

Dynamique électronique induite par laser dans les (D)KDP

La tenue au flux reste un enjeu pour le LMJ. Le centre du Ripault sollicité pour l'amélioration du comportement au flux des cristaux non linéaires KDP (KH_2PO_4) et DKDP (KD_2PO_4), a développé le banc SOCRATE et une modélisation spécifiques. Ce banc nanoseconde ne permettant de comprendre l'amorçage de l'endommagement, une collaboration avec le CEA – Saclay s'est engagée en 2006 pour effectuer des mesures interférométriques femtosecondes résolues en temps en mode pompe-sonde. Cette méthode permet d'accéder aux dynamiques d'excitation/relaxation des électrons nécessaires à la compréhension de l'endommagement. On montre que les électrons de valence sont excités par absorption multiphotonique et que leur relaxation dépend de l'isotope (hydrogène ou deutérium). Sur la base d'hypothèses sur les mécanismes physiques mis en jeu lors de l'interaction, un modèle évalue les diverses populations électroniques et, par comparaison aux résultats expérimentaux, détermine des constantes physiques comme les sections efficaces d'absorption multiphotonique ou les temps caractéristiques de relaxation.

G. Duchateau • G. Geoffroy Centre lasers intenses et applications (CELIA), UMR 5107 CNRS – CEA – Université Bordeaux 1
 A. Dyan • H. Piombini CEA – Le Ripault
 G. Geoffroy • S. Guizard CEA – Saclay

Les cristaux de (D)KDP utilisés pour la conversion de fréquence ont un seuil de dommage limitant le développement des lasers de puissance [1]. Les impulsions de durée 3 ns et de fluence 6 J/cm^2 induisent des éclaircissements (E) de 2 GW/cm^2 pouvant créer des dommages (LID – Laser-induced Damage) localisés. Un postulat est qu'un défaut précurseur, présent avant ou rapidement induit par l'impulsion laser, est à l'origine du LID. Une des hypothèses sur leur nature est l'existence de clusters de lacunes d'oxygène ou d'hydrogène associés à un défaut structural [2]. Des études pour la compréhension de l'endommagement des cristaux ont été initiées au Ripault en 2001 grâce au banc SOCRATE [3]. Mais ce moyen ne permet pas de comprendre les processus d'amorçage du LID. L'évolution du LID en paliers successifs selon la longueur d'onde peut être expliquée par l'introduction au cours de l'interaction d'états localisés dans le gap (SLG – States Located in band Gap). Pour aider au développement des modèles traitant du LID en régime ns [4] et comprendre les mécanismes physiques responsables de l'amorçage, nous utilisons une expérience d'interférométrie pompe/sonde femtoseconde (fs) résolue en temps pour accéder à la dynamique d'excitation et de relaxation des porteurs [5]. Pour interpréter les résultats, un modèle cinétique évaluant les différentes populations électroniques a été développé. Cette approche a permis de déterminer des paramètres physiques régissant l'interaction d'une impulsion avec les cristaux de (D)KDP.

Procédure

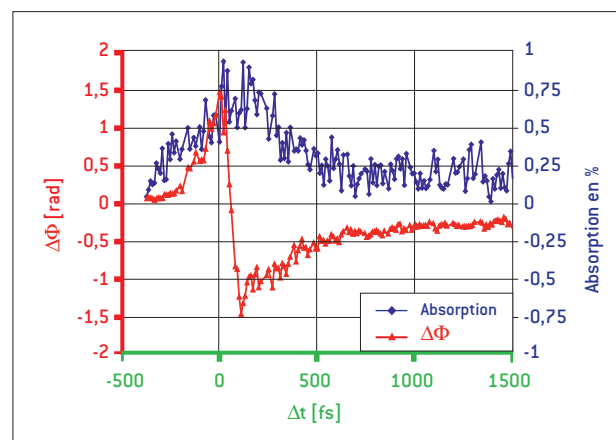
Pour cette expérience, nous utilisons le laser LUCA (CEA – Saclay) qui délivre des impulsions de 55 fs à 800 nm (1,55 eV). L'évolution du matériau pendant et après l'inte-

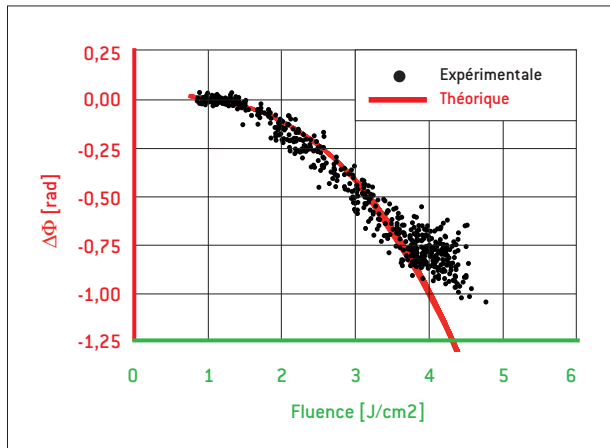
raction avec une impulsion de pompe est sondée par une méthode interférométrique dont le montage est décrit dans [5]. Les variations d'indice dues à cette pompe induisent un déphasage $\Delta\Phi$. On montre qu'il est fonction de la densité d'électrons, ces derniers étant soit promus dans la bande conduction, soit piégés dans les SLG [5]. Cette technique permet d'identifier les mécanismes d'excitation et de suivre en temps réel la relaxation.

Résultats

La figure 1 montre l'évolution de $\Delta\Phi$ selon le décalage temporel entre pompe et sonde (Δt) à E donné pour le KDP. Quand la pompe et la sonde se recouvrent (faible Δt), $\Delta\Phi$ est positif dû à l'effet Kerr. Lorsque suffisamment d'électrons de

Figure 1. Évolution du déphasage $\Delta\Phi$ en fonction du décalage temporel pompe-sonde (Δt) à un éclaircissement E donné pour le KDP.




Figure 2.

Évolution du déphasage en fonction de la fluence laser pour un retard de 150 fs.

conduction sont produits, $\Delta\Phi$ devient négatif. Les électrons se recombinent alors, entraînant à un retour de $\Delta\Phi$ vers 0. On constate d'après la **figure 1** que la dynamique de relaxation comporte 2 échelles de temps. La première, rapide avec un temps caractéristique de l'ordre de 300 fs, est attribuée à la formation d'exciton auto-piégé (STE – Self-trapped Exciton) [5]. La seconde, beaucoup plus lente, est de l'ordre de la dizaine de ps, et dépend de l'isotope d'après les mesures effectuées sur les (D)KDP. Ceci laisse penser que la migration d'atomes d'hydrogène ou de deutérium est impliquée dans le processus de relaxation électronique.

Afin d'obtenir des informations sur le mécanisme d'excitation des porteurs, on étudie l'évolution de $\Delta\Phi$ en fonction de E . Dans le cas du KDP idéal, sachant que le gap est compris entre 7,1 eV et 7,7 eV [6], un électron de valence doit absorber 5 photons (à 1,55 eV) pour être promu dans la bande de conduction. $\Delta\Phi$ devrait alors varier comme E^5 . Pour la dynamique rapide pour $\Delta t = 150$ fs (**figure 2**), l'expérience montre que $\Delta\Phi$ suit une loi en E^3 signifiant un processus d'ordre 3. La loi est linéaire pour la dynamique lente ($\Delta t = 20$ ps).

Ces résultats sont expliqués en introduisant des SLG ayant pour effet d'abaisser l'ordre multiphotonique. Ces SLG seraient dus à la présence de défauts tels que des lacunes d'hydrogène ou d'oxygène [2]. On a ainsi mis en évidence deux processus d'excitation, chacun ayant sa propre cinétique de relaxation qui sont associés à la production d'électrons de conduction pouvant rapidement

se recombiner (STE) ou briser des liaisons hydrogène pour former de l'hydrogène interstitiel dans un temps de l'ordre de 1,6 ps. La relaxation des électrons ne s'effectue qu'après la migration de ces interstitiels et le réarrangement du réseau cristallin qui prennent des dizaines de ps.

Modélisation

Les processus sont modélisés par des équations de taux pour évaluer les populations électroniques sur les niveaux [2]. On accède à l'évolution de $\Delta\Phi$ qui est comparé aux valeurs expérimentales sur la **figure 3** pour $E = 36,8$ TW/cm², selon le retard pompe/sonde. Le modèle reproduit la dynamique de relaxation pour diverses échelles de temps. Pour obtenir ces valeurs, nous ajustons des paramètres libres du modèle tels que les sections efficaces d'absorption multiphotonique ou de capture électronique. Des ordres de grandeurs sont retrouvés : par exemple, on obtient la valeur de la section efficace multiphotonique du troisième ordre $\sigma_3 = 1,3 \times 10^{-82}$ cm⁶s⁻² [5]. En outre, cette approche permet de mieux comprendre les mécanismes physiques de l'interaction.

Conclusion

La dynamique des porteurs dans le (D)KDP sont étudiées par interférométrie fs. Cette étude montre l'existence de 2 processus assistés par la présence d'états électroniques dans le gap. Le premier processus est du 3^e ordre avec une dynamique de relaxation rapide (300 fs), correspondant à des STE. Le second (~ ps, du 1^{er} ordre) est associé à la migration d'atomes H/D dans le réseau et est sensible au taux de deutération. La modélisation a identifié des paramètres et des mécanismes de l'interaction. Des essais sont prévus avec le troisième harmonique 3ω de LUCA afin d'exciter d'autres états de ces cristaux.

RÉFÉRENCES

- [1] D. YOREO *et al.*, "Developing KH₂PO₄ and KD₂PO₄ crystals for the world's most powerful laser", *Int. Mater. Rev.*, **47**(3), p. 113-152 [2002].
- [2] G. DUCHATEAU, A. DYAN, H. PIOMBINI, S. GUIZARD, « Electron-hole dynamics in normal and deuterated KH(2)PO(4) illuminated by intense femtosecond laser pulses », *Phys. Rev. B*, **83**, 075114 [2011].
- [3] B. BERTUSSI, H. PIOMBINI, D. DAMIANI, M. POMMIES, X. LE BORGNE, D. PLESSIS, "SOCRATE: an optical bench dedicated to the understanding and improvement of a laser conditioning process", *Appl. Optics*, **45**(33), p. 8506-8516 [2006].
- [4] A. DYAN, F. ENGUEHARD, S. LALLICH, H. PIOMBINI, G. DUCHATEAU, « Scaling laws in laser-induced potassium dihydrogen phosphate crystal damage by nanosecond pulses at 3ω », *J. Opt. Soc. Am., B*, **25**(6), p. 1087-1095 [2008].
- [5] P. MARTIN, S. GUIZARD, PH. DAGUZAN, G. PETITE, "Subpicosecond study of carrier trapping dynamics in wide-band-gap crystals", *Phys. Rev. B*, **55**, p. 5799-5810 [1997].
- [6] A. DYAN G. DUCHATEAU, S. ESLAVA, J.-L. STEHLE, D. DAMIANI, H. PIOMBINI, "Transmission measurements in rapid growth KDP and DKDP crystals", *J. Mod. Optics*, **56**(1), p. 27-31 [2009].

Figure 3.
Comparaison théorie-expérience du déphasage en fonction du décalage temporel pour un cristal de DKDP soumis à un éclairage de 36.8 TW/cm².

