



**HAL**  
open science

# Caractérisation non linéaire de composants optiques d'une chaîne laser de forte puissance

Stéphane Santran

► **To cite this version:**

Stéphane Santran. Caractérisation non linéaire de composants optiques d'une chaîne laser de forte puissance. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2000. Français. NNT: . tel-00009578

**HAL Id: tel-00009578**

**<https://theses.hal.science/tel-00009578>**

Submitted on 23 Jun 2005

**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.

n° d'ordre : 2342

**THESE**  
**PRESENTEE A**  
**L'UNIVERSITE BORDEAUX I**  
**ECOLE DOCTORALE DE PHYSIQUE**  
**ET DES SCIENCES DE L'INGENIEUR**

par Stéphane SANTRAN

**POUR OBTENIR LE GRADE DE**  
**DOCTEUR**  
**SPECIALITE : LASERS ET MATIERE DENSE**

\*\*\*

*Caractérisation non linéaire de composants optiques d'une chaîne laser de forte puissance.*

\*\*\*

**Soutenue le : lundi 18 décembre 2000**

**Après avis de :**

|                    |   |            |
|--------------------|---|------------|
| Jean Michel NUNZI  | Professeur, Université d'Angers                 | Rapporteur |
| Christian SAUTERET | Directeur Technique, LULI (Ecole polytechnique) | Rapporteur |

**Devant la commission d'examen formée de :**

|                     |  |                    |
|---------------------|--|--------------------|
| Gilles LE FLEM      | Directeur de Recherche, Université de Bordeaux I | Président          |
| Claude ROUYER       | Ingénieur de Recherche, (CEA/CESTA)              | Directeur de thèse |
| Bruno LE GARREC     | Assistant Scientifique, (CEA/CESTA)              | Examineur          |
| Kathleen RICHARDSON | Professeur, (University of Central Florida)      | Examineur          |
| Laurent SARGER      | Professeur, Université de Bordeaux I             | Directeur de thèse |

-- 2000 --

|   |           |
|---|-----------|
| <b>Introduction.....</b>  | <b>13</b> |
| <br><b>CHAPITRE I :</b>   |           |
| <b>Propagation d'une impulsion lumineuse dans un milieu matériel.....</b>   | <b>15</b> |
| <b>A. Introduction.....</b>   | <b>15</b> |
| <b>B. Le formalisme de l'optique non linéaire.....</b>  | <b>16</b> |
| 1. RELATION ENTRE LE CHAMP ELECTRIQUE ET LA POLARISATION.....   | 16        |
| 2. PROPRIETES DES SUSCEPTIBILITES NON LINEAIRES.....  | 17        |
| a. La polarisation est réelle.....  | 18        |
| b. La causalité.....  | 18        |
| c. La symétrie intrinsèque de permutation.....  | 18        |
| d. La symétrie d'inversion spatiale.....  | 18        |
| e. Propriété pour un milieu sans perte.....   | 19        |
| f. Propriété pour un milieu hors résonance : symétrie de Kleinman.....  | 19        |
| 3. L'EQUATION DES ONDES NON LINEAIRES.....  | 19        |
| a. Les équations de Maxwell.....  | 19        |
| b. Equation de propagation de l'impulsion lumineuse.....  | 21        |
| 4. LA DISPERSION DU SECOND ORDRE.....   | 23        |
| <b>C. Solutions de l'équation de propagation dans quelques cas particuliers : processus non linéaire d'ordre trois.....</b> | <b>25</b> |
| 1. L'AUTOMODULATION DE PHASE.....   | 25        |
| 2. L'AUTO-RAIDISSEMENT OU « SELF-STEPPING » .....   | 27        |
| 3. AUTO-FOCALISATION ET SOLITONS SPATIAUX.....  | 30        |
| 4. PROPAGATION SOLITON ET EQUATION DE SCHRÖDINGER NON LINEAIRE.....   | 32        |
| 5. GENERATION DE TROISIEME HARMONIQUE.....  | 33        |
| 6. L'ABSORPTION A DEUX PHOTONS.....   | 33        |
| 7. DIFFUSION INELASTIQUE (STIMULATED INELASTIC SCATTERING) .....  | 33        |
| <b>D. Complément I.1. : Origine de la non linéarité optique.....</b>  | <b>34</b> |
| 1. CAS D'UN CHAMP ELECTRIQUE FAIBLE : OSCILLATIONS LINEAIRES.....   | 34        |
| 2. CHAMP ELECTRIQUE FORT : OSCILLATIONS NON LINEAIRES.....  | 35        |
| a. Milieu non centrosymétrique, sommation de fréquences, différences de fréquences....                                      | 35        |
| b. Milieu centrosymétrique.....   | 37        |
| <b>E. Complément I.2. : Quelques formes de tenseurs de susceptibilité d'ordre 2 et 3 utilisées dans ce manuscrit.....</b>   | <b>38</b> |
| 1. SUSCEPTIBILITE D'ORDRE 2.....  | 38        |
| 2. SUSCEPTIBILITE D'ORDRE 3.....  | 38        |
| <br><b>CHAPITRE II :</b>  |           |
| <b>Obtention et caractérisation des impulsions courtes.....</b>   | <b>41</b> |
| <b>A. La source laser utilisée.....</b>   | <b>42</b> |
| 1. L'OSCILLATEUR TITANE SAPHIR. ....  | 42        |
| 2. L'UNITE DE DOUBLAGE.....   | 44        |
| 3. LASER DE POMPE.....  | 47        |
| a. Le Verdi 5W de Coherent.....   | 47        |
| b. Le Millennia 10W de Spectra Physics. ....  | 48        |
| 4. NOUVELLES SOURCES LASERS. ....   | 49        |

|  |    |
|--|----|
| <b>B. Caractérisation des impulsions lumineuses.</b> .....                                       | 51 |
| 1. MESURE DE LA PUISSANCE MOYENNE D'UN FAISCEAU LASER. ....                                      | 52 |
| 2. MESURE DE LA TAILLE DU COL DU FAISCEAU.....   | 52 |
| a. Mesure de la taille du col du faisceau avec le BeamScan.....                                  | 53 |
| b. Mesure de la taille du col du faisceau avec une simple photodiode.....                        | 55 |
| c. Mesure de la taille du col du faisceau avec une lame et un détecteur.....                     | 55 |
| d. Mesure de la taille du col du faisceau à l'aide du signal non linéaire.....                   | 56 |
| 3. MESURE DE LA LONGUEUR D'ONDE. ....  | 57 |
| 4. ESTIMATION DE LA LARGEUR TEMPORELLE PAR AUTOCORRELATION<br>(TECHNIQUE CLASSIQUE) .....        | 58 |
| a. Autocorrélation utilisant un cristal non linéaire. ....                                       | 58 |
| b. Autocorrélation directe dans une photodiode. ....   | 60 |
| c. Mesure de la largeur temporelle à 400nm. ....   | 61 |
| 5. PRISE EN COMPTE DE LA FORME TEMPORELLE EXACTE DES IMPULSIONS :<br>« TECHNIQUE CANIONI ». .... | 62 |
| <b>C. Conclusion</b> .....   | 64 |

### CHAPITRE III :

|  |    |
|--|----|
| <b>Mesures d'indices non linéaires en configuration d'absorption transitoire</b> ..... | 67 |
|--|----|

|   |    |
|---|----|
| <b>A. Récapitulatif des différentes techniques de mesures de l'indice non linéaire, avantages et inconvénients de chacune</b> ..... | 67 |
| 1. MESURE A L'AIDE DE LA TECHNIQUE Z-SCAN<br>(SIGNAL LINEAIRE, 1 FAISCEAU, DEGENEREE, MESURE RELATIVE) .....                        | 67 |
| 2. MESURE PAR GENERATION DE TROISIEME HARMONIQUE<br>(SIGNAL NON LINEAIRE, 1 FAISCEAU, DEGENEREE, MESURE RELATIVE) .....             | 70 |
| 3. MESURE A L'AIDE DU MONTAGE KERR<br>(SIGNAL NON LINEAIRE, 2 FAISCEAUX, DEGENEREE, MESURE RELATIVE) .....                          | 70 |
| 4. MESURE PAR CARACTERISATION DE L'IMPULSION.....   | 71 |
| 5. MESURE PAR MELANGE A TROIS ONDES NON DEGENEREEES (TWM)<br>(SIGNAL NON LINEAIRE, 2 FAISCEAUX, NON DEGENEREE) .....                | 72 |
| 6. MESURE PAR MELANGE A QUATRE ONDES DEGENEREEES (DFWM)<br>(SIGNAL NON LINEAIRE, 3 FAISCEAUX, DEGENEREE, MESURE ABSOLUE) .....      | 72 |
| 7. MESURE PAR INTERFEROMETRIE<br>(SIGNAL LINEAIRE, 2 FAISCEAUX, DEGENEREE, MESURE RELATIVE) .....                                   | 73 |
| <b>B. Technique pompe sonde colinéaire : dispositif expérimental</b> .....  | 74 |
| 1. REGLAGE DE L'EXPERIENCE. ....  | 75 |
| 2. QUELQUES PARTICULARITES SUR L'EXPERIENCE A LA LONGUEUR<br>D'ONDE DE 400NM. ....  | 77 |
| 3. ACQUISITION DU SIGNAL.....   | 78 |
| a. Retard lent.....   | 78 |
| b. Retard rapide.....   | 79 |
| c. Acquisition et traitement des données.....   | 81 |
| -Transformée de Fourier à « toit plat » .....   | 82 |
| 4. EFFET DE L'AUTOCOLLIMATION DE L'ECHANTILLON SUR LE SIGNAL<br>NON LINEAIRE. ....  | 84 |
| 5. QUELQUES EXEMPLES DE SIGNAUX EXPERIMENTAUX   | 85 |

|   |     |
|---|-----|
| <b>C. Analyse théorique du signal expérimental.....</b>   | 87  |
| 1. CALCUL DE LA POLARISATION NON LINEAIRE.....  | 87  |
| 2. EXPRESSION DU SIGNAL ANALYTIQUE, OBTENTION DE LA SUSCEPTIBILITE<br>NON LINEAIRE DU TROISIEME ORDRE.....            | 88  |
| 3. CALCULS D'INCERTITUDES.....  | 88  |
| <b>D. Applications de l'expérience pompe sonde colinéaire à la caractérisation non linéaire en<br/>surface.....</b>   | 90  |
| 1. L'EXPERIENCE POMPE SONDE COLINEAIRE EN REFLEXION.....  | 91  |
| 2. CALCUL SIMPLIFIE DU SIGNAL EN REFLEXION.....   | 92  |
| <b>E. Complément III.1. : Résolution de l'équation de propagation du sonde par développement<br/>perturbatif.....</b> | 94  |
| <b>F. Complément III.2. : Fonctionnement du programme d'acquisition. ....</b>   | 98  |
| 1. BASES SUR WINDOWS NT4.0 POUR COMPRENDRE LE PROGRAMME.....  | 98  |
| 2. ARCHITECTURE GENERALE DE L'ENSEMBLE DES PROGRAMMES UTILISES.....   | 99  |
| 3. LE PROGRAMME D'ACQUISITION. ....   | 99  |
| a. Initialisation des paramètres de la carte. ....  | 99  |
| b. Mise en mémoire des données. ....  | 101 |
| 4. L'INTERFACE GRAPHIQUE DU PROGRAMME.....  | 102 |
| a. Les fenêtres.....  | 102 |
| b. Les fonctions principales des menus.....   | 103 |
| - <i>Statistique "glissante"</i> .....  | 103 |

## CHAPITRE IV

|   |     |
|---|-----|
| <b>Mesures d'indices non linéaires en configuration non dégénérée :<br/>interféromètre de Sagnac.....</b> | 107 |
| <b>A. Introduction.....</b>   | 107 |
| 1. L'INTERFEROMETRE DE SAGNAC : GYROSCOPE LASER.....  | 107 |
| a. Principe général.....  | 107 |
| b. Le gyroscope laser.....  | 108 |
| c. Bande passante de l'interféromètre de Sagnac.....  | 109 |
| 2. L'INTERFEROMETRE DE SAGNAC MODIFIE.....  | 109 |
| <b>B. Technique pompe sonde colinéaire non dégénérée en fréquence : interféromètre de Sagnac.....</b>     | 110 |
| 1. MONTAGE EXPERIMENTAL. ....   | 110 |
| 2. CALCUL DU SIGNAL DE DEPHASAGE NON LINEAIRE.....  | 111 |
| 3. RESULTATS EXPERIMENTAUX PRELIMINAIRES.....   | 118 |
| <b>C . Complément IV.1. : Calcul du déphasage d'un interféromètre de Sagnac en rotation.....</b>          | 121 |
| <b>D. Complément IV.2. : Calcul des intensités de sorties du Sagnac modifié.....</b>                      | 122 |
| <b>E. Complément IV.3. : Calcul du signal de déphasage non linéaire en ondes planes.....</b>              | 124 |

## CHAPITRE V

|   |     |
|---|-----|
| <b>Résultats : mesure et origine de la susceptibilité non linéaire dans les verres.....</b> | 129 |
| <b>A. Etude de la susceptibilité non linéaire de la silice fondue.....</b>                  | 129 |
| 1. INTRODUCTION.....  | 129 |
| 2. VARIATIONS DE L'INDICE NON LINEAIRE DE REFRACTION DES SILICES.....                       | 131 |

|   |     |
|---|-----|
| 3. MESURE DE L'INDICE NON LINEAIRE LOCAL SUR UN ECHANTILLON :<br>IMAGERIE ET HOMOGENEITE NON LINEAIRE.....                | 133 |
| 4. DISPERSION DE L'INDICE NON LINEAIRE DE LA SILICE FONDUE.....   | 135 |
| 5. CONTRIBUTIONS NON INSTANTANEEES DE LA NON LINEARITE DE LA SILICE.....  | 136 |
| 6. CARACTERISATION NON LINEAIRE D'UNE PREFORME DE FIBRE OPTIQUE<br>(ALCATEL FIBRES) .....                                 | 142 |
| <b>B. Etude de la susceptibilité non linéaire de verres expérimentaux à base d'oxydes.<br/>(Collaboration ICMCB).....</b> | 144 |
| 1. VERRES DE BOROPHOSPHATES DE TITANE OU DE NIOBIUM.....  | 145 |
| 2. VERRES DE TELLURE.....   | 148 |
| <b>C. Etude non linéaire sur les semi-conducteurs des photodiodes par autocorrélation.....</b>                            | 151 |
| 1. CRISTALLOGRAPHIE DE SEMICONDUCTEURS UTILISES DANS LES<br>PHOTODIODES.....  | 152 |
| a. Photodiode Si.....   | 152 |
| b. Photodiode GaAsP.....  | 153 |
| 2. SIGNAL THEORIQUE OBTENU EN FOCALISANT UN FAISCEAU DANS UNE<br>PHOTODIODE.....  | 153 |
| a. Signal d'absorption à deux photons (TPA). .....  | 153 |
| b. Signal de génération de seconde harmonique (SHG). .....  | 155 |
| c. Analyse expérimentale sur une photodiode GaAsP.....  | 156 |
| 3. ETUDE DE LA PHOTODIODE GAASP (HAMAMATSU G1116)<br>ORIENTE SUIVANT (100) .....  | 156 |
| a. Autocorrélation parallèle. ....  | 157 |
| b. Autocorrélation avec des polarisations orthogonales. ....  | 158 |
| - <i>Signal d'absorption à deux photons</i> .....   | 158 |
| - <i>Signal de génération de seconde harmonique</i> .....   | 160 |
| - <i>Analyse expérimentale des résultats</i> . ....   | 161 |
| 4. CONCLUSION.....  | 164 |
| <b>D. Complément V.1 : Calcul du signal non linéaire d'un faisceau simple dans une photodiode<br/>deux photons. ....</b>  | 164 |
| 1. PROPAGATION DU FAISCEAU SUIVANT L'AXE (100) .....  | 164 |
| 2. PROPAGATION DU FAISCEAU SUIVANT L'AXE (111) .....  | 166 |
| <b>E. Complément V.2 : Calcul du signal d'autocorrélation parallèle dans une photodiode<br/>deux photons. ....</b>        | 167 |
| <b>F. Complément V.3 : Calcul du signal d'autocorrélation croisée dans une photodiode<br/>deux photons. ....</b>          | 168 |
| <b>G. Complément V.4 : Signal de génération de seconde harmonique pour l'autocorrélation<br/>croisée. ....</b>            | 169 |
| <b>Conclusions et perspectives.....</b>   | 171 |
| <b>Annexes.....</b>   | 173 |

## Remerciements

Ce travail de thèse se place dans le cadre d'une collaboration entre le Centre de Physique Moléculaire Optique et Hertzienne (CPMOH) de l'Université de Bordeaux I et le Centre d'Etudes Scientifiques et Techniques d'Aquitaine (CESTA) du Commissariat à l'Energie Atomique (CEA). Ce travail a été financé par le CEA, la région Aquitaine et le CPMOH.

Je tiens tout d'abord à remercier Monsieur André Ducasse et Monsieur Claude Rullière, directeurs du laboratoire, de m'avoir accueilli dans un centre de haut niveau international. Je tiens à remercier en particulier André Ducasse pour le privilège que j'ai eu à assister à ces cours d'optique exemplaires m'ayant donné l'envie de continuer dans ce domaine.

Je remercie Laurent Sarger de m'avoir accueilli dans son groupe de recherche et pour la confiance qu'il m'a accordée dans le développement de la plate-forme de mesure MATLAS. Je salue sa grande culture scientifique et son optimisme à toute épreuve lui permettant de transposer des idées provenant de la recherche sauvage inhérente à tout laboratoire de recherche publique à des applications ambitieuses par transfert technologique. Je salue également ses grandes qualités humaines qui font de ce groupe de recherche certainement l'un des plus agréables du laboratoire.

Je remercie Claude Rouyer, Marc Nicolaizeau et Denis Villate du Laboratoire de Physique du Laser au CESTA de m'avoir fait confiance dans la réalisation de l'appareillage ayant pour eux une grande importance dans les chaînes lasers de forte puissance.

Ma plus profonde gratitude revient à Lionel Canioni pour l'aide précieuse qu'il m'a accordé tout le long de ce travail. Je tiens à saluer son dynamisme unique, ses compétences scientifiques et ses bouillonnements d'idées permanents qui aboutissent à des expériences sérieuses, mais aussi à des délires dans un coin de tableau ou à une entreprise virtuelle imaginée autour du plat du jour au Bilboque. Par sa jovialité permanente, ce fut réellement une grande joie de travailler avec lui.

J'adresse ma plus profonde sympathie à mes amis thésards et anciens thésards Bruno Bousquet, Natalia Delfatti, Régis Barille, Sylvain Rivet et Marc Olivier Martin que je remercie plus particulièrement pour la première partie de ce manuscrit. Je rends hommage à Sylvain qui n'ayant quasiment jamais couru, a réussi l'exploit de terminer la course Behobia – San Sebastian de 20 kms. Marc, si tu te demandes ce que l'on ressent sur les chemins à Tarzan des Astazou ou suspendu au-dessus de 400m de vide au bout d'une corde à essayer vainement de chercher un itinéraire dans la brèche Passet du Marboré, je répondrais que dans ces moments, l'on regrette un peu de ne pas être resté au laboratoire pour faire des expériences ce week-end.

Je remercie toutes les personnes de l'Institut de Chimie et de la Matière Condensée (ICMCB) avec lesquelles j'ai eu beaucoup de plaisir à travailler. La collaboration avec ce laboratoire fut très fructueuse comme en témoigne le dernier chapitre de ce manuscrit. En particulier, je tiens à remercier Gilles Le Flem pour avoir présidé le jury de ma thèse, Evelyne Fargin et Thierry Cardinal pour leur patience à expliquer à un physicien quelques rudiments de chimie.

J'adresse mes plus vifs remerciements à Kathleen Richardson professeur en Floride d'avoir accepté de juger un travail écrit en français, d'être venu assister à ma soutenance depuis la Floride juste avant les fêtes de fin d'année et d'avoir porté un grand intérêt à l'expérience développée. Je la remercie d'avance pour son invitation en Floride dans le but de continuer le travail sur la silice dans le milieu industriel.

Je suis très sensible à l'honneur que m'ont fait les membres du jury en acceptant de juger ce travail. Je remercie Christian Sauteret et Jean-Michel Nunzi d'avoir assuré la charge

de rapporter ce travail. Je remercie également Bruno Le Garrec du CEA d'avoir porté un grand intérêt à ce travail en tant qu'examineur malgré ses responsabilités.

Je remercie les électroniciens Joël Plantard, Max Winckert, Philippe Maire et Claude Lalaude pour la mécanique, pour leur patience et leur disponibilité qui ont grandement contribué à la réussite de ce travail.

Je remercie Madame Lalaude pour la superbe décoration du fauteuil de mon bureau et pour la préparation du pot de thèse.

Je remercie aussi l'ensemble des permanents qui disent bonjour le matin.

Ce n'est pas sans émotion que je tiens à citer ici tous mes amis de maîtrise et de DEA qui m'ont soutenu tout le long de ce travail en particulier durant la rédaction de ce document dans le but entre autre de bien arroser l'événement. Didier qui a corrigé une grande partie des fautes d'orthographe (merci à tes parents et à ton oncle d'être venu assister à ma soutenance) et Pascale, Florence, Biro, Pierre (FFR), David et Agnès, Rocco et Kadouch, le Gersoï et Vania, Sébastien, Hervé et Nathalie, Cédrine, et également mes amis de Périgueux, David, Yan, Claudio, Yannick, Fred, Sandrine, Aurélie, et à tous ceux que je connais mais qui m'excuseront de ne pas pouvoir les citer ici car il reste tout de même encore plus de 170 pages à lire.

Enfin, je remercie très chaleureusement mes parents, ma famille pour le soutien qu'ils m'ont apporté tout le long de ma scolarité.



A toute ma famille ; ma mère, mon père, mes grands parents, Mickaël, Camille, Yolande, ...

A mes amis.

# Introduction

Les propriétés linéaires des matériaux pour l'optique ont depuis plusieurs siècles permis la réalisation d'instruments performants, le dernier avatar de la sonde Hubble en est une preuve à fortiori ! Depuis fort longtemps, les physiciens ont donc développé des techniques de métrologie afin de remplir des catalogues, et maintenant, même dans le cas de produits chimiques, l'indice optique pour la raie D du Sodium figure sur l'étiquette au même titre que la densité ou la toxicité. Plus récemment il est vrai, les sources lumineuses intenses comme les lasers, sont apparues et leurs applications requièrent évidemment des éléments optiques dont les propriétés optiques doivent être documentées. Dans un premier temps, les questions de tenue au flux ont été abordées mais maintenant que l'on désire maîtriser, voire modifier, la propagation d'une onde laser - éventuellement intense, les propriétés optiques d'ordre plus élevées deviennent cruciales. Parmi elles, l'indice non linéaire, de façon plus physique la susceptibilité d'ordre trois ( $\chi^3$ ), est le paramètre le plus pertinent.

Parmi les techniques proposées pour mesurer ce paramètre complexe dont la partie réelle affecte directement la propagation et la partie imaginaire l'intensité d'un faisceau laser (via l'absorption non linéaire), nombreuses sont celles qui analysent les effets de faisceaux particulièrement intenses. S'il est vrai que la métrologie d'un paramètre quelconque doit s'appuyer sur une modélisation la plus réaliste possible, l'utilisation des sources lasers amplifiées conduit généralement à de forts signaux entachés d'un bruit important dû aux fluctuations de la source elle-même. La nécessité d'une analyse «linéaire» des effets en vue d'obtenir des valeurs exactes de la susceptibilité, (dans ce cas l'utilisation du développement de la polarisation en fonction des puissances du champ) implique d'effectuer la mesure avec le champ juste suffisant pour révéler le phénomène. Dans ce cas, il faudra s'attacher au rapport signal sur bruit en priorité et alors, les sources lasers pulsées non amplifiées de très haute stabilité seront des outils de choix. Enfin, la précision des mesures sera, on l'imagine simplement, d'un apport certain dans la caractérisation de matériaux proches en composition et permettra d'effectuer cette «engineering des propriétés non linéaires» en vue de l'optimisation d'une fonction particulière.

En fonction des applications de ces matériaux, il sera possible d'optimiser les forts effets non linéaires (principalement pour des systèmes tout optique en technologie de l'information-Modulateur, Détecteur) ou bien à l'opposé d'optimiser les faibles effets non linéaires pour des applications de transport pour des faisceaux lasers particulièrement intenses pour lesquelles les problèmes d'autofocalisation par exemple doivent être minimisés.

Pour répondre à cette demande d'instrumentation dans des domaines variés en science des matériaux, nous avons mis au point un appareillage (prototype) automatisé permettant la mesure sensible et précise des propriétés non linéaires d'ordre trois de matériaux. Parmi les techniques potentielles, notre groupe de recherche avait fait le choix d'oscillateurs lasers simples et parfaitement contrôlés afin de permettre l'exploitation de façon réaliste à l'aide de la modélisation de la susceptibilité non linéaire. Dans ces conditions, nous avons établi la nécessité d'utiliser des sources lasers de puissance crête modeste mais à très fort taux de répétition et d'excellente stabilité afin de pouvoir mettre en œuvre des techniques puissantes de traitement de signal dans l'analyse de faibles effets induits.

Ce travail se divise en cinq parties. La première partie est un rappel théorique des éléments de l'optique non linéaire nécessaires à la compréhension de ce manuscrit. Ainsi, l'étude de la propagation d'une impulsion courte dans un milieu non linéaire est décrite avec les approximations usuelles utilisées dans le cadre d'usage d'un oscillateur laser avec une puissance crête modeste. L'équation de propagation d'une impulsion courte en est déduite, ainsi que les principaux phénomènes de propagation non linéaires faisant intervenir la

susceptibilité non linéaire d'ordre trois. La deuxième partie traite des sources lasers utilisées au cours de ce travail et de futures sources lasers susceptibles de convenir à la mesure de l'indice non linéaire à la longueur d'onde de  $1,06\mu\text{m}$  et de ces harmoniques. Une explication succincte du fonctionnement de la source Titane Saphir est décrite. Le doubleur utilisé pour les expériences dans le bleu est également décrit avec quelques précisions sur la génération de seconde harmonique avec des faisceaux gaussiens. Dans les sources lasers actuellement en développement, le blocage des modes dans la cavité se fait à l'aide d'un miroir de fin de cavité servant d'absorbant saturable (SESAM) dont une description est faite. Le chapitre trois relate l'expérience pompe sonde colinéaire qui nous a permis de faire la plupart des mesures d'indice non linéaire à  $0,8\mu\text{m}$  et à  $0,4\mu\text{m}$ . L'expérience et l'analyse du signal sont décrites, ainsi que le programme développé pour l'acquisition des données en temps réel. La quatrième partie est une étude préliminaire sur le développement d'une expérience de mesure d'indice non linéaire en configuration non dégénérée basée sur un interféromètre de Sagnac. La modélisation du signal dans cette expérience est réalisée, et l'on présente le premier signal expérimental obtenu sur un échantillon de silice fondue. Enfin, le cinquième chapitre relate les principaux résultats obtenus au cours de ces travaux. Ainsi, des mesures sur un lot d'échantillons de silice fondue, sur une préforme de fibre optique et sur des verres d'oxydes à base de niobium, titane et tellure sont présentées. Des corrélations entre les structures des verres et les valeurs de la susceptibilité non linéaire permettent de remonter aux origines de la non linéarité des verres. Une étude sur les photodiodes couramment utilisées dans nos expériences a également été réalisée afin de mieux comprendre les processus non linéaires entrant en jeu dans le cadre d'une autocorrélation.

## CHAPITRE I

# Propagation d'une impulsion lumineuse dans un milieu matériel

### A. Introduction

Nous allons nous intéresser dans ce premier chapitre à l'interaction d'un champ électrique avec de la matière. Quand on applique un champ électrique à de la matière constituée de charges positives (ions, noyaux) et de charges négatives (électrons), par la force de Lorentz, ces charges se déplacent suivant la direction du champ appliqué. Les ions positifs ayant une masse considérablement supérieure à celle des électrons, on peut considérer que seuls les électrons sont en mouvement. Dans les diélectriques, ces charges ne sont pas libres, mais les liaisons possèdent une certaine élasticité, et ainsi l'application d'un champ électrique crée des dipôles dans le matériau. Ces dipôles vont alors se mettre à osciller à la fréquence d'excitation, soit dans le cas des ondes lumineuses entre  $10^{14}$  et  $10^{17}$  Hz, et émettre un champ électrique de même fréquence. L'effet du champ magnétique sur les particules chargées est quant à lui beaucoup plus faible et peut être négligé. La relation reliant la polarisation induite dans le milieu et le champ électrique s'écrit dans l'espace des fréquences :

$$\vec{P}(\omega) = \chi(\omega)\vec{E}(\omega) \quad (1)$$

où  $\chi(\omega)$  représente la susceptibilité électrique linéaire du milieu.

Les lasers sont des sources de lumière cohérente possédant de fortes intensités. Prenons par exemple un laser à rubis ayant un milieu actif d' $1 \text{ cm}^3$ . En fonctionnement déclenché, ce laser peut délivrer  $10^{18}$  photons en 10ns, soit en focalisant le faisceau sur une surface de  $100 \mu\text{m}^2$  une densité de puissance de  $10 \text{ TW/cm}^2$ . Un tel champ électrique (environ  $10^{10} \text{ V/m}$ ) est comparable aux champs internes des atomes et molécules responsables de la liaison des électrons de valence. Dans l'interaction d'un laser avec un diélectrique, les charges du milieu vont avoir tendance à s'écarter de plus en plus de leurs positions d'équilibre. On peut décrire une telle situation à l'aide d'un modèle où l'électron est relié à une masse fixe par l'intermédiaire d'un ressort. Pour un champ électrique faible, la réponse du milieu est linéaire, par contre si l'on tire trop fort sur le ressort, la relation reliant l'allongement de celui-ci avec la force appliquée devient non linéaire et il est alors nécessaire de développer la polarisation du milieu en puissance du champ électrique (cf. complément I.1.) :

$$P_i = \varepsilon_0 \left[ \chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots \right]. \quad (2)$$

Dans un premier temps, nous allons étudier la polarisation non linéaire d'un milieu et en particulier la relation avec le champ électrique. On en déduira quelques propriétés sur la susceptibilité non linéaire. La propagation des impulsions lumineuses dans un milieu est décrite à partir des équations de Maxwell dans lesquelles le terme source est la polarisation non linéaire. Finalement, les principaux effets non linéaires nous intéressant sont passés en revue. Les phénomènes non linéaires liés aux impulsions courtes ont fait l'objet d'une abondante littérature<sup>1,2,3,4,5,6,7</sup>.

## B. Le formalisme de l'optique non linéaire

### 1. RELATION ENTRE LE CHAMP ELECTRIQUE ET LA POLARISATION

L'écriture de la polarisation non linéaire peut se faire dans deux espaces, l'espace temporel qui est le plus facile à appréhender physiquement et l'espace des fréquences. Pour passer de l'un à l'autre des espaces, la transformée de Fourier et son inverse sont définies par les relations suivantes :

$$F(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t) e^{-i\omega t} dt, \quad (3)$$

$$f(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} F(\omega) e^{i\omega t} d\omega. \quad (4)$$

Dans l'espace temporel, on peut écrire la polarisation sous la forme :

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{P}_{\text{linéaire}}(\mathbf{r}, t) + \mathbf{P}_{\text{non-linéaire}}(\mathbf{r}, t). \quad (5)$$

La polarisation linéaire la plus générale s'écrit dans l'espace temporel de la manière suivante :

$$\mathbf{P}_{\text{linéaire}}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \int_{R^3} \int_{-\infty}^{+\infty} \overline{\mathbf{R}^{(1)}}(\mathbf{r}_1, t_1) \mathbf{E}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_1, t - t_1) dt_1 d\mathbf{r}_1. \quad (6)$$

Cette relation est mathématiquement assez complexe. Elle exprime que le milieu peut avoir un certain temps de réponse au champ appliqué et que cette réponse dépend non seulement du champ local mais aussi des entités alentours<sup>8</sup>. Généralement la non localité spatiale est négligée et l'on admet que la polarisation en un point ne dépend que du champ électrique en ce point. Ainsi si l'on tient compte de cette approximation le premier terme de la polarisation non linéaire d'ordre deux s'écrit :

$$\mathbf{P}_{NL}^{(2)}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \overline{\mathbf{R}^{(2)}}(t_1, t_2) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t - t_2) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t - t_2 - t_1) dt_1 dt_2. \quad (7)$$

De même pour les ordres suivants :

$$\mathbf{P}_{NL}^{(3)}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \overline{\mathbf{R}^{(3)}}(t_1, t_2, t_3) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t - t_3) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t - t_3 - t_2) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t - t_3 - t_2 - t_1) dt_1 dt_2 dt_3, \quad (8)$$

$$\mathbf{P}_{NL}^{(n)}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \dots \int_{-\infty}^{+\infty} \overline{\mathbf{R}^{(n)}}(t_1, t_2, \dots, t_n) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t - t_n) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t - t_n - t_{n-1}) \dots \mathbf{E}(\mathbf{r}, t - t_n - t_{n-1} - \dots - t_1) dt_1 dt_2 \dots dt_n \quad (9)$$

Dans le cas de l'étude de nos matériaux, nous ne développerons pas la polarisation non linéaire au-delà de l'ordre trois, les ordres suivants pouvant être largement négligés avec les puissances crêtes de nos lasers. Les écritures générales des polarisations non linéaires précédentes ne sont pas limitées par l'approximation dipolaire électrique et sont valables pour des réponses résonnantes et non résonnantes de la matière. L'interaction de la matière avec le champ électrique est gouvernée par les absorptions successives des photons qui peuvent avoir lieu à des temps différents. Les temps  $t_i$  dans les expressions précédentes représentent les intervalles de temps séparant des processus d'absorption. C'est la raison pour laquelle la fonction réponse du milieu s'exprime en fonction de ces intervalles de temps  $t_i$  alors que les champs électriques s'expriment en des temps donnés, soit des différences d'intervalles  $t_i$ .

Le calcul théorique de la polarisation non linéaire peut faire l'objet d'un traitement numérique<sup>9</sup>, mais l'expression est trop difficile à manier analytiquement en particulier à cause de l'impossibilité d'obtenir une relation de convolution dans l'espace de Fourier. Une première simplification est réalisable à l'aide de l'écriture locale spatialement suivante :

$$\mathbf{P}_{\text{NL}}^{(3)}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \overline{\mathbf{R}^{(3)}}(t - \tau_1, t - \tau_2, t - \tau_3) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \tau_1) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \tau_2) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \tau_3) d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3. \quad (10)$$

Cette relation présente une commutation sur les différents instants où est effectuée l'interaction entre le milieu et le champ, ce qui limite une écriture plus rigoureuse dans laquelle les temps sont ordonnés. Elle paraît donc intuitivement moins sensible à l'historique des absorptions, ce qui traduit davantage une situation hors résonance.

Cette relation est par ailleurs encore trop complexe pour une utilisation pratique, et il est courant d'utiliser une expression correspondant au cas particulier d'un processus stationnaire par rapport à la durée de l'excitation. En effet, lorsque les processus en jeu sont exclusivement électroniques, les temps de réponse sont considérés trop brefs par rapport aux durées des impulsions, même dans le domaine femtoseconde, et l'on utilise dans l'expression de la fonction réponse un triple produit de distribution de Dirac, ce qui conduit à :

$$\mathbf{P}_{\text{NL}}^{(3)}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \overline{\chi^{(3)}} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t). \quad (11)$$

Cette approximation est assez bien vérifiée dans la plupart des matériaux loin des résonances, et l'essentiel des processus non linéaires d'ordre trois est étudié dans ce cadre. En présence d'effets non linéaires plus lents, associés à l'organisation structurale des atomes d'une molécule sous un champ électrique, on utilise l'approximation de Born-Oppenheimer. Celle-ci consiste à découpler l'effet du champ sur la matière en deux processus<sup>10</sup> dont les temps de réponse sont distincts :

- Les processus électroniques très rapides (de l'ordre de la femtoseconde) évoqués précédemment. Ils sont dus à la distorsion du nuage électronique sous l'effet du champ électrique et du potentiel créé par le squelette moléculaire figé.
- Les processus nucléaires (Raman) sont dus aux vibrations et rotations des molécules. Leurs lentes mobilités par rapport aux mouvements électroniques induisent des temps de réponse qui peuvent être beaucoup plus longs (entre 100fs et quelques nanosecondes)
- Les processus électrostrictifs (Brillouin) sont dus aux propagations d'ondes acoustiques induites par le faisceau laser dans le matériau. Les temps de réponses de ces effets sont typiques du temps de parcours d'une onde acoustique dans un matériau, c'est à dire de l'ordre de la nanoseconde.

Dans ces conditions, l'expression de la polarisation non linéaire à l'ordre trois est donnée par R.W. Hellwarth :

$$\mathbf{P}_{\text{NL}}^{(3)}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \int_{-\infty}^{+\infty} \overline{d^{(3)}}(t - t_1) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t_1) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t_1) dt_1. \quad (12)$$

## 2. PROPRIETES DES SUSCEPTIBILITES NON LINEAIRES

Nous passons en revue ici quelques propriétés de symétrie des susceptibilités non linéaires  $\chi^{(p)}$ . La connaissance de ces propriétés permet souvent de déduire de façon considérable le nombre de termes indépendants intervenant dans la polarisation non linéaire d'un matériau.

$$P_i^{(p)}(\omega_m) = \varepsilon_0 \sum_{n_1, \dots, n_p} \sum_{i_1, \dots, i_p} \chi_{i_1, i_1, \dots, i_p}^{(p)}(\omega_m; \omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_p}) E_{i_1}(\omega_{n_1}) \dots E_{i_p}(\omega_{n_p}). \quad (13)$$

### a. La polarisation est réelle

La polarisation non linéaire et les champs électriques étant des quantités réelles alors on a :

$$\chi^{(p)}(-\omega_m; -\omega_{n_1}, \dots, -\omega_{n_p}) = \overline{\chi^{(p)}(\omega_m; \omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_p})}. \quad (14)$$

Cette propriété permet d'éliminer la moitié des termes de la polarisation non linéaire.

### b. La causalité<sup>11</sup>

La causalité exprime que quels que soient les processus mis en jeu dans le matériau, ceux-ci répondent au principe que la cause précède toujours les effets. La causalité est un principe qui s'exprime facilement dans le domaine temporel. Dans le domaine des fréquences, ce principe s'exprime par les relations de Kramers-Kronig qui relient les parties et imaginaires de la susceptibilité :

$$\Re[\varepsilon(\omega)] = 1 + \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\Im[\varepsilon(\omega')]}{\omega' - \omega} d\omega', \quad (15)$$

$$\Im[\varepsilon(\omega)] = -\frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\Re[\varepsilon(\omega')] - 1}{\omega' - \omega} d\omega', \quad (16)$$

où  $\Re$  et  $\Im$  représentent respectivement les parties réelles et imaginaires, et  $P$  représente la partie principale de l'intégrale.

### c. La symétrie intrinsèque de permutation

Les indices de sommation sur la relation de la polarisation non linéaire  $n_i$  et  $n_j$  étant des indices muets, la relation reste inchangée par permutation du type :

$$\begin{cases} n_j \leftrightarrow n_k \\ i_j \leftrightarrow i_k \end{cases} \quad (17)$$

Cette relation de symétrie résulte d'un choix de définition des susceptibilités et non d'une propriété fondamentale.

Exemple :

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_n + \omega_m; \omega_n, \omega_m) = \chi_{ikj}^{(2)}(\omega_n + \omega_m; \omega_m, \omega_n). \quad (18)$$

### d. La symétrie d'inversion spatiale

On dit qu'un matériau possède la symétrie d'inversion lorsque ces constituants élémentaires responsables de la réponse non linéaire sont invariants par parité : échange des directions d'espace  $r \rightarrow -r$ . Pour un tel matériau, la polarisation change de signe lorsque le champ électrique change aussi de signe. Ainsi, cette propriété implique que toutes les polarisations non linéaires d'ordre pair sont nulles dans ces milieux. La non linéarité non nulle d'ordre la plus basse est donc celle d'ordre trois. Notons d'ailleurs que toute symétrie spatiale d'un matériau se reflète dans les coefficients des susceptibilités non linéaires (cf. complément I.2.). Les matériaux étudiés dans ce manuscrit ont, sauf indication contraire cette propriété.

### e. Propriété pour un milieu sans perte

Un milieu sans perte implique deux propriétés de symétrie sur les susceptibilités. Tout d'abord, toutes les susceptibilités non linéaires deviennent des quantités purement réelles, puis la permutation des fréquences laisse inchangée les susceptibilités si l'on permute de la même façon les coordonnées cartésiennes.

Exemple :

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) = \chi_{jki}^{(2)}(-\omega_1; \omega_2, -\omega_3) = \chi_{jki}^{(2)}(\omega_1; -\omega_2, \omega_3). \quad (19)$$

### f. Propriété pour un milieu hors résonance : symétrie de Kleinman<sup>12</sup>

Le fait que toutes les fréquences impliquées dans les processus non linéaires soient situées loin de toutes fréquences de résonances du matériau a deux conséquences importantes. D'une part, le matériau se comporte comme un milieu sans perte, de sorte que les propriétés précédentes s'appliquent. D'autre part, les susceptibilités non linéaires sont indépendantes de la fréquence. Ainsi les susceptibilités non linéaires sont invariantes par permutation quelconque des indices de coordonnées cartésiennes, sans changer les fréquences.

Exemple :

$$\begin{aligned} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) &= \chi_{jki}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) = \chi_{kij}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) \\ &= \chi_{ikj}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) = \chi_{jik}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) = \chi_{kji}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) \end{aligned} \quad (20)$$

## 3. L'ÉQUATION DES ONDES NON LINEAIRES

### a. Les équations de Maxwell

Les équations de Maxwell<sup>13</sup> s'écrivent dans un milieu matériel :

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad \nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (21) \text{ \& } (22)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho \quad \nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (23) \text{ \& } (24)$$

avec

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad \mathbf{H} = \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B} - \mathbf{M} \quad \mathbf{J} = \sigma \mathbf{E} \quad (25) \text{ \& } (26)$$

Les différents vecteurs sont connus sous les noms de déplacement électrique  $\mathbf{D}$ , champ magnétique  $\mathbf{H}$ , induction magnétique  $\mathbf{B}$ , densité de moment magnétique ou aimantation  $\mathbf{M}$ , densité de moment électrique ou polarisation  $\mathbf{P}$ . Pour un milieu sans charge ni courant<sup>a</sup>, et des tailles de faisceaux plus importantes que la longueur d'onde, il est possible d'obtenir l'équation de propagation du champ électrique. Cette équation s'écrit dans l'espace de Fourier :

<sup>a</sup> Au chapitre V est effectuée une étude sur les processus non linéaires dans les photodiodes de détection. Ces photodiodes étant constituées de semi-conducteurs, on ne peut plus réellement dire que les densités de charges et de courants sont nulles dans le matériau. Toutefois, ces densités sont extrêmement faibles et on les néglige.



$$\Delta\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r},\omega) + \varepsilon(\omega)\frac{\omega^2}{c^2}\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r},\omega) = -\mu_0\omega^2\tilde{\mathbf{P}}_{NL}(\mathbf{r},\omega). \quad (27)$$

La constante diélectrique est définie par  $\varepsilon(\omega) = 1 + \chi^{(1)}(\omega)$ ,  $\chi^{(1)}(\omega)$  est la transformée de Fourier de la fonction réponse, que l'on appelle susceptibilité électrique (linéaire) et qui est généralement complexe. Elle permet de définir la relation de dispersion à partir de la constante de propagation :

$$k^2(\omega) = \varepsilon(\omega)\frac{\omega^2}{c^2}. \quad (28)$$

Les parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique peuvent être reliées à l'indice de réfraction  $n_0(\omega)$  et au coefficient d'absorption  $\alpha_0(\omega)$  par la définition :

$$\varepsilon(\omega) = (n_0(\omega) + i\frac{\alpha_0(\omega)c}{2\omega})^2. \quad (29)$$

La présence du terme supplémentaire de polarisation non linéaire d'ordre trois dans l'équation de propagation (27) ne permet pas un traitement simple, même dans le cas d'une polarisation instantanée. L'expression dans le domaine temporel permet tout de même de dégager une relation importante entre la susceptibilité d'ordre trois et le coefficient  $n_2$ , appelé indice non linéaire, présent dans la relation phénoménologique de l'effet Kerr :

$$n = n_0 + n_2 I. \quad (30)$$

En utilisant une vision instantanée, à la fois pour la polarisation linéaire et non linéaire, on peut exprimer le vecteur  $\mathbf{D}$  en introduisant une constante diélectrique plus générale dépendant de l'intensité<sup>14</sup>. L'utilisation d'un facteur de dégénérescence permettant de ne sélectionner que la composante à  $\omega$  de la polarisation non linéaire ainsi que différentes linéarisations permettent d'obtenir :

$$n_2 = \frac{3\chi_{xxxx}^{(3)}}{4c\varepsilon_0 n_0^2}. \quad (31)$$

Nous avons particularisé ici la susceptibilité non linéaire à son élément de tenseur diagonal, qui est le seul impliqué pour une interaction à un faisceau ( $x$  axe de la polarisation linéaire incidente du faisceau). Cette relation est justifiable dans un formalisme onde plane très simplifié, mais si l'on regarde proprement l'effet du terme de polarisation non linéaire (même pour une polarisation instantanée), l'effet sur la propagation du faisceau ne peut pas se résumer à la relation de l'effet Kerr. Physiquement il s'agit toujours des mêmes raisons : pour de faibles effets, la manifestation de la perturbation se présente d'abord de manière linéaire. Insistons donc sur le fait que l'indice non linéaire n'est qu'une manière pratique et peut être pédagogique d'introduire l'effet sur la matière d'un champ intense. Mais ce n'est pas réellement une grandeur physique : la susceptibilité d'ordre trois, qui est malheureusement elle-même issue d'un développement perturbatif, paraît tout de même posséder plus de signification.

Comme dans le domaine linéaire, il est possible, en utilisant une susceptibilité du troisième ordre complexe, d'introduire un coefficient d'absorption non linéaire afin de traduire l'absorption à deux photons. Ce coefficient est aussi introduit de manière phénoménologique afin de produire une atténuation linéaire avec la propagation. C'est encore une fois une limitation à de très faibles effets, dans le cadre d'une approche onde plane. En utilisant une relation généralisée sur l'indice en fonction des coefficients d'absorption :

$$n = (n_0(\omega) + i \frac{\alpha_0(\omega)c}{2\omega}) + (n_2 + i \frac{\alpha_2(\omega)c}{2\omega})I \quad (32)$$

$$\text{alors } \alpha_2(\omega) = \frac{3}{4} \frac{2\omega \Im[\chi_{xxxx}^{(3)}]}{c^2 \varepsilon_0 n_0^2}. \quad (33)$$

### b. Equation de propagation de l'impulsion lumineuse

L'écriture de l'équation dans le domaine temporel donne :

$$\Delta \mathbf{E} - \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2}, \quad (34)$$

où le vecteur déplacement électrique  $\mathbf{D}$  s'écrit :

$$\mathbf{D}(z, t) = \varepsilon_0 \mathbf{E}(z, t) + \varepsilon_0 \int \mathbf{R}^{(1)}(t - t') \mathbf{E}(z, t') dt', \quad (35)$$

ou dans le domaine fréquentiel :

$$\tilde{\mathbf{D}}(z, \omega) = \varepsilon_0 [1 + \chi^{(1)}(\omega)] \tilde{\mathbf{E}}(z, \omega) = \varepsilon(\omega) \tilde{\mathbf{E}}(z, \omega). \quad (36)$$

Sachant que :

$$k^2(\omega) = \varepsilon(\omega) \frac{\omega^2}{c^2}. \quad (37)$$

La dérivée seconde du déplacement électrique s'exprime de la manière suivante :

$$\frac{\partial^2 \mathbf{D}(z, t)}{\partial t^2} = -\frac{\varepsilon_0 c^2}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} k^2(\omega) \tilde{\mathbf{E}}(z, \omega) e^{-i\omega t} d\omega, \quad (38)$$

où le vecteur d'onde  $k(\omega)$  peut se développer en série de Taylor sous la forme générale :

$$k(\omega) = \sum_{p=0}^n \frac{(\omega - \omega_0)^p}{p!} \left. \frac{d^p k(\omega)}{d\omega^p} \right|_{\omega_0}. \quad (39)$$

Pour la résolution de l'équation de propagation, on développe le champ électrique et la polarisation non linéaire sur une base d'ondes planes définie comme l'onde porteuse de l'onde électrique.

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \left( \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) e^{i(\omega_0 t - k(\omega_0)z)} + \overline{\mathbf{A}}(\mathbf{r}, t) e^{-i(\omega_0 t - k(\omega_0)z)} \right), \quad (40)$$

$$\mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \left( \mathbf{p}_{nl}(\mathbf{r}, t) e^{i(\omega_0 t - k(\omega_0)z)} + \overline{\mathbf{p}}_{nl}(\mathbf{r}, t) e^{-i(\omega_0 t - k(\omega_0)z)} \right). \quad (41)$$

L'écriture de l'équation de propagation offre ici deux alternatives, écrire l'équation en fonction de l'amplitude complexe  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$  ou de son complexe conjugué  $\overline{\mathbf{A}}(\mathbf{r}, t)$ . La première donne la forme la plus compacte. En négligeant les termes oscillant à  $3\omega_0$  puisque nous nous intéressons qu'au processus Kerr et en faisant l'approximation de l'enveloppe lentement variable sur le champ en  $z$  et sur la polarisation non linéaire en  $t$ , l'équation de propagation devient alors :

$$\begin{aligned} \Delta_{\perp} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) - 2ik(\omega_0) \left( \frac{\partial \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)}{\partial z} \right) - k^2(\omega_0) \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \left[ \sum_{p=0}^n \frac{\Omega^p}{p!} \frac{d^p k}{d\omega^p} \Big|_{\omega_0} \right]^2 \tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, \omega_0 + \Omega) e^{i(\omega_0 + \Omega)t} d\Omega \\ = \mu_0 \left( \frac{\partial^2 \mathbf{p}_{nl}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} - 2i\omega_0 \frac{\partial \mathbf{p}_{nl}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} - \omega_0^2 \mathbf{p}_{nl}(\mathbf{r}, t) \right) \end{aligned} \quad (42)$$

Un développement jusqu'à l'ordre trois du vecteur d'onde donne finalement :

$$\begin{aligned} \Delta_{\perp} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) - 2ik(\omega_0) \left( \frac{\partial \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)}{\partial z} + \left( \frac{dk}{d\omega} \right)_{\omega_0} \frac{\partial \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \right) - \left( k(\omega_0) \left( \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right)_{\omega_0} + \left( \frac{dk}{d\omega} \right)_{\omega_0}^2 \right) \frac{\partial^2 \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} \\ - i \left( \frac{k(\omega_0)}{3} \left( \frac{d^3 k}{d\omega^3} \right)_{\omega_0} + \left( \frac{dk}{d\omega} \right)_{\omega_0} \left( \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right)_{\omega_0} \right) \frac{\partial^3 \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^3} + \dots = \mu_0 \left( 2i\omega_0 \frac{\partial \mathbf{p}_{nl}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} - \omega_0^2 \mathbf{p}_{nl}(\mathbf{r}, t) \right) \end{aligned} \quad (43)$$

Voilà l'équation la plus complète que nous aurons à résoudre la plupart du temps pour étudier la propagation d'une impulsion lumineuse dans un matériau hors résonance. Cette équation se décompose en plusieurs termes :

- Le premier terme est le Laplacien transverse agissant sur les variables  $x$  et  $y$  de l'amplitude complexe du champ. Ce terme est responsable des phénomènes de diffraction sur les faisceaux.
- Le second terme assure la propagation d'un paquet d'onde dans la direction  $z$  avec une vitesse de groupe  $v_g$ . On effectue toujours le changement de variable  $t-z/v_g$  qui permet de se placer dans le repère de groupe (ou repère de l'impulsion), ce qui le réduit avantageusement à une seule dérivation sur  $z$ , sans affecter les autres termes.

$$V_g = \left( \frac{dk}{d\omega} \right)_{\omega_0}^{-1}. \quad (44)$$

- Le troisième terme agit sur la variable temporelle de l'amplitude complexe. Il est responsable de l'élargissement ou de la compression de l'impulsion, tout en conservant la nature de son profil initial.
- Le quatrième terme et les suivants sont des corrections à tous les ordres sur l'enveloppe temporelle du champ, amenant des modifications en phase et en amplitude du profil temporel.
- Enfin, le membre de droite contient la polarisation non linéaire, terme source susceptible d'apporter des modifications sur le profil spatial mais aussi temporel du champ.

Dans les paragraphes qui suivent, nous allons nous intéresser aux solutions de cette équation. Il est bien clair qu'il n'y a pas de solution analytique générale, mais sous certaines conditions expérimentales, il est possible d'observer différents phénomènes propres à chaque terme de cette équation. Ainsi le premier effet important est un effet linéaire que nous allons expliquer dans le paragraphe qui vient. Les autres paragraphes seront dédiés aux principaux phénomènes non linéaires du troisième ordre hors résonance.

#### 4. LA DISPERSION DU SECOND ORDRE<sup>b</sup>

La dispersion est un effet linéaire classique qui exprime le fait que des ondes de fréquences différentes ne se propagent pas à la même vitesse dans un milieu totalement transparent. Ainsi, dans la plupart des matériaux, la fréquence rouge se déplace plus vite que la fréquence bleue. De manière plus formelle, cela signifie que l'indice de réfraction linéaire dépend de la longueur d'onde. La simplification de l'équation de propagation écrite dans l'espace des fréquences dans laquelle les variables transverses et les effets non linéaires sont supprimés donne :

$$\frac{\partial^2 E(z, \omega)}{\partial z^2} + k^2(\omega)E(z, \omega) = 0 \quad (45)$$

dont la solution s'écrit :

$$E(z, \omega) = E(0, \omega)e^{-ik(\omega)z}. \quad (46)$$

Cette solution triviale indique que le spectre de l'impulsion est inchangé tandis que les composantes spectrales acquièrent une phase dépendant de leurs fréquences et de la distance parcourue. De manière à mieux comprendre physiquement ce qu'il arrive à l'impulsion, il est préférable de repasser dans l'espace temporel qui nous est plus familier. Pour cela, comme on l'a déjà vu précédemment, le vecteur d'onde doit être développé en série de Taylor, ainsi l'on a après passage dans le référentiel de l'impulsion :

$$E(z, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E(0, \omega) e^{-ik(\omega)z} e^{i\omega t} d\omega = F\left(z, t - \left(\frac{dk}{d\omega}\right)_{\omega_0} z\right) e^{i(\omega_0 t - k(\omega_0)z)} \quad (47)$$

avec

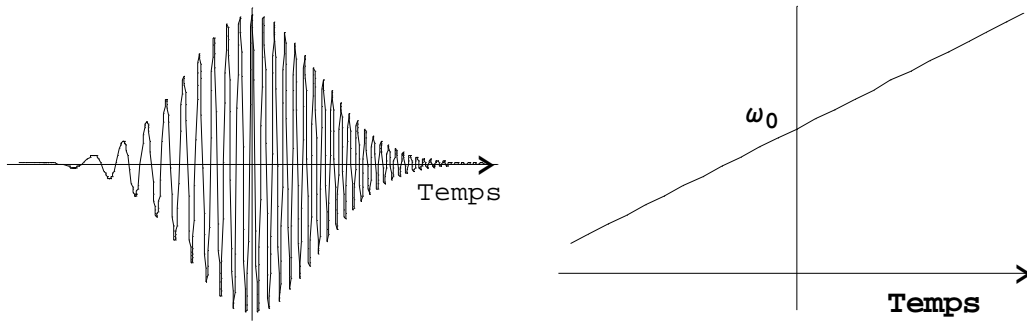
$$F(z, t) = \frac{\tau_0 \sqrt{\pi}}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left[-\frac{\omega^2 \tau_0^2}{4}\right] \exp\left[-i\left(\frac{\omega^2}{2} \left(\frac{d^2 k}{d\omega^2}\right)_{\omega_0} + \frac{\omega^3}{6} \left(\frac{d^3 k}{d\omega^3}\right)_{\omega_0} + \dots\right) z\right] \exp[i\omega t] d\omega. \quad (48)$$

En développant le vecteur d'onde jusqu'au second ordre on obtient alors l'expression de la forme temporelle de l'impulsion suivante :

$$F(z, t) = \frac{\tau_0}{(\tau_0^4 + 4k'' z^2)^{1/4}} \exp\left[-\frac{t^2}{\tau_0^2 + 4k'' z^2 / \tau_0^2}\right] \exp\left[\frac{2ik'' z t^2}{\tau_0^4 + 4k'' z^2}\right] \exp\left[\frac{i}{2} \arctan\left(\frac{2k'' z}{\tau_0^2}\right)\right] \quad (49)$$

où  $k''$  est la dérivée seconde de  $k(\omega)$  en  $\omega_0$ , appelée (coefficient de) dispersion du second ordre. La représentation du champ électrique temporelle ainsi que la dérivée de la phase donnant la fréquence instantanée dans l'impulsion sont représentés Figure 1.

<sup>b</sup> Il est possible de calculer analytiquement la dispersion au troisième ordre en résolvant une équation du troisième degré par la méthode de Cardan (cf. Thèse de Marc Olivier Martin p. 18)



**Figure 1 : Représentation temporelle de l'impulsion en dispersion normale et dérivée de la phase donnant la fréquence instantanée dans l'impulsion. Il est important de noter que la représentation est à temps croissants vers la droite. En conséquence, le front avant de l'impulsion est à gauche et correspond aux temps négatifs. On peut donc observer que le front avant se charge des basses fréquences, ce qui correspond bien à la dispersion loin des absorptions (dispersion normale) dans laquelle les basses fréquences voyagent plus vite (Le rouge en avant).**

La loi d'évolution de l'enveloppe peut faire l'objet de nombreux commentaires :

- La durée de l'impulsion, dans le cas d'une forme initiale sans dérive de fréquence, ne peut que croître avec la propagation, et cela de manière d'autant plus importante que l'impulsion est initialement brève et  $k''$  important.
- Il existe une phase temporelle quadratique, ce qui traduit une modulation de la fréquence porteuse. On parle de glissement, de dérive ou de modulation de fréquence linéaire, qui peut être positif ou négatif suivant le signe de  $k''$ . Pour une dispersion du second ordre positive, les basses fréquences sont sur le front avant de l'impulsion.
- Ainsi, si la dispersion initiale des fréquences est anormale dans l'impulsion (c'est à dire opposée à celle fournie par la propagation) alors la propagation de l'impulsion sur une certaine distance peut permettre de compenser exactement le glissement initial des fréquences. L'impulsion est alors dite limitée par transformée de Fourier, et cela correspond à l'impulsion la plus brève réalisable avec les fréquences dont on dispose.
- L'amplitude de l'impulsion, initialement égale à l'unité, subit un aplatissement au cours de la propagation, ce qui donne l'image d'une dilution de l'impulsion dans le milieu dispersif.
- L'impulsion acquiert une phase indépendante du temps, qui atteint sur une distance de quelques longueurs d'onde la valeur limite de  $\pi/4$ .

Pour caractériser l'échelle de distance sur laquelle le processus de dispersion est important, nous introduisons la longueur  $L_d$ , représentant un élargissement temporel d'un facteur  $\sqrt{2}$  par rapport à la durée initiale :

$$L_d = \frac{\tau_0^2}{2|k''|}. \quad (50)$$

Nous pouvons noter dans cette relation l'importance de la durée de l'impulsion qui affecte quadratiquement la variation de  $L_d$ . Pour garder quelques ordres de grandeur en tête, dans le verre SF59 pour une impulsion de 120 femtosecondes à mi-hauteur en intensité,  $L_d$  est de l'ordre de 17 mm à 800 nm. Dans le BK7, connu pour être très peu dispersif, nous avons 112 mm.

La dispersion est un phénomène qui devient de plus en plus important lorsque que l'on travaille avec des impulsions ultra courtes. Si l'on considère une impulsion limitée par transformée de Fourier (c'est à dire la plus courte possible avec le spectre dont on dispose) à la sortie d'un laser, après traversé de quelques optiques, celle-ci s'élargit temporellement par

glissement des fréquences dans l'enveloppe de l'impulsion. Le remède est alors de disposer d'une ligne de prismes qui permet de compenser en amont la dispersion des différentes optiques de l'expérience. Le bon fonctionnement d'un laser impulsif repose sur la compensation de la dispersion des optiques et en particulier du cristal par une ligne de prismes, de réseaux ou des miroirs à dispersions négatives<sup>15,16</sup> (ce sont des miroirs diélectriques constitués d'une succession de couches d'épaisseurs non constantes telle que l'interférence constructive en réflexion s'obtienne pour une longueur de pénétration variable suivant la longueur d'onde considérée).

## C. Solutions de l'équation de propagation dans quelques cas particuliers : processus non linéaire d'ordre trois

### 1. L'AUTOMODULATION DE PHASE<sup>17,18,19</sup>

L'automodulation de phase est le processus non linéaire d'ordre trois le plus fondamental et son traitement dans un formalisme en ondes planes où il est quasiment toujours développé est assez simple. Du fait de la dépendance en intensité de l'indice de réfraction, le faisceau perçoit un indice temporellement variable qui affecte sa phase (l'indice varie aussi spatialement, mais nous considérons cet effet ultérieurement). C'est un processus temporel, contrairement à la dispersion, et l'équation de propagation est particulièrement adaptée pour le décrire. Les approximations qui permettent son étude sont nombreuses : on utilise l'approximation des ondes planes, le milieu est non dispersif, la polarisation est instantanée, et on néglige la dérivée temporelle de la polarisation non linéaire (nous reviendrons sur cette simplification). L'équation devient :

$$\frac{\partial A(z,t)}{\partial z} = -i \frac{3k_0}{8n_0} \chi^{(3)} |A(z,t)|^2 A(z,t) \quad (51)$$

où  $k_0$  est la constante de propagation dans le vide.

La solution évidente pour l'amplitude complexe du champ est :

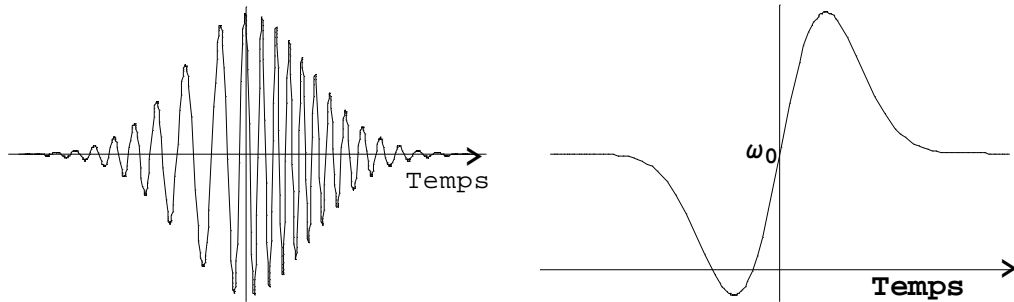
$$A(z,t) = \rho(0,t) \exp \left[ -i \frac{3k_0}{8n_0} \chi^{(3)} \rho^2(0,t) z \right]. \quad (52)$$

Cette écriture permet de justifier la relation de l'effet Kerr :  $n = n_0 + n_2 I$ . Nous confirmons donc ainsi que le cadre rigoureux pour obtenir cette équation néglige la dispersion des matériaux et n'est valable que dans le formalisme des ondes planes. L'amplitude de l'impulsion n'est absolument pas affectée par ce phénomène, et sa durée est inchangée. Par contre, il apparaît clairement que l'impulsion modifie sa phase par son intensité, d'où la terminologie d'automodulation de phase (on pourrait ajouter temporelle, la dispersion au second ordre étant de la modulation de phase spectrale). Cette modulation de la phase affecte temporellement le cycle optique de l'impulsion. Contrairement à la dispersion d'ordre deux, la nouvelle phase temporelle acquise n'est pas quadratique, mais du fait du profil en intensité des impulsions (gaussien ou sécant hyperbolique), elle peut être considérée comme un développement infini en puissances de  $t$ , et la dérive de fréquence n'est pas linéaire.

L'écriture de la solution (52) permet d'introduire une longueur naturelle dans ce problème, la longueur d'automodulation<sup>20</sup> (correspondant à un déphasage de l'ordre du radian) qui est définie dans le cadre d'un faisceau gaussien par :

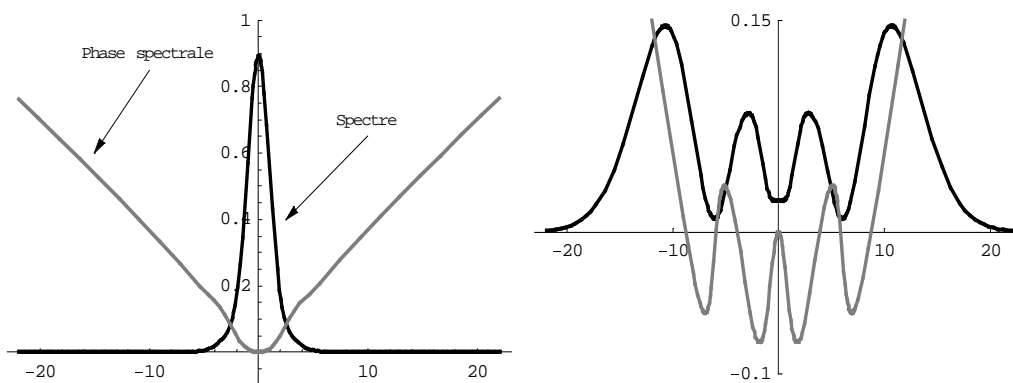
$$L_{\text{automod}} = \frac{1}{k_0 n_2 I_{\text{Max}}} = \frac{\pi w_0^2}{2k_0 n_2 P_{\text{crête}}} \quad (53)$$

où  $w_0$  représente la taille du col du faisceau. Cette longueur correspond à un glissement des fréquences dans l'impulsion équivalent à la largeur spectrale de l'impulsion initiale. Au-delà de cette longueur d'automodulation de phase, l'effet non linéaire se traduit par des créations de nouvelles fréquences. Les longueurs d'automodulation sont de l'ordre du millimètre, nous obtenons par exemple 3 mm pour un échantillon sous un faisceau de 300 mW focalisé à 20 microns, avec d'indice non linéaire convenable à 800 nm ( $10^{-18}$  m<sup>2</sup>/W).



**Figure 2 :** Représentation temporelle de l'impulsion automodulée et de la fonction dérivée de la phase donnant la fréquence instantanée dans l'impulsion. Le front avant de l'impulsion est caractérisé par des basses fréquences et le front arrière par des hautes fréquences.

Il est possible de calculer la fréquence instantanée définie par la dérivée par rapport au temps de la phase temporelle. C'est une manière analytique de confirmer l'effet de propagation décrit en Figure 2. Pour un indice non linéaire positif, l'oscillation du champ est à plus basses fréquences dans le front avant, et à plus hautes fréquences à l'arrière. Il est important de remarquer que la fréquence instantanée croît linéairement au centre de l'impulsion, ce qui fait dire à certains auteurs que le glissement de fréquence est linéaire. La pente est positive, comme dans le cas de dispersion normale représenté sur la Figure 1, d'où l'intérêt considérable de la dispersion anormale qui permet de s'opposer à la modulation de fréquence introduite par ce phénomène. Dans le domaine spectral, de nouvelles composantes sont naturellement créées pour rendre compte de cette impulsion temporellement plus complexe, et la transformation de Fourier qui le révèle doit être réalisée numériquement en l'absence de solution analytique.



**Figure 3 :** Spectre et phase spectrale redressée obtenue par l'expression théorique d'une impulsion automodulée pour une propagation sur  $L_{\text{automod}}$  et  $12 L_{\text{automod}}$  (l'axe horizontal représente la fréquence mais il est ici en unité arbitraire). Sur la deuxième courbe, l'accroissement en largeur et la perte d'amplitude du spectre sont très remarquables par rapport à la première figure dont le spectre représente quasiment celui de l'impulsion non automodulée (amplitude à l'unité pour l'impulsion initiale). L'échelle sur la phase n'est pas représentée. La variation de phase est de l'ordre de 1 radian dans la première figure, et de l'ordre de 8 radians dans la seconde.

Les Figures 3 présentent l'amplitude et la phase spectrales théoriques pour une impulsion ayant subi des automodulations de phase différentes. Les points remarquables sur ces figures sont :

- La largeur du spectre augmente de manière linéaire avec l'automodulation (surtout à fort déphasage non linéaire introduit). Pour des impulsions très intenses et des milieux assez non linéaires, ce processus peut créer plusieurs centaines de nanomètres de spectre.
- Pour une propagation sur la longueur d'automodulation de phase, le spectre est légèrement affecté, et la phase est sensiblement quadratique au centre avec une courbure positive. La zone de variation de la phase dans le spectre est déjà de l'ordre du radian.
- Le spectre possède des cannelures typiques de ce type de phénomène qui sont interprétables comme des interférences entre les nouvelles fréquences créées. En effet, temporellement les fréquences créées passent par un minimum dans le front avant et un maximum dans le front arrière. En conséquence, il existe toujours dans l'impulsion deux fréquences identiques susceptibles d'interférer.
- Le spectre et la phase spectrale sont symétriques par rapport à la fréquence centrale. Cet aspect est un corollaire de la forme supposée gaussienne de l'impulsion. Pour des impulsions dissymétriques, d'une part, la compression des fréquences n'égale pas l'étirement temporel que l'on observe sur la Figure 3, d'autre part, le spectre et la phase sont dissymétriques.
- La phase spectrale possède aussi des oscillations dont le caractère non linéaire met en évidence l'impossibilité de compenser une impulsion largement automodulée. Par contre, pour une automodulation de phase raisonnable, la phase est sensiblement parabolique, ce qui permet une compensation du même type que dans la dispersion d'ordre deux. Notons l'aspect linéaire de la phase dans les ailes du spectre.

## 2. L'AUTO-RAIDISSEMENT OU « SELF-STEEPENING » <sup>21</sup>

L'auto-raïdissement est un processus de propagation qui conduit au raidissement avant ou arrière de l'impulsion dans le domaine temporel. Une interprétation simple basée sur l'effet Kerr indique que chaque tranche du profil temporel ressent un indice de réfraction différent, et subit ainsi une vitesse de propagation différente (cet effet pourrait se résumer en disant que la vitesse de groupe dépend de l'éclairement). Pour un indice non linéaire positif, le centre de l'impulsion se propage avec une vitesse plus faible que celle de ses fronts avant et arrière. Le front avant s'éloigne donc du centre, tandis que le front arrière s'en rapproche, amenant ainsi un raidissement sur l'arrière et un assouplissement en avant.

Mathématiquement, cet effet est pris en compte par la dérivée première de la polarisation non linéaire, d'où l'intérêt d'étudier ce processus pour savoir dans quelles circonstances elle sera négligeable. L'équation de base reprend les approximations faites dans l'étude de l'auto modulation de phase. Nous avons :

$$\frac{\partial A(z,t)}{\partial z} = -\frac{3k_0}{4n_0\omega_0} \chi^{(3)} \frac{\partial (|A(z,t)|^2 A(z,t))}{\partial t} - i \frac{3k_0}{8n_0} \chi^{(3)} |A(z,t)|^2 A(z,t). \quad (54)$$

Les solutions de cette équation sont moins triviales. C'est l'équation de Schrödinger non linéaire dans laquelle seule la dispersion d'ordre deux a été négligée. En posant :



$$\beta = \frac{3k_0}{8n_0} \chi^{(3)} \text{ et } \gamma = \frac{3k_0}{4n_0\omega_0} \chi^{(3)}$$

l'équation s'écrit :

$$\frac{\partial A(z,t)}{\partial z} = -\gamma \frac{\partial (|A(z,t)|^2 A(z,t))}{\partial t} - i\beta |A(z,t)|^2 A(z,t). \quad (55)$$

En écrivant l'amplitude complexe du champ sous la forme suivante :  $A(z,t) = \rho(z,t)e^{i\phi(z,t)}$ , on peut dégager deux équations différentielles sur le module et l'argument de l'amplitude du champ :

$$\frac{\partial \phi(z,t)}{\partial z} + \gamma \rho^2(z,t) \frac{\partial \phi(z,t)}{\partial t} = \beta \rho^2(z,t), \quad (56)$$

$$\frac{\partial \rho(z,t)}{\partial z} + 3\gamma \rho^2(z,t) \frac{\partial \rho(z,t)}{\partial t} = 0. \quad (57)$$

L'équation (57) sur l'amplitude du champ est découplée de l'équation (56) portant sur la phase de celui-ci. Ainsi, on peut obtenir directement une solution générale de l'amplitude qui s'écrit sous la forme suivante :

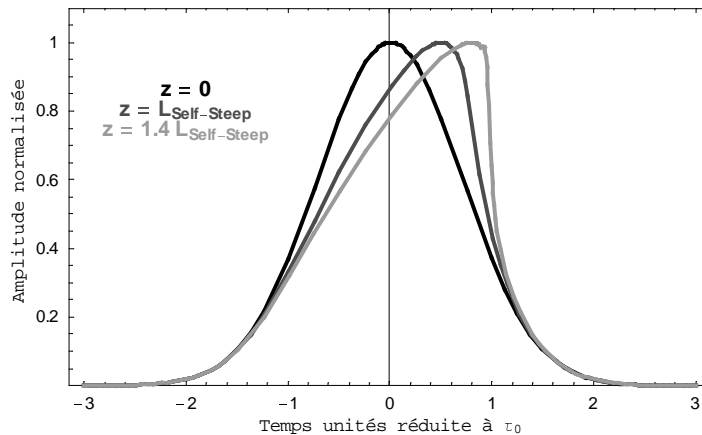
$$\rho(z,t) = f[t - 3\gamma z \rho^2(z,t)] \quad (58)$$

où  $f$  est une fonction arbitraire déterminée par la forme initiale de l'enveloppe du champ (ex : une fonction gaussienne ou une fonction sécante hyperbolique). L'équation portant sur la phase est plus compliquée, mais on peut après quelques opérations obtenir également la solution générale suivante :

$$\phi(z,t) = \frac{\beta}{\gamma} t + h[3\gamma z \rho(z,t) + \rho(z,t)g'(\rho^2(z,t))] \quad (59)$$

où  $h$  est une fonction arbitraire déterminée par les variations de la phase initiale et  $g$  est la fonction inverse de la fonction  $f$  défini précédemment.

Le choix d'une fonction initialement gaussienne permet de définir la fonction  $f(t)$  et de tracer les profils de l'impulsion pour plusieurs distances de propagation.



**Figure 4 : Profil des impulsions pour une propagation sur différentes distances relatives à la longueur  $L_{Self-Steep}$ . Au-delà de cette longueur caractéristique, le profil devient très brutal et il n'est plus possible de trouver des solutions réelles pour l'enveloppe. Le raidissement du front arrière correspond bien à l'idée que pour un indice de réfraction positif, le centre de l'impulsion est moins rapide et se déplace donc vers son aile arrière.**

Ce problème implique de nouveau une distance naturelle dans les équations. La longueur d'auto-raïdissement correspond à un déplacement du pic de l'impulsion équivalent à la largeur temporelle de celle-ci par rapport à son centre. Nous avons choisi la moitié de cette distance comme longueur caractéristique :

$$L_{Self-Steep} = \frac{\tau_0 \omega_0}{12k_0 n_2 I_{Max}} = \frac{\tau_0 \omega_0}{12} L_{Automod}. \quad (60)$$

Cette longueur se rapproche de la longueur d'automodulation de phase, mais elle est augmentée d'un facteur lié au nombre d'oscillations du champ dans l'enveloppe. A titre d'exemple, pour une impulsion d'une centaine de femtosecondes, elle vaut 7 cm lorsque  $L_{Automod}$  vaut 3 mm. Cet ordre de grandeur montre clairement lorsque nous travaillons avec des échantillons fins, la possibilité d'éliminer dans l'équation de propagation la dérivée première de la polarisation par rapport au temps. En outre, le terme de polarisation non linéaire décrivant l'automodulation de phase sera toujours largement prépondérant.

La Figure 4 présente les profils de l'enveloppe pour différentes distances de propagation et nous pouvons remarquer que :

- Il n'y a pas d'élargissement temporel du profil et l'amplitude maximum est inchangée en raison de la conservation de l'énergie. Seule la répartition temporelle de l'énergie change.
- Pour des propagations dépassant la longueur caractéristique, le profil devient très raide, et l'équation implicite ne semble plus posséder de solutions réelles. Il est bien clair qu'il s'agit d'un cas théorique ; dans la réalité, l'effet de la dispersion permet d'éviter ce comportement peu physique.
- Il est possible de résoudre numériquement l'équation pour la phase temporelle, mais il est facile de conjecturer qu'elle possède la même allure que l'enveloppe, simplement à cause de l'effet d'automodulation de phase qui est majoritaire.
- Le spectre de cette impulsion qui doit aussi être obtenu numériquement à partir de la phase et de l'amplitude temporelle révèle la prédominance de l'automodulation de phase par le spectre cannelé. Par contre, il présente une dissymétrie déjà observée expérimentalement<sup>22,23</sup> tout à fait compatible avec l'idée d'une automodulation de phase sur une enveloppe temporelle dissymétrique.

L'auto-raïdissement est un régime de propagation difficile à mettre en évidence<sup>24</sup> car de nombreux processus peuvent conduire à une dissymétrie de l'impulsion initiale (la dispersion d'ordre trois ou bien la présence de non linéarité non instantanée sont les plus évidentes de ces perturbations).

### 3. AUTO-FOCALISATION ET SOLITONS SPATIAUX

Jusqu'ici, nous avons considéré les impulsions comme des ondes planes, ce qui permet de ne décrire leurs variations temporelles qu'avec une coordonnée spatiale. Cela implique que l'intensité sur le faisceau est constante et que son diamètre est infini, ce qui ne réalise pas vraiment le meilleur ajustement avec les véritables faisceaux laser. La prise en compte du caractère transverse des champs en introduisant le Laplacien dans l'équation de propagation mène vers un nouveau domaine très intéressant, relatif à la géométrie des faisceaux et à la propagation du point de vue spatial. C'est la seule manière d'introduire correctement les

notions de rayon de faisceau et de phase radiale, souvent ajoutées d'emblée à des modèles en ondes planes. L'écriture de l'équation de propagation sans second membre dans laquelle on néglige les phénomènes dispersifs conduit à la célèbre équation paraxiale d'Helmholtz (Hermann 1821-1894) :

$$\Delta_{\perp} A(\mathbf{r}, t) - 2ik(\omega_0) \frac{\partial A(\mathbf{r}, t)}{\partial z} = 0. \quad (61)$$

Une des solutions pour l'amplitude complexe du champ est décrite par le faisceau gaussien d'expression générale :

$$A(r, z, t) = \frac{A_0}{w(z)} \exp\left[-\frac{r^2}{w^2(z)}\right] \exp\left[-ik(\omega_0) \frac{r^2}{2R(z)}\right] \exp\left[i \arctan\left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2}\right)\right] \quad (62)$$

$$\text{avec} \quad w^2(z) = w_0^2 \left(1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2}\right)^2\right) \quad \text{et} \quad R(z) = z \left(1 + \left(\frac{\pi w_0^2}{\lambda z}\right)^2\right). \quad (63)$$

Les fonctions  $w(z)$  et  $R(z)$  représentent respectivement le rayon du faisceau et le rayon de courbure de la surface équiphase. L'équation d'Helmholtz possède en réalité une infinité de solutions pour lesquelles il est possible de trouver des bases de fonctions linéairement indépendantes. Les bases les plus utilisées sont les fonctions d'Hermite-Gauss, à symétrie axiale, dont le faisceau gaussien de l'expression (62) représente le mode fondamental ; la base des fonctions de Laguerre-Gauss représente les solutions à symétrie cylindrique, et celle des faisceaux de Bessel traduit l'absence de divergence et l'existence de surfaces équiphases planes. Il nous semble indispensable de remarquer l'analogie entre les effets spatiaux (la diffraction) et les effets temporels (la dispersion) dans la propagation de l'impulsion<sup>25</sup>. La taille du faisceau et le rayon de courbure subissent les mêmes lois d'évolution que la durée de l'impulsion et le paramètre de dérive de fréquence.

En présence du terme de polarisation non linéaire, l'équation de propagation prend la forme :

$$\Delta_{\perp} A(\mathbf{r}, t) - 2ik(\omega_0) \frac{\partial A(\mathbf{r}, t)}{\partial z} = -\frac{3k_0^2}{4} \chi^{(3)} |A(\mathbf{r}, t)|^2 A(\mathbf{r}, t). \quad (64)$$

Cette équation ne possède pas de solution analytique, et une méthode naturelle pour obtenir des solutions consiste à proposer un faisceau gaussien dans lequel il faut déterminer le rayon de courbure  $R(z)$ , la taille de faisceau  $w(z)$ , la phase sur l'axe  $p(z)$  et l'atténuation sur l'axe  $h(z)$ . Nous pouvons alors obtenir le système d'équations :

$$\frac{d^2 w(z)}{dz^2} = \frac{4}{k(\omega_0) w^3(z)} - \frac{3A_0^2 \chi^{(3)}}{4n_0^2 r^2 w(z)} \left(1 - \exp\left[-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right]\right) \quad (65)$$

$$\frac{dR(z)}{dz} = 1 - \frac{4R^2(z)}{k^2(\omega_0) w^4(z)} + \frac{3A_0^2 \chi^{(3)} R^2(z)}{4n_0^2 r^2 w^2(z)} \left(1 - \exp\left[-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right]\right) \quad (66)$$

$$\frac{dp(z)}{dz} = \frac{2}{k^2(\omega_0) w^2(z)} - \frac{3A_0^2 \chi^{(3)} k_0}{8n_0 w^2(z)} \quad \text{et} \quad \frac{dh(z)}{dz} = 0 \quad (67)$$

Cette écriture montre la limitation sur le choix de la fonction solution. De manière évidente, la coordonnée radiale dans les relations sur le rayon de courbure et sur la taille du faisceau est absurde et montre clairement qu'il n'existe plus de solution gaussienne à ce problème. Toutefois il est facile de s'apercevoir qu'un développement limité de l'exponentielle au premier ordre va supprimer cette dépendance radiale dans les équations. C'est l'approximation parabolique très utilisée dans les problèmes d'autofocalisation. Dans ces conditions, il est possible de calculer analytiquement chacune des fonctions. La taille du faisceau est donnée par :

$$w^2(z) = w_0^2 \left( 1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right)^2 \left( 1 - \frac{3}{8} A_0^2 k_0^2 \mathcal{X}^{(3)} \right) \right). \quad (68)$$

Cette relation caractérise l'évolution du rayon d'un faisceau dans un milieu non linéaire de moins l'infini à plus l'infini. On peut voir alors qu'il n'existe pas vraiment de longueur au bout de laquelle le phénomène devient prépondérant ; la situation est plus manichéenne et se résume en trois cas :

- Le facteur de la longueur de Fresnel dans l'expression de  $w(z)$  est positif. Le faisceau va converger puis diverger, en passant par une taille minimale  $w_0$ .
- Le facteur est nul. Le faisceau conserve sa taille tout au long de sa propagation. On parle de soliton spatial, puisque la forme spatiale n'est pas altérée par la propagation (d'ailleurs, l'écriture de l'équation à une dimension rappelle tout à fait l'équation de Schrödinger non linéaire, dans laquelle la dérivée temporelle seconde provenant de la dispersion est remplacée par la dérivée spatiale seconde provenant du Laplacien). Ce soliton s'explique par le juste équilibre entre un effet focalisant et la divergence naturelle du faisceau. C'est une propagation instable dans les matériaux massifs, mais elle est couramment observée sous les conditions de son apparition dans les guides (stabilité en deux dimensions). Dans la littérature, on parle d'auto-guidage<sup>26,27</sup>.
- Le facteur est négatif. Dans ce dernier cas, la taille du faisceau se met à décroître jusqu'à une valeur nulle. Il s'agit d'un régime destructif dont l'aboutissement n'est pas la condensation du faisceau sur un point de dimension 0, mais généralement une transition vers une propagation chaotique dont la filamentation est le paradigme.

Le terme contenant la susceptibilité d'ordre trois dans la relation (68) apparaît comme un facteur critique dans le processus d'autofocalisation. En réalité, ce calcul analytique dans l'approximation parabolique fournit uniquement un ordre de grandeur mais il ne décrit pas correctement les valeurs nécessaires à l'autofocalisation<sup>28,29</sup>. L'utilisation d'une résolution numérique de l'équation (62), nous a indiqué que dans nos conditions d'utilisation du titane saphir (300 mW sur l'échantillon), la taille du faisceau n'est jamais affectée au-delà de 10%, tandis que le déplacement vers l'avant de l'échantillon (lorsque l'indice non linéaire est positif) n'est pas supérieur à quelques dizaines de micromètres. Cet effet, bien qu'il soit relativement petit, n'est pas négligeable, car la variation de la taille du col est toujours un paramètre critique dans des expérimentations de mesure sur l'indice non linéaire. Il est à notre avis indispensable de s'affranchir de ce rétrécissement du col du faisceau qui compliquerait beaucoup l'analyse et nécessite un recours à la programmation obligatoire. C'est une des raisons qui nous oblige à penser que l'approche expérimentale avec une source laser non amplifiée (puissance crête faible) est très suffisante pour des mesures de non linéarités.

#### 4. PROPAGATION SOLITON ET EQUATION DE SCHRÖDINGER NON LINEAIRE

Un régime très intéressant et qui a motivé beaucoup d'études est celui de la propagation en présence de dispersion au second ordre et d'automodulation de phase. Cet intérêt n'est pas fortuit ; nous avons vu que la dispersion et l'automodulation de phase étaient capables de produire des effets à peu près équivalents et donc qu'ils pouvaient se compenser. L'équation de propagation en présence de ces deux phénomènes s'écrit dans l'espace temporel :

$$\frac{\partial A(z,t)}{\partial z} - \frac{i}{2} \left( \left( \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right)_{\omega_0} + \frac{1}{k(\omega_0)} \left( \frac{dk}{d\omega} \right)_{\omega_0}^2 \right) \frac{\partial^2 A(\mathbf{r},t)}{\partial t^2} = -i \frac{3k_0}{8n_0} \chi^{(3)} |A(z,t)|^2 A(z,t). \quad (69)$$

Généralement, le terme de dispersion au second ordre est de plusieurs ordres de grandeur supérieur à son terme adjacent qui est négligé. Plusieurs changements de variables permettent d'adimensionner l'équation et conduisent à l'équation de Schrödinger non linéaire, où le signe  $\pm$  est relatif au signe de la dispersion d'ordre deux :

$$i \frac{\partial u(\zeta, \tau)}{\partial \zeta} \pm \frac{1}{2} \frac{\partial^2 u(\zeta, \tau)}{\partial \tau^2} + |u(\zeta, \tau)|^2 u(\zeta, \tau) = 0. \quad (70)$$

Malgré sa complexité, cette équation peut être résolue exactement par la méthode de diffusion inverse découverte par C. Gardner<sup>30</sup> et utilisée dans le cas particulier de cette équation par Zakharov et Shabat<sup>31</sup>. Ces solutions, qui impliquent des fonctions hyperboliques, sont très distinctes suivant le signe du coefficient de dispersion du second ordre.

- Pour le régime de dispersion anormale, les solutions mettent en évidence un nombre lié au rapport entre la longueur de dispersion et la longueur d'automodulation de phase. Lorsque ce nombre est entier, il correspond à des solutions de propagation particulières appelées solitons. Ce critère permet de déterminer une puissance particulière de création du soliton. D'autre part, les solutions possèdent une périodicité en  $z$ , ce qui signifie que leur forme temporelle se reproduit identique à elle-même, après une certaine distance de propagation. Physiquement, nous avons bien l'intuition que le régime d'automodulation (avec  $n_2$  positif) entraînant une modulation et une dérive de fréquence positive peut être, pour des paramètres convenables, compensé par la dispersion anormale dont l'effet est opposé. Cette impulsion qui maintient son paramètre de dérive à zéro durant sa propagation correspond au soliton d'ordre 1.
- Pour le régime normal de dispersion, une autre sorte de solitons appelés solitons noirs (« Dark Pulse Solitons ») est prévue et a déjà été observée. Elle est décrite mathématiquement par des fonctions en tangentes hyperboliques.

#### 5. GENERATION DE TROISIEME HARMONIQUE

La génération de troisième harmonique est un phénomène bien compris et relativement bien modélisé. Comme pour la génération de deuxième harmonique, il est nécessaire d'avoir une condition d'accord de phase qui permette le recouvrement entre le faisceau à la fréquence fondamentale et le faisceau naissant à l'harmonique trois. Cette condition peut être satisfaite dans des matériaux anisotropes. Hors de cette condition d'accord de phase, la génération de troisième harmonique peut être totalement négligée, évitant une déplétion inattendue de la pompe. Néanmoins, dans le cas de mesure d'indice non linéaire sur des poudres, cette technique peut être utilisée avec un laser de forte puissance crête.

## 6. L'ABSORPTION A DEUX PHOTONS

Il ne s'agit pas à proprement parler d'un phénomène de propagation puisqu'il n'induit pas de régime de propagation particulier. L'absorption à deux photons est un processus concomitant avec le rapprochement de l'énergie de deux photons avec la hauteur des bandes d'absorption du matériau. Il est modélisé en mécanique quantique (Voir par exemple Y.R. Shen<sup>3</sup>, pages 202-210) par une variation de l'intensité du faisceau sous la forme :

$$I(z) = \frac{I_0}{1 + I_0 \gamma z} \quad \text{ou pour de faibles absorptions} \quad I(z) = I_0(1 - I_0 \gamma z) \quad (71)$$

où  $\gamma$  comprend la partie imaginaire de la susceptibilité du troisième ordre. Insistons sur un détail important, la mécanique quantique fournit le cadre rigoureux de ce processus, et permet l'écriture la susceptibilité complexe dans le domaine fréquentiel. Mais cette écriture est de peu d'intérêt car il n'est pas possible de passer dans l'espace conjugué pour connaître l'expression temporelle de la polarisation. En conséquence, l'absorption à deux photons est souvent simplement modélisée par un coefficient phénoménologique qui provoque une atténuation linéaire du faisceau avec l'éclairement incident et la distance parcourue.

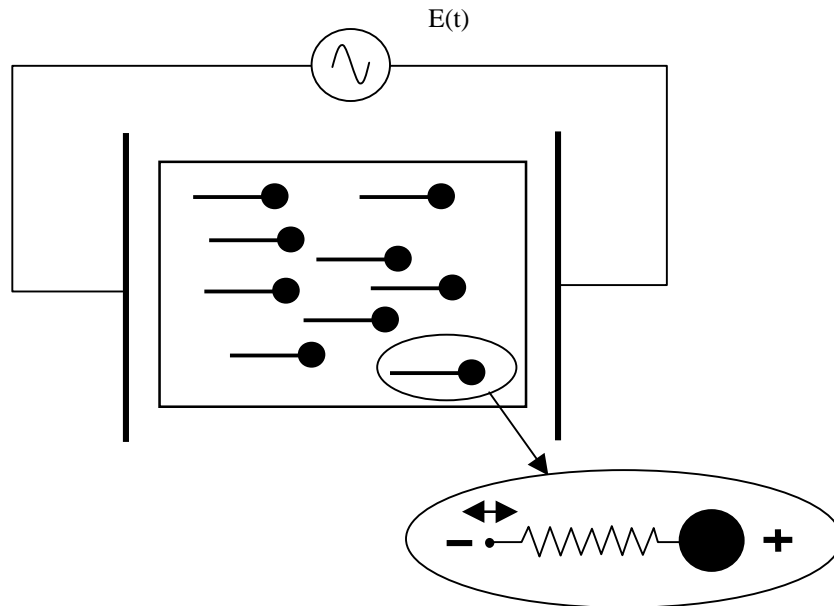
Comme on va le voir au chapitre V, ce processus peut également être modélisé comme étant de l'absorption non linéaire traduit par la partie imaginaire de la susceptibilité non linéaire d'ordre trois.

## 7. DIFFUSION INELASTIQUE (STIMULATED INELASTIC SCATTERING)

Les processus non linéaires que nous avons décrits sont élastiques dans le sens qu'il n'y a pas d'énergie échangée entre le champ électromagnétique et le milieu diélectrique. Une autre classe d'effets non linéaires apparaît dans les processus inélastiques où une partie de l'énergie est transférée au milieu, généralement par l'excitation des modes vibrationnels du milieu non linéaire. Les deux processus les plus importants sont la diffusion Raman stimulée (SRS Stimulated Raman Scattering) qui implique les phonons optiques du milieu, et la diffusion Brillouin stimulée (SBS) qui implique les phonons acoustiques.

## D. Complément I.1. : De la balançoire à l'optique non linéaire

Considérons un milieu constitué de dipôles soumis à un champ électrique  $E(t)$  d'une



certaine amplitude et oscillant à une certaine fréquence. On modélise les dipôles comme étant un électron attaché à une grosse masse considérée comme fixe avec un ressort. Cet électron peut donc se mouvoir autour de sa position d'équilibre.

De façon générale, le dipôle se trouvant dans un milieu, l'électron se trouve dans un potentiel anharmonique et l'on peut écrire l'évolution de la position de celui-ci par rapport à sa position d'équilibre de la manière suivante :

$$\frac{\partial^2 x}{\partial t^2} + \Gamma \frac{\partial x}{\partial t} + \omega_A^2 x + (\zeta^{(2)} x^2 + \zeta^{(3)} x^3 + \dots) = -\frac{e}{m} E(t) \quad (72)$$

où  $\omega_A$  est la fréquence de résonance de l'électron,  $\Gamma/2$  son taux d'amortissement et  $E(t)$  le champ électrique d'excitation.

### 1. CAS D'UN CHAMP ELECTRIQUE FAIBLE : OSCILLATIONS LINEAIRES

Considérons le champ électrique monochromatique suivant :

$$E(t) = \frac{E_0}{2} [\exp(-i\omega t) + \exp(i\omega t)]. \quad (73)$$

Dans le cas où ce champ est faible, la force de réponse de l'oscillateur reste linéaire, l'équation se simplifie et se résout analytiquement :

$$\frac{\partial^2 x}{\partial t^2} + \Gamma \frac{\partial x}{\partial t} + \omega_A^2 x = -\frac{e}{m} E(t). \quad (74)$$

On obtient comme solution de l'équation en régime forcée :

$$x(t) = -\frac{eE_0}{m} \frac{\exp(-i\omega t)}{\omega_A^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega} + cc \quad (75)$$

soit si  $|\omega - \omega_A| \ll \omega_A$  :

$$x(t) = \frac{eE_0}{2m\omega_A} \frac{\exp(-i\omega t)}{\Delta + i\Gamma/2} + cc \quad \text{où } \Delta = \omega - \omega_A \text{ est le désaccord à la résonance.} \quad (76)$$

La polarisation induite dans le milieu s'écrit alors :  $P = -Nex$  où  $N$  est le nombre de dipôles par unité de volume. Dans ce cas, la polarisation est directement proportionnelle au champ électrique et la susceptibilité linéaire s'écrit :  $\chi^{(1)} = \chi'^{(1)} + i\chi''^{(1)}$

$$P(t) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} E_0 \exp(-i\omega t) + cc \quad (77)$$

avec

$$\chi'^{(1)} = \frac{-Ne^2}{2\varepsilon_0 m \omega_A} \frac{\Delta}{\Delta^2 + \Gamma^2/4} \quad (78)$$

$$\chi''^{(1)} = \frac{Ne^2}{2\varepsilon_0 m \omega_A} \frac{\Gamma/2}{\Delta^2 + \Gamma^2/4}. \quad (79)$$

Tout ce développement n'est valable que pour de petits déplacements de l'électron autour de sa position d'équilibre. Pour des déplacements plus importants, la réponse de la force de rappel devient non linéaire et l'on est obligé de prendre en compte les termes anharmoniques  $\zeta^{(2)}x^2 + \zeta^{(3)}x^3 + \dots$

## 2. CHAMP ELECTRIQUE FORT : OSCILLATIONS NON LINEAIRES

### a. Milieu non centrosymétrique, sommation de fréquences, différences de fréquences

Considérons le champ électrique suivant :

$$E(t) = \frac{E_1}{2} [\exp(-i\omega_1 t) + \exp(i\omega_1 t)] + \frac{E_2}{2} [\exp(-i\omega_2 t) + \exp(i\omega_2 t)]. \quad (80)$$

Dans le cas d'un champ fort, la force de réponse de l'oscillateur n'est plus linéaire. On rajoute alors à la force de rappel de l'oscillateur un terme non linéaire d'ordre deux proportionnel à  $\zeta^{(2)}$ . L'équation différentielle s'écrit alors :

$$\frac{\partial^2 x}{\partial t^2} + \Gamma \frac{\partial x}{\partial t} + \omega_A^2 x + \zeta^{(2)} x^2 = -\lambda \frac{e}{m} E(t). \quad (81)$$

Cette équation n'a pas de solution analytique, néanmoins on peut la résoudre par perturbation en introduisant dans le second membre un paramètre  $\lambda$  compris entre 0 et 1 défini comme étant la puissance de la perturbation apportée au système. Dans ce cadre, la solution de l'équation peut s'écrire sous la forme suivante :

$$x = \lambda x^{(1)} + \lambda^2 x^{(2)} + \lambda^3 x^{(3)} + \dots \quad (82)$$

Le remplacement de cette solution dans l'équation différentielle nous donne trois équations différentielles respectivement proportionnelles à  $\lambda$ ,  $\lambda^2$  et  $\lambda^3$  :

$$\frac{\partial^2 x^{(1)}}{\partial t^2} + \Gamma \frac{\partial x^{(1)}}{\partial t} + \omega_A^2 x^{(1)} = -\frac{e}{m} E(t) \quad (83)$$



$$\frac{\partial^2 x^{(2)}}{\partial t^2} + \Gamma \frac{\partial x^{(2)}}{\partial t} + \omega_A^2 x^{(2)} + \zeta^{(2)} [x^{(1)}]^2 = 0 \quad (84)$$

$$\frac{\partial^2 x^{(3)}}{\partial t^2} + \Gamma \frac{\partial x^{(3)}}{\partial t} + \omega_A^2 x^{(3)} + 2\zeta^{(2)} x^{(1)} x^{(2)} = 0. \quad (85)$$

La première équation (83) représente l'évolution linéaire de l'oscillateur vue précédemment. Avec le champ électrique à deux couleurs, la solution linéaire s'écrit :

$$x^{(1)}(t) = -\frac{eE_1 \exp(-i\omega_1 t)}{m D(\omega_1)} - \frac{eE_2 \exp(-i\omega_2 t)}{m D(\omega_2)} + cc \quad (86)$$

avec  $D(\omega_j) = \omega_A^2 - \omega_j^2 - i\Gamma\omega_j$

La deuxième équation (84) représente l'évolution non linéaire à l'ordre deux de l'oscillateur. Le terme  $[x^{(1)}]^2$  fait apparaître toutes les combinaisons de fréquences possibles entre  $\omega_1$  et  $\omega_2$ . Les différents termes de la solution à l'équation (84) peuvent s'écrire de la façon suivante :

Doublement de la fréquence  $\omega_1$  :

$$x^{(2)}(t) = -\zeta^{(2)} \left( \frac{eE_1}{m} \right)^2 \frac{\exp(-i2\omega_1 t)}{D^2(\omega_1)D(2\omega_1)} + cc. \quad (87)$$

Doublement de la fréquence  $\omega_2$  :

$$x^{(2)}(t) = -\zeta^{(2)} \left( \frac{eE_2}{m} \right)^2 \frac{\exp(-i2\omega_2 t)}{D^2(\omega_2)D(2\omega_2)} + cc. \quad (88)$$

Sommation des fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  :

$$x^{(2)}(t) = -2\zeta^{(2)} \left( \frac{e}{m} \right)^2 E_1 E_2 \frac{\exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t)}{D(\omega_1 + \omega_2)D(\omega_1)D(\omega_2)} + cc. \quad (89)$$

Différence des fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  :

$$x^{(2)}(t) = -2\zeta^{(2)} \left( \frac{e}{m} \right)^2 E_1 E_2^* \frac{\exp(-i(\omega_1 - \omega_2)t)}{D(\omega_1 - \omega_2)D(\omega_1)D(-\omega_2)} + cc. \quad (90)$$

Terme à la fréquence nulle :

$$x^{(2)}(t) = -2\zeta^{(2)} \left( \frac{e}{m} \right)^2 \frac{E_1 E_1^*}{D(0)D(\omega_1)D(-\omega_1)} - 2\zeta^{(2)} \left( \frac{e}{m} \right)^2 \frac{E_2 E_2^*}{D(0)D(\omega_2)D(-\omega_2)}. \quad (91)$$

La polarisation étant définie de la manière suivante dans le cas particulier du terme de seconde harmonique :

$$P^{(2)}(2\omega_1) = \chi^{(2)}(2\omega_1; \omega_1, \omega_1) E^2(\omega_1) = -Ne\tilde{\chi}^{(2)}(2\omega_1). \quad (92)$$

On peut finalement en déduire l'expression de la susceptibilité du milieu au second ordre dans le cas du terme de génération de seconde harmonique :

$$\chi^{(2)}(2\omega_1; \omega_1, \omega_1) = \frac{N(e^3/m^2)\zeta^{(2)}}{D(2\omega_1)D^2(\omega_1)} = \frac{m\zeta^{(2)}}{N^2 e^3} \chi^{(1)}(2\omega_1) [\chi^{(1)}(\omega_1)]^2. \quad (93)$$

Naturellement, on peut calculer de la même manière tous les autres termes de la susceptibilité non linéaire dans les cas de sommation et de différence de fréquences.

## b. Milieu centrosymétrique

Dans le cas d'un milieu centrosymétrique, la force de réponse de l'oscillateur s'écrit comme la somme de la force de rappel avec un terme non linéaire d'ordre trois proportionnel à  $\zeta^{(3)}$ . En effet, dans un milieu centrosymétrique, par définition le potentiel doit rester inchangé sous l'opération  $x \rightarrow -x$ , donc le potentiel ne peut contenir que des termes de puissances paires, par conséquent la force de réponse de l'oscillateur ne peut contenir que des termes de puissances impaires. Le premier terme non linéaire est alors le terme à l'ordre trois. Ainsi, l'équation différentielle peut s'écrire :

$$\frac{\partial^2 x}{\partial t^2} + \Gamma \frac{\partial x}{\partial t} + \omega_A^2 x + \zeta^{(3)} x^3 = -\frac{e}{m} E(t). \quad (94)$$

Par une technique similaire à la précédente, on peut résoudre cette équation par la théorie des perturbations. Dans le cas assez général d'un champ incident de la forme :

$$E(t) = \frac{E_1}{2} [\exp(-i\omega_1 t) + \exp(i\omega_1 t)] + \frac{E_2}{2} [\exp(-i\omega_2 t) + \exp(i\omega_2 t)] + \frac{E_3}{2} [\exp(-i\omega_3 t) + \exp(i\omega_3 t)] \quad (95)$$

La solution au troisième ordre de perturbation s'écrit alors comme :

$$x^{(3)}(\omega_q) = - \sum_{(mnp)} \frac{\zeta^{(3)} e^3 [E(\omega_m) \cdot E(\omega_n)] E(\omega_p)}{m^3 D(\omega_q) D(\omega_m) D(\omega_n) D(\omega_p)} \quad (96)$$

et la susceptibilité non linéaire du troisième ordre comme :

$$\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_q, \omega_m, \omega_n, \omega_p) = \frac{N \zeta^{(3)} e^4 [\delta_{ij} \delta_{kl} + \delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}]}{3m^3 D(\omega_q) D(\omega_m) D(\omega_n) D(\omega_p)} \quad (97)$$

En optique, ces phénomènes non linéaires se traduisent de manière visible par une émission de lumière à des fréquences harmoniques de la longueur d'onde fondamentale et de manière moins visible par des effets spatiaux ou temporels sur l'onde lumineuse incidente.

Tout le développement effectué précédemment utilise la théorie des perturbations pour obtenir des solutions des équations différentielles. Bien entendu, cela sous-entend que le champ électrique appliqué au matériau ne doit pas être trop fort afin que les termes non linéaires soient largement inférieurs au terme de force linéaire proportionnel au déplacement  $x$ , et cela quel que soit le déplacement induit par le champ électrique. Ce n'est seulement que dans ces conditions que l'on pourra résoudre les équations par perturbation et développer ainsi la polarisation suivant les puissances du champ électrique comme suit :

$$P_i = \epsilon_0 [\chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots]. \quad (98)$$

Ce développement reste une approximation qui est à la base de toute la théorie de l'optique non linéaire développée par N. Bloembergen en 1961<sup>32</sup>.

## E. Complément I.2. : Quelques formes de tenseurs de susceptibilité d'ordre 2 et 3 utilisées dans ce manuscrit

### 1. SUSCEPTIBILITE D'ORDRE 2

Cristal cubique :

- Classe 432 (Ex : Si) :  $xyz = -xzy = yzx = -yxz = zxy = -zyx$  (1 élément indépendant)
- Classe  $\bar{4}3m$  (Ex: GaAsP) :  $xyz = xzy = yzx = yxz = zxy = zy x$  (1 élément indépendant)
- Classe 23 :  $xyz = yzx = zxy$  ,  $xzy = yxz = zy x$  (2 éléments indépendants)
- Classe m3, m3m : Tous les éléments sont nuls

Milieu isotrope : Tous les éléments sont nuls

### 2. SUSCEPTIBILITE D'ORDRE 3

Cristal cubique :

- Classes 432,  $\bar{4}3m$  et m3m : 21 éléments non nuls dont 4 indépendants

$$\begin{aligned} xxx &= yyy = zzz, \\ yyz &= zzy = zzx = xxz = xxy = yyx, \\ zyz &= zzy = zzx = xzx = xyx = yxy, \\ yzy &= zyy = zxx = xzz = xyy = yxy. \end{aligned}$$

Milieu isotrope : 21 éléments non nuls dont 3 indépendants

$$\begin{aligned} yyz &= zzy = zzx = xxz = xxy = yyx, \\ zyz &= zzy = zzx = xzx = xyx = yxy, \\ yzy &= zyy = zxx = xzz = xyy = yxy. \end{aligned}$$

et

$$xxx = yyy = zzz = xxy + xyx + xyy$$

- 
- <sup>1</sup> N. Bloembergen, "Nonlinear Optics", *Advanced Book Classics*
- <sup>2</sup> P.N. Butcher, D. Cotter, « The elements of Nonlinear Optics », *Cambridge University Press* (1990)
- <sup>3</sup> Y.R. Shen, « The principles of Nonlinear Optics », *Wiley Interscience Publication* (1984)
- <sup>4</sup> S.A. Akmanov, V.A. Vysloukh, S.A. Chirkin, « Optics of Femtosecond Laser Pulses », *American Institute of Physics* (1992)
- <sup>5</sup> J.C. Diels, W. Rudolph, « Ultrashort Laser Pulse Phenomena », *Optics and Photonics, Academic Press* (1996)
- <sup>6</sup> Agrawal, « Non linear fiber optics », *Optics and Photonics, Academic Press, San Diego*
- <sup>7</sup> R.W. Boyd, *Nonlinear Optics*, *Academic Press* (1992)
- <sup>8</sup> J.D. Jackson, « Classical Electrodynamics », Second edition, Page 308 : effets non locaux dans les matériaux.
- <sup>9</sup> B. Bousquet, Thèse d'université de Bordeaux 1, « Spectroscopie résonnante en milieu dense. Exploitation de la phase du signal dans une expérience pompe sonde », soutenue le 11 décembre 1997, n° d'ordre 1836.
- <sup>10</sup> R.W. Hellwarth, « Third order optical susceptibilities of liquids and solids » *Prog. Quantum Electro. Vol 5, N°1, 1-68, (1977).*
- <sup>11</sup> J.D. Jackson, « Classical Electrodynamics », *Ed. Wiley, ISBN : 0-471-43132-X*
- <sup>12</sup> D.A. Kleinman, *Phys. Rev.* **26**, p1977 (1962)
- <sup>13</sup> Born and Wolf, « Principles of Optics », *Pergamon Press*
- <sup>14</sup> Voir par exemple Agrawal, « Non linear fiber optics », *Optics and Photonics, Academic press, San Diego. Page 36.*
- <sup>15</sup> R. Szipöcs, K. Ferencz, C.H. Spielmann and F. Krausz, « Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers », *Opt. Lett.* **19**, 201 1994.
- <sup>16</sup> N. Matuschek, F.X. Kartner and U. Keller, « Theory of double chirped Mirrors », *IEEE, J. Quant. Elect. Vol. 4, N°2, 1998.*
- <sup>17</sup> R.G. Brewer, *Phys. Rev. Lett.* **19**, 8 (1967)
- <sup>18</sup> F. Shimizu, *Phys. Rev. Lett.* **19**, 1097 (1967)
- <sup>19</sup> A.C. Cheung et al., *Phys. Rev. Lett.* **20**, 786 (1968)
- <sup>20</sup> Voir par exemple Jean Claude Diels, Wolfgang Rudolph, « Ultrashort laser pulse phenomena », *Optics and Photonics, ISBN :0-12-215492-4. Pages 138-142.*
- <sup>21</sup> D. Anderson, M. Lisak, *Phys. Rev. A* **27**, N°3, 1393-1398 (1983)
- <sup>22</sup> W.H. Knox, R.L. Fork, M.C. Downer, R.H. Stolen and C.V. Shank, « Optical pulse compression to 8 fs at a 5 khz repetition rate », *Appl. Phys. Lett.* **46**, 1120-1121, 1985.
- <sup>23</sup> Voir aussi les exemples de spectres automodulés dans Akhmanov, ref 4, pages 95.
- <sup>24</sup> Par exemple, J.F. Lami, S. Petit and C. Hirleiman, « Self Steepening and Self-compression of Ultrashort optical pulses in a defocusing CdS Cristal », a paraître Février 99 *Physical Review Letters.*
- <sup>25</sup> C. Froehly, « Temporal coherent fiber optics », *New Directions in guided wave and coherent optics, Volume I, Edited by D.B. Ostrowsky and E. Spitz, Martinus Nijhoff Publishers 1984, ISBN : 90-247-2936X.*
- <sup>26</sup> Y. Chen, « Self-trapped light in saturable nonlinear media », *Opt. Lett.* **16**, N°1, 4, 1991.
- <sup>27</sup> E. Nibbering, P. Curley, G. Grillon, B. Prade, M. Franco, F. Salin and A. Mysyrowicz, « Canonical emission from self guided femtosecond pulses in air », *Opt. Lett.* **21**, N° 1, 62 (1996).
- <sup>28</sup> Amnon Yariv, « Quantum Electronics », Third edition, John Wiley and Sons, ISBN 0-471-60997-8.

---

<sup>29</sup> G. Fibich, « Adiabatic law for self-focusing of optical beams », *Opt. Lett.* **21**, N°21 1735 (1996).

<sup>30</sup> C.S. Gardner, J. Green, M. Kruskal and R. Miura, *Phys. Rev. Lett.* **19**, 1095 (1967) ; *Comm. Pure Appl. Math.* **27**, 97 (1974)

<sup>31</sup> V.E. Zakharov and A.B. Shabat, *Sov. Phys. JETP* **34**, 62 (1972).

<sup>32</sup> J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P.S. Pershan, *Phys. Rev.* **127**, p 1918 (1962)

## CHAPITRE II

# Obtention et caractérisation des impulsions courtes

Le but de ce travail est de mettre au point un appareillage automatisé (prototype) permettant la mesure sensible et précise des propriétés non linéaires d'ordre trois de matériaux. Parmi les techniques potentielles, nous avons fait le choix<sup>1</sup> d'oscillateurs lasers simples (c'est à dire non amplifiés) afin de permettre l'exploitation de façon réaliste, à l'aide de la modélisation, de la susceptibilité non linéaire<sup>2</sup>. Dans ces conditions, nous avons établi (voir chapitre III) la nécessité d'utiliser des sources laser de puissance crête modeste mais à très fort taux de répétition et d'excellente stabilité afin de pouvoir mettre en œuvre des techniques puissantes de traitement de signal dans l'analyse de faibles effets induits. Plus précisément, dans le cas d'un matériau peu non linéaire tel que la silice, des mesures fiables impliquent une puissance crête sur l'échantillon supérieure à 300kW/cm<sup>2</sup>, comme l'indique la Figure 1 suivante. La focalisation d'un faisceau d'impulsions lasers d'une centaine de femtosecondes de largeur temporelle, d'au moins 100mW de puissance moyenne à une fréquence de répétition de la centaine de mégahertz, correspond au bon ordre de grandeur pour avoir un rapport signal sur bruit correct.

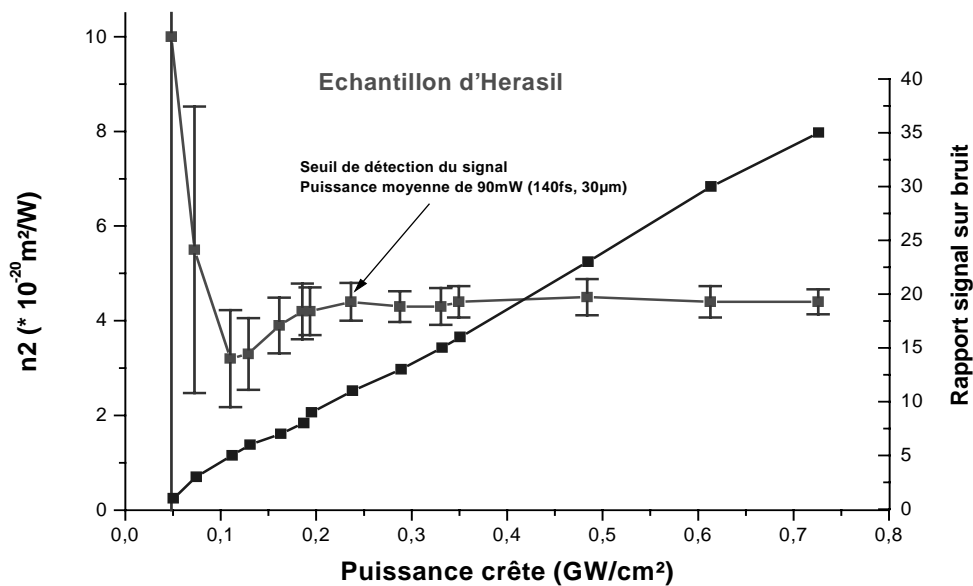


Figure 1 : Evolution de la mesure de l'indice non linéaire d'un échantillon de silice fondue à 800nm (courbe avec les barres d'erreurs) en fonction de la puissance crête du faisceau pompe. La courbe sans barre d'erreur représente le rapport signal sur bruit.

Le choix de la longueur d'onde est aussi important. En effet, dans ce nouveau domaine de la métrologie, nous pensons qu'il est judicieux de définir des régions spectrales pertinentes comme pour les mesures d'indice de réfraction linéaire (Raies spectrales D –Sodium, E, F -Mercure...). Du point de vue des utilisations, il est certain que des mesures aux longueurs d'ondes harmoniques du Laser Néodyme (Yag) 1,06µm, 0,532µm, 0,355µm sont les plus générales et un appareil de mesure standard doit être conçu autour de ces longueurs d'ondes.

L'ensemble des sources lasers présentant les caractéristiques requises appartient à la famille des sources lasers impulsives à modes bloqués fonctionnant en pompage continu. De plus, les critères de bruit et de stabilité nécessaires à une mesure de qualité impliquent les nouveaux procédés de blocage en phase pour les sources laser tout solide (KLM - Kerr Lens Modelocking ou SBR - Saturable Bragg Reflector ou encore SESAM – Semiconductor Saturable Absorber Mirror). Le cas idéal par rapport au bruit et à la facilité de mise en œuvre, semble aussi requérir le pompage par diode laser de puissance.

Dans la mise au point du système de mesure, nous avons dans un premier temps utilisé une source laser accordable qui est susceptible de répondre à ce cahier des charges, de façon optimale en fonction des disponibilités. La phase finale de l'instrument intégrera les derniers développements lasers et sera équipée d'une source laser – non accordable mais fonctionnant sur les trois longueurs d'ondes des chaînes lasers Néodyme.

Nous décrirons tout d'abord le système accordable qui nous a permis d'effectuer la plupart des mesures dans le proche infrarouge (800 - 950 nm) ainsi que dans la partie bleue - Ultraviolette (360 - 400 nm). Nous décrirons ensuite la technologie des sources basées sur des milieux amplificateurs Néodyme ou Ytterbium susceptibles d'être installées sur le montage.

## A. La source laser utilisée

### 1. L'OSCILLATEUR TITANE SAPHIR

Ce laser incontournable depuis des années est à la base de beaucoup d'expériences où l'utilisation des impulsions courtes est nécessaire. Je ne ferai ici qu'une brève description du fonctionnement de ce laser sachant que la littérature est abondante sur ce sujet<sup>3,4</sup>.

Le milieu amplificateur est un cristal de saphir dopé au titane étudié pour la première fois par Moulton<sup>5</sup>. Ces caractéristiques principales sont résumées dans le tableau suivant :

|                        |   |
|------------------------|---|
| Composition            | Ti <sup>3+</sup> : Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> |
| Bande d'émission       | 660-1050 nm                                       |
| Bande d'absorption     | 400-600 nm  |
| Pic d'émission         | 795 nm  |
| Pic d'absorption       | 488 nm  |
| Indice de réfraction   | 1.76 à 800 nm                                     |
| Indice non linéaire    | 3,2.10 <sup>-20</sup> m <sup>2</sup> /W           |
| Durée de fluorescence  | 3,2 μs à 300°K                                    |
| Seuil de dommage       | 10J/cm <sup>2</sup> pour 10ns                     |
| Masse volumique        | 3,98 g/cm <sup>3</sup>                            |
| Température de fusion  | 2050°C  |
| Conductivité thermique | 0,34 W/K/cm                                       |

Parmi ces propriétés, outre le fait que ce cristal possède une grande solidité due à sa structure cristallographique et une très bonne conductivité thermique, il a la particularité d'avoir une largeur de bande de gain dans le proche infrarouge très importante, favorable à la génération d'impulsions brèves accordables en longueur d'onde. Cette largeur peut aussi être utilisée pour générer des impulsions ultra brèves de l'ordre de la dizaine de femtosecondes, la limite actuelle étant d'environ 4,5 femtosecondes<sup>6,7</sup>. Le pompage de cet oscillateur a été réalisé avec un laser argon puis par un laser tout solide - Nd(YVO4) doublé- pompé par diodes que nous décrirons dans le prochain paragraphe. Il s'est avéré que le pompage par ce dernier était plus efficace et surtout beaucoup moins bruyant, à puissance égale, que le

pompage habituel par laser à gaz Argon ionisé. Ceci est dû en partie au fait que l'un est monochromatique (celui pompé par diodes) alors que l'argon est polychromatique ce qui rend l'inversion de population moins efficace. De plus, on a l'avantage de bénéficier de la stabilité inhérente au système tout solide.

La cavité de l'oscillateur – ici un MIRA™ de la société COHERENT- est représentée sur la Figure 2. Le fonctionnement général de ce laser peut se décrire ainsi : la production d'impulsions lumineuses nécessite la mise en phase des différents modes longitudinaux de la cavité. Pour cela, le Ti : saphir utilise un blocage passif original basé sur la création d'une lentille KERR (KLM, Kerr Lens Modelocking) dans le cristal, associée à une fente judicieusement placée dans la cavité. L'effet Kerr dû au champ laser induit dans le cristal un profil d'indice de réfraction proportionnel à la répartition spatiale de l'intensité de l'impulsion. La lentille qui en résulte, conduit à une autofocalisation du faisceau dans le cristal, autofocalisation d'autant plus importante que le champ laser est intense, c'est à dire en fonctionnement pulsé. La propagation du faisceau dans la cavité est alors largement modifiée et une fente placée en un endroit où le faisceau autofocalisé est plus fin va provoquer des pertes plus importantes par diffraction en fonctionnement non-impulsionnel. Cet effet discriminant sur le mode continu par rapport au mode pulsé est strictement équivalent au fonctionnement d'un absorbant saturable. La stabilisation de ce phénomène, à une durée d'impulsion donnée, provient de la compétition entre l'automodulation de phase (due à l'effet Kerr dans le temps) qui a tendance à élargir le spectre et augmenter la puissance crête, et la dispersion des vitesses de groupe par passage dans les milieux ou montages optiques qui ont tendance à diminuer cette puissance crête par étalement temporel du paquet d'onde. D'autres modes de fonctionnement modes bloqués de ce système sont possibles qui tous associent ces deux phénomènes physiques.

La mise en œuvre de ce mode de fonctionnement pulsé implique une création d'instabilité pour éloigner le système laser du régime continu dans lequel il fonctionne très bien. En général, une perturbation du système de mode est susceptible de coupler faiblement quelques modes longitudinaux et provoque ainsi des fluctuations du champ laser, initiant ainsi le processus précédemment décrit. Parmi les perturbations, si le choc mécanique a pu apparaître au début comme Magique (« Magic Mode Locking »), les systèmes classiques utilisent soit la variation rapide de la longueur de cavité<sup>8</sup> (par agitation d'une lame intra-cavité ou bien le déplacement sinusoïdal du miroir terminal monté sur une membrane de haut-parleur) ou bien la mise en route d'un modulateur acousto-optique agissant classiquement comme un bloqueur de mode passif.



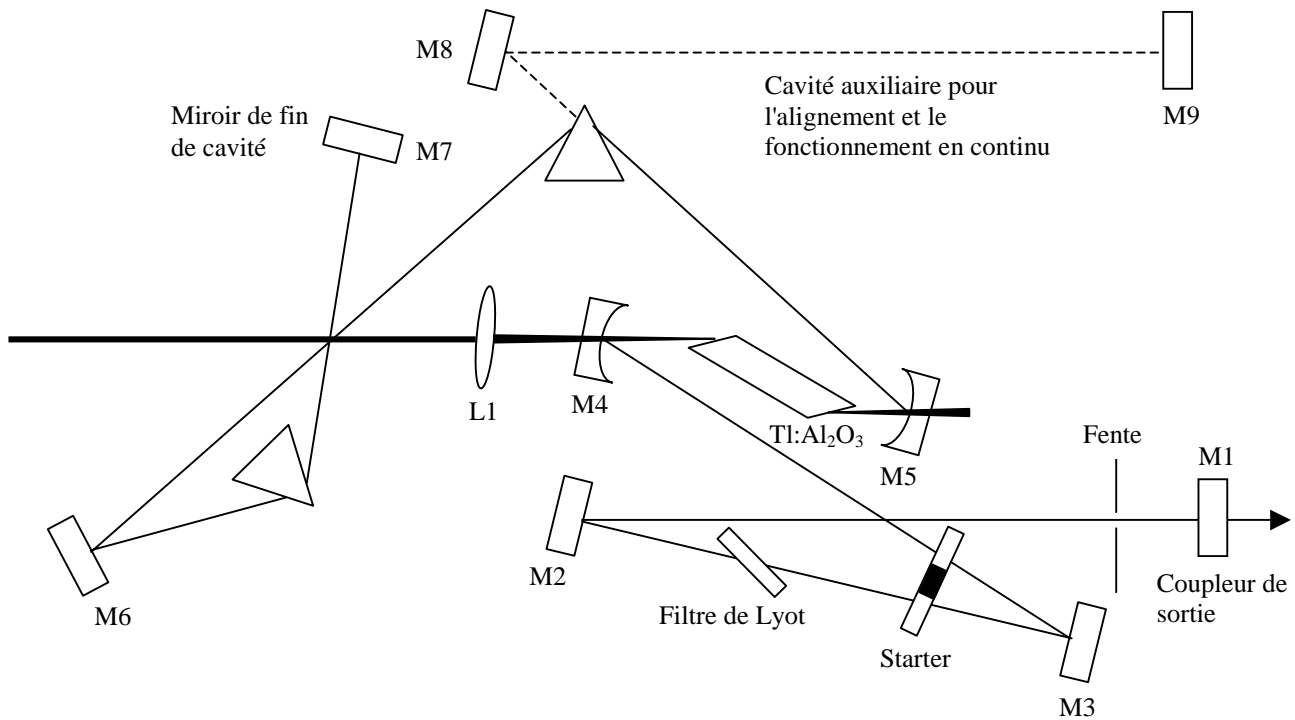


Figure 2 : Schéma de la cavité de l'oscillateur Titane saphir.

Dans le montage décrit ici, le démarrage est effectué par la mise en mouvement de la lame montée sur le « starter » et le réglage de la largeur temporelle des impulsions se fait à l'aide de prismes qui compensent la dispersion de vitesse de groupe introduite par le cristal et les différentes optiques de la cavité. Les impulsions qui nous sont utiles pour les mesures devant être accordables, le réglage de la longueur d'onde dans la courbe de gain très large du milieu Titane saphir s'effectue à l'aide d'un filtre de Lyot constitué ici d'une seule lame biréfringente. Cet arrangement limite la durée des impulsions à une centaine de femtosecondes.

Les caractéristiques de fonctionnement obtenues sont les suivantes : une puissance moyenne de 400 à 600 mW en fonctionnement pulsé entre 753 et 826nm à une cadence de 76 MHz avec un pompage de basse puissance (5,5W) et un jeu de miroir prévu pour les moyennes longueurs d'ondes (800-910nm). Un pompage plus puissant de l'ordre 10 W et un jeu de miroirs large bande permet sur la version définitive de couvrir la bande 700nm – 950nm avec une puissance moyenne de 300mW à 2W suivant la longueur d'onde choisie. Pour les mesures d'indices non linéaires, ce laser est certainement le plus stable, le plus intense mais ne présente pas une industrialisation très poussée.

L'extension du domaine spectral vers les courtes longueurs d'ondes, et spécifiquement vers le proche UV et le bleu nécessite la mise en œuvre d'une unité de doublage, ce domaine spectral n'étant pas accessible directement, spécialement avec la qualité du laser précédent.

## 2. L'UNITE DE DOUBLAGE

Elle utilise la génération de seconde harmonique pour générer des impulsions dans le bleu - UV à partir du laser précédent. Pour cela, le faisceau fondamental est focalisé avec un miroir concave sur un cristal non linéaire de BBO<sup>9</sup> (Borate de Baryum : BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>). Les faisceaux bleu et infrarouge sont remis en forme par un miroir concave identique et sont

séparés par un miroir dichroïque. L'accord de phase est de type I et angulaire. La polarisation du laser initial étant horizontale, la polarisation du bleu généré est verticale. Il n'est pas prévu de compresseur pour le bleu à la sortie de l'unité et on doit tenir compte des effets de dispersion apportés par le cristal, même fin, de BBO. La longueur du cristal, associée à l'acceptance angulaire du matériau, déforme éventuellement la structure spatiale du mode TEM<sub>00</sub>.

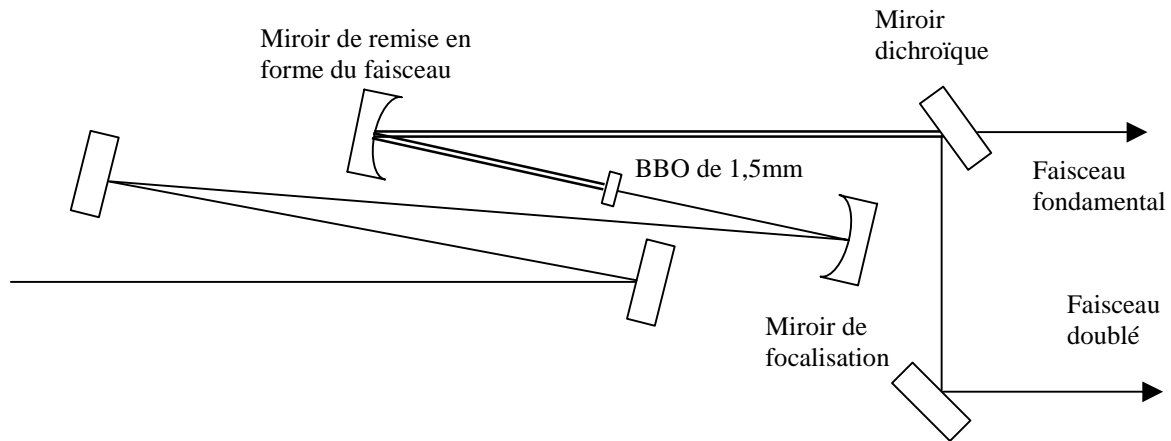


Figure 3 : Schéma de la cavité de doublage.

En effet, si la longueur du cristal de BBO est trop longue, l'efficacité de doublage est plus importante mais le mode spatial devient asymétrique. La focalisation du faisceau fondamental dans le cristal fait que l'on n'a pas un seul vecteur  $\mathbf{k}$  qui se propage dans le cristal mais une distribution de vecteurs  $\mathbf{k}$  (cf. Figure 4). La largeur de la distribution des vecteurs  $\mathbf{k}$  varie au cours de la propagation, et c'est au niveau du col du faisceau que celle-ci est la plus importante.

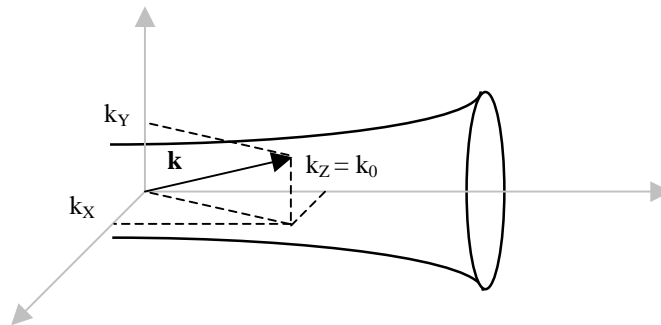


Figure 4 : Contrairement à une onde plane, un faisceau gaussien possède une distribution de vecteurs d'ondes  $\mathbf{k}$  autour du vecteur d'onde central  $\mathbf{k}_0$ .

Si l'on projette cette distribution angulaire des vecteurs  $\mathbf{k}$ , on voit sur la Figure 5 montrant l'angle d'accord de phase, que les composantes  $k_x$  s'éloignent beaucoup moins de l'accord de phase que les composantes  $k_y$ . Comme le montre la Figure 6, cela va avoir pour effet de rendre le faisceau doublé elliptique. La lentille de remise en forme transforme les angles des vecteurs en positions sur une projection du faisceau bleu sur un plan. Ainsi comme l'accord de phase a une acceptation angulaire plus importante suivant un axe, le faisceau est elliptique. L'utilisation d'un miroir concave hors axe pour la focalisation permet d'introduire de l'astigmatisme dans le faisceau fondamental et de compenser en amont cet effet. Le second miroir concave permet également de rattraper un peu plus cet effet.

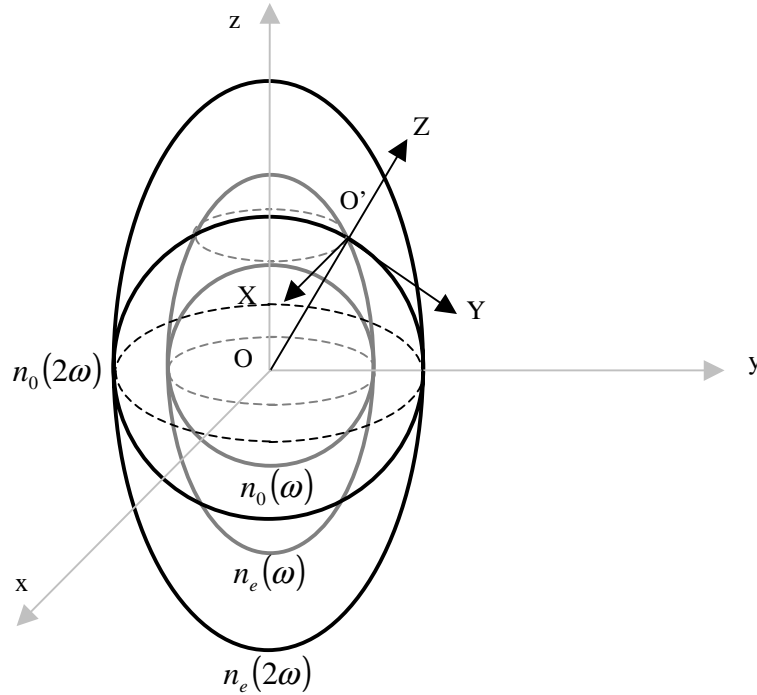


Figure 5 : Surfaces des indices. Le croisement de l'ellipsoïde  $n_e(\omega)$  et  $n_o(2\omega)$  donne la direction exacte d'accord de phase.  $(O,x,y,z)$  est le repère des ellipsoïdes d'indices.  $(O',X,Y,Z)$  est le repère de propagation du faisceau laser.

Un autre phénomène important intervenant dans la génération de seconde harmonique est le « walkoff » ou séparation du vecteur de Poynting  $\mathbf{S}$  et du vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  au cours de la propagation. Plus l'échantillon est long, plus cet effet sera important et nuisible à la forme spatiale du faisceau doublé. Il faut faire un compromis entre le rendement de génération de seconde harmonique et la qualité spatiale du faisceau doublé. Boyd et Kleinman<sup>10</sup> ont montré que pour optimiser la génération de seconde harmonique, le phénomène de « walkoff » doit être négligeable, que le faisceau doit être focalisé au centre du cristal, que celui-ci doit avoir une longueur de telle sorte que le rapport  $\frac{L}{b} = 2,84$  où  $b$  est le paramètre de

Rayleigh  $b = \frac{2\pi w_0^2}{\lambda}$ , et que le désaccord de phase doit être égal à :  $\Delta k = 3,2/L$ .

Dans ce cas, la puissance générée de seconde harmonique est égale à :

$$P_{2\omega} = 1,068 \cdot 10^3 \left[ \frac{128\pi^2 \omega^2 d^2 L}{c^4 n_1 n_2} \right] P_{\omega}^2 \quad \text{en unités SI} \quad (1)$$

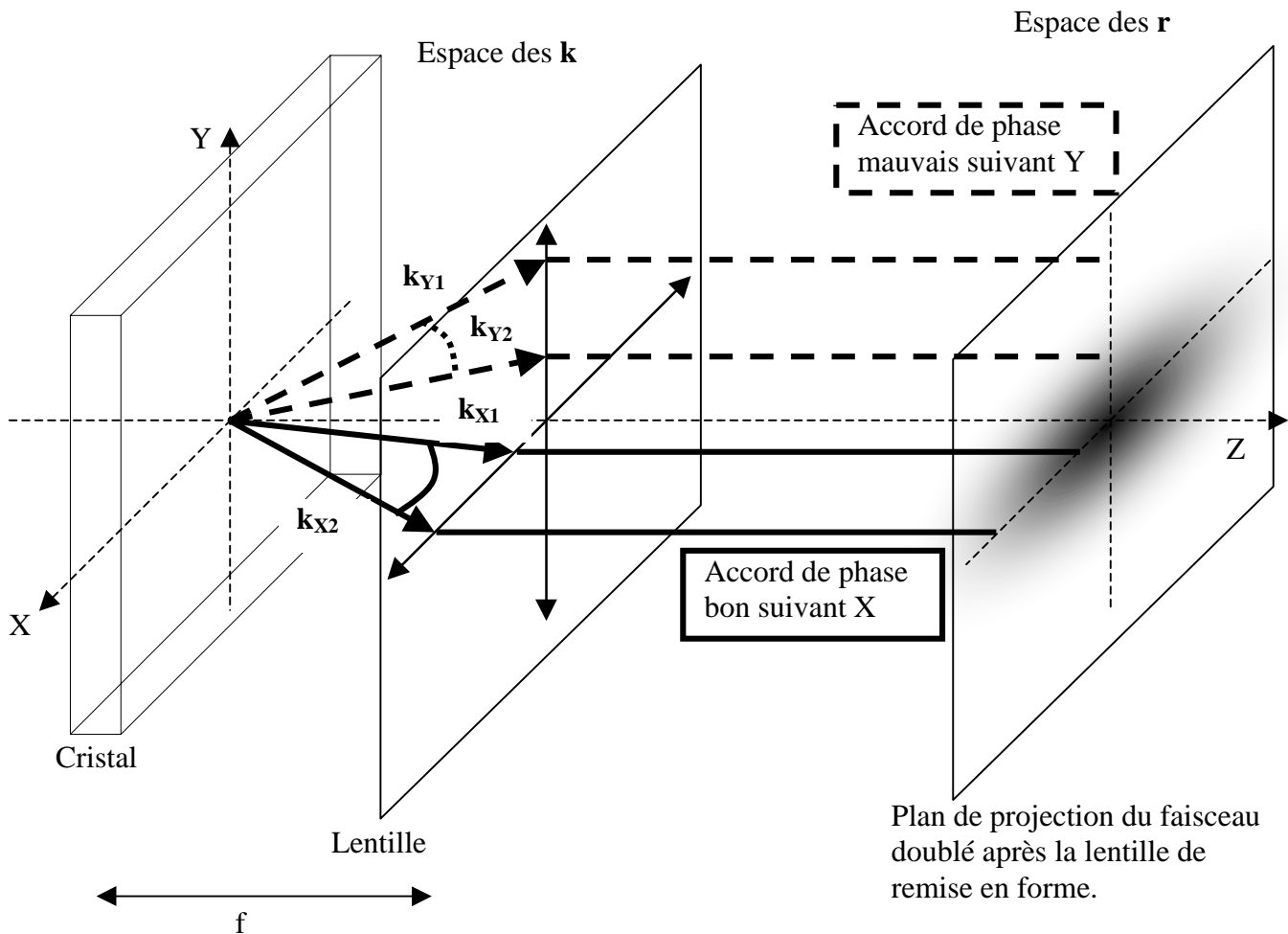


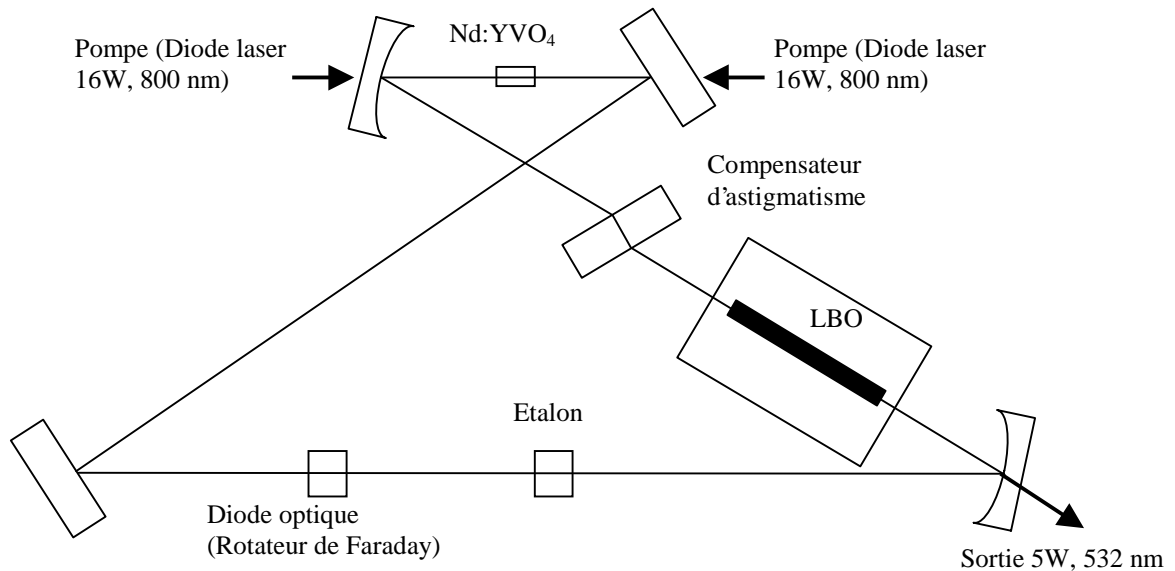
Figure 6 : Effet de la distribution angulaire des vecteurs d'onde sur la forme spatiale du faisceau doublé.

### 3. LASER DE POMPE

Le laser de pompe utilisé ici n'est commercialisé que depuis quelques années, c'est la raison pour laquelle il paraît nécessaire d'en décrire le principe. C'est un laser compact pompé par diodes qui produit un faisceau laser monochromatique à la longueur d'onde de 532nm avec une puissance supérieure à 5W ou 10W suivant la version utilisée. Dans notre cas, nous avons utilisé un Verdi 5W de la société Coherent et un Millennia 10W de la société Spectra Physics. Le milieu à gain est dans les deux cas un cristal de Nd:YVO4 (Néodyme Gadolinium Orthovanadate) qui possède un coefficient d'absorption important à la longueur d'onde de 809 nm et une bande d'émission autour de 1064 nm.

#### a. Le Verdi 5W de Coherent <sup>11</sup>

Le cristal, pompé par une ou deux diodes laser de puissance 16W chacune, est placé dans une cavité en anneau monomode représentée sur la Figure 7. La propagation du faisceau pouvant se faire a priori dans n'importe quel sens dans la cavité, une diode optique composée d'un rotateur Faraday et d'une lame biréfringente a été introduite pour rendre la propagation unidirectionnelle. Ainsi, en supprimant les modes dits de « hole burning » présents dans les cavités en ondes stationnaires, le laser fonctionne avec une bonne stabilité à forte puissance en monomode longitudinal.



*Figure 7 : Schéma de l'oscillateur du Verdi 5W.*

Un étalon composé d'une lame de silice d'un millimètre d'épaisseur a été rajouté dans la cavité pour s'assurer du fonctionnement monomode et permettre l'asservissement fréquentiel. En effet, il est important de pouvoir rattraper les inévitables variations mécaniques de la cavité laser principalement dues aux variations thermiques. L'ajustement en fréquence de l'étalon se fait par un contrôle en température. Une variation de la température de la silice modifie son indice de réfraction et par conséquent le chemin optique à travers l'étalon ce qui permet de décaler la courbe de transmission sur les fréquences. Cette cavité est enfin montée sur une plaque en Invar pour augmenter la stabilité. Après réglage en usine, la cavité est figée puis sellée hermétiquement. Le cristal de Nd:YVO4 est un matériau anisotrope uniaxe. Ainsi, la conductivité thermique, l'indice de réfraction et l'expansion thermique sont différents suivant la polarisation. Pour minimiser les effets thermiques, le cristal de Vanadate est régulé en température. L'astigmatisme apporté par les miroirs sphériques hors axe et le cristal (anisotrope) taillé à l'angle de Brewster est finement compensé par une lame annexe.

Pour doubler la longueur d'onde fondamentale de 1064 nm, un cristal de LBO est placé dans la cavité pour bénéficier de la forte puissance. Il a l'avantage d'avoir une faible absorption dans le visible et l'infrarouge, d'avoir un seuil de dommage élevé et de ne pas être hygroscopique. C'est un cristal de type I dont l'accord de phase en température est obtenu à environ 142°C. Il en résulte que ce laser possède quatre boucles d'asservissements en température sur le Vanadate, l'étalon et les diodes, une boucle d'asservissement sur la puissance délivrée et des contrôles de température sur le LBO, la tête laser et l'embase.

### **b. Le Millennia 10W de Spectra Physics**

Nous avons aussi utilisé un laser de pompe Nd (Vanadate) de type Millennia™ de la société Spectra-Physics de puissance de l'ordre de 10 Watts. Si le matériau laser et le type de pompage par diode sont identiques, les technologies employées dans ce laser sont différentes (cavité linéaire multimode, doublage extracavité à faible bruit,...) même si ces différences au niveau des performances (stabilité, pointé,...) ne semblent pas significatives dans notre application de métrologie. La différence essentielle qu'il nous semble importante de décrire est le fonctionnement multimode de la cavité du Millennia. Le doublage intra cavité

d'un oscillateur solide dans laquelle oscillent quelques modes longitudinaux pose des problèmes de stabilité en puissance. Cette instabilité de l'oscillateur due aux couplages non linéaires par sommation de fréquences dans le cristal doubleur est connue sous le nom de « green problem »<sup>12</sup>. Pour résoudre ce problème, soit on force le laser à fonctionner de manière monomode (technologie employée par Coherent sur le Verdi), soit on crée une cavité dans laquelle oscillent au moins une centaine de modes longitudinaux de manière à moyenniser les termes de couplages non linéaires et ainsi de rendre la puissance de sortie du laser plus stable. Cette technique dénommée « Quiet MultiAxial mode-Doubling (QMAD) » retenue par Spectra-Physics pour le Millennia ne pose aucun problème pour le pompage de l'oscillateur Titane : Saphir.

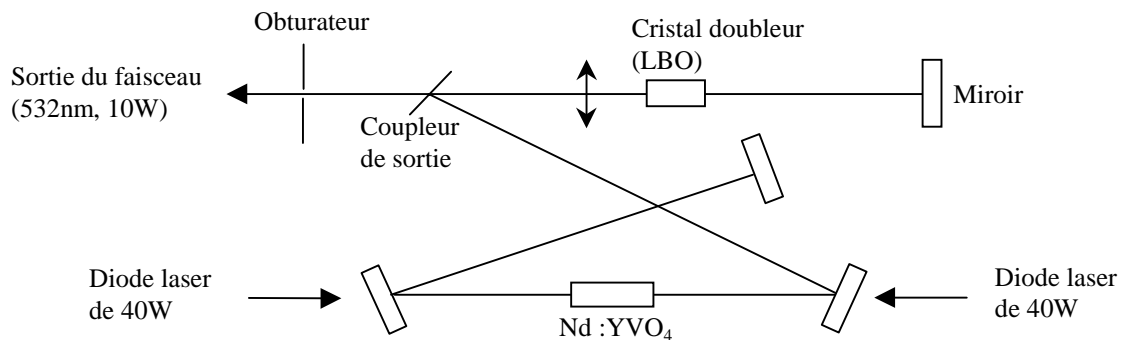


Figure 8 : Schéma de l'oscillateur laser du Millennia 10W.

Pour conclure, on peut dire que ces lasers de pompe nous ont donné entière satisfaction et présentent l'avantage d'être beaucoup plus économiques qu'un laser Argon. Un Argon nécessite en moyenne 50kW et 20 litres d'eau par minute alors qu'un laser pompé par diodes ne consomme qu'autour de 2kW et ne consomme pas d'eau.

#### 4. NOUVELLES SOURCES LASERS

Comme nous l'avons indiqué de manière générale dans l'introduction de ce chapitre, et spécialement dans le cadre de la métrologie non linéaire des matériaux pour le Laser Méga Joule (LMJ), la longueur d'onde d'émission du laser Néodyme et de ses harmoniques, c'est à dire, 1064nm ( $\omega$ ), 532nm ( $2\omega$ ) et 355nm ( $3\omega$ ) sont les plus pertinentes. Il y a trois ans, il n'existait pas de sources femtosecondes équivalentes à l'oscillateur Titane : Saphir à ces longueurs d'ondes. Actuellement, il existe quelques sources femtosecondes à  $\omega$  qui sont en développement et fonctionnent en laboratoire et, très récemment, quelques sources commerciales semblent susceptibles de convenir à la mesure de l'indice non linéaire.

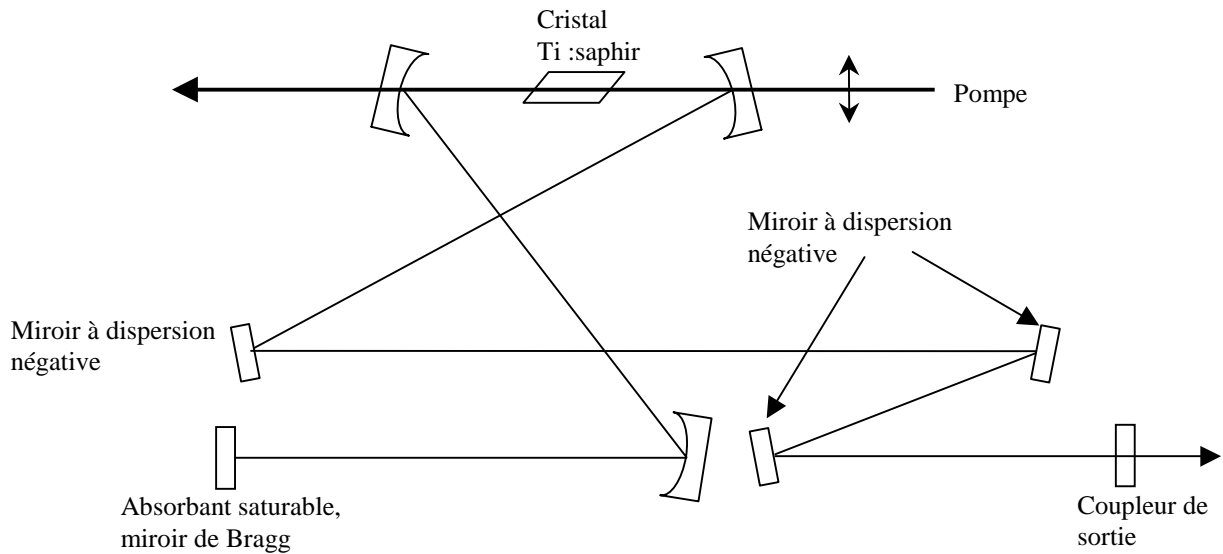
Toutes ces sources sont articulées autour d'un bloqueur de mode basé sur des techniques de réflecteur absorbant saturable. La particularité de ces nouvelles sources est d'utiliser dans la cavité un miroir en absorbant saturable constitué de plusieurs couches de semiconducteurs. Le nom donné à cet élément est le SESAM<sup>13,14</sup> (Semiconductor Saturable Absorber Mirror) ou SBR (Saturable Bragg Reflector). Dans l'approche SESAM par exemple, le blocage de modes de type passif est beaucoup plus efficace que le blocage de modes par lentille Kerr, surtout en régime picoseconde et ne nécessite pas de sollicitation pour démarrer. A priori l'utilisation de semiconducteurs comme absorbant saturable rapide n'est pas évidente sachant que ces matériaux ont de faibles intensités de saturation, de faibles seuils de dommage et peuvent

causer des pertes optiques importantes dans une cavité. L'idée astucieuse du SESAM est de contourner tous ces inconvénients en fabriquant un miroir non linéaire sous forme de Fabry-Perot antirésonnant. Ces miroirs sont constitués de trois à quatre parties. Tout d'abord le substrat en GaAs est réalisé par poussé épitaxie à une température de plus de 600°C. On dépose sur le substrat plusieurs paires de couches GaAs-AlAs d'épaisseur un quart de longueur d'onde constituant le miroir de Bragg centré autour de 1050nm. Sur ce miroir de Bragg est déposé l'absorbant constitué de couches de InGaAs-GaAs dont la pousse est réalisée à basse température de façon à ce que les atomes d'arsenic soient dans des états interbandes pour réduire les temps de vie des porteurs et rendre l'absorbant saturable plus rapide. Cette épitaxie par faisceau moléculaire à basse température permet aussi de réduire la taille des défauts de pousse à la surface à une taille inférieure à la longueur d'onde, et ainsi de ne pas avoir de diffraction parasite. Et finalement, afin d'avoir un Fabry-Perot d'une grande finesse, on dépose sur l'absorbant des couches diélectriques en TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>. Ces miroirs non linéaires ont l'avantage d'être adaptable à l'application voulue en réglant l'intensité de saturation, les pertes et leurs temps de réponse impulsionnel qui sont de l'ordre 100fs pour la thermalisation intra-bande et de quelques picosecondes pour la recombinaison.

|  |        |
|--|--------|
| GaAs ; 61nm                                      |        |
| In <sub>0,25</sub> Ga <sub>0,75</sub> As ; 8,7nm |        |
| GaAs ; 10nm                                      |        |
| In <sub>0,25</sub> Ga <sub>0,75</sub> As ; 8,7nm |        |
| GaAs ; 61nm                                      |        |
| Arrière du miroir R~99,5%                        | } × 25 |
| GaAs ; 75,8nm                                    |        |
| AlAs ; 89,9nm                                    |        |
| Substrat de GaAs                                 |        |

**Figure 9 : Exemple de structure de l'absorbant saturable (SESAM). C'est un Fabry-Perot antirésonnant de faible finesse constitué de couches de semiconducteurs. Ce SESAM<sup>15</sup> a servit à la mise au point d'un laser délivrant des impulsions de 60fs.**

Un des exemples de laser industriel en technologie Titane : Saphir qui serait adaptable aisément à un appareil de métrologie de la non linéarité avec une grande facilité d'utilisation, est déjà disponible. Le système robuste proposé par Spectra-Physics, le Mai Tai<sup>TM</sup>, représenté Figure 10, utilise un tel absorbant saturable (SBR) et délivre des impulsions inférieures à 30fs avec une puissance moyenne de 300mW, soit une puissance crête de 125kW.



**Figure 10 : Schéma de la cavité commerciale Mai Tai de Spectra-Physics délivrant des impulsions de moins de 30fs.**

D'autres milieux amplificateurs proposés et mis en œuvre pour la mesure à la longueur d'onde du Nd(YAG) sont souvent des (Nd)Vanadates qui génèrent des impulsions de largeur de l'ordre de 7ps, limitée par la largeur spectrale de la raie d'émission dans le cristal. Ces milieux très efficaces permettent d'obtenir des puissances moyennes de plusieurs dizaines de watt à  $\omega$  et quelques watts à  $3\omega$ . Ces lasers ont été validés et seront prochainement commercialisés (Spectra Physics Laser Focus août 2000). Pour la génération d'impulsions plus intenses, la recherche de la largeur spectrale a été principalement menée à E.T.H (Zurich) par le groupe de U. Keller. A l'aide de milieux désordonnés vitreux - verres de phosphate dopé au néodyme (Schott LG 760) - la génération d'impulsions centrées à 1056nm de durée 175fs avec une puissance moyenne de 1W et un taux de répétition de 117MHz a été obtenue par ce groupe<sup>16</sup>. La réalisation industrielle de telles sources se heurte évidemment à des problèmes thermiques qui semblent difficiles à résoudre. Une piste beaucoup plus prometteuse avec le milieu amplificateur Ytterbium YAG a été démontrée<sup>17</sup>, et devrait être commercialisée entre autre par la société High Q Laser Autriche. Ce matériau présente des caractéristiques tout à fait semblable au Titane : Saphir, principalement une large bande de gain et grande accordabilité. Il semble que les niveaux de puissance de l'ordre du Watt (100fs, 100 MHz) soient obtenus en routine avec le produit industriel, permettant de ce placer dans des conditions identiques au prototype décrit pour des mesures dans le proche infrarouge  $\omega$  et dans le vert  $2\omega$ . Au niveau de la recherche dans les laboratoires, il est apparu très récemment qu'un nouveau matériau amplificateur, le Yb : KGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> présentait lui aussi des caractéristiques<sup>18</sup> semblables au cristal de Titane : Saphir. Ce cristal a permis d'obtenir<sup>19</sup> des impulsions de 176fs à la longueur d'onde de 1037nm, une puissance moyenne de 1,1W et une puissance crête de 64kW.

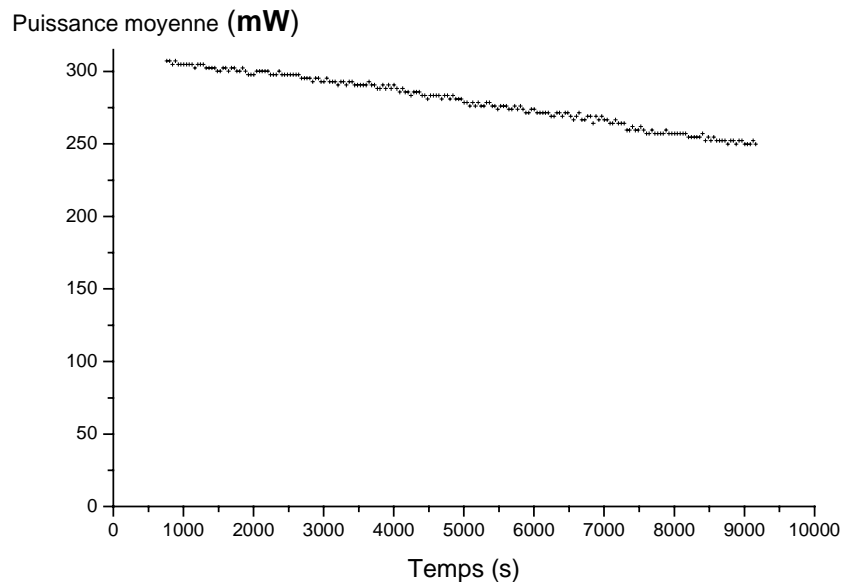
## B. Caractérisation des impulsions lumineuses

Toute opération de métrologie impose la caractérisation précise des paramètres de l'expérience et de l'excitation. Dans ce chapitre nous insisterons sur la qualification de la source laser en puissance moyenne, taux de répétition, taille de faisceau et durée d'impulsion.



## 1. MESURE DE LA PUISSANCE MOYENNE D'UN FAISCEAU LASER

La mesure de la puissance moyenne est réalisée à l'aide d'un mesureur commercial de chez Molecron<sup>20</sup> constitué d'une tête de mesure (PM3) et d'un boîtier afficheur (PM5200). La tête est une sonde thermique formée d'un corps noir sous forme d'un disque mince associé à un préamplificateur pour une très bonne sensibilité. Refroidie par air, cette sonde est capable de mesurer des puissances moyennes allant de 100  $\mu$ W à 2W pour des longueurs d'onde allant de 0,19  $\mu$ m à 11  $\mu$ m avec une précision de 3%. Malgré le temps de réponse assez lent du système, de l'ordre de quelques secondes, on a pu réaliser des mesures assez précises de la puissance moyenne de notre faisceau. Le domaine de puissance moyenne utilisé ici est particulièrement fiable pour des mesures précises et, cet appareil de mesure est recalibrable par les services officiels des poids et mesures. Néanmoins, cette mesure reste une des causes principales d'incertitude dans la mesure absolue de l'indice non linéaire d'un matériau, puisqu'elle y contribue pour plus de 3%. La dérive extrême de notre système laser par rapport à ce paramètre est représentée sur la Figure 11. Même dans ces conditions, la valeur de la puissance moyenne pendant la durée de la mesure est parfaitement stable.



*Figure 11 : Evolution de la puissance moyenne du laser durant 2h45min. Le temps moyen durant lequel on peut estimer que la puissance moyenne est constante est ici d'environ 10 minutes, mais généralement, pour un bon réglage du laser, celle-ci évolue beaucoup moins vite que sur cette figure.*

## 2. MESURE DE LA TAILLE DU COL DU FAISCEAU

La mesure de la taille du col du faisceau au niveau de l'échantillon peut se faire de différentes manières. Une technique simple consiste à utiliser un appareil commercial conçu pour mesurer le profil spatial du faisceau. De nombreux appareils faisant l'imagerie d'un faisceau laser suivant un axe ou sur tout le faisceau existent. Ici, nous présenterons un appareil de chez Photo Inc., le "BeamScan" Model 1180. On présentera ensuite une technique utilisant un processus non linéaire, l'absorption non linéaire à deux photons dans une photodiode ou la non linéarité d'un échantillon assez fin. Et enfin, la technique la plus élémentaire utilisant une lame que l'on passe devant le faisceau à mesurer. Les limites et avantages de ces techniques seront explicités.

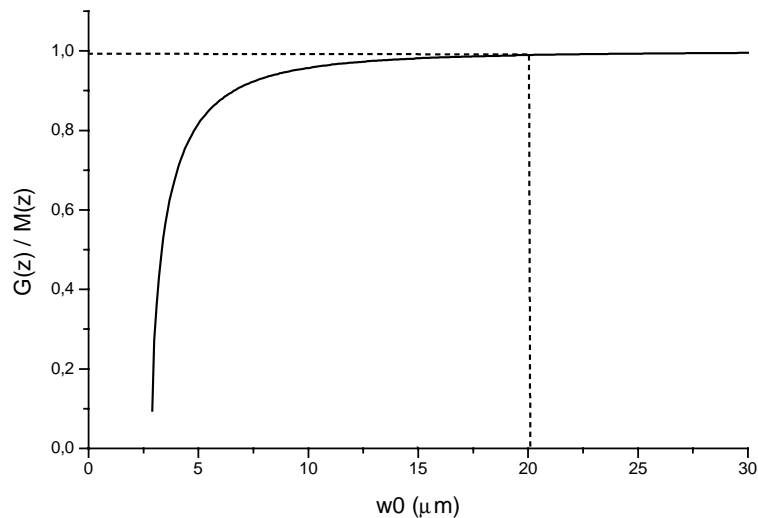
### a. Mesure de la taille du col du faisceau avec le « BeamScan »

Cet appareil est composé d'une fine fente en translation dans le faisceau et d'un détecteur photosensible. La fente, que l'on peut choisir de deux tailles différentes suivant le diamètre du faisceau à mesurer, est sur un disque tournant qui coupe le faisceau devant le détecteur au germanium. Le courant du détecteur est alors directement relié au profil en intensité du faisceau. Le signal est séparé en deux parties. Une partie est convertie par un circuit comparateur en un signal carré qui est déclenché à un niveau que l'utilisateur peut régler (à mi-hauteur, à  $1/e^2$ , ...). La largeur de ce signal carré, qui est égale à la taille du spot laser, est affichée en micromètres sur l'appareil. L'autre partie permet de pouvoir visualiser le profil spatial du faisceau à l'aide d'un oscilloscope.

L'utilisateur peut choisir deux tailles de fentes différentes :  $2,5 \mu\text{m} \times 1,5 \text{mm}$  ou  $25 \mu\text{m} \times 3 \text{mm}$ . Pour faire la mesure, nous utilisons la plus petite en raison de la petite taille de notre faisceau au niveau de l'échantillon. Néanmoins, pour reproduire exactement le profil spatial du faisceau, une fente infiniment fine serait nécessaire. Il faut donc tenir compte de la largeur de la fente dans le calcul de la grandeur. Si l'on suppose que notre faisceau a un profil gaussien :  $G(z) = e^{-z^2}$ , nous pouvons calculer le profil mesuré  $M(z)$  en fonction de la largeur de la fente :  $d$ , de la taille réelle du faisceau  $w_0$ , et du paramètre de seuil  $p$  ( $p = 1/e^2$  ou  $p = 1/2$  mi-hauteur) :

$$M(z) = \frac{\text{Erf}(z+ar) - \text{Erf}(z-ar)}{2\text{Erf}(ar)}, \text{ où } a = \sqrt{-\ln(p)} \text{ et } r = \frac{d}{w_0}. \quad (2)$$

Le calcul du rapport entre le profil réel et le profil mesuré pour une largeur de fente de 2,5 microns en fonction de la taille du faisceau est tracé sur la Figure 12. L'erreur commise sur la mesure reste inférieure à 1% pour des tailles supérieures à 20 microns.

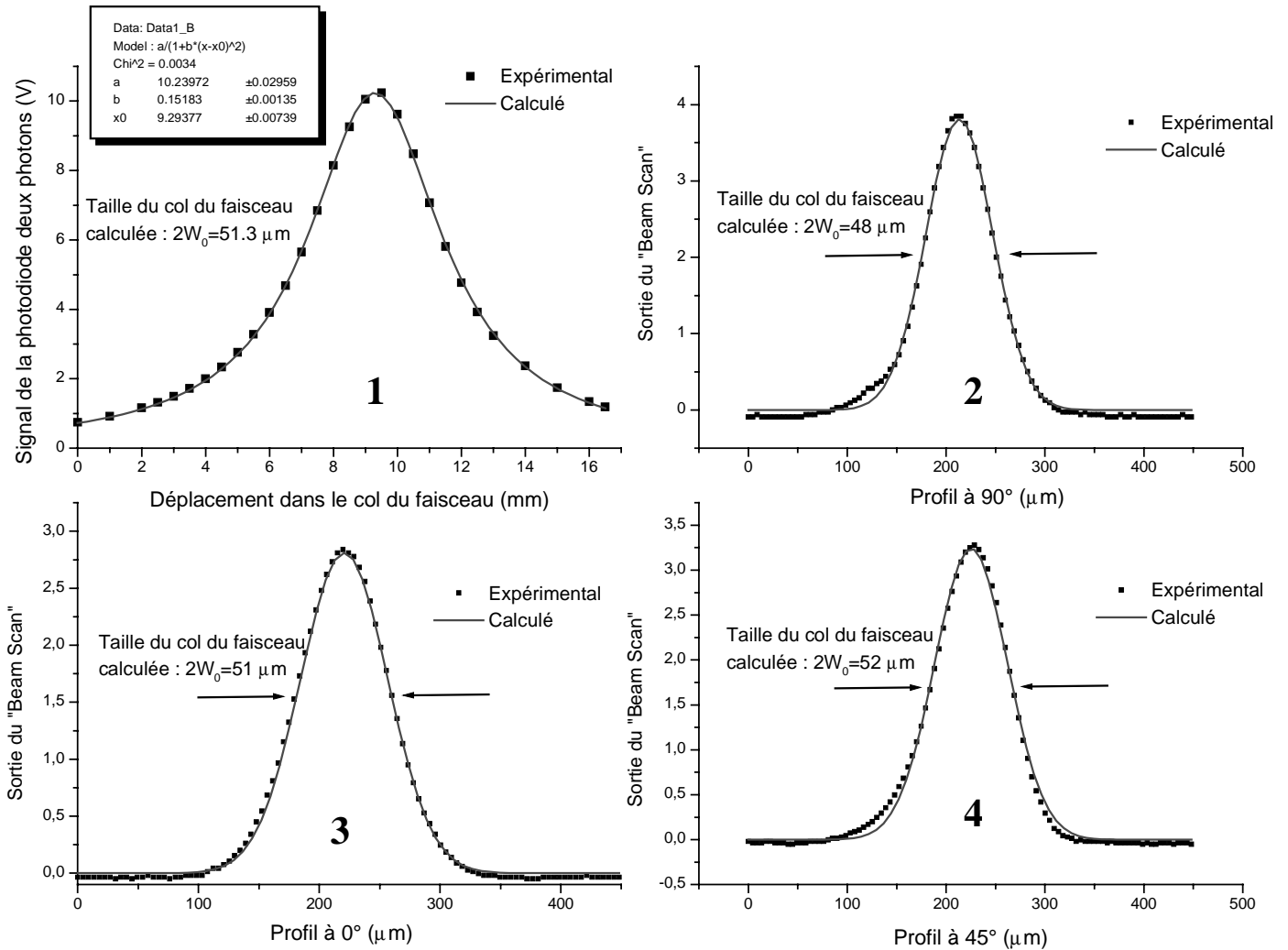


**Figure 12 : Rapport entre le profil théorique du faisceau et le profil mesuré avec le « BeamScan » avec une fente de 2,5 microns de largeur en fonction de la taille du col du faisceau à mesurer. Ce rapport permet de corriger la valeur mesurée pour de très petites tailles.**

Pour de plus petites tailles, l'erreur commise et l'incertitude sur la mesure deviennent de plus en plus importantes d'autant plus que l'on ne prend pas en compte la diffraction du faisceau à travers la fente. Finalement, la résolution théorique de l'appareil est de  $0,2 \mu\text{m}$ , soit environ 1% d'incertitude pour les tailles de nos faisceaux. Mais expérimentalement, une incertitude

d'au moins 2% sur la taille du col du faisceau est mesurée en faisant la moyenne entre deux mesures suivant les axes  $x$  et  $y$ . Signalons aussi que le détecteur équipant cette tête ne permet de faire des mesures que dans une région spectrale limitée entre 600nm et 1800nm et par conséquent il ne peut pas être utilisé pour mesurer le faisceau bleu.

Les courbes 2,3,4 de la Figure 13 montrent des mesures de tailles de faisceaux pour différentes coupes et les ajustements théoriques qui montrent bien que nos faisceaux sont à la fois ronds et gaussiens.



**Figure 13 :** La courbe 1 représente le signal d'absorption à deux photons dans une photodiode en GaAsP de chez Hamamatsu. Une modélisation lorentzienne du faisceau permet de remonter à la taille du col du faisceau. Les courbes 2,3 et 4 représentent les profils spatiaux donnés par le « BeamScan » pour différentes coupes (0°, 45° et 90°). Un ajustement gaussien est appliqué sur chacune des courbes

## b. Mesure de la taille du col du faisceau avec une simple photodiode

Cette technique originale a pour idée de base de se servir de la variation de l'intensité par unité de surface du faisceau en fonction de la position du détecteur. Pour cela, on utilise une photodiode composée d'un semi-conducteur dont la bande interdite est importante. Typiquement, pour un laser à 800nm, on utilise une photodiode en GaAsP de taille 2,5mm \* 2,5mm sensible uniquement dans le bleu et pas dans l'infrarouge. Dans cette photodiode, il est possible de créer une paire électron trou par absorption simultanée de deux photons. C'est un processus qui fait intervenir la susceptibilité non linéaire du troisième ordre (cf. Chapitre V). On montre que le courant délivré par la photodiode est alors proportionnel à :

$$I_{Phd} \propto \frac{P_m^2}{w^2(z)\tau_0} \quad (3)$$

où  $P_m$ ,  $w(z)$  et  $\tau_0$  représente respectivement la puissance moyenne, la taille du faisceau en fonction de sa position par rapport au col et sa largeur temporelle. Dans le cas d'un modèle gaussien pour la structure spatiale du faisceau, on a :

$$w^2(z) = w_0^2 \left( 1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right)^2 \right) \quad (4)$$

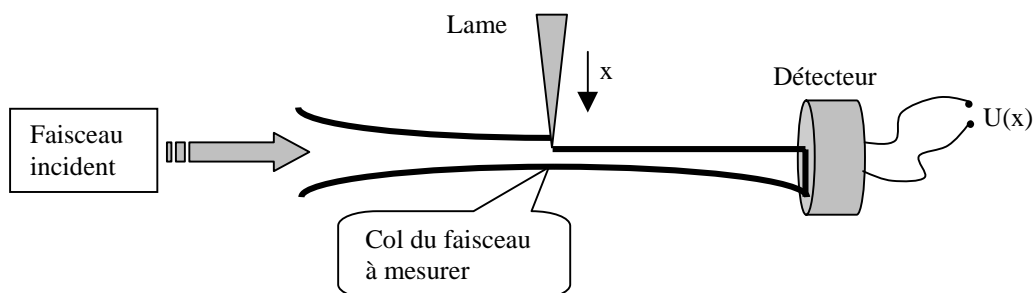
et le courant de photoconduction est alors proportionnel à :

$$I_{Phd} \propto \frac{P_m^2}{w_0^2 \left( 1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right)^2 \right) \tau_0} \quad (5)$$

La courbe 1 de la Figure 13 représente la mesure de ce courant sur une photodiode Hamamatsu G1116 en fonction de sa position  $z$  par rapport au col du faisceau. Un ajustement lorentzien permet de calculer la valeur de la taille du col du faisceau. Elle confirme, aux incertitudes près, la taille donnée par le "BeamScan".

## c. Mesure de la taille du col du faisceau avec une lame et un détecteur

C'est la technique expérimentale la plus simple à mettre en œuvre. En effet, il suffit simplement d'une lame opaque que l'on déplace dans le faisceau avec une platine de translation micrométrique et d'un détecteur large qui enregistre le signal transmis à chaque position de la lame. Le résultat permet de calculer la forme spatiale du faisceau dans la direction du déplacement.



A chaque position  $x$  de la lame, le signal  $U(x)$  détecté sera l'intégrale de la partie du faisceau non cachée par la lame soit :

$$U(x) = \int_x^{\infty} I(v) dv. \quad (6)$$

Pour connaître la fonction  $I(x)$  recherchée, il suffit juste de dériver l'expression précédente :

$$\frac{dU(x)}{dx} = -I(x). \quad (7)$$

Connaissant la forme spatiale du col du faisceau en fonction de  $x$  en micromètres, on peut ensuite facilement calculer la taille de celui-ci. Cette technique bien que simple à mettre en œuvre demande une platine de translation de grande précision de manière à avoir suffisamment de points de mesure. Ne connaissant pas où se trouve exactement la position du col du faisceau, il faut réaliser plusieurs séries de mesure. De plus, on doit normalement tenir compte de la diffraction du faisceau sur la lame. On peut faire ici une remarque concernant l'analyse des mesures à l'aide de cette technique. Pour une petite taille du col du faisceau, la courbe de transmission du laser à travers le couteau sur la photodiode ne possède pas beaucoup de points. La dérivation brute d'une telle courbe donne alors une enveloppe de forme exécrationnelle sur laquelle il est difficile de déduire une largeur. Pour remédier à cela, il est préférable d'ajuster la courbe expérimentale par une fonction théorique. Cela suppose bien évidemment de prendre un modèle gaussien pour la forme spatiale du faisceau, mais cela est quasiment toujours vérifié. Dans notre cas, la précision de la platine de translation, dont nous disposons (environ  $1\mu\text{m}$ ), ne nous a pas permis de réaliser une mesure convenable de la taille du col du faisceau avec cette technique. On emploiera donc une méthode similaire à celle utilisant une photodiode en remplaçant celle-ci par un échantillon non linéaire.

#### d. Mesure de la taille du col du faisceau à l'aide du signal non linéaire

C'est la technique employée à la longueur d'onde de  $400\text{nm}$  pour laquelle on ne dispose pas de photodétecteur à 2 photons. Utilisant des lentilles de focale  $5\text{cm}$  comme dans les mesures en infrarouge, la taille du col du faisceau à  $400\text{nm}$  est beaucoup plus petite qu'à  $800\text{nm}$  (environ  $15\mu\text{m}$  au lieu de  $30\mu\text{m}$ ). Cela permet de compenser le fait qu'on ait moins de puissance dans le bleu que dans le rouge. La mesure d'une si petite taille n'est possible ni avec les appareils de mesure disponibles (détecteur du « Beamsan »), ni avec une lame en raison de la diffraction sur celle-ci et de la précision de déplacement qu'il faudrait. La solution consiste alors à regarder l'évolution du signal non linéaire sur un échantillon assez mince en fonction de sa position par rapport au col du faisceau. Dans l'expérience pompe sonde colinéaire décrite dans le chapitre III, le signal non linéaire décrit comme étant l'intensité du faisceau sonde en fonction du retard  $u$  entre les impulsions pompe et sonde, s'écrit :

$$I_s \propto I_s^0 \left\{ 1 - \frac{3k_0^2}{4\sqrt{2}} \frac{P_m T}{c\epsilon_0} G(u) \left[ 2\beta + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \sin(2\omega_0 u - \phi) \right] F(w_0, k_0, l) \right\} \quad (8)$$

où la fonction  $F(w_0, k_0, l) = \arctan\left[\frac{l}{k_0 n_0 w_0^2}\right]$  est la dépendance spatiale du signal en fonction de la taille du col du faisceau  $w_0$  et de l'épaisseur de l'échantillon  $l$  quand celui-ci est centré

autour du col. Cette fonction provient de l'intégration spatiale du signal sur la longueur de l'échantillon et de manière générale le signal non linéaire varie comme la fonction :

$$F(w_0, k_0, z) = \arctan \left[ \frac{l}{k_0 n_0 w^2(z)} \right] \text{ où } w^2(z) = w_0^2 \left( 1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right)^2 \right). \quad (9)$$

La Figure 14 montre un exemple de mesure avec un échantillon de CaPb. L'ajustement théorique est réalisé avec l'équation précédente. Cette technique marche relativement bien et c'est la seule alternative dont nous disposons pour faire la mesure du faisceau dans le bleu. En plus cette mesure est très importante car la taille du col du faisceau intervenant dans la métrologie au sein d'une fonction comprenant la variable d'épaisseur de l'échantillon, sa connaissance est indispensable même pour réaliser des mesures relatives d'indices non linéaires entre différents matériaux.

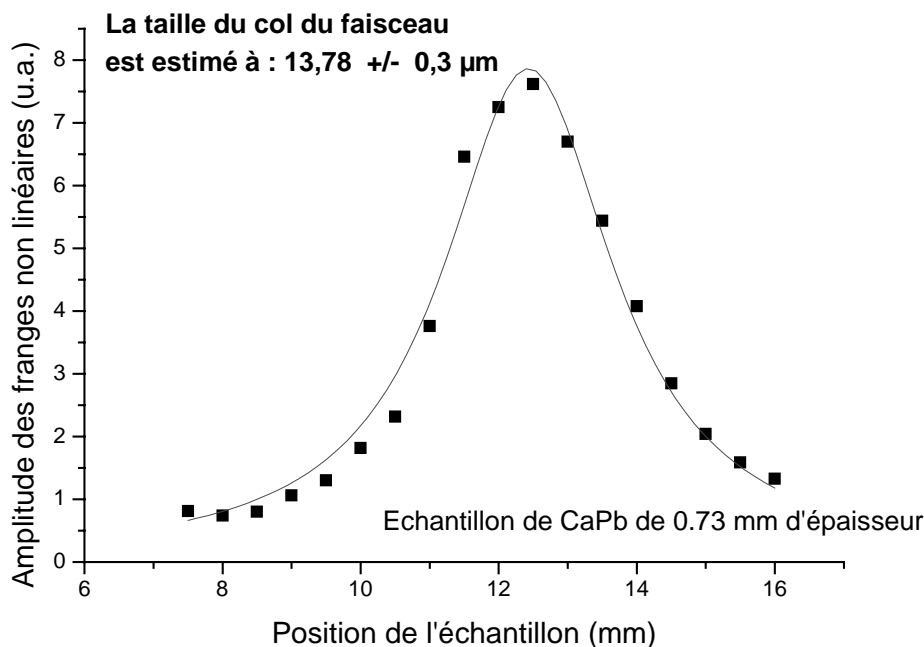


Figure 14 : Déplacement d'un échantillon de CaPb de 0,73mm d'épaisseur autour du col du faisceau. Mesure de l'amplitude du signal non linéaire et ajustement théorique pour déterminer la taille du col qui est estimé ici à 13,78µm.

En résumé, l'incertitude sur la mesure de la taille du col du faisceau est au mieux d'environ 3% et dépend fortement de la technique employée.

### 3. MESURE DE LA LONGUEUR D'ONDE

Nous avons utilisé deux spectromètres différents pour calibrer la longueur d'onde. Soit un analyseur de spectre Anritsu modèle MS9001B/B1 couplé par fibre optique soit un spectromètre équipé d'une matrice CCD Jobin & Yvon modèle TRIAX550. Les mesures de la longueur d'onde et du spectre associé sont, de loin, les plus aisées et les plus précises (environ 0,01%) par rapport aux autres paramètres du faisceau.

#### 4. ESTIMATION DE LA LARGEUR TEMPORELLE PAR AUTOCORRELATION (TECHNIQUE CLASSIQUE)

L'électronique n'étant pas assez rapide pour mesurer la largeur temporelle de nos impulsions, une autocorrélation est nécessaire pour la déterminer. La méthode consiste à transformer le temps très court en distance, soit en l'occurrence en différence de marche. Pour cela, on construit un interféromètre de Michelson (Figure 15) qui sépare l'impulsion en deux répliques puis les rassemble avec un retard variable entre les deux. Si l'on fait ceci, le signal vu par un détecteur classique sera la somme des deux impulsions (dont l'une est retardée d'une valeur  $\tau$ ) en module au carré pour exprimer l'intensité, intégrée sur tout l'espace temporel à cause de la lenteur de notre détecteur par rapport au taux de répétition du laser, soit :

$$I_1(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} |E(t) + E(t-u)|^2 dt \quad (10)$$

Cette fonction est en terme mathématique une fonction d'autocorrélation du premier ordre. Elle ne permet pas de mesurer la largeur de l'impulsion mais simplement sa longueur de cohérence. Le terme croisé est le produit des deux champs retardés alors que nous recherchons le produit des intensités retardées. Cette ambiguïté peut se lever si l'on enregistre une fonction d'autocorrélation à l'ordre deux, qui implique la mise en œuvre d'un processus non linéaire.

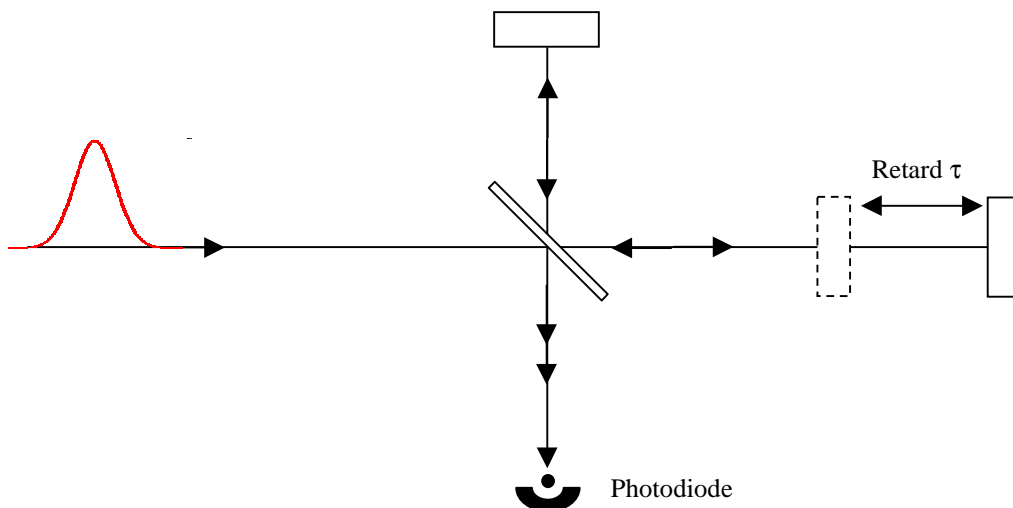


Figure 15 : Interféromètre de Michelson pour la mesure de la largeur temporelle d'une impulsion par autocorrélation.

##### a. Autocorrélation utilisant un cristal non linéaire

La solution classique pour obtenir une autocorrélation au second ordre consiste à détecter, après un cristal doubleur placé à la sortie de l'interféromètre, le signal harmonique... En effet, on montre que le signal de génération de seconde harmonique est proportionnel au module au carré de l'amplitude du champ au carré, soit :

$$I_2(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} |[E(t) + E(t-u)]|^2 dt \quad (11)$$

qui est directement lié à la fonction d'autocorrélation du second ordre.

Le profil temporel d'impulsion lumineuse n'a généralement pas un profil gaussien, néanmoins pour faciliter les calculs, un tel profil sera pris comme exemple ici :

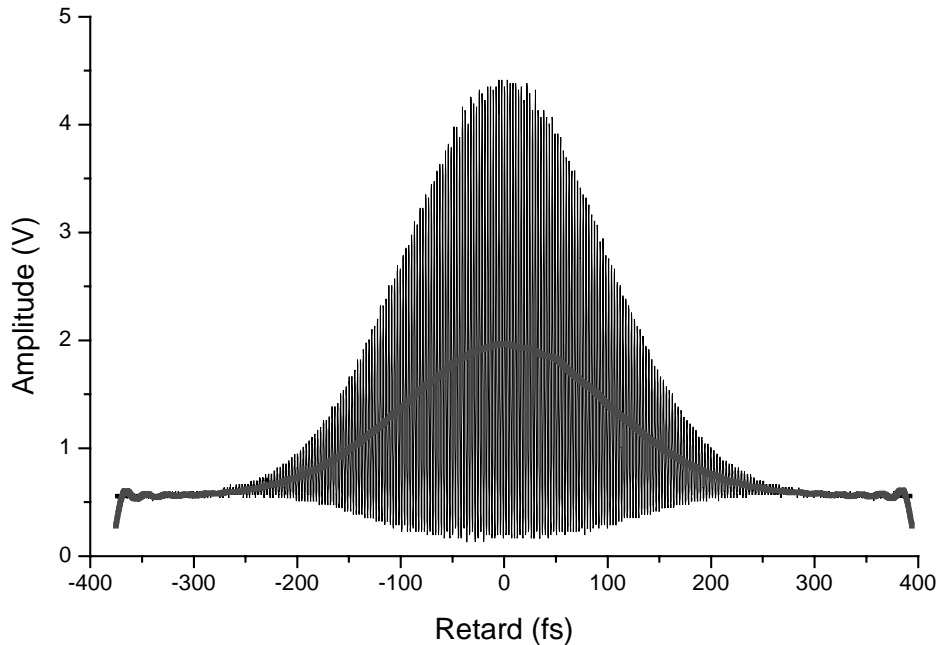
$$E(t) = \exp\left(-\frac{t^2}{\tau_0^2}\right) \exp(i\omega t) \quad (12)$$

on obtient alors la fonction d'autocorrélation du second ordre interférométrique :

$$G(\tau) = \tau_0 \sqrt{\pi} \left[ 1 + (2 + \cos(2\omega\tau)) \exp\left(-\frac{u^2}{\tau_0^2}\right) + 4 \cos(\omega\tau) \exp\left(-\frac{3u^2}{4\tau_0^2}\right) \right] \quad (13)$$

dont la valeur moyenne vaut :

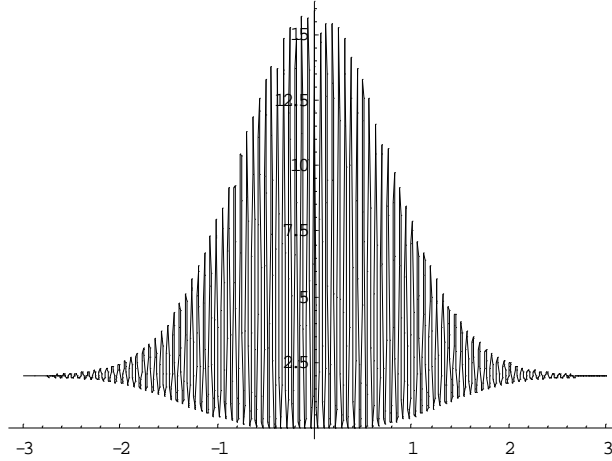
$$G(\tau) = \tau_0 \sqrt{\pi} \left[ 1 + 2 \exp\left(-\frac{u^2}{\tau_0^2}\right) \right]. \quad (14)$$



**Figure 16 : Autocorrélation expérimentale du laser Titane Saphir réalisée directement dans une photodiode deux photons. La largeur temporelle mesurée à mi-hauteur est de 225 fs.**

La mesure à mi-hauteur de la valeur moyenne de l'autocorrélation nous donne directement la largeur temporelle du champ électrique. Cette mesure se fait soit par calibration de l'axe des abscisses en déplaçant un miroir sur l'un des bras de l'interféromètre, soit par comptage des franges d'interférences (ce que l'on fait généralement).





**Figure 17 : Simulation de la trace d'autocorrélation théorique. Le rapport un huitième de la position de la base de la courbe par rapport au minimum et au maximum est un trait caractéristique utilisé pour vérifier la validité de la mesure.**

L'estimation de la largeur temporelle finale de l'impulsion se fait en appliquant un modèle arbitraire pour sa forme temporelle ; généralement une gaussienne. Ainsi on :

$$(\Delta\tau_0) = \frac{(\Delta\tau)_{\text{Mesuré}}}{\sqrt{2\ln 2}} \quad (15)$$

En rappelant que le modèle pris est de la forme :  $E(t) = \exp\left(-\frac{t^2}{\tau_0^2}\right)\exp(i\omega t)$ . Si la valeur de la largeur temporelle brute est toujours vraie, celle calculée dépend du modèle choisi. Nous verrons dans le paragraphe 5 qu'il est possible de s'affranchir de l'utilisation d'un modèle et même de la connaissance de la largeur temporelle dans le cadre de notre technique pompe sonde.

## **b. Autocorrélation directe dans une photodiode**

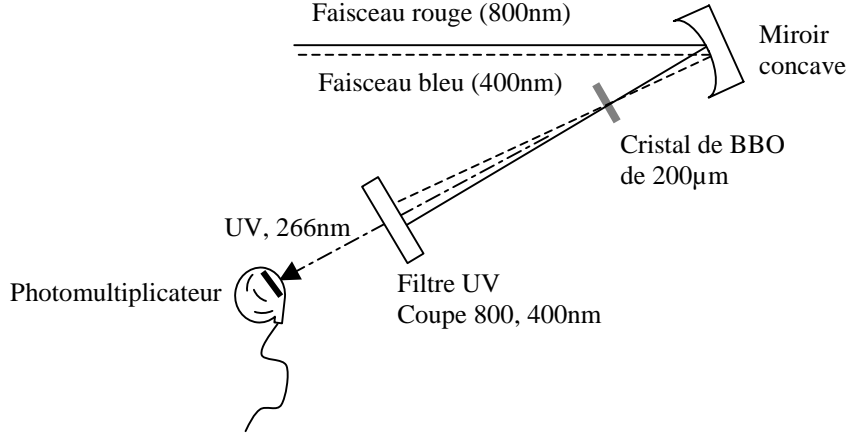
On a vu que pour réaliser une autocorrélation à l'ordre deux, il était nécessaire d'avoir recourt à un processus non linéaire. Dans le cas de la photodiode, le processus non linéaire est réalisé dans le semi-conducteur photorécepteur lui-même. Par exemple, pour mesurer la largeur temporelle d'une impulsion lumineuse à 1,5 microns, on utilise une photodiode en silicium. La largeur de la bande interdite de ce semi-conducteur correspond à l'absorption simultanée de deux photons à 1,5  $\mu\text{m}$  qui est un processus non linéaire faisant intervenir la partie imaginaire de la susceptibilité non linéaire du troisième ordre. Ainsi on montre (cf. chapitre V) que le signal d'autocorrélation dans une photodiode deux photons s'écrit (avec un modèle gaussien) :

$$S(\tau) \propto ke\tau_0\sqrt{\pi} \left[ 1 + (2 + \cos(2\omega u))\exp\left(-\frac{u^2}{\tau_0^2}\right) + 4\cos(\omega u)\exp\left(-\frac{3u^2}{4\tau_0^2}\right) \right] \quad (16)$$

qui est exactement proportionnel à un signal d'autocorrélation provenant d'un cristal doubleur. Néanmoins, avec cette technique, les impulsions ne se propageant pas dans un cristal mais interagissant directement dans la zone de déplétion de la jonction, elles ne sont pas dispersées et on est sûr d'estimer la vraie largeur temporelle de l'impulsion à condition que celle-ci est une forme symétrique. D.Wiersma<sup>21</sup> a pu mesurer la largeur temporelle d'impulsion de 6fs provenant d'un oscillateur Ti : Saphir avec une photodiode GaAsP. Nous

avons réalisé un montage identique pour mesurer nos impulsions. Les résultats obtenus, confirment les mesures avec cristal doubleur et seront commentés dans le chapitre V.

### c. Mesure de la largeur temporelle à 400nm



Du fait du manque de cristaux ou de photodétecteurs à deux photons utilisables, la mesure de la largeur temporelle de l'impulsion bleu a été effectuée à l'aide d'une corrélation croisée entre une impulsion infrarouge dont on connaît la largeur temporelle avec l'impulsion bleu. Cette corrélation se fait dans un cristal non linéaire de BBO de 200µm par sommation de fréquences. On mesure l'intensité du rayonnement ultraviolet généré en fonction du retard entre les impulsions rouge et bleu. Cette intensité est proportionnelle à :

$$G_{UV}(u) \propto \left| \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{\Delta k} \right|^2 \rho_{BLUE}^2 \rho_{RED}^2 \int_{-\infty}^{\infty} \delta_{BLUE}^2(t) \delta_{RED}^2(t-u) dt \quad (17)$$

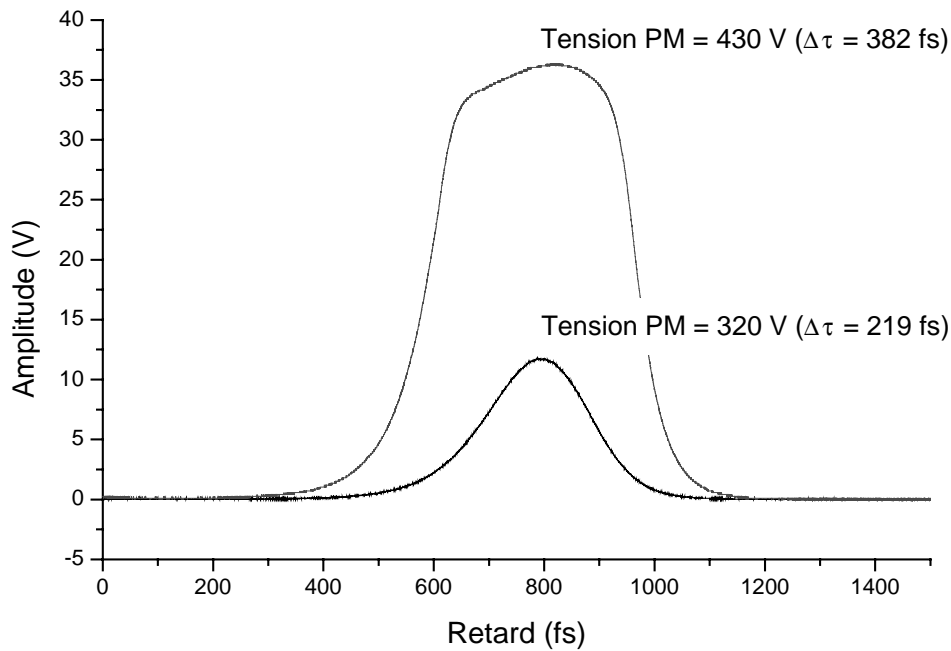
où  $\Delta k$  est l'accord de phase entre les deux faisceaux rouge et bleu,  $\rho_i$  représente les amplitudes respectives des champs et  $\delta_i$  représente les formes temporelles respectives des impulsions.

Cette expression n'est valable que pour un accord de phase  $\Delta k$  nul, sinon il faut prendre en compte dans l'enveloppe temporelle des impulsions la différence de vitesses de groupe qui est pris égale à zéro ici. La mesure de la corrélation entre les deux impulsions se fait pour un accord de phase nul. Dans ce cas, pour des impulsions de forme gaussienne, la corrélation croisée a pour expression en fonction du retard  $u$  entre les impulsions rouge et bleu :

$$\int_{-\infty}^{\infty} \delta_{BLUE}^2(t) \delta_{RED}^2(t-u) dt = \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{\exp\left(-\frac{2u^2}{\tau_{BLUE}^2 + \tau_{RED}^2}\right)}{\sqrt{\frac{1}{\tau_{BLUE}^2} + \frac{1}{\tau_{RED}^2}}}. \quad (18)$$

Ce signal a pour largeur temporelle :

$$\tau_{CORR}^2 = \frac{\tau_{BLUE}^2 + \tau_{RED}^2}{2}. \quad (19)$$



**Figure 18 : Corrélation expérimentale d'une impulsion rouge avec une impulsion bleue. Enregistrement de la génération de l'UV en fonction du retard entre les deux impulsions. Le réglage de la haute tension du photomultiplicateur doit être réalisé de manière à rester dans un régime linéaire de fonctionnement. Comme on le voit ici, une tension trop élevée déforme le signal et donne une mauvaise mesure. En modèle gaussien, l'impulsion rouge ayant une largeur de 180fs, on obtient une impulsion bleue de 191fs de large.**

La mesure de la largeur temporelle de cette corrélation ne peut se faire par comptage de franges d'interférences car il n'y en a pas. Dans ce cas, la calibration de l'axe des temps se fait par déplacement lent d'un retard sur l'un des faisceaux pendant l'oscillation de l'autre retard qui permet d'observer la trace de la corrélation en temps réel. Le déplacement de la trace sur l'oscilloscope en fonction du déplacement d'un miroir sur l'un des faisceaux permet de calibrer l'axe des temps en microns et d'en déduire ainsi la largeur temporelle de la trace en microns puis en femtosecondes. Connaissant la largeur temporelle de l'impulsion préalablement mesurée à l'aide d'une autocorrélation classique, on peut déterminer alors la largeur temporelle de l'impulsion bleue :

$$\tau_{BLUE} = \sqrt{2\tau_{CORR}^2 - \tau_{RED}^2} . \quad (20)$$

Naturellement, cette méthode ne nous permet que de donner une estimation de la largeur temporelle de l'impulsion laser. Même s'il est vrai que la forme temporelle d'une impulsion lumineuse est souvent très proche d'une gaussienne en raison de la traversée de nombreuses optiques, la forme temporelle d'une impulsion oscillant dans un laser peut avoir différentes formes dont la plus correcte est la sécante hyperbolique, solution de l'équation de Schrödinger non linéaire.

## 5. PRISE EN COMPTE DE LA FORME TEMPORELLE EXACTE DES IMPULSIONS : « TECHNIQUE CANIONI »

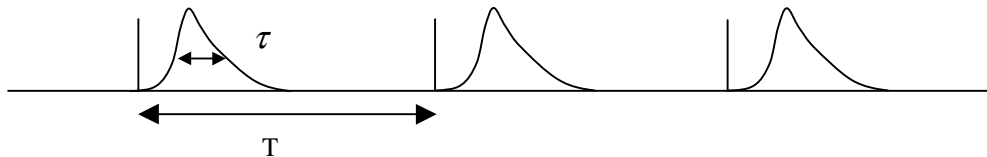
Le but de cette technique est de tenir compte dans nos signaux non linéaires de la forme temporelle exacte de l'impulsion sans en connaître forcément la largeur temporelle ni la forme. Pour cela, considérons une photodiode dans laquelle on focalise l'impulsion laser utilisée dans l'expérience. Comme on le montre dans le chapitre V, le courant de photoconduction dans la photodiode est proportionnel à (pour plus de clarté, seules les caractéristiques du laser sont conservées dans l'expression) :

$$I_{abs}^{(100)} = \beta^{(100)}(e, t) I_0^2 = C \frac{P_m^2 T^2}{w_0^2} \kappa [3(a+b) - (a-3b)\cos(4\theta)] \quad (21)$$

où  $C$  est une constante dépendant en outre de la longueur d'onde et du rendement quantique de la photodiode,  $\theta$  est l'angle entre la polarisation du faisceau incident et l'axe du cristal du semi-conducteur de la photodiode,  $a = \Im(\chi_{xxx}^{(3)})$ ,  $b = \Im(\chi_{yyy}^{(3)})$ ,  $P_m$  est la puissance moyenne,  $T$  le taux de répétition,  $w_0$  la taille du col du faisceau au niveau de la photodiode et

$$\kappa = \frac{\int_T s^4(t) dt}{\left( \int_T s^2(t) dt \right)^2} \text{ avec } s(t) \text{ la forme temporelle exacte du champ électrique de l'impulsion.}$$

Rappelons que le produit  $P_m \cdot T$  est proportionnel à la largeur temporelle que multiplie la puissance crête. Connaissant la puissance moyenne que l'on peut mesurer à l'aide d'une photodiode à un photon, calibrée avec un mesureur de puissance, le taux de répétition du laser facilement mesurable avec un fréquencemètre, la taille du col du faisceau et la partie imaginaire de la susceptibilité non linéaire d'ordre trois (qui est une constante) que l'on peut mesurer par autocorrélation croisée (cf. chapitre V) ; il est alors possible de calculer le facteur  $C\kappa$  ayant préalablement mesuré le courant de photoconduction de la photodiode. Ce facteur montre comment est répartie l'énergie de l'impulsion au cours d'une oscillation laser pour une largeur temporelle  $\tau$  fixée.



**Figure 19 : Exemple de répartition de l'énergie d'une impulsion au cours d'une oscillation laser. Le facteur numérique  $C\kappa$  dépend de la manière dont est répartie cette énergie sur une largeur temporelle  $\tau$ .**

Si l'on prend en compte les variations éventuelles de la puissance moyenne et de la taille du col du faisceau du laser, les variations du courant de photoconduction de la photodiode deux photons ne seront dues soit à une fluctuation du facteur  $C\kappa$ , c'est à dire une variation de la répartition temporelle de l'énergie au cours d'une oscillation laser, soit à une variation de la largeur temporelle.

Il se trouve que tous les signaux des expériences pompe sonde colinéaires faisant intervenir la susceptibilité d'ordre trois sont tous proportionnels à ce facteur  $C\kappa$  au retard zéro. Ainsi le signal de l'expérience pompe sonde dégénérée (cf. chapitre III) est proportionnel à :

$$G(u) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} s^2(t) s^2(t-u) dt}{\left( \int_{-\infty}^{+\infty} s^2(t) dt \right)^2} \quad (22)$$

et peut être normalisé par rapport au courant de photoconduction de la photodiode deux photons. De cette manière, sans connaître la largeur, ni la forme temporelle de l'impulsion, il nous est possible de tenir compte de la forme temporelle exacte de l'impulsion dans le signal et de toutes ses éventuelles variations.

Comme application de cette technique, on peut également estimer la largeur temporelle de l'impulsion à l'aide uniquement de cette photodiode. Dans le cas d'un modèle gaussien,  $\kappa$  vaut  $\sqrt{2}/2$  et on peut écrire le signal de photoconduction sous la forme équivalente :

$$I_{abs}^{(100)} \propto C(\lambda) \frac{P_m^2}{w_0^2 \tau_0}. \quad (23)$$

Connaissant la puissance moyenne, la taille du col du faisceau et la constante  $C(\lambda)$  après calibration à l'aide d'une autocorrélation, on peut alors mesurer la largeur temporelle d'une impulsion en permanence avec une photodiode deux photons en supposant que la forme temporelle de l'impulsion ne change pas au cours du temps ce qui est généralement le cas pour les oscillateurs que nous utilisons.

Dans le cas du signal de l'expérience pompe sonde non dégénérée (cf. chapitre IV), la fonction de corrélation est un peu plus compliquée :

$$G(z, u) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \delta_s^2(\eta) \delta_p^2 \left( \eta + z \frac{v_p - v_s}{v_p v_s} - u \right) d\eta}{\left( \int_{-\infty}^{\infty} \delta_s^2(\eta) d\eta \right) \left( \int_{-\infty}^{\infty} \delta_p^2(\eta) d\eta \right)}. \quad (24)$$

Néanmoins, si la forme temporelle du signal rouge est modifiée, l'impulsion bleue résultant du doublage du rouge, va elle aussi être modifiée. Mais si on considère que la forme temporelle de l'impulsion reste inchangée au cours du temps, une photodiode deux photons placée sur le faisceau rouge pourra alors tenir compte des variations de largeur temporelle.

## C. Conclusion

Après avoir passé en revue l'ensemble des sources utilisées au cours de toutes les expériences décrites dans ce manuscrit et les futures sources lasers qui seront utilisées dans le but de faire des mesures d'indice non linéaire aux harmoniques de la longueur d'onde du Nd :YAG, nous avons décrit comment mesurer les caractéristiques de nos sources à l'aide des instruments disponibles.

| <i>Paramètre laser</i>  | <i>Incertitude de mesure (Min, Max)</i> |
|---|---|
| <i>Puissance moyenne (mesureur de puissance)</i>                      | 3% - 5%                                 |
| <i>Taux de répétition (fréquence-mètre)</i>                           | < 0,1%                                  |
| <i>Taille du col du faisceau sur l'échantillon (BeamScan, Signal)</i> | 2% - 3% (rouge) ; 3% - 4% (bleu)        |
| <i>Longueur d'onde (spectromètre optique)</i>                         | < 0,1%                                  |
| <i>Largeur temporelle (autocorrélation, corrélation croisée)</i>      | 2% - 4% (rouge) ; 4% - 10% (bleu)       |

*Tableau 1 : Incertitudes sur les mesures des caractéristiques des sources lasers. Les valeurs minimum et maximum sont données sachant que l'incertitude d'une mesure dépend des conditions de mesure comme de l'atmosphère ambiante pour la mesure de la puissance moyenne et de la valeur de la mesure (l'incertitude n'est pas la même pour une largeur de 100 ou 200fs). Les techniques employées dans le bleu sont plus compliquées et donnent des incertitudes plus importantes.*

Des techniques de caractérisation permettent de mesurer complètement l'impulsion d'un laser en amplitude en phase. Néanmoins ces expériences sont assez lourdes à monter et dans le cas de mesure absolue de l'indice non linéaire, il ne nous a pas semblé nécessaire de réaliser une caractérisation complète sachant que l'on a choisi l'une des sources laser les plus stables du marché dont on peut connaître assez facilement toutes ces caractéristiques.

- 
- <sup>1</sup> L. Canioni, *Thèse de l'Université de Bordeaux I*
- <sup>2</sup> M.O. Martin, *Thèse de l'Université de Bordeaux I*
- <sup>3</sup> Coherent, The Coherent Mira Model 900-B Laser, Operator's Manual
- <sup>4</sup> Catherine Le Blanc, *Thèse de l'école Polytechnique*, "Principes et réalisations d'une source laser Terawatt femtoseconde basée sur le saphir dopé au titane".
- <sup>5</sup> P.F. Moulton, "Spectroscopic and Laser characteristics of  $Ti^{3+} : Al_2O_3$ ", *J. Optic Soc. Am. B*, Vol **3**, N°1, January (1986).
- <sup>6</sup> M. Nicoli, R. Szpöcs, C. Spielmann, and Col., "Compression of high energy laser pulse below 5 fs", *Opt. Lett.* **22**, N°8, April 15, (1997)
- <sup>7</sup> A. Baltuska, Z. Wei, M.S. Pshenichnikov, and D.A. Wiersma, "Optical pulse compression to 5 fs at 1 MHz repetition rate", *Opt. Lett.* **22**, N°2, January 15, (1997)
- <sup>8</sup> N.H. Risvi, P. French, J.R. Taylor, *Opt. Lett.* **17**, p. 279 (1992)
- <sup>9</sup> H. Liu, J. Yao, A. Puri, *Opt. Comm.* **109**, 139-144 (1994)
- <sup>10</sup> G.D. Boyd, D.A. Kleinman, *J. Appl. Phys.* **39**, 3597 (1968)
- <sup>11</sup> Coherent, Operator's Manual, Verdi™ Diode-Pumped Laser
- <sup>12</sup> T. Baer, *J. Opt. Soc. Am.* **B 3**, 1175 (1986)
- <sup>13</sup> L.R. Brovelli, U. Keller, T.H. Chiu, *J. Opt. Soc. Am.* **B 12**, N°2, 311-322, (1995)
- <sup>14</sup> U. Keller, K.J. Weingarten, F.X. Kärtner, D. Kopf, B. Braun, I.D. Jung, R. Fluck, C. Honninger, N. Matuschek, and J. Aus der Au, *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.* **2**, 435 (1996)
- <sup>15</sup> J. Aus der Au, D. Kopf, F. Morier-Genoud, M. Moser, U. Keller, *Opt. Lett.* **22**, N°5, 307-309 (1997)
- <sup>16</sup> J. Aus der Au, F.H. Loesel, F. Morier-Genoud, M. Moser, U. Keller, *Opt. Lett.* **23**, 271-273, (1998)
- <sup>17</sup> C. Honninger, G. Zhang, U. Keller, A. Giessen, «Femtosecond YbYag laser using semiconductor saturable absorber», *Opt. Lett.* **20**, pp2402-2404, (1995)
- <sup>18</sup> N.V. Kuleshov, A.A. Lagatsky, A.V. Podlipensky, V.P. Mikhailov, G. Huber, *Opt. Lett.* **22**, 1317 (1997)
- <sup>19</sup> F. Brunner, G.J. Spühler, J. Aus der Au, F. Morier-Genoud, R. Paschotta, N. Lichtenstein, S. Weiss, C. Harder, A.A. Lagatsky, A. Abdolvand, N.V. Kuleshov, U. Keller, *Opt. Lett.* **25**, N°15, 1119 (2000)
- <sup>20</sup> Site Web de Molelectron : <http://www.molelectron.com> pour plus d'informations.
- <sup>21</sup> J.K. Ranka, A.L. Gaeta, A. Baltuska, M.S. Pshenichnikov, D.A. Wiersma, *Opt. Lett.* **22**, N° 17, 1344-1346 (1997)

## CHAPITRE III

# Mesures d'indices non linéaires en configuration d'absorption transitoire

Nous allons présenter dans ce chapitre une expérience permettant de mesurer de manière absolue et précise l'indice de réfraction non linéaire d'un matériau. Cette expérience développée dans le groupe<sup>31</sup> est certainement celle qui possède le rapport complexité de mise en œuvre, précision absolue de la mesure, le plus faible. En effet, d'une part l'expérience ne nécessite que le montage d'interféromètre et d'autre part l'utilisation d'un oscillateur laser non amplifié très stable nous permet d'avoir couramment une incertitude absolue inférieure à 10% sur les mesures de la susceptibilité non linéaire d'ordre trois.

Dans ce chapitre, nous présenterons tout d'abord une liste des principales techniques de mesure de l'indice non linéaire, puis détaillerons la technique pompe sonde colinéaire, ainsi que son automatisé.

## A. Récapitulatif des différentes techniques de mesures de l'indice non linéaire, avantages et inconvénients de chacune

Les techniques de mesures de l'indice non linéaire peuvent se classer en plusieurs catégories :

- Signal linéaire par rapport à la susceptibilité non linéaire.
- Signal non linéaire par rapport à la susceptibilité non linéaire.
- Expérience dégénérée.
- Expérience non dégénérée.
- Expérience à un faisceau.
- Expérience à plusieurs faisceaux.
- Mesure absolue
- Mesure relative.

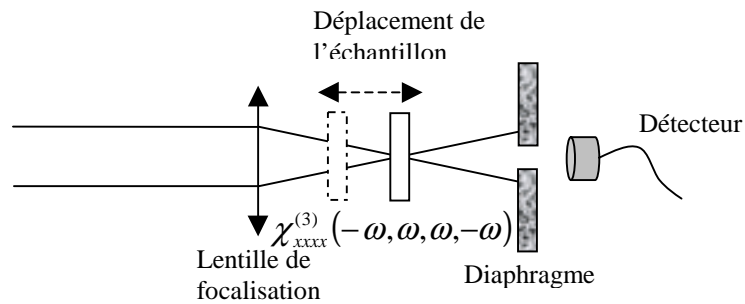
Le but de ce paragraphe est de rappeler les principales techniques existantes de mesure de l'indice non linéaire. La liste est non exhaustive et de nombreuses expériences souvent dérivées de celles présentées ici ont été développées.

### 1. MESURE A L'AIDE DE LA TECHNIQUE Z-SCAN<sup>1,2,3</sup> (SIGNAL LINEAIRE, 1 FAISCEAU, DEGENEREE)

C'est l'une des techniques les plus utilisées et la plus simple à mettre en place du point de vue expérimentale. Des mesures pour le National Ignition Facility (NIF) ont été réalisées avec cette méthode<sup>4</sup>. L'idée de cette technique est de tirer parti de l'effet Kerr d'un point de vue spatial. Pour cela, on utilise un faisceau laser qui va servir à la fois de faisceau d'excitation et de faisceau d'analyse. Le faisceau est focalisé dans l'échantillon. Par effet Kerr, l'indice de réfraction de l'échantillon va être modifié suivant un profil gaussien. L'échantillon peut être assimilé à une lentille dont la focale dépend de l'intensité du faisceau laser sur laquelle le faisceau va se diffracter. La technique de mesure consiste à analyser en champ lointain l'évolution de la structure spatiale du faisceau dans ce système de deux dioptries. La

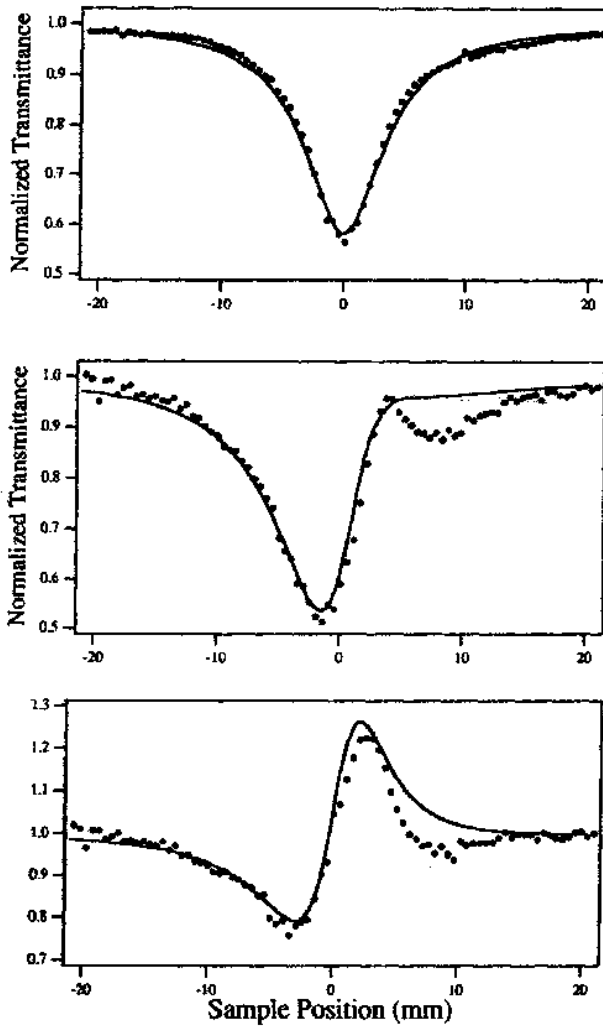


technique la plus simple à mettre en œuvre consiste à placer un trou au centre du faisceau de taille optimisée au regard des variations du signal.



**Figure 1: Montage Z-scan couramment utilisé pour la mesure de l'indice non linéaire.**

Dans ce cas le signal (montré en Figure 2) peut être interprété comme suit : pour une position de l'échantillon  $z < 0$ , le système de dioptries a un grandissement supérieur à 1, si l'indice non linéaire est positif, on a une diminution de l'intensité du faisceau passant à travers le trou par rapport à la position de l'échantillon  $z = 0$  prise comme référence. Si l'on déplace l'échantillon vers une position  $z > 0$ , le grandissement du système devient inférieur à 1 et le signal augmente. Ensuite un ajustement théorique permet généralement de remonter à l'indice non linéaire par rapport à un échantillon de référence.



Néanmoins, malgré la simplicité expérimentale de la technique, l'analyse théorique du signal n'est pas aisée. Elle demande de résoudre totalement l'équation de propagation de l'impulsion lumineuse. Cette équation de type Schrödinger non linéaire n'est en général pas résoluble de manière analytique et rend l'analyse du signal délicate, d'autant plus qu'il est nécessaire de bien caractériser l'impulsion lumineuse. En effet, si le faisceau initial est un peu elliptique<sup>5</sup>, la lentille créée dans l'échantillon devient astigmatique. L'analyse ne peut plus se faire avec un trou, mais avec une croix pour observer les variations d'intensités du faisceau suivant deux directions de l'espace. Dans ce cas, les rapports pics vallées des signaux sont modifiés. De plus cette expérience est extrêmement sensible au pointé du laser, aux effets thermiques et à la qualité optique de l'échantillon qui doit être fin et irréprochable pour éviter tout phénomène de diffraction parasite. L'épaisseur de celui-ci doit également être très inférieure au paramètre Rayleigh<sup>a</sup> du laser. Ces contraintes rendent cette expérience, initialement simple, assez compliquée à mettre en œuvre pour pouvoir contrôler tous les paramètres sensibles.

Figure 2 : Signaux de type Z-Scan obtenu sur un cristal de BaF<sub>2</sub> à la longueur d'onde de 266nm<sup>6</sup>. La première trace effectuée sans diaphragme montre l'absorption à 2 photons. La deuxième trace faite avec un diaphragme montre à la fois l'absorption à 2 photons et la réfraction non linéaire de l'échantillon. La troisième trace est la précédente dans laquelle a été enlevée l'absorption à deux photons, elle représente uniquement la réfraction non linéaire due à l'autofocalisation dans l'échantillon.

Une amélioration apportée à cette expérience consiste à utiliser deux faisceaux au lieu d'un. C'est la technique du Z-scan résolue en temps<sup>7,8</sup>. Cela apporte essentiellement la résolution temporelle à l'expérience pour l'analyse d'éventuels effets non linéaires non instantanés.

<sup>a</sup> Paramètre de Rayleigh :  $z_r = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$  (dans nos conditions ce paramètre vaut environ 3mm)

## 2. MESURE PAR GENERATION DE TROISIEME HARMONIQUE<sup>9,10</sup> (SIGNAL NON LINEAIRE, 1 FAISCEAU, DEGENEREE, MESURE RELATIVE)

C'est une autre technique ne nécessitant qu'un faisceau. Il suffit de focaliser ce faisceau dans l'échantillon et de détecter la génération de l'harmonique trois due à la partie réelle de la susceptibilité non linéaire d'ordre trois. Dans les matériaux isotropes, l'accord de phase ne pouvant être réalisé, la longueur de cohérence où se fait la génération de troisième harmonique est très petite, de l'ordre de 10nm. C'est la raison pour laquelle, cette technique nécessite une source très puissante et des échantillons présentant une forte non linéarité afin d'avoir un rapport signal sur bruit suffisant. De plus l'échantillon à mesurer ne doit pas absorber la troisième harmonique qui est généralement dans la région du bleu - ultraviolet ; 354nm avec l'utilisation d'un YAG (1064nm) ou 267nm avec l'utilisation d'un Titane : Saphir amplifié (800nm). A ces courtes longueurs d'ondes, de nombreux matériaux commencent à absorber.

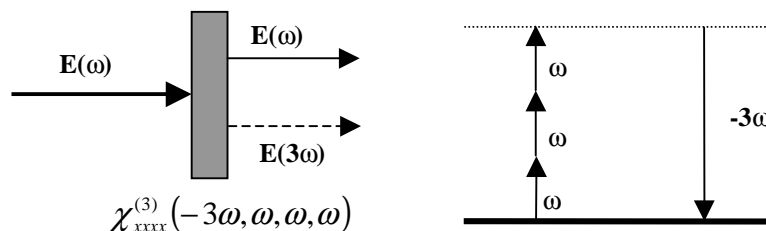


Figure 3: Technique de mesure par génération de troisième harmonique.

Un autre problème est la contribution non linéaire des surfaces de l'échantillon. Si l'on désire mesurer l'indice de réfraction non linéaire volumique de l'échantillon, on doit faire en sorte de prendre un échantillon suffisamment épais et focaliser en son centre de telle manière à ne pas exalter la génération de troisième harmonique provenant de l'interface de l'échantillon. En effet, celle-ci est beaucoup plus efficace que la génération de troisième harmonique dans le volume à cause d'un accord de phase partiel dû à la phase spatiale de l'impulsion. Tous ces problèmes font que cette technique est très peu utilisée pour la mesure de l'indice non linéaire sauf dans le cas de poudre où une technique purement optique est irréalisable.

Les expériences présentées ci-dessous nécessitent plus d'un faisceau. Ce sont des montages de type pompe sonde dans lesquels une ou plusieurs impulsions pompe de forte énergie exaltent la non linéarité de l'échantillon qui est analysée à l'aide d'une impulsion sonde de faible puissance.

## 3. MESURE A L'AIDE DU MONTAGE KERR<sup>11</sup> (SIGNAL NON LINEAIRE, 2 FAISCEAUX, DEGENEREE, MESURE RELATIVE)

C'est l'une des premières techniques utilisées pour la mesure de l'indice de réfraction non linéaire. C'est une expérience nécessitant deux faisceaux, une impulsion pompe de forte énergie pour exalter la non linéarité de l'échantillon et une impulsion sonde pour analyser la perturbation apportée par la pompe.

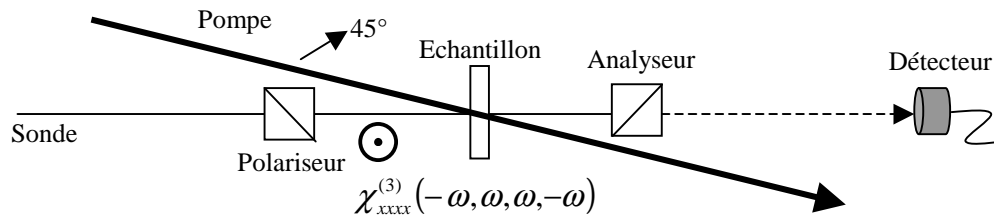


Figure 4 : Montage Kerr.

L'échantillon est placé entre deux polariseurs croisés et est traversé par l'impulsion sonde. En l'absence d'impulsion pompe, la transmission du faisceau sonde à travers l'analyseur est nulle. La traversée de l'impulsion pompe polarisée à  $45^\circ$  induit dans l'échantillon de la biréfringence qui dépolarise le faisceau sonde. Une partie de celui-ci est transmise à travers l'analyseur et est détectée. Le problème de cette technique est sa très faible sensibilité. De plus la qualité des échantillons doit être irréprochable et en particulier, ils doivent être exempts de toute biréfringence.

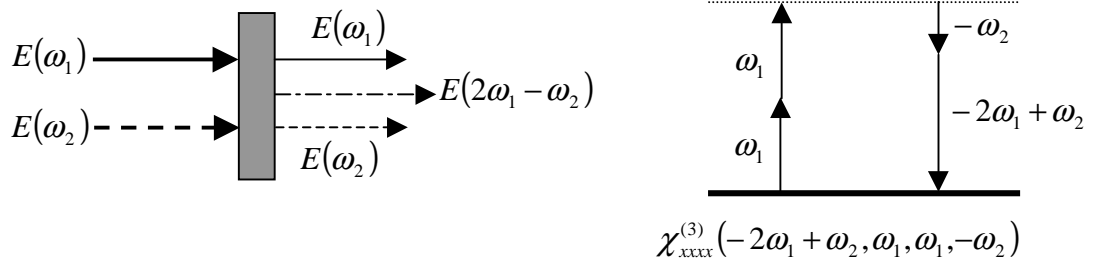
A la technique présentée ci-dessus (dite homodyne) est généralement préféré le montage Kerr avec une détection hétérodyne<sup>12</sup>. Dans cette expérience, une légère fuite dans la polarisation du faisceau sonde est introduite à l'aide d'une lame quart onde tournée d'un certain angle par rapport à ces axes. La mesure de la transmission du faisceau pour deux angles opposés de la lame quart onde permet d'avoir un signal linéaire par rapport à la susceptibilité non linéaire avec une meilleure sensibilité et un meilleur rapport signal sur bruit.

#### 4. MESURE PAR CARACTERISATION DE L'IMPULSION

Une technique moins courante et qui pourtant pourrait paraître naturelle est de faire propager une impulsion laser dans l'échantillon à mesurer, puis de caractériser cette impulsion en amplitude et en phase avant et après propagation. La comparaison de l'amplitude et surtout de la phase non linéaire induite par l'échantillon permet alors de remonter à la susceptibilité non linéaire du troisième ordre connaissant la dispersion de celui-ci. Néanmoins, la caractérisation complète d'une impulsion laser n'est pas une chose aisée. S'il existe différentes techniques, aucune n'est parfaite, et ce sujet fait l'objet de beaucoup d'études. Les principales techniques de caractérisation sont : l'autocorrélation, FROG<sup>13</sup> (Frequency Resolved Optical Gating), méthode DSPM<sup>14,15</sup> (Direct Spatial Phase Measurement) qui est une méthode utilisée dans le groupe<sup>16,17</sup>, l'interférométrie spectrale<sup>18,19</sup> également utilisée dans le groupe, et tout récemment SPIDER<sup>20</sup> (Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction). Ainsi par exemple A.J. Taylor<sup>21</sup> a réalisé des mesures sur des échantillons de silice fondue et de KDP à l'aide de la technique FROG et E.T. Nibbering du LOA (Laboratoire d'Optique Appliquée) a réalisé des mesures sur des gaz<sup>22</sup> et diverses silices fondues<sup>23</sup> en faisant une analyse spectrale de l'automodulation de phase induite par un faisceau de  $200\text{GW}/\text{cm}^2$ . Une expérience intéressante à citer est celle de Kang<sup>24</sup> *et all* qui utilise une technique s'inspirant de FROG, c'est l'étude du couplage de deux faisceaux pompe et sonde résolue spectralement. L'inconvénient majeure de ces techniques est leur complexité de mise en œuvre, et elles ne sont généralement pas utilisées pour la mesure de l'indice non linéaire.

**5. MESURE PAR MELANGE A TROIS ONDES NON DEGENEREEES (TWM)<sup>25</sup> (SIGNAL NON LINEAIRE, 2 FAISCEAUX, NON DEGENEREE)**

Le principe repose sur le couplage de deux ondes de fréquences différentes  $\omega_1$  et  $\omega_2$  dans le milieu non linéaire. Par l'intermédiaire du tenseur  $\chi^{(3)}$ , un rayonnement est émis à la fréquence  $2\omega_1 - \omega_2$  ou  $2\omega_2 - \omega_1$  dont on va évaluer l'intensité.



*Figure 5 : Technique de mesure par mélange à trois ondes non générées.*

En choisissant un écart faible entre les fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  des faisceaux incidents, on pourra assimiler la mesure à  $\chi_{xxxx}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega, -\omega)$ .

**6. MESURE PAR MELANGE A QUATRE ONDES DEGENEREEES (DFWM)<sup>26</sup> (SIGNAL NON LINEAIRE, 3 FAISCEAUX, DEGENEREE, MESURE ABSOLUE)**

Dans cette technique, trois ondes sont envoyées sur le matériau et en génèrent une quatrième que l'on mesure. La géométrie couramment utilisée est celle de la conjugaison de phase où les deux ondes pompes  $E_1(\omega)$  et  $E_2(\omega)$  sont contre propageantes dans l'échantillon avec des vecteurs d'ondes  $k_1$  et  $k_2 = -k_1$ . Un troisième faisceau sonde  $E_3(\omega)$  de vecteur d'onde  $k_3$  et de plus faible puissance est mélangé aux deux faisceaux pompes pour induire par l'intermédiaire de la polarisation non linéaire une quatrième onde  $E_3^s(\omega)$  de vecteur d'onde  $k_3^s = k_1 + k_2 - k_3 = -k_3$  opposé à la direction du faisceau sonde. Dans l'échantillon, les trois faisceaux forment deux réseaux de phase : un réseau entre  $E_2(\omega)$  et  $E_3(\omega)$ , et un réseau entre les ondes  $E_1(\omega)$  et  $E_3(\omega)$ . Le faisceau sonde est partiellement diffracté par ces réseaux d'où la possibilité de générer les ondes  $E_3^-(\omega)$  et  $E_3^+(\omega)$  suivant les directions  $k_3 \pm 2k_1$ . Contrairement à  $E_3^s(\omega)$ , ces faisceaux ne sont pas générés en accord de phase et le signal est détecté sur  $E_3^s(\omega)$ .

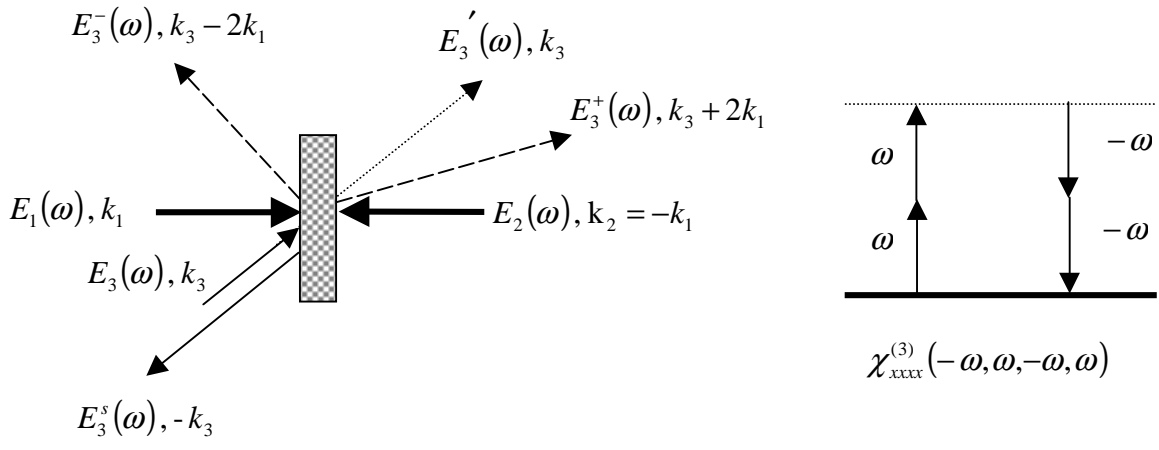


Figure 6 : Technique de mesure par mélange à quatre ondes dégénérées.

**7. MESURE PAR INTERFEROMETRIE (SIGNAL LINEAIRE, 2 FAISCEAUX, DEGENEREE, MESURE RELATIVE)**

L'indice de réfraction d'un milieu possède la propriété essentielle d'introduire une phase temporelle à tous les faisceaux qui le traverse. Donc, pour mesurer une variation de l'indice de réfraction, mesurer la modification apportée à la phase du faisceau qui traverse le milieu non linéaire semble être une bonne approche. Cette méthode a été proposée pour la première fois en 1968<sup>27</sup>.

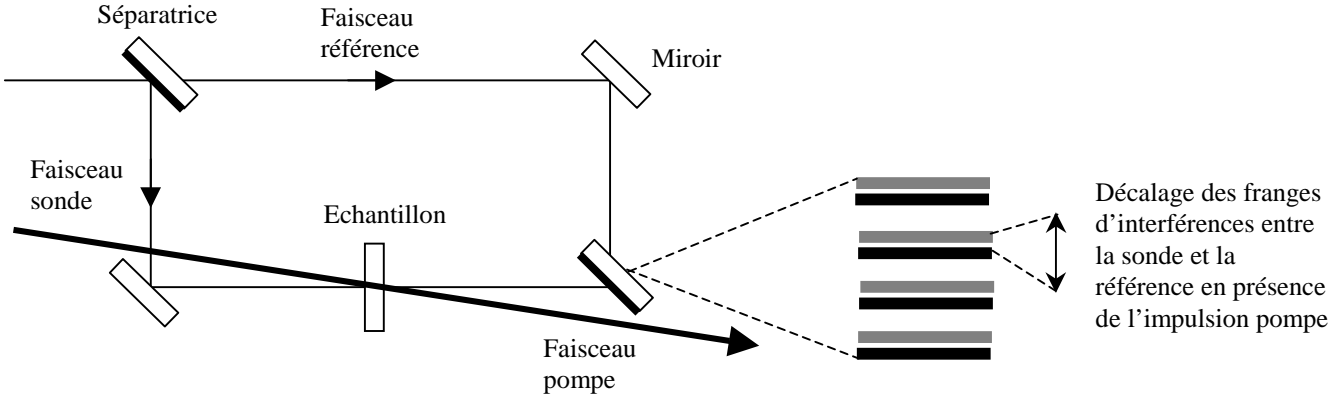


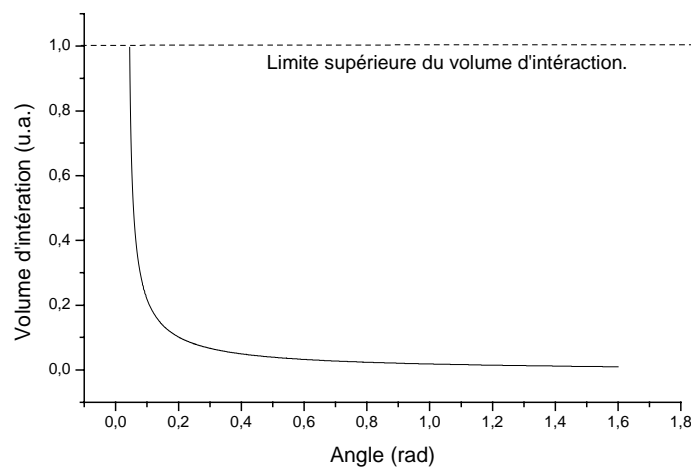
Figure 7 : Montage interférométrique pour la mesure de l'indice non linéaire.

Le principe de cette technique est simple. Le faisceau initial est séparé en deux faisceaux, la référence et la sonde. Dans le bras sonde est placé l'échantillon alors que le bras référence peut rester vide ou avoir un échantillon de référence comme le CS<sub>2</sub> souvent utilisé dans ce cas. On règle l'interféromètre de manière à avoir des franges d'égale inclinaison entre la sonde et la référence. En présence de l'impulsion pompe traversant l'échantillon, on mesure le décalage des franges qui est plus ou moins grand suivant la valeur de l'indice non linéaire. Cette technique a été utilisée dans notre groupe en configuration pompe sonde colinéaire pour faire des mesures absolues. Elle a fait l'objet de nombreux travaux et de nombreuses publications<sup>28,29,30</sup>. Elle a donné de bons résultats, et la technique présentée dans le prochain paragraphe découle directement de celle-ci.

En conclusion, il existe trois types d'expériences pour la mesure de la susceptibilité non linéaire. Tout d'abord, les expériences simples à mettre en œuvre, donnent rapidement des mesures relatives sans rechercher une très grande sensibilité : les techniques Z-scan et génération de troisième harmonique. Les expériences un peu plus lourdes à mettre en œuvre mais donnent des mesures très sensibles et quelques fois absolues : l'interférométrie, couplage pompe sonde résolu spectralement, mélange à trois ou quatre faisceaux. Et enfin l'ensemble de toutes les techniques plus marginales exploitant la déflexion d'un faisceau, l'imagerie, ... donnent de plus ou moins bons résultats.

## B. Technique pompe sonde colinéaire<sup>31</sup> : dispositif expérimental

Contrairement aux techniques classiques pompe sonde où les faisceaux sont focalisés dans l'échantillon avec un petit angle (montage Kerr, mélange à quatre ondes), la technique présentée ici impose la contrainte supplémentaire de rendre les faisceaux colinéaires dans l'échantillon. Elle apporte l'avantage de connaître parfaitement le volume d'interaction entre les faisceaux pompe et sonde dans l'échantillon. Et ceci, comme nous allons le voir, va nous permettre de réaliser, connaissant les caractéristiques de notre impulsion laser, des mesures absolues et précises de la susceptibilité non linéaire d'ordre trois. Le fait d'introduire en petit angle entre les faisceaux entraîne une totale indétermination de la zone d'interaction dans l'échantillon. Comme le montre la Figure 8, résultat d'une simulation Monte Carlo calculant le volume occupé par le croisement de deux faisceaux gaussiens, ce sont pour les petits angles que ce volume varie le plus vite.



*Figure 8 : Simulation Monte Carlo du calcul du volume occupé par le croisement de deux faisceaux gaussiens en fonction de l'angle d'inclinaison entre les deux faisceaux. C'est pour un petit angle que la variation du volume est la plus rapide.*

La configuration pompe sonde colinéaire nécessite d'avoir des faisceaux orthogonalement polarisés pour pouvoir les distinguer. Pour cela, une lame retard demi-onde est disposée à l'entrée de l'expérience pour rendre l'onde laser incidente légèrement elliptique. Un cube séparateur polarisant vient ensuite séparer le faisceau en deux ondes polarisées orthogonalement, la pompe intense étant polarisée horizontalement alors que la sonde est polarisée verticalement. Les deux faisceaux sont mélangés de manière colinéaire et focalisés dans l'échantillon. Le retard optique entre les deux impulsions est disposé sur un des faisceaux. Le faisceau pompe est ensuite rejeté à l'aide d'un polariseur de Glan pour ne pas

gérer la détection qui se fait sur l'intensité du faisceau sonde en fonction du retard entre les deux faisceaux.

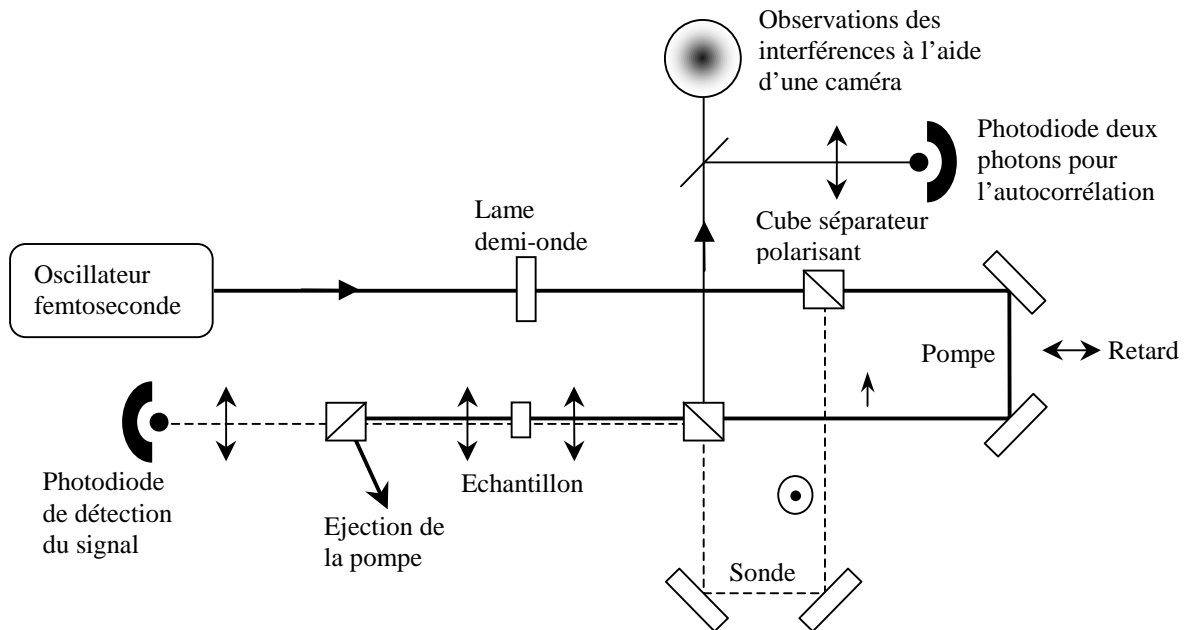


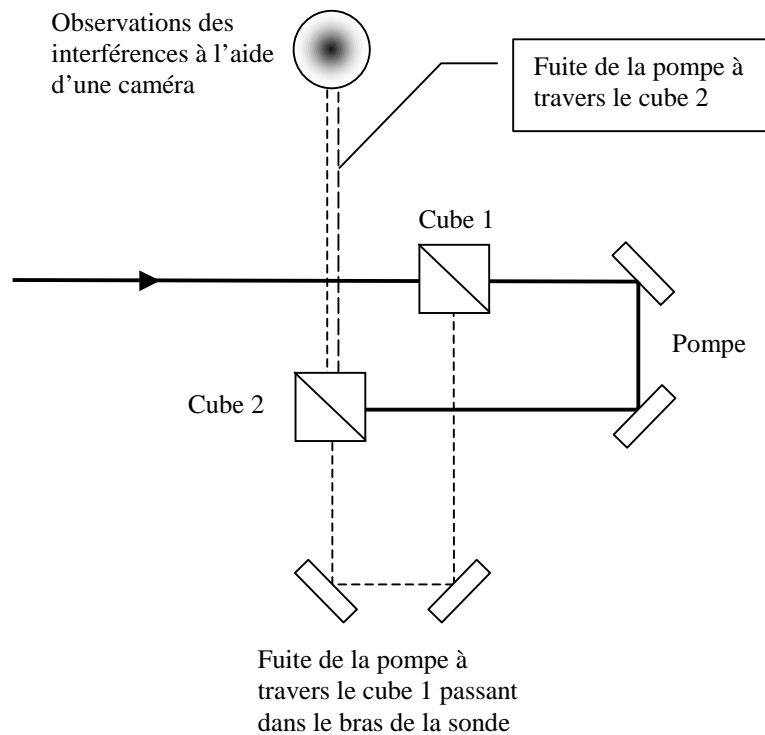
Figure 9 : Montage de la technique pompe sonde colinéaire à la longueur d'onde de 800nm.

## 1. REGLAGE DE L'EXPERIENCE.

Les cubes séparateurs polarisants sont utilisés à la longueur d'onde de 800nm. Ils ont été choisis en raison de leur faible coût par rapport à un prisme de Glan et pour leur réflexion à 90 degrés rendant les réglages optiques plus faciles qu'avec des prismes de Glan dont la réflexion est à 77 degrés. Le taux d'extinction d'un cube séparateur est un peu moins bon d'un facteur 10 à 100 mais est suffisant. Ces cubes sont constitués de deux prismes de verres en BK7 avec entre eux un traitement diélectrique qui a la particularité de réfléchir la polarisation verticale (polarisation p) et de transmettre l'autre polarisation (polarisation s).

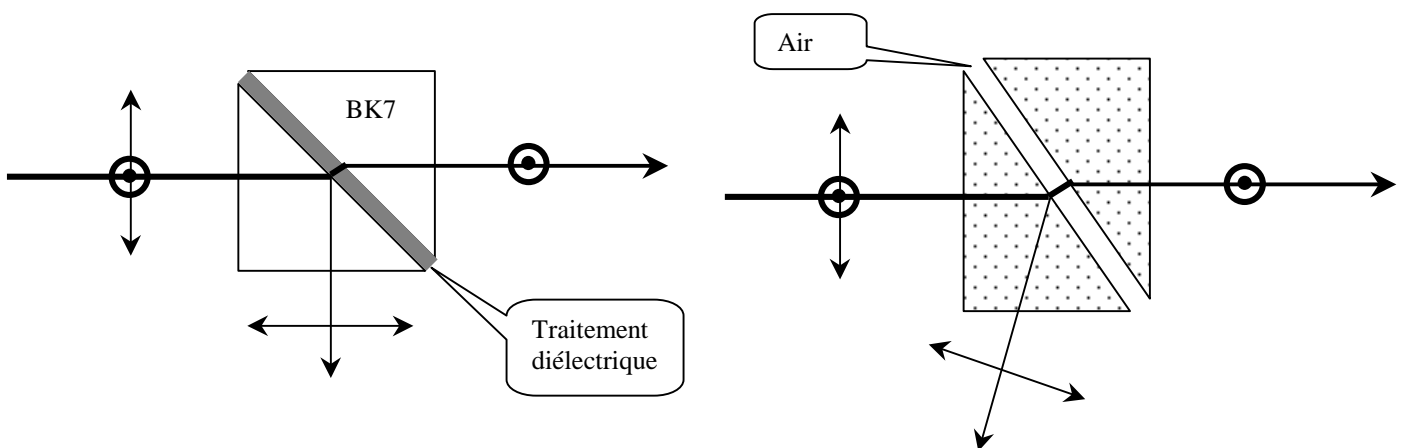
Le réglage de la colinéarité des faisceaux se fait d'une manière qui est inhérente à la conception de l'expérience. On utilise les deux fuites du faisceau pompe sur les cubes séparateurs qui ayant les mêmes polarisations et quasiment les mêmes intensités vont interférer à la sortie du deuxième cube. L'observation des interférences entre les deux impulsions à l'aide d'une caméra nous permet de régler à la fois le retard et le recouvrement des faisceaux. Cette astuce de réglage n'est plus applicable lors d'utilisation de prismes de Glan.



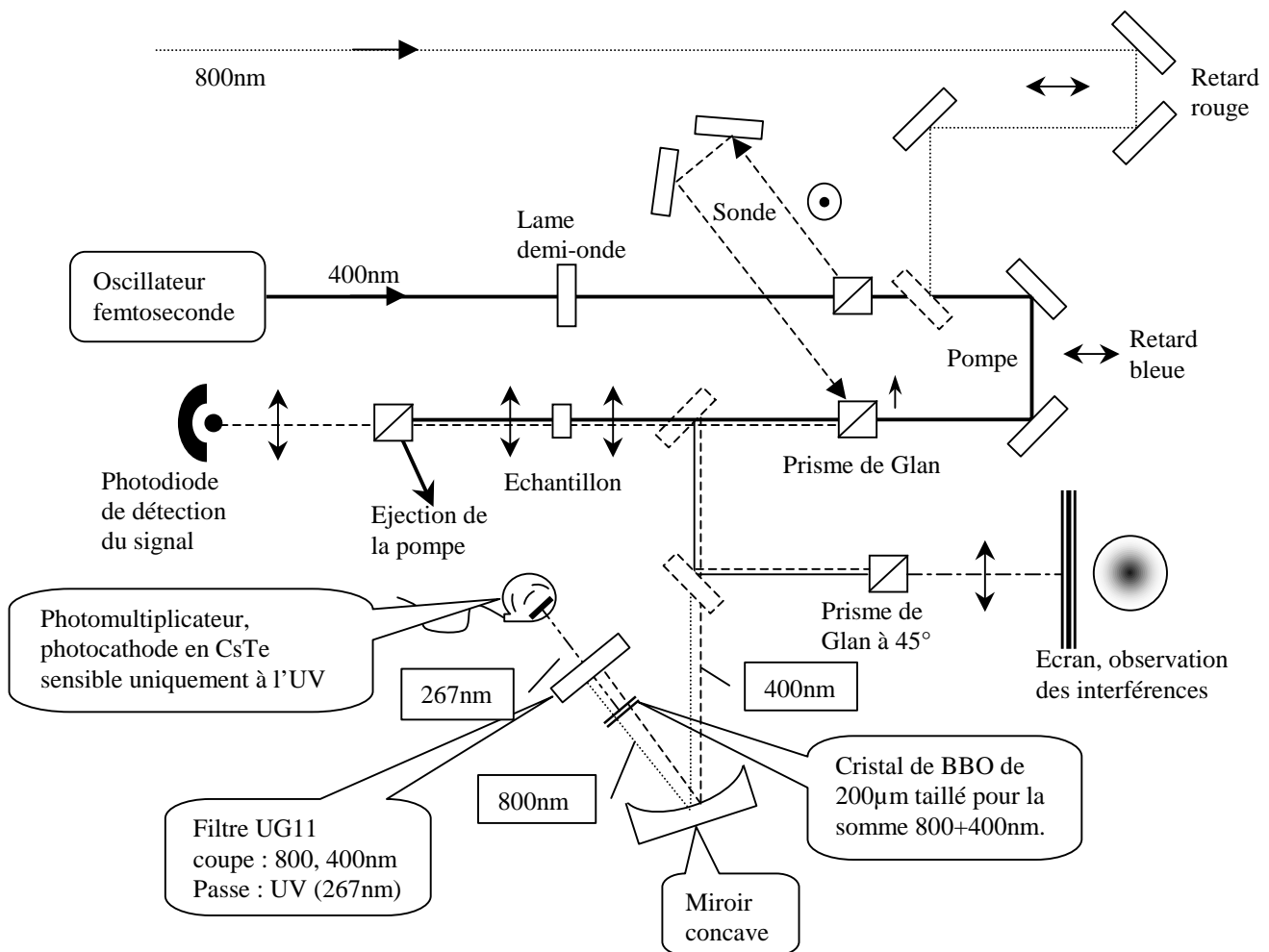


**Figure 10 :** Fuites de la pompe à travers les polariseurs permettant un réglage astucieux du recouvrement des faisceaux pompe et sonde.

Une des difficultés rencontrée au cours de l’alignement des optiques était l’autocollimation des cubes séparateurs. Le faisceau pompe doit arriver sur le cube séparateur avec un angle le plus proche possible de la normale pour avoir une impulsion bien polarisée et minimiser ainsi la fuite de la pompe à travers le polariseur d’éjection. Pour ne pas perturber le fonctionnement du laser, l’autocollimation ne doit pas être parfaite et la difficulté réside ici à trouver le bon compromis. Cela est aussi vrai pour le prisme de Glan servant à éjecter le faisceau pompe juste avant la détection et pour l’échantillon qui lui aussi doit être incliné comme nous le verrons un peu plus loin dans le chapitre.



**Figure 11 :** Principes de fonctionnement du cube séparateur de polarisation et du prisme de Glan Foucault. Théoriquement, le prisme de Glan a un pouvoir d’extinction supérieur à  $10^5$  alors que le cube séparateur a un pouvoir d’extinction de  $10^3$ .



**Figure 12 : Schéma du montage de la technique pompe sonde colinéaire à la longueur d'onde de 400nm. Les miroirs en pointillés sont amovibles pour réaliser les réglages et les expériences de caractérisation temporelle.**

Une autre difficulté étroitement liée à la précédente est la fuite de la pompe à travers le prisme de Glan. En effet, malgré le passage de la pompe à travers deux polariseurs, celui-ci peut être légèrement dépolarisé par les lentilles du système afocal ou par l'échantillon et ainsi une fuite de la pompe polarisée identiquement au sonde peut sortir du polariseur d'éjection et interférer avec l'impulsion sonde. Même si la fuite est très faible, la forte puissance du faisceau pompe et les interférences avec la sonde peuvent créer un signal hétérodyne parasite qu'il faut minimiser. C'est la raison pour laquelle un réglage minutieux des polariseurs est indispensable.

## 2. QUELQUES PARTICULARITES SUR L'EXPERIENCE A LA LONGUEUR D'ONDE DE 400NM

Les cubes séparateurs polarisants étant beaucoup moins répandus pour les courtes longueurs d'ondes, on a choisi de prendre des prismes de Glan qui fonctionnent du visible jusqu'à plus de  $2\mu\text{m}$ . Comme dans l'expérience à 800nm, le faisceau pompe traverse les polariseurs de manière à être polarisé au mieux pour minimiser les fuites de la pompe mais aussi de manière à minimiser la perte de puissance. La principale difficulté de cette expérience est le réglage du prisme de Glan de mélange. Si le faisceau pompe arrive sur ce prisme à incidence normale, le faisceau sonde doit arriver avec un angle de  $77^\circ$  avec une très petite acceptation angulaire. Le réglage se fait par retour inverse de la lumière en disposant après le

Glan un miroir et une lame biréfringente. L'éjection du faisceau retour nous indique l'angle d'incidence par lequel le faisceau sonde doit rentrer.

L'observation des interférences se fait à l'aide d'un polariseur tourné à  $45^\circ$ , pour projeter les faisceaux pompe et sonde orthogonalement polarisés sur un axe. L'observation de ces franges permet un réglage de la teinte plate. Notons que seul le faisceau pompe peut être touché, l'entrée du faisceau sonde dans le polariseur de mélange n'étant réglé qu'assez rarement. C'est aussi la raison pour laquelle il est préférable de disposer le retard sur le faisceau pompe et non sur la sonde.

La mesure de la largeur temporelle du bleu est aussi un peu plus compliquée que dans le rouge. Celle-ci est expliquée dans le chapitre II sur la caractérisation des impulsions laser. Contrairement au rouge, il n'existe pas actuellement (commerciallement) dans le bleu de détecteur à grand « band-gap » pour faire une autocorrélation directe. Même si dans les laboratoires, commencent à être développés des détecteurs à très grand « band-gap » (autour de 5eV) constitués de diamant. Soit on utilise un cristal non linéaire de doublage du bleu, soit on utilise un cristal non linéaire pour la somme du bleu avec le rouge. Disposant de plus de puissance cumulée avec un faisceau bleu et un faisceau rouge, la deuxième solution a été choisie. De plus, le cristal ne doit pas être trop épais pour ne pas élargir l'impulsion à mesurer. Nous avons choisi un cristal de BBