation.* New York : Wiley, 1984.

[3] R. Carles et R. Fleckinger J.P. Pérez. *Electromagnétisme : fondements et applications avec 300 excercices et problèmes résolus.* Editions Masson, 1996.

[4] H.A. Kramers. La diffusion de la lumière par les atomes. *Atti Congresso Internatzionale dei Fisici Como, Zanicheli, Bologna*, 2 :545–557, 1927.

[5] R.L. de Krönig. On the theory of dispersion of X-rays. *Journal of the Optical Society of America*, 12 :547–557, 1926.

[6] M. Born, E. Wolf, and A.B. Bhatia. *Principles of Optics : electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light.* Cambridge University Press, 1999.

[7] J.F. Nye. *Physical Properties of Crystals : Their Representation by Tensors and Matrices.* Oxford University Press, 1985.

[8] J.Q. Yao and T.S. Fahlen. Calculations of optimum phase match parameters for the biaxial crystal $KTiOPO_4$. *Journal of Applied Physics*, 55 :65, 1984.

[9] J.P. Fève, B. Boulanger, and G. Marnier. Experimental study of internal and external conical refractions in KTP. *Optics Communications*, 105(3-4) :243–252, 1994.

[10] B. Boulanger and J. Zyss. *Chapter 1.7 : Nonlinear optical properties.* Kluwer Academic Publisher, 2003.

[11] B. Boulanger and G. Marnier. Study of the wave propagation near optical axes of $KTiOPO_4$ by the sphere method. *Optics Communications*, 72(3-4) :144–147, 1989.

[12] F. Mougel. Les oxoborates de calcium et de terres rares (TR) $Ca_4TRO(BO_3)_3$. Une nouvelle famille de matériaux à fonctions multiples pour l'optique : Croissance cris-

talline, propriétés non linéaires et laser. *Thèse de l'Université Pierre et Marie Curie - Paris VI*, 2006.

[13] A.E. Siegman. Lasers. *University Science Books*, 1986.

[14] Y. Petit, P. Segonds, B. Boulanger, C. Félix, B. Ménaert, J. Zaccaro, and G. Aka. Absorption and fluorescence anisotropies of monoclinic crystals : the case of Nd :YCOB. *Otpics Express*, 16(11) :7997–8002, 2008.

[15] Y. Petit. Nouvelles approches en optique cristalline : distributions angulaires de l'absorption et de l'émission, auto-doublage, quasi-accord de phase angulaire. *Thèse de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I*, 2007.

[16] P. Segonds, B. Boulanger, J.P. Fève, B. Ménaert, J. Zaccaro, G. Aka, and D. Pelenc. Linear and nonlinear optical properties of the monoclinic $Ca_4YO(BO_3)_3$ crystal. *Journal of the Optical Society of America B*, 21(4) :765–769, 2004.

[17] P. Segonds, B. Boulanger, B. Ménaert, J. Zaccaro, P. Salvestrini, M.D. Fontana, R. Moncorgé, F. Porée, G. Gadret, J. Mangin, A. Brenier, G. Boulon, G. Aka, and D. Pelenc. Optical characterizations of $YCa_4O(BO_3)_3$ and Nd :$YCa_4O(BO_3)_3$ crystals. *Optical Materials*, 29(8) :975–982, 2007.

[18] Y. Petit, P. Segonds, and B. Boulanger. A new tool for the characterization of self-doubling crystals. *Optical Materials*, 30 :37–39, 2007.

[19] B.G. Wybourne. *Spectroscopic properties of rare earths.* John Wiley & Sons, Inc, 1965.

[20] B.R. Judd. Optical Absorption Intensities of Rare-Earth Ions. *Physical Review*, 127(3) :750–761, 1962.

[21] G.S. Ofelt. Optical absorption intensities of rare-earth ions. *J. Chem. Phys*, 37(3) :511, 1962.

[22] S. Joly, Y. Petit, B. Boulanger, P. Segonds, C. Félix, B. Ménaert, and G. Aka. Singular topology of optical absorption in biaxial crystals. *Otpics Express*, 17(22) :19868–19873, 2009.

[23] U.W. Arndt and B.T.M. Willis. *Single Cristal Diffractometry.* Cambridge University Press, 1966.

[24] W. R. Busing and H.A. Levy. Angle Calculations for 3- and 4- Circle X-ray and Neutron Diffractometers. *Acta Crystallographica*, 22(8) :457–464, 1967.

[25] G. Thorkildsen, R.H. Mathiesen, and H.B. Larsen. Angle Calculations for a six-circle κ Diffractometer. *Journal of Applied Crystallography*, 32(8) :943–950, 1999.

[26] Chapter II. *CAD4 user's manual.* 1988.

[27] S. Rivier, X. Mateos, V Petrov, U. Griebner, A. Aznar, O. Silvestre, R. Sole, M. Aguilo, F. Diaz, M. Zorn, and M. Weyers. Mode-locked laser operation of epitaxially grown Yb :KLu(WO4)2 composites. *Optics Letters*, 30(18) :2484, 2005.

[28] S. Bjurshagen, P. Brynolfsson, V. Pasiskevicius, I. Parreu, M.C. Pujol, A. Peña, M. Aguilo, and F. Diaz. Crystal growth, spectroscopic characterzation, and eye-safe laser operation of erbium- and ytterbium- codoped KLu(WO4)2. *Applied Optics*, 47(5) :656–665, 2008.

[29] I. Parreu, J.J. Carvajal, X. Solans, and M. Diaz, F. ans Aguilo. Crystals structure and optical characterization of pure and Nd-substituted type III KGd(PO3)4. *Chem. Mater.*, 18 :221–228, 2006.

[30] I. Parreu, M.C. Pujol, M. Aguilo, F. Diaz, X. Mateos, and V. Petrov. Growth, spectroscopy and laser operation of Yb :KGd(PO3)4 single crystals. *Otpics Express*, 15 :2360–2368, 2007.

[31] A. Brenier. The self-doubling and summing lasers : overview and modeling. *Journal of luminescence*, 91(3-4) :121–132, 2000.

[32] A. Brenier, C. Tu, M. Qiu, A. Jiang, J. Li, and B. Wu. Spectroscopic properties, self-frequency doubling, and self-sum frequency mixing in $GdAl_3(BO_3)_4$:Nd^{3+}. *Journal of the Optical Society of America B*, 18 :1104–1110, 2001.

[33] G. Aka and A. Brenier. Self-frequency conversion in nonlinear laser crystals. *Optical Materials*, 22(2) :89–94, 2003.

[34] J.M. Eichenholz, D.A. Hammons, L. Shah, Q. Ye, M.C. Richardson, B.H. Chai, A.K. Chin, and J.D. Cary. Diode-pumped laser action and self-frequency doubling in Nd^{3+} : YCOB. *Proc. SPIE*, 3613 :30–37, 1999.

[35] P. Dekker and M. Dawes. Characterisation of conversion and crystal quality in Nd- and Yb-doped YAB. *Otpics Express*, 12 :5922–5930, 2004.

[36] P. Segonds, S. Joly, B. Boulanger, Y. Petit, C. Félix, B. Ménaert, and G. Aka. Laser and self-doubling properties of a Nd :YCOB crystal cut as a sphere and inserted in a cavity. *J. Opt. Soc. Am. B*, 26(4) :750–753, 2009.

[37] N. Hodgson and H. Weber. Influence of spherical aberration of the active medium on the performance of Nd :YAG lasers. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 29(9) :2497–2507, 1993.

[38] H. Kogelnik and T. Li. Laser beams and resonators. *Appl. Opt*, 5(10) :1550–1567, 1966.

[39] N. Bloembergen. *Nonlinear Optics*. World Scientific, 1996.

[40] T.H. Maiman. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187(4736) :493–494, 1960.

[41] P.A. Franken, A.E. Hill, C.W. Peters, and G. Weinreich. Generation of Optical Harmonics. *Physical Review Letters*, 7(4) :118–119, 1961.

[42] J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P.S. Pershan. Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric. *Physical Review*, 127(6) :1918–1939, 1962.

[43] D.A. Kleinman. Nonlinear dielectric polarization in optical media. *Phys. Rev.*, 126(6) :1977–1979, 1962.

[44] B. Boulanger and J.P. Fève. *Caractérisation des propriétés optiques non linéaires de conversion de fréquence des cristaux*, volume 8. Editeur Scientifique B. Boulanger, 2005.

[45] R. Smith. Theory of intracavity optical second-harmonic generation. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 6(4) :215–223, 1970.

ANNEXES

Annexe A

S. Joly, Y. Petit, B. Boulanger, P. Segonds, C. Félix, B. Ménaert, G. Aka

Singular topology of optical absorption in biaxial crystals

Optics Express Vol 17, N 22 (2009)

Singular topology of optical absorption in biaxial crystals

Simon Joly [1], Yannick Petit [1,2], Benoît Boulanger [1*], Patricia Segonds [1], Corinne Félix [1] Bertrand Ménaert [1], Gérard Aka [3]

[1] *Institut Néel CNRS/UJF, 25 rue des Martyrs, BP 166, F38402 Grenoble Cedex 9 France*
[2] *Université de Genève, 20 rue de l'Ecole de Médecine, Genève Suisse*
[3] *Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Paris, Paris France*
**Corresponding author: benoit.boulanger@grenoble.cnrs.fr*

Abstract: we show for the first time that biaxial crystals exhibit continua of directions of propagation where the absorption coefficient is the same for the two associated polarization modes. This statement is supported by both calculations and experimental data obtained in Nd:YCOB.

©2009 Optical Society of America

OCIS codes: (260.1180) Crystal optics; (160.1190) Anisotropic optical materials; (160.4670) Optical materials.

References and links

1. Born & Wolf, *Principles of Optics*, (Oxford Pergamon Press, 1965).
2. Y. Petit, B. Boulanger, P. Segonds, C. Félix, B. Ménaert, J. Zaccaro, G. Aka, "Absorption and fluorescence anisotropies of monoclinic crystals: the case of Nd:YCOB," Opt. Express **16**(11), 7997 (2008).
3. P. Segonds, B. Boulanger, J. P. Fève, B. Ménaert, J. Zaccaro, G. Aka and D. Pelenc, "Linear and nonlinear optical properties of the monoclinic $Ca_4YO(BO_3)_3$ crystal," J. Opt. Soc. Am. B **21**(4), 765 (2004).
4. Landau & Lifchitz, *Theory of Elasticity*, (MIR Editions, Moscow, 1967).
5. M. Vacha and M. Kotaki, "Three-dimensional orientation of single molecules observed by far- and near-field fluorescence microscopy," J. Chem. Phys. **118**(12), 5279 (2003).
6. M.-F. Joubert, S. A. Kazanskii, Y. Guyot, J.-C. Gâcon, and C. Pédrini, "Microwave study of photoconductivity induced by laser pulses in rare-earth-doped dielectric crystals," Phys. Rev. B **69**(16), 165217 (2004).
7. A. Shumelyuk, A. Volkov, A. Selinger, M. Imlau, and S. Odoulov, "Frequency-degenerate nonlinear light scattering in low-symmetry crystals," Opt. Lett. **33**, 150 (2008).

1. Introduction

Orthorhombic, monoclinic and triclinic are birefringent crystals belonging to the biaxial optical class. In that case, it is well known that the index surface is related to the real part of the linear complex permittivity tensor, which is represented as $\hat{\varepsilon} = \varepsilon + j\varepsilon'$, while the absorption coefficient or the fluorescence cross section depend on the imaginary part ε'. Furthermore, the index surface exhibits four ombilics along which the refractive indices are equal and that define by pairs two specific directions called "optical axes". These axes are located in the *xz* plane of the dielectric frame (*x, y, z*) of biaxial crystals when the three principal refractive indices verify the following relation of order $n_x < n_y < n_z$ [1]. Recently, we showed that the angular distribution of the absorption coefficient or of the fluorescence cross section of biaxial crystals have similar topologies as the index surface in the *xz* plane of the dielectric frame [2].

Similarities between the refractive index, absorption and fluorescence angular distributions are not surprising since these three properties arise from the same quantity, *i.e.* the linear complex permittivity $\hat{\varepsilon}$. Thus one might think that out of the *xz* plane, as it is the case for the index surface, the angular distributions of the absorption coefficient and of the fluorescence cross section would not show any other direction of propagation for which these properties would be equal [1]. In the present paper, we report from calculations and

#110576 - $15.00 USD Received 24 Apr 2009; revised 29 Jun 2009; accepted 1 Jul 2009; published 19 Oct 2009
(C) 2009 OSA

experimental data that it is not the case. Actually, we determined experimentally the complete angular distribution of the absorption coefficient in the dielectric frame of a biaxial crystal under polarized light, and identified a continuum of directions from those of the *xz* plane for which the absorption coefficient keeps the same magnitude for the two polarization modes. To the best of our knowledge, it is the first time that such a measurement is performed, which leads to a new fundamental knowledge in low symmetry crystal optics. We studied the monoclinic Nd:YCOB crystal belonging to the C*m* space group, the mirror plane *m* corresponding to the *xz* plane of the dielectric frame.

2. Experimental setup and measurements

In order to be able to propagate a laser beam in any direction of propagation of Nd:YCOB, while keeping normal incidence, we cut the studied sample as a sphere. We obtained a 7.44-mm-diameter sphere with an asphericity below 1% that was polished to optical quality. In order to perform absorption coefficient measurements over the full space angular distributions, we implemented the same kind of experimental setup as that used in reference [2]: a beam emitted by a 10Hz-repetition rate Panther Optical Parametric Oscillator (OPO) with a FWHM pulse duration of 5 ns was properly focused in the sphere previously stuck under X-rays orientation on a goniometric head and then placed at the center of a Kappa circle. Thus the sphere could be rotated providing the possibility to propagate an optical beam along any direction marked out by the angles of spherical coordinates (θ,φ) in the dielectric frame. The linear polarization of the incident OPO beam was precisely adjusted using a half-wave plate. By this way it was possible to discriminate the absorption coefficient corresponding to each of the two polarization modes in any considered direction, which was of crucial importance in the framework of the present study : the corresponding amplitudes are written $\alpha_+(\theta,\varphi)$ and $\alpha_-(\theta,\varphi)$, with $\alpha_+ > \alpha_-$ by convention.

The two absorption coefficients $\alpha_{+,-}(\theta,\varphi)$ were determined from measurements of the corresponding total transmission coefficients $T_{+,-}(\theta,\varphi)$ of the incident OPO beam through the sphere, by taking into account Fresnel transmission $T^F_{+,-}(\theta,\varphi)$ relative to the entrance and exit surfaces of the sphere, according to :

$$\alpha_{+,-}(\theta,\varphi) = -\frac{1}{L}\ln\left(\frac{T_{+,-}(\theta,\varphi)}{T^F_{+,-}(\theta,\varphi)}\right) \quad (1)$$

L is the sphere diameter. The angles of the spherical coordinates (θ,φ) are defined by $u_x = \sin\theta\cos\varphi$, $u_y = \sin\theta\sin\varphi$, $u_z = \cos\theta$, where (u_x, u_y, u_z) are the Cartesian coordinates of the considered direction of propagation $\vec{u}$ in the dielectric frame. In order to get a significant absorption, we performed our experiment at 0.812 µm, which has been reported as one of the highest absorption peaks of Nd^{3+} ions in the matrix YCOB [3].

The measurements were performed in planes containing the *z*-axis and oriented successively at φ = 20°, φ = 40°, φ = 60° and φ = 90° (*yz* plane) as shown in Fig. 1(a), (b), (c) and (d) respectively. Based on sphere rotations by steps of θ = 5°, each of these four planes were scanned over 360°. Due to dead angles of the Kappa circle, the sphere had to be stuck successively along the *x*-axis and *y*-axis. The two patterns of Fig. 1(d) are the only ones to be symmetrical since they are relative to a principal plane, *i.e.* the *yz* plane : the circular pattern corresponds to the polarization oriented along the *x*-axis, while the elliptical-like one is relative to a polarization contained in the *yz* plane. Note also that for the scans in the three other planes, *i.e.* Figs. 1(a) - 1(c), the two polarization modes are not anymore orthogonal to

#110576 - $15.00 USD Received 24 Apr 2009; revised 29 Jun 2009; accepted 1 Jul 2009; published 19 Oct 2009
(C) 2009 OSA

each other since the propagation is taking place out of a principal plane of the index surface in the biaxial crystal [1].

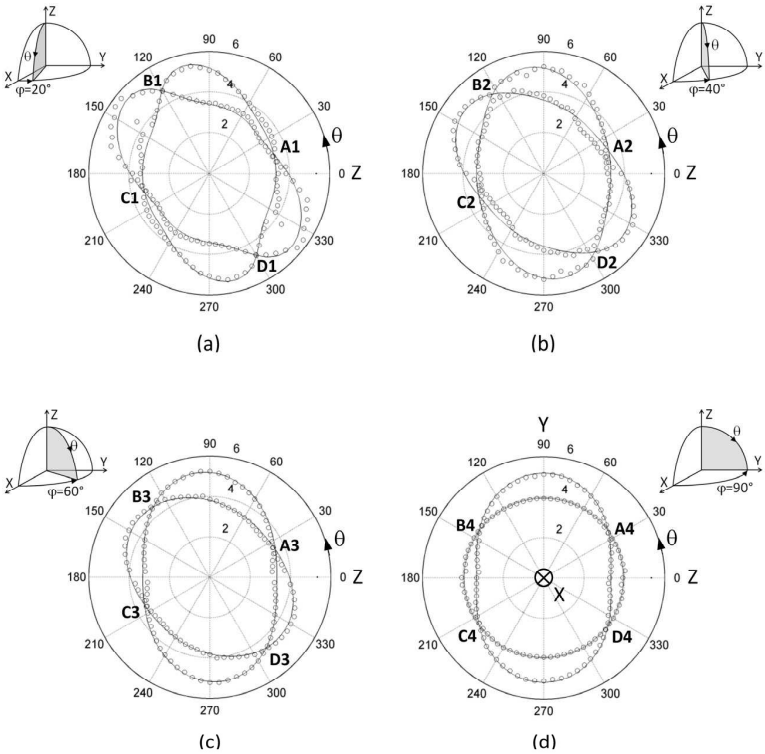


Fig. 1. Polar representation in the dielectric frame (*x, y, z*) as a function of the θ angle of the absorption coefficients $\alpha_+(\theta,\varphi)$ and $\alpha_-(\theta,\varphi)$ relative to the two polarization modes at 0.812 µm in four planes containing the *z*-axis at different φ angles. The circles stand for the data recorded in a 7.44-mm-diameter Nd:YCOB sphere ; the continuous lines are calculated curves. The concentric circles stand for the polar scale in 2, 4 and 6 cm^{-1} giving the magnitude of the absorption coefficients

Figures 1(a) – d) show that the angular distributions exhibit four points of intersection (A_i, B_i, C_i, D_i) in the four scanning planes i = 1, 2, 3 and 4. It means that along the corresponding directions the magnitude of the absorption coefficient is the same for the two polarization modes. Figure 2 gives the spherical coordinates of these particular directions in the half-space 0° < θ < 180° combined with other measurements performed in other scanning planes: it appears that there exists a continuum of such directions, ranging from the *xz* to *yz* planes.

#110576 - $15.00 USD Received 24 Apr 2009; revised 29 Jun 2009; accepted 1 Jul 2009; published 19 Oct 2009
(C) 2009 OSA

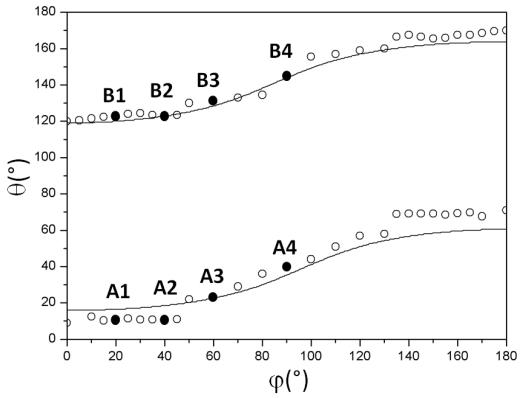


Fig. 2. Spherical coordinates of the direction of propagation for which the magnitude of the absorption coefficient is the same for the two polarization modes. The circles correspond to the experimental data recorded in a 7.44-mm-diameter Nd:YCOB sphere, the black ones corresponding to the intersection dots A_i and B_i, with i = 1, 2, 3 and 4, defined in Fig.1. The continuous lines are calculated curves.

3. Calculation of angular variations of absorption coefficients

Our experimental data are unexpected if we simply refer to the index surface of a biaxial crystal which shows equal values of the indices only along four directions located in the *xz* plane of the dielectric frame. Nevertheless, the singular topology of the absorption angular distribution reported here can be fully explained by a theoretical description using Maxwell equations that explicitly take into account the biaxial anisotropy at the level of the imaginary part of the linear complex permittivity tensor as described hereafter.

The angular distribution of the absorption coefficient $\alpha_{+,-}(\theta,\varphi)$ is expressed as:

$$\alpha_{+,-}(\theta,\varphi)=\frac{4\pi}{\lambda}n'_{+,-}(\theta,\varphi) \tag{2}$$

where λ is the wavelength and $n'_{+,-}(\theta,\varphi)$ is the angular distribution of the imaginary part of the complex index $\hat{n}$. This index can be determined from the calculation of the determinant of the following linear system combining the projection of the electric field propagation equation along the three principal axes of the dielectric frame (*x, y, z*), *i.e.*:

$$\begin{cases}\left(\frac{(\varepsilon_{xx}+j\varepsilon'_{xx})}{\varepsilon_0}-\hat{n}^2(u_y{}^2+u_z{}^2)\right)E_x+\left(\frac{(\varepsilon_{xy}+j\varepsilon'_{xy})}{\varepsilon_0}+\hat{n}^2u_xu_y\right)E_y+\left(\frac{(\varepsilon_{xz}+j\varepsilon'_{xz})}{\varepsilon_0}+\hat{n}^2u_xu_z\right)E_z=0\\ \left(\frac{(\varepsilon_{yx}+j\varepsilon'_{yx})}{\varepsilon_0}+\hat{n}^2u_yu_x\right)E_x+\left(\frac{(\varepsilon_{yy}+j\varepsilon'_{yy})}{\varepsilon_0}-\hat{n}^2(u_x{}^2+u_z{}^2)\right)E_y+\left(\frac{(\varepsilon_{yz}+j\varepsilon'_{yz})}{\varepsilon_0}+\hat{n}^2u_yu_z\right)E_z=0\\ \left(\frac{(\varepsilon_{zx}+j\varepsilon'_{zx})}{\varepsilon_0}+\hat{n}^2u_zu_x\right)E_x+\left(\frac{(\varepsilon_{zy}+j\varepsilon'_{zy})}{\varepsilon_0}+\hat{n}^2u_zu_y\right)E_y+\left(\frac{(\varepsilon_{zz}+j\varepsilon'_{zz})}{\varepsilon_0}-\hat{n}^2(u_x{}^2+u_y{}^2)\right)E_z=0\end{cases} \tag{3}$$

(E_x, E_y, E_z) are the Cartesian coordinates of the electric field of the considered polarization mode in the direction of propagation $\vec{u}$ with the coordinates (u_x, u_y, u_z). The ε_{ij} and

#110576 - $15.00 USD Received 24 Apr 2009; revised 29 Jun 2009; accepted 1 Jul 2009; published 19 Oct 2009
(C) 2009 OSA

ε'_{ij} coefficients, with $(i, j) = (x, y, z)$, are respectively the real and imaginary part of the linear complex permittivity tensor satisfying the equality $\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{ji}$ and $\varepsilon'_{ij} = \varepsilon'_{ji}$. They also verify the following relations imposed by the orientation symmetry, which gives for a monoclinic crystal [1] : $\varepsilon_{xy} = \varepsilon_{yx} = \varepsilon_{yz} = \varepsilon_{zy} = 0$ and $\varepsilon'_{xy} = \varepsilon'_{yx} = \varepsilon'_{yz} = \varepsilon'_{zy} = 0$. Then in that case, system (3) has to be written by considering the five following non zero coefficients of the complex permittivity tensor *i.e.* : $\varepsilon_{xx} + j\varepsilon'_{xx}$, $\varepsilon_{yy} + j\varepsilon'_{yy}$, $\varepsilon_{zz} + j\varepsilon'_{zz}$ and $\varepsilon_{xz} + j\varepsilon'_{xz} = \varepsilon_{zx} + j\varepsilon'_{zx}$.

We used two calculation steps for the interpretation of our experimental data. At first by using Eqs. (2) and (3), we fitted the absorption angular distribution measured in the *xz* plane in order to determine the non zero coefficients of the real and imaginary parts of $\hat{\varepsilon}$ of Nd:YCOB at 0.812 µm. As this tensor is expressed in the dielectric frame, the non diagonal coefficients of the real part are nil, *i.e.* $\varepsilon_{xz} = \varepsilon_{zx} = 0$, so that the two non diagonal coefficients of $\hat{\varepsilon}$ are purely imaginary. The fit can be made numerically or using analytical expressions of the determinant under the weak absorption approximation, *i.e.* $\varepsilon' << \varepsilon$, leading to :

$$\begin{aligned} &\varepsilon_{xx} = \varepsilon_0 n_x^2 \qquad \varepsilon_{yy} = \varepsilon_0 n_y^2 \qquad \varepsilon_{zz} = \varepsilon_0 n_z^2 \\ &\varepsilon'_{xx} = 2\varepsilon_0 n'_1 n_x \qquad \varepsilon'_{yy} = 2\varepsilon_0 n'_2 n_y \qquad \varepsilon'_{zz} = 2\varepsilon_0 n'_3 n_z \\ &\varepsilon'_{xz} = \varepsilon_0 n'_4 (n_x + n_z) = \varepsilon'_{zx} = \varepsilon_0 n'_4 (n_z + n_x) \end{aligned} \tag{4}$$

with $n_1' = 2.55 \pm 0.03 \times 10^{-5}$, $n_2' = 2.15 \pm 0.05 \times 10^{-5}$, $n_3' = 3.35 \pm 0.03 \times 10^{-5}$, $n_4' = 0.9 \pm 0.05 \times 10^{-5}$. The values of the principal refractive indices were calculated using Sellmeier equation of reference [3], *i.e.* at 0.812 µm : $n_x = 1.6462$, $n_y = 1.7008$, $n_z = 1.7190$. Note that the weak absorption approximation is validated since the found imaginary part of the complex index is five orders of magnitude smaller than the real part.

In a second step, the values of ε_{xx}, ε_{yy}, ε_{zz}, ε'_{xx}, ε'_{yy}, ε'_{zz} and $\varepsilon'_{xz} = \varepsilon'_{zx}$ are used in system (3), where $\hat{n}^2$ is the only unknown parameter. The numerical resolution of system (3) by stating a zero determinant led to the two non zero solutions $\hat{n}^2_+$ and $\hat{n}^2_-$ as a function of the direction of propagation $\vec{u}(\theta,\varphi)$: only the solutions $\hat{n}_+$ and $\hat{n}_-$ with positive real parts are considered in order to keep strictly positive refractive indices. Then the respective imaginary part $n'_+(\theta,\varphi)$ and $n'_-(\theta,\varphi)$ allowed us to calculate $\alpha_+(\theta,\varphi)$ and $\alpha_-(\theta,\varphi)$ from relation (2). The corresponding curves are plotted in Figs. 1(a) - 1(d). The calculated curves of Fig. 2 are numerically obtained by stating $\alpha_+(\theta,\varphi) = \alpha_-(\theta,\varphi)$. The agreement between calculations and measurements is very satisfying.

In order to have a three-dimensional picture of the angular distribution of absorption of Nd:YCOB at 0.812 µm, we calculated the patterns of Fig. 3(a) in one quarter of the space by using the fitting data given above. Figure 3(a) well shows that the angular distribution of the absorption coefficient of a biaxial crystal is made of two layers that intersect over a continuous curve. The behavior is completely different in the case of the well known index surface, as shown in Fig. 3(b). Note that in order to have a better visibility in Fig. 3(b), we considered a fictive biaxial crystal with a birefringence that is artificially enhanced compared with that of Nd:YCOB : for the calculation we used $n_x = 1$, $n_y = 3$ and $n_z = 6$.

#110576 - $15.00 USD Received 24 Apr 2009; revised 29 Jun 2009; accepted 1 Jul 2009; published 19 Oct 2009
(C) 2009 OSA

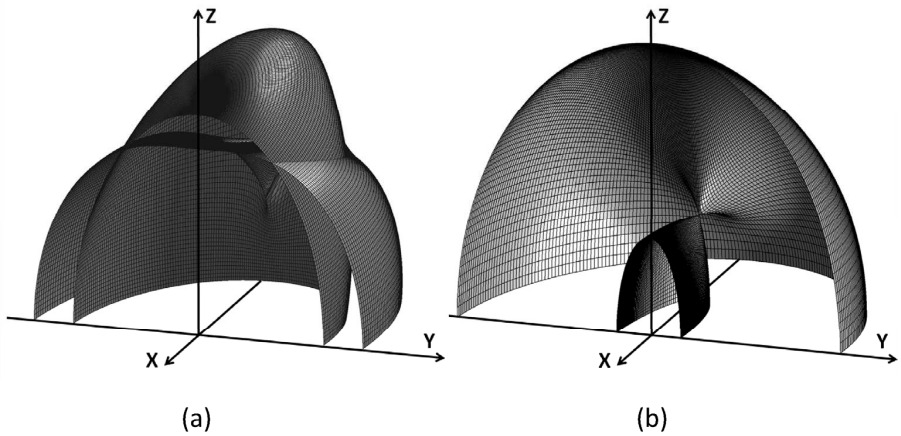


Fig. 3. (a). Calculated absorption angular distribution of Nd:YCOB at 0.812 µm, and (b) calculated index surface of a fictive monoclinic crystal with $n_x = 1$, $n_y = 3$ and $n_z = 6$ in one quarter of the space.

Figure 3(b) well indicates that the contact between the exterior and interior layers of the index surface only lies in the *xz* plane.

The patterns of Figs. 3(a) and 3(b) are relative to a monoclinic crystal, but their behaviours are representative of any other biaxial crystal, either orthorhombics or triclinics. That can be easily verified by following the same procedure similar to that used here for the monoclinic case.

4. Conclusion

This study represents what we believe to be the first experimental determination of the full absorption angular distribution of a biaxial crystal. It is described by two layers that are relative to the two polarization modes and that intersect along continuous curves, the corresponding directions then exhibiting a polarization-independent behavior of the absorption. This result brings a new fundamental knowledge in biaxial crystal optics, but it is also relevant for applications when for example thermal considerations become significant. Actually, when powerful and non polarized laser beams are used in biaxial crystals, it could be interesting to propagate them in the directions of isotropic absorption in order to minimize the mechanical stress in accordance with dilatation tensor coefficients of a crystal [4].

Such original three-dimensional topology of angular distributions should also be considered each time the imaginary part of the linear susceptibility is assessed in biaxial media, as for fluorescence of nanocrystals [5], intrinsic electric conductivity [1] and laser-induced photoconductivity related to scintillation mechanisms [6]. Finally, our result is also relevant for the interpretation of frequency-degenerate nonlinear light scattering in $Sn_2P_2O_6$ which is a monoclinic crystal belonging as Nd:YCOB to the crystal class *m* [7].

#110576 - $15.00 USD Received 24 Apr 2009; revised 29 Jun 2009; accepted 1 Jul 2009; published 19 Oct 2009
(C) 2009 OSA

Annexe B

P. Segonds, S. Joly, B. Boulanger, Y. Petit, C. Félix, B. Ménaert, G. Aka

Laser and self-doubling properties of a Nd :YCOB crystal cut as a sphere and inserted in a cavity

Journal of Optical Society of America Vol 26, N 4 (2009)

750 J. Opt. Soc. Am. B/Vol. 26, No. 4/April 2009 Segonds *et al.*

Laser and self-doubling properties of a Nd:YCOB crystal cut as a sphere and inserted in a cavity

Patricia Segonds,[1,*] Simon Joly,[1] Benoît Boulanger,[1] Yannick Petit,[1,2] Corinne Félix,[1] Bertrand Ménaert,[1] and Gérard Aka[3]

[1]*Institut Néel CNRS/UJF, 25 rue des Martyrs, BP 166, F38402 Grenoble, Cedex 9, France*
[2]*Université de Genève, 20 rue de l'Ecole de Médecine, Genève, Switzerland*
[3]*Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Paris, Paris, France*
**Corresponding author: patricia.segonds@grenoble.cnrs.fr*

Received January 8, 2009; accepted January 23, 2009;
posted February 12, 2009 (Doc. ID 105737); published March 19, 2009

We propose what we believe to be for the first time a method for the direct characterization of the angular distribution of laser and self-doubling properties. It is based on the rotation of a sample cut as a sphere and inserted between two plane mirrors. We studied the monoclinic crystal Nd:YCOB. The only data that are mandatory to know are the crystal class and the orientation of the sphere in the dielectric frame. © 2009 Optical Society of America

OCIS codes: 140.3460, 190.2620, 120.3930, 160.4670.

1. INTRODUCTION

Solid-state lasers usually combine a fluorescent crystal inserted inside a stable laser cavity, which is associated with an extracavity or intracavity nonlinear crystal providing, for example, the second-harmonic generation (SHG) of the laser emission. But today there is a real interest in self-doubling crystals able to directly perform SHG of their fluorescence since more robust and compact solid-state sources could be designed. The main promising self-doubling materials are crystals based on a nonlinear matrix doped with lanthanide fluorescent ions, as, for example, Nd:YCOB, Nd:GAB, Nd:YAB, or Yb:YAB [1–3]. Self-doubling requires anisotropic crystals to ensure phase-matching, and it occurs when it is pumped at a wavelength leading to a maximum of the fluorescence emission. It is also important to select the polarization state of the fluorescence exhibiting the larger cross section. However, this polarization must correspond to the one imposed by phase-matching. Thus the characterization of self-doubling materials is complex.

Up to now, the laser and SHG properties were characterized separately: the phase-matching directions were calculated from dispersion equations of the principal refractive indices measured using the minimum deviation technique in oriented crystals cut as prisms [4] or were directly measured in a crystal cut as a sphere [5]; absorption and fluorescence properties were studied from the recording of polarized light spectra in slabs oriented along the three principal axes of the dielectric frame [4], or in the crystal cut as a sphere [6]. Even if the three properties involved in self-doubling, i.e., absorption, fluorescence, and SHG, can be measured independently, it seemed to us more pragmatic and efficient to perform a direct characterization of self-doubling. It is the purpose and challenge of the present study, since to the best of our knowledge such a direct method has never been reported. In our approach, the studied crystal is cut as a sphere that can rotate inside a cavity made of two mirrors with a high reflectivity at the fluorescence wavelength. The objective is then to get a laser effect leading to self-doubling for which phase-matching angles and associated conversion efficiencies can be measured directly. Such measurements are based on our ability to know the orientation of the sphere when rotated in any direction of propagation. The sphere data that are mandatory to know are the crystal class and the orientation of the sphere in the dielectric frame.

2. THEORETICAL STUDY OF A Nd:YCOB SPHERE LASER CAVITY

The crystal sphere, with a radius R, is inserted between two plane mirrors as shown in Fig. 1. The input mirror M_1 is located at a distance d_1 from the sphere, and the output one, M_2, is located at a distance d_2. Then the full length of the studied laser cavity is $L=d_1+d_2+2R$. The reflectivity of M_1 and M_2 is close to 100% at the fluorescence wavelength λ_f. There is no pump recycling, and the cavity is nonresonant at $\lambda_f/2$ generated from self-doubling. The theoretical study of this cavity was performed considering $\lambda_f=1.061$ μm and a sphere radius of $R=3.72$ mm corresponding to our experiments; since Nd:YCOB is a biaxial crystal, three principal refractive indices of the gain medium may be involved, i.e., $n_x=1.6377$, $n_y=1.6904$, and $n_z=1.7081$ at the wavelength of 1.061 μm [7].

We used the *ABCD* transfer matrix written in the paraxial rays approximation for the description of any optical element of the laser cavity [8]. The gain medium of index n cut as a sphere of radius R behaves like a spherical lens with a focal length $f_{sphere}=Ra^{-1}$, where $a=2(n-1)n^{-1}$. Since $a>0$, the sphere is a focusing lens, and with $n=n_y=1.6904$ and $R=3.72$ mm we get $a=0.817$ and $f_{sphere}=4.55$ mm. Our calculations are complementary from the ones used in high-energy Nd:YAG lasers where

0740-3224/09/040750-4/$15.00 © 2009 Optical Society of America

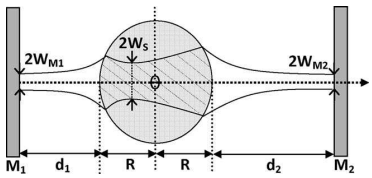


Fig. 1. Crystal sphere of radius R inserted at (d_1,d_2) distances from two plane mirrors (M_1,M_2) of a laser cavity; W_{M_1}, W_{M_2}, and W_S are the laser beam-waist radii.

the gain medium cut as a slab induces a thermal lens [9] or from the description of an optical parametric oscillator using a nonlinear crystal cut as a cylinder and inserted between two mirrors [10].

From the calculation of the trace of the $ABCD$ transfer matrix, we obtained the following equation defining the stability domain of the cavity shown in Fig. 1:

$$0 < g_1 g_2 < 1 \text{ with } g_i = a\frac{d_i}{R} + a - 1, \quad i = 1,2. \tag{1}$$

The corresponding representation is given in Fig. 2 in the case of the considered Nd:YCOB sphere. It is shown in the positive quarter of the (d_1,d_2) space through the distance d_2 plotted as a function of the distance d_1. Figure 2 shows a stability domain completely symmetrical as a function of d_1 or d_2. Moreover, it can be divided into two separated domains according to the values of these two distances compared to that of the distance defined as $d_0=R(1-a)a^{-1}=0.833$ mm. The extension of the first domain, called I, corresponds to $0<d_i<d_0$ where $i=1$ or 2; the second domain, called II, is for $d_0<d_1$ and $d_0<d_2<d_0+(Ra^{-1})^2(d_1-d_0)^{-1}$. Since the dimensions of domain I are small, an enlargement is given in the inset of Fig. 2.

For all possible stable configurations, the two beam waists located on the two plane mirrors M_1 and M_2 have their radii W_{M_1} and W_{M_2}, respectively, given by

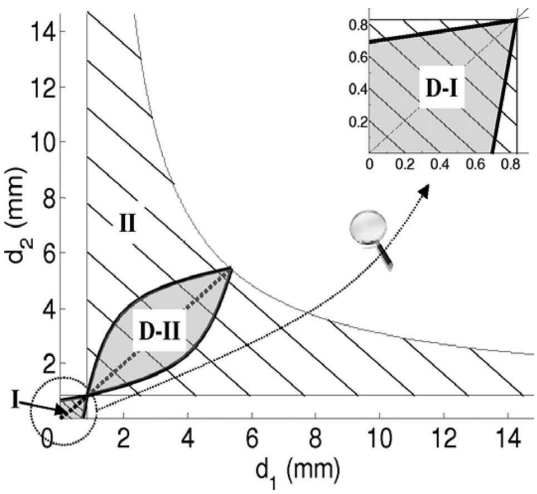


Fig. 2. Stability domains I and II (hachures) and underdomains D-I and D-II (gray areas) of a laser cavity based on a Nd:YCOB sphere and two plane mirrors; the dashed line corresponds to a symmetrical cavity, i.e., $d_1=d_2=d$; an enlargement of I and D-I is shown in the inset.

$$W_{Mi} = \sqrt{\lambda_f B_i \pi^{-1}}(1-A^2)^{-1/4} \text{ with } A = D = (1-a^2)$$
$$- 2R^{-1}a(1-a)(d_1+d_2) + 2a^2R^{-2}d_1d_2 - 2an^{-1},$$

$$B_i = R^{-1}\{4(1-a)[R^2n^{-1} - ad_1d_2 + R2^{-1}(1-a)(d_1+d_2)]$$
$$+ 2a(-2Rn^{-1} + R^{-1}ad_1d_2)d_i - 2a(1-a)d_i^2\}, \tag{2}$$

where $i=1$ or 2 and λ_f is the fluorescence wavelength. A third intracavity beam waist is located inside the sphere as shown in Fig. 1; its radius W_S is given by

$$W_s(z) = W_{Mi}R\{[(1-n)d_i + R]^2 + (1-n)^2(\lambda_f^{-1}\pi W_{Mi}^2)^2\}^{-1/2}, \tag{3}$$

where $i=1$ or 2, W_{Mi} is defined in Eqs. (2), and z is the distance between the beam waist and the center of the sphere, i.e., $-R<z<R$. Equation (3) is valid only for values (d_1,d_2) restrained to two underdomains, D-I and D-II, shown in Fig. 2.

The most suitable situation for self-doubling is when the beam waist at W_S is located at the center of the sphere, i.e., $z=0$, because it leads to a symmetrical propagation scheme of the fundamental and second-harmonic beams inside the nonlinear medium during their round trip. This configuration is achieved in a symmetrical laser cavity, where the sphere is at equal distance d from the two plane mirrors, i.e., for $d=d_1=d_2$. It corresponds to the middle of the two underdomains D-I and D-II along the dashed line shown in Fig. 2. In this case the distance d must verify $0<d<d_0+Ra^{-1}$, where d_0 represents the crossing between D-I and D-II. Then the length of the stable symmetrical laser cavity is given by $L(d)=2(R+d)$ with $2R<L(d)<4Ra^{-1}$, and $W_{M_1}=W_{M_2}$ written W_M in the following. We found $0<d<5.39$ mm; the corresponding laser beam waist radii W_M and W_S are plotted as a function of d in Fig. 3.

The Rayleigh parameter inside the sphere, $Z_R=n\pi W_S^2\lambda_f^{-1}$, can be calculated from the value of W_S; it gives the maximum distance from both sides of the center

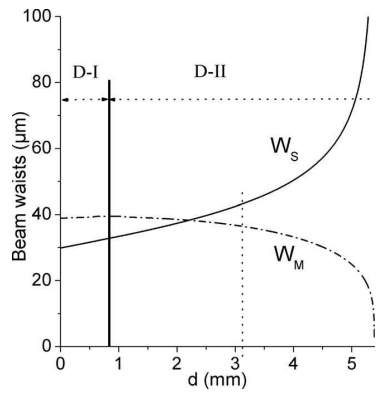


Fig. 3. Radii of the beam waists of the laser cavity: W_M (dashed line) is located on the two plane mirrors and W_S (continuous curve) at the sphere center; they are depicted as a function of the distance d of the symmetrical cavity. The longer vertical solid line shows the limit between D-I and D-II underdomains of the stability domain. The shorter dashed line is for the running values of our experiment.

of the sphere over which the laser beam propagation can be assumed as parallel. Calculations show that $Z_R > R$ is always fulfilled for all values of the distance d of the symmetrical laser cavity from underdomains D-I and D-II.

3. FIRST LASER EFFECT AND DIRECT SELF-DOUBLING MEASUREMENTS USING A Nd:YCOB SPHERE LASER

We selected for our experimental setup a running point close to the middle of D-II and corresponding to the following geometrical parameters: $d=3.11$ mm, $L=13.66$ mm, $W_S=43.2$ μm, $Z_R=9.3$ mm, and $W_M=36.5$ μm. Note that $Z_R=2.5$ R, promoting an optimized SHG under parallel beams. The 7.44 mm diameter Nd:YCOB sphere was polished to optical quality, uncoated, and stuck under X-rays on a goniometric head parallel to the b axis of the crystallographic frame also corresponding to the y axis of the dielectric frame. The whole was mounted on coupled rotating stages providing an access to the full space and inserted at equal distance $d=3.11$ mm from two plane mirrors M_1 and M_2 as depicted in Fig. 4. The reflectivity of the input mirror M_1 is 100% at $\lambda_f=1.061$ μm and $\lambda_f/2=0.5305$ μm, and its transmission is 93% at $\lambda_{pump}=0.812$ μm, corresponding to a maximum of absorption of Nd:YCOB. The reflectivity of the output mirror M_2 is 99% at λ_f, all other wavelengths being almost fully transmitted. The pump beam was emitted by a 10 Hz repetition rate parametric optical oscillator (OPO) delivering pulses with a FWHM on the order of 5 ns at the energy of 1 mJ at the input of the laser cavity.

We observed a laser effect at 1.061 μm for any direction of propagation in the Nd:YCOB sphere. The laser mode is TEM_{00} as shown in Fig. 5. When the sphere is oriented along a principal axis of the dielectric frame, both the ordinary and the extraordinary polarization components of the fluorescence can oscillate since none exhibit spatial-walk-off. Figure 6 gives their output energies measured as a function of the pump energy when the sphere is oriented along the x axis of the dielectric frame; the oscillation threshold is 278 μJ, and the laser gain is 1.45% and 0.29% for the extraordinary and ordinary laser polarization components, respectively. The extraordinary component is the most efficient because it has the highest stimulated emission cross section [6].

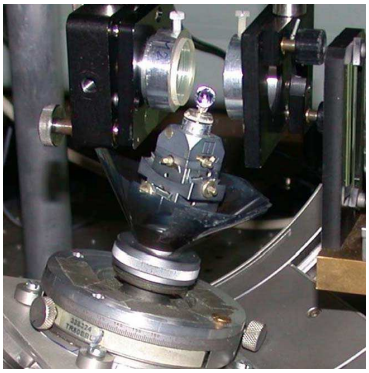


Fig. 4. (Color online) Picture of the experimental laser cavity based on a Nd:YCOB sphere mounted on rotation stages and inserted between two plane mirrors.

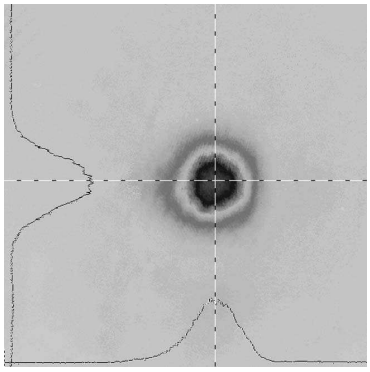


Fig. 5. TEM_{00} transverse beam profile of the laser beam at 1.061 μm emitted by the Nd:YCOB sphere laser and measured with a CCD camera.

By rotating the sphere in one quarter of the space, we have been able to directly observe type I self-doubling at 0.5305 μm; several of the corresponding phase-matching angles ($\theta_{SFD}, \varphi_{SFD}$) are reported in Fig. 7. Due to a sample sphericity of less than 1%, they have been recorded successively without any realignment of the cavity. The other phase-matching directions could have been reached by using a goniometric apparatus with a bigger angular range than the one used here. There is very good agreement between the experimental data and the phase-matching angles calculated by using the dispersion equations of the principal refractive indices of Nd:YCOB given in [7]. Note that even if the laser beam can exhibit two polarization components, only the one compatible with type I SHG phase-matching is involved in the present self-doubling experiments. The measured output second-harmonic energy is weak but sufficient for a characterization purpose since it could be recorded using standard detectors. For example, we measured 5 nJ at 0.5305 μm in the phase-matching direction ($\theta_{SFD}=29.1°$, $\varphi_{SFD}=20°$).

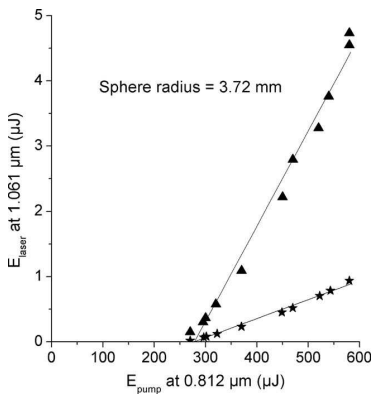


Fig. 6. Extraordinary (triangles) and ordinary (stars) components of the output laser energy at 1.061 μm emitted by the Nd:YCOB sphere laser as a function of the input pump energy at 0.812 μm; the continuous lines are fits leading to laser gains of 1.45% and 0.29%, respectively.

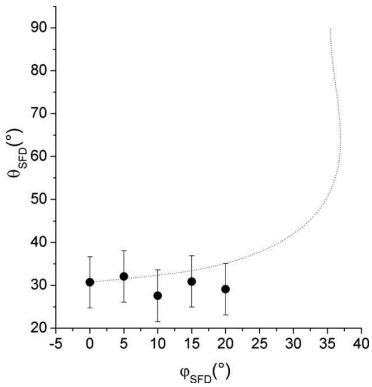


Fig. 7. Several type I self-doubling phase-matching angles ($\theta_{SFD}, \varphi_{SFD}$) directly measured in the Nd:YCOB sphere laser. The dashed curve corresponds to calculations using [7].

4. CONCLUSION

For the first time to the best of our knowledge, we report calculations and measurements relative to a laser cavity based on a gain medium cut as a sphere and inserted between two mirrors. Measurements performed in a Nd:YCOB sphere showed a low laser threshold. Moreover, the laser gain was sufficient to directly measure self-doubling phase-matching angles and the associated conversion efficiencies. This work validates the first method for a direct characterization of laser and self-doubling properties in anisotropic crystals. It is particularly of prime importance in the case of monoclinic crystals since the principal axes of absorption and fluorescence do not coincide with the dielectric frame [6].

ACKNOWLEDGMENTS

We thank Alain Brenier and Georges Boulon for fruitful discussions and the collaborative National French framework "Bulk Crystals and Optical Devices" of Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS) for financial support.

REFERENCES

1. J. M. Eichenholz, D. A. Hammons, L. Shah, Q. Ye, R. E. Peale, M. Richardson, and B. H. T. Chai, "Diode-pumped self-frequency doubling in a $Nd^{3+}:YCa_4O(BO_3)_3$ laser," Appl. Phys. Lett. **74**, 1954–1956 (1999).
2. A. Brenier, C. Tu, M. Qiu, A. Jiang, J. Li, and B. Wu, "Spectroscopic properties, self-frequency doubling, and self-sum frequency mixing in $GdAl_3(BO_3)_4:Nd^{3+}$," J. Opt. Soc. Am. B **18**, 1104–1110 (2001).
3. P. Dekker and J. M. Dawes, "Characterisation of nonlinear conversion and crystal quality in Nd- and Yb-doped YAB," Opt. Express **12**, 5922–5930 (2004).
4. See, for example, G. Aka, A. Kahn-Harari, F. Mougel, D. Vivien, F. Salin, P. Coquelin, P. Colin, D. Pelenc, and J. P. Damelet, "Linear- and nonlinear-optical properties of a new gadolinium calcium oxoborate crystal, $Ca_4GdO(BO_3)_3$," J. Opt. Soc. Am. B **14**, 2238–2247 (1997).
5. J.-P. Fève, B. Boulanger, O. Pacaud, I. Rousseau, B. Ménaert, G. Marnier, P. Villeval, C. Bonnin, G. M. Loiacono, and D. N. Loiacono, "Phase-matching measurements and Sellmeier equations over the complete transparency range of $KTiOAsO_4$, $RbTiOAsO_4$, and $CsTiOAsO_4$," J. Opt. Soc. Am. B **17**, 775–780 (2000).
6. Y. Petit, B. Boulanger, P. Segonds, C. Félix, B. Ménaert, J. Zaccaro, and G. Aka, "Absorpton and fluorescence anisotropies of monoclinic crystals: the case of Nd:YCOB," Opt. Express **16**, 7997–8002 (2008).
7. P. Segonds, B. Boulanger, B. Ménaert, J. Zaccaro, J. P. Salvestrini, M. D. Fontana, R. Moncoragé, F. Porée, G. Gadret, J. Mangin, A. Brenier, G. Boulon, G. Alka, and D. Pelenc, "Optical characterization of $Ca_4YO(BO_3)_3$ and $Nd:Ca_4YO(BO_3)_3$ crystals," Opt. Mater. **29**, 975–982 (2007).
8. H. Kogelnik and T. Li, "Laser beams and resonators," Appl. Opt. **5**, 1550–1567 (1966).
9. N. Hodgson and H. Weber, "Influence of spherical aberration of the active medium on the performance of Nd:YAG lasers," IEEE J. Quantum Electron. **29**, 2497–2507 (1993).
10. J. P. Fève, O. Pacaud, B. Boulanger, B. Ménaert, and M. Renard, "Tunable phase-matched optical parametric oscillators based on a cylindrical crystal," J. Opt. Soc. Am. B **19**, 222–233 (2002).

Annexe C

Simon JOLY

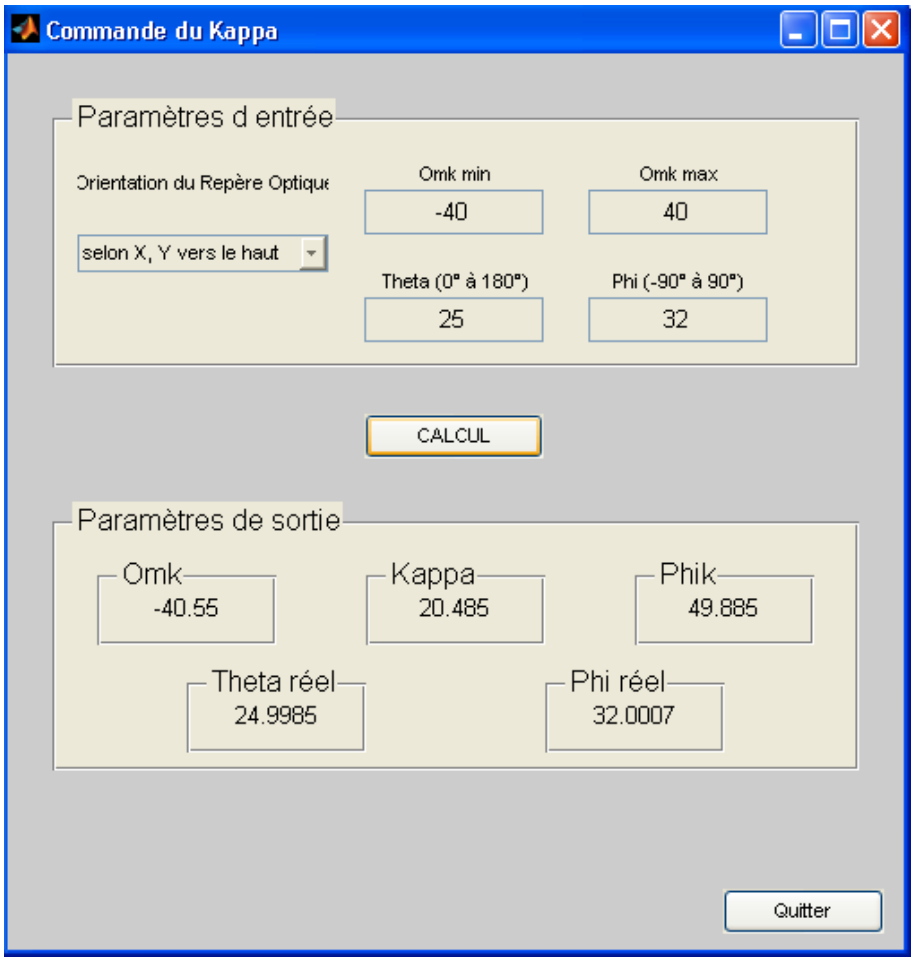
Programme : Recherche de triplets de solution d'angles Kappa à partir d'un couple d'angle sphérique (θ, ϕ)

Interface

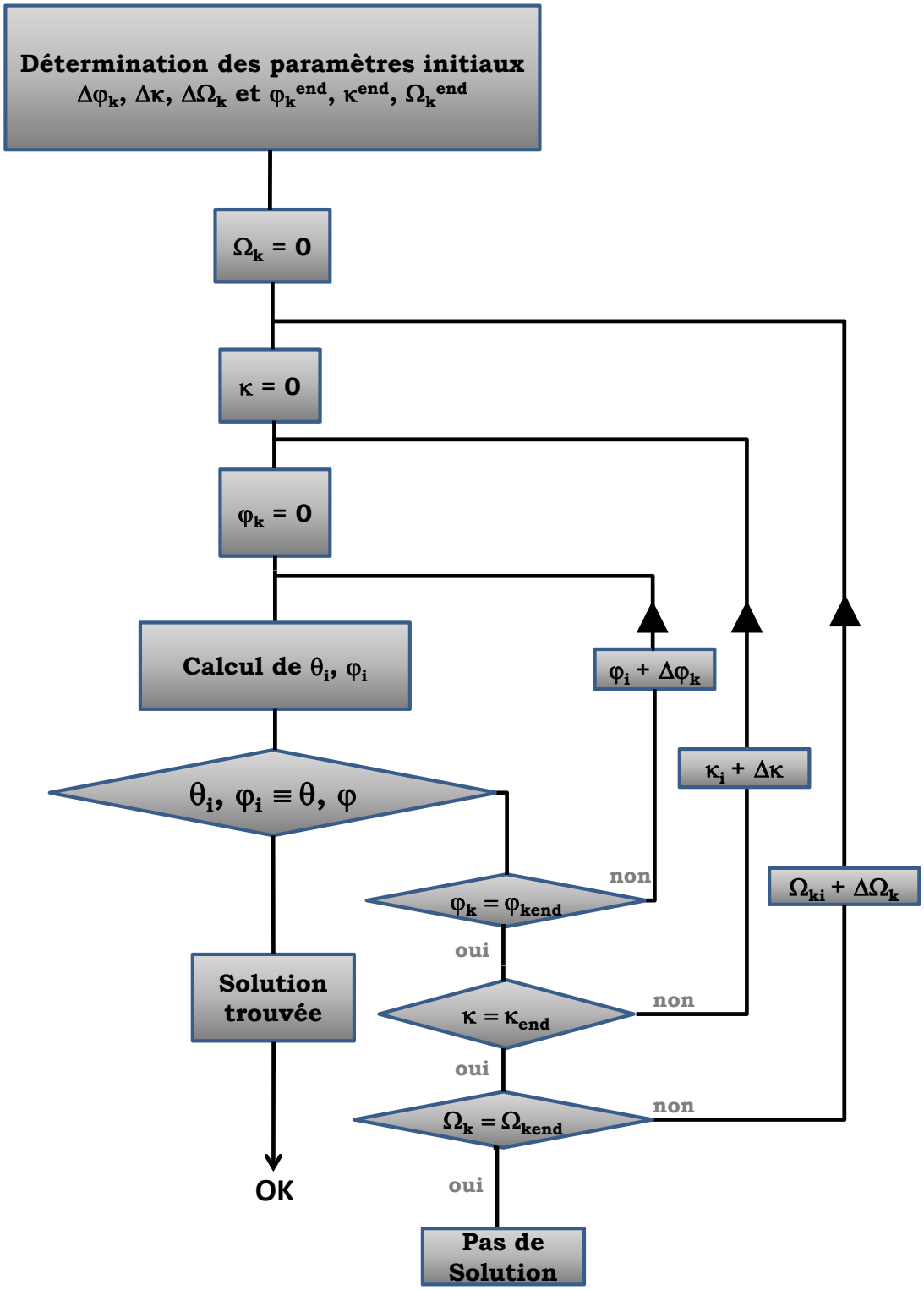
Algorigramme

Code Matlab

Interface


Commande du Kappa
Paramètres d entrée
Orientation du Repère Optique
selon X, Y vers le haut
Omk min
-40
Omk max
40
Theta (0° à 180°)
25
Phi (-90° à 90°)
32
CALCUL
Paramètres de sortie
Omk
-40.55
Kappa
20.485
Phik
49.885
Theta réel
24.9985
Phi réel
32.0007
Quitter

Algorigramme



Code Matlab

```
%% PROGRAMME RECHERCHE DE TRIPLETS DE SOLUTIONS KAPPA POUR UN COUPLE
%% THETA/PHI
function Calcul_angles

%%%% d´eclaration des variables globales
global hedit_Omk_min hedit_Omk_max hedit_Theta hedit_Phi hedit_Omk hedit_Kappa
hedit_Phik
global Omk1
global Omk2
global Theta1
global Phi1
global hedit_Theta_reel
global hedit_Phi_reel
global hlabel_Warning
global choix_orient


%PARAMETRES ENTREE

%Détermination des limites de fonctionnement du montage (encombrement)

%Conversion en double des données ecrites sur l'interface pour les %limites
d'encombrement de Omk
Limite_basse_Omk = STR2DOUBLE(Omk1);
Limite_haute_Omk = STR2DOUBLE(Omk2);

%En condition réelle la commande de l'angle Omk est décalé de 270° par
%rapport à l'angle calculé, donc on rajoute 270° à notre variable
Limite_basse_Omk = Limite_basse_Omk + 270 + 5;
Limite_haute_Omk = Limite_haute_Omk + 270;
Limite_basse_Kappa = 0;
Limite_haute_Kappa = 180;
Limite_basse_Phik = 0;
Limite_haute_Phik = 360;

%Conversion en double des données ecrites sur l'interface pour les
%commandes de Theta PHi
Theta_in = STR2DOUBLE(Theta1);
Phi_in = STR2DOUBLE(Phi1);

Theta_in = Theta_in*pi/180;
Phi_in = Phi_in*pi/180;

%Pas de calcul en degré
pas=[5 0.5 0.05 0.005 0.0005];
retour=[0 5 0.5 0.05 0.005];

%Valeur des erreurs admises sur les angles calculés
error=[3 0.3 0.03 0.003 0.0003];
error=error*pi/180;

%Angle du support de rotation Kappa
alpha = 50.*pi./180;
```

```
%test de l'orientation du repère optique choisi

%selon X
if choix_orient==1,
   UU=[-1 0 0;0 0 1;0 1 0];%Y vers le haut
end
if choix_orient==2,
   UU=[-1 0 0;0 -1 0;0 0 1];%Z vers le haut
end
if choix_orient==3,
   UU=[-1 0 0;0 0 -1;0 -1 0];%Y vers le bas
end
if choix_orient==4,
   UU=[-1 0 0;0 1 0;0 0 -1];%Z vers le bas
end

%selon Y
if choix_orient==5, %X vers le haut
   UU=[0 0 1;-1 0 0;0 -1 0];
end
if choix_orient==6,%Z vers le haut
   UU=[0 1 0;-1 0 0;0 0 1];
end
if choix_orient==7,%X vers le bas
   UU=[0 0 -1;-1 0 0;0 1 0];
end
if choix_orient==8,% Z vers le bas
   UU=[0 -1 0;-1 0 0;0 0 -1];
end

%selon Z
if choix_orient==9,
   UU=[0 0 1;0 1 0;-1 0 0];%X vers le haut
end
if choix_orient==10,
   UU=[0 -1 0;0 0 1;-1 0 0];%Y vers le haut
end
if choix_orient==11,
   UU=[0 0 -1;0 -1 0;-1 0 0];%X vers le bas
end
if choix_orient==12,
   UU=[0 1 0;0 0 -1;-1 0 0];%Y vers le bas
end


%BOUCLE principale de recherche du triplet de solution

for clac=1:1:((length(pas))-1),

        %Ajustement du pas d'incrémentation et de l'erreur attendue
        %Pas = important pour la première recherche de solution puis
        %affinement du pas dès qu'une solution est approchée
   pas_inc=pas(clac);
   retourne=retour(clac);
   erreur=error(clac);
```

```
        %Ajustement des bornes de calcul sur les trois angles Kappa si un
        %solution est approchée, par contre,
        %Si c'est la première recherche, les bornes de calculs sont celles
        %demandées par l'utilisateur
    if clac ~= 1,
        Limite_basse_Omk = sauvegarde_Omk-retourne;
        Limite_haute_Omk = sauvegarde_Omk+retourne;
        Limite_basse_Kappa = sauvegarde_Kappa-retourne;
        Limite_haute_Kappa = sauvegarde_Kappa+retourne;
        Limite_basse_Phik = sauvegarde_Phik-retourne;
        Limite_haute_Phik = sauvegarde_Phik+retourne;
    end

    %Réinitialisation de la variable indiquant si une solution est
    %approchée
    found=0;

    % les trois boucles suivantes permettent de balayer les trois angles
    % Kappa sur un pas qui est variable.
    for i=Limite_basse_Omk:pas_inc:Limite_haute_Omk,
        for j=Limite_basse_Kappa:pas_inc:Limite_haute_Kappa,
            for k=Limite_basse_Phik:pas_inc:Limite_haute_Phik,

                % Les premiers calculs ci-dessous permettent de connaitre la
                % valeurs des angles d'Euler à partir des angles du système
                % Kappa

                Omk=i*pi/180;

                Kappa=j*pi/180;

                Phik=k*pi/180;

                Khie = (2*asin(sin(alpha)*sin(Kappa./2)));

                Delta = (asin((cos(alpha)*sin(Kappa./2))/(cos(Khie/2))));

                Ome = (Omk + Delta);

                Phie = (Phik + Delta);

%Les 3 equations suivantes sont pour les cas général où        le repère du
%laboratoire est quelconque par rapport au faisceau incident

%Ux=(((cos(Phie)*cos(Ome))-(sin(Phie)*cos(Khie)*sin(Ome)))*ux-
((cos(Phie)*sin(Ome))+(sin(Phie)*cos(Khie)*cos(Ome)))*uy+
(sin(Phie)*sin(Khie))*uz);

 %Uy=(((sin(Phie)*cos(Ome))+(cos(Phie)*cos(Khie)*sin(Ome)))*ux+(
(cos(Phie)*cos(Khie)*cos(Ome))-(sin(Phie)*sin(Ome)))*uy-(cos(Phie)*sin(Khie))*uz);

 %Uz=((sin(Khie)*sin(Ome))*ux+(sin(Khie)*cos(Ome))*uy+(cos(Khie))*uz);
```

```
%les 3 equations suivantes concernent le cas ou au repos le repère du
%laboratoire est placé de telle sorte à ce que l'axe X soit dirigé vers
%le faisceaux incident, Z vers les haut, Y est déduit des 2. Par
%conséquent les trois vecteurs unitaires dans le nouveau repère ne sont
%calculé qu'a partir du vecteur ux initial (ux=1, uz=uz=0)
%ux=1,uy=0,uz=0;
        Ux=(cos(Phie)*cos(Ome))-(sin(Phie)*cos(Khie)*sin(Ome));

        Uy=(sin(Phie)*cos(Ome))+(cos(Phie)*cos(Khie)*sin(Ome));

        Uz=sin(Khie)*sin(Ome);


          %Changement de repère,pour être dans la même
          %configuration que la sphère YCOB (au repos
          %(alpha=gamma=beta=0) Y vers le bas, Z vers le
          %faisceau incident (Theta=Phi=0)
        UX = UU(1,1)*Ux+UU(1,2)*Uy+UU(1,3)*Uz;
        UY = UU(2,1)*Ux+UU(2,2)*Uy+UU(2,3)*Uz;
        UZ = UU(3,1)*Ux+UU(3,2)*Uy+UU(3,3)*Uz;

          %Détection des différents Octants de telle sorte à
          %contraindre 0 < Theta < 180°  et -90° < Phi < 90°
        if UX <0,
          Theta=pi-(acos(UZ));
        else
          Theta=acos(UZ);
        end

        Phi=(atan(UY/UX));

          %Test si Theta et Phi calculés sont proches de la
          %commande=>sauvegarde des valeurs des angles Kappa
          %correspondants
        if (Phi>(Phi_in-erreur)) & (Phi<(Phi_in+erreur)) &
    (Theta>(Theta_in-erreur)) & (Theta<(Theta_in+erreur)),
          sauvegarde_Omk=Omk*180/pi;
          sauvegarde_Kappa=Kappa*180/pi
          sauvegarde_Phik=Phik*180/pi
          sauvegarde_Phi=Phi*180/pi
          sauvegarde_Theta=Theta*180/pi
          found=1;
        end

          %Test si le programme a parcouru tout l'espace demandée
          %sans solution
        if  clac==1 & i==Limite_haute_Omk & j==Limite_haute_Kappa
          & k==Limite_haute_Phik,
          noresult=1;
        end

        if found==1,break,end
        if noresult==1,break,end
      end
      if found==1,break,end
      if noresult==1,break,end
    end
```

```
        if found==1,break,end
        if noresult==1,break,end
    end
  if noresult==1,break,end
end

%On soustrait 270° au résultat de l'angle Omk pour être conforme au zero %de la
machine (le zero degré, la position de repos de la machine %correspond à 270° réel)

%affichage des trois angles du système Kappa et du résultats réel sur %Theta et Phi
if noresult ==1,
    set(hedit_Omk, 'String', 'No Result');
    set(hedit_Kappa, 'String', 'No Result');
    set(hedit_Phik, 'String', 'No Result');
    set(hedit_Phi_reel, 'String', 'No Result');
    set(hedit_Theta_reel, 'String', 'No Result');

else
    sauvegarde_Omk = sauvegarde_Omk - 270;
    set(hedit_Omk, 'String', sauvegarde_Omk);
    set(hedit_Kappa, 'String', sauvegarde_Kappa);
    set(hedit_Phik, 'String', sauvegarde_Phik);
    set(hedit_Phi_reel, 'String', sauvegarde_Phi);
    set(hedit_Theta_reel, 'String', sauvegarde_Theta);
end

%On affiche un message de Warning si le résultats sur Theta Phi est trop
%éloigné de la commande en Theta Phi
if abs(sauvegarde_Phi-(Phi_in*180/pi))>(pas(length(pas)-1)) | abs(sauvegarde_Theta-
(Theta_in*180/pi))>(pas(length(pas)-1)),
    set(hlabel_Warning, 'String', 'Warning Résultats imprécis');
else
    set(hlabel_Warning, 'String', '');
end
```

Résumé

Ce travail de thèse concerne de nouveaux développements fondamentaux en optique cristalline linéaire et non linéaire des milieux biaxes. Il s'agit de l'étude de la distribution angulaire du coefficient d'absorption en lumière polarisée d'une part, et de l'auto-doublage de fréquence d'autre part, cette dernière propriété combinant à la fois l'effet laser et la génération de second harmonique dans le même cristal. Ces deux aspects ont été abordés avec le cristal biaxe monoclinique $Ca_4YO(BO_3)_3$ dopé avec des ions Nd^{3+} ($YCOB : Nd$) et usiné en forme de sphère.

Grâce à l'étude de la distribution angulaire de l'absorption dans le plan miroir de YCOB : Nd, nous avons montré, pour la première fois à notre connaissance, que dans un cristal monoclinique l'angle entre le repère d'absorption et le repère diélectrique dépend fortement de la transition électronique considérée. Ce résultat fondamental, propre aux cristaux monocliniques et tricliniques, a des conséquences pratiques importantes : en effet, il sera nécessaire de connaître l'orientation du repère d'absorption ou de fluorescence pour chaque longueur d'onde considérée lorsqu'il s'agira de concevoir un laser à partir d'un cristal monoclinique ou triclinique. La mesure de la distribution angulaire de l'absorption dans toutes directions de YCOB : Nd a montré que la topologie correspondante est décrite par deux nappes relatives aux deux modes de polarisation, nappes qui sont en contact selon des lignes continues définissant ainsi un continuum de directions pour lesquelles l'absorption ne dépend pas de la polarisation. Ces directions particulières pourraient trouver un intérêt dans le cadre de la gestion de la thermique vis-à-vis de l'absorption. Ces résultats sont totalement originaux et sont généralisables à tout cristal biaxe, qu'il soit orthorhombique, monoclinique ou triclinique. Conscients de la complexité d'optimiser à la fois les propriétés d'absorption, de fluorescence et d'accord de phase, nous avons conçu une méthode de caractérisation directe des propriétés d'autodoublage de fréquence, le cristal étudié étant usiné en forme de sphère puis placé entre deux miroirs. Dans ces conditions, nous avons montré qu'il est possible de mesurer directement toutes les directions d'accord de phase d'autodoublage de fréquence avec un seul échantillon du cristal à l'étude. C'est aussi la première démonstration, à notre connaissance, d'un laser dont le milieu à gain est sphérique.

Mots clés : Optique linéaire, Optique non linéaire, Absorption, Fluorescence, Distribution angulaire, Autodoublage

Abstract

The work reported in this thesis is about new fundamental developments of linear and non linear crystal optics in biaxial media. First, it is about the study of the angular distribution of the absorption coefficient in polarized light, secondly the study of self-frequency doubling is concerned, this last property combining simultaneously laser effect and second harmonic generation in the same crystal. These two studies have been performed in the monoclinic biaxial crystal Ca4YO(BO3)3 doped with Nd3+ ions (Nd :YCOB) and cut as a sphere.

Our study of the angular distribution of the absorption in the mirror plane of Nd :YCOB showed, for the first time to our knowledge, that in a monoclinic crystal the angle between the absorption frame and the dielectric frame strongly depends on the involved electronic transition. This fundamental result occurring in monoclinic and triclinic crystals has important consequences for devices since it is necessary to know the orientation of the absorption frame and of the fluorescence frame for their corresponding wavelength in order to implement a laser using a monoclinic or a triclinic crystal.

The measurement of the angular distribution of the absorption in all directions of Nd :YCOB showed that it is based on two layers propagating the two polarization modes of the medium. They cross along continuous lines defining continuous directions of propagation for which the absorption is polarization independent. These particular directions could be very interesting when dealing with thermal effects. These results are completely original and all biaxial crystals are concerned i.e. from the orthorhombic, monoclinic or triclinic crystallographic systems. Having in mind how difficult it is to optimize simultaneously absorption properties, fluorescence properties and phase-matching conditions, we implemented a method of direct characterization of self-doubling frequency, the studied crystal being cut as a sphere and inserted between two mirrors. In these conditions, we showed that it is possible to directly measure all self-doubling frequency phase-matching directions in only one sample of the studied crystal. It is also the first time, to our knowledge, that a laser which gain medium is cut as a sphere is reported.

Keywords : Linear optic, non-linear optic, Absorption, Fluorescence, Angular distribution, Self-doubling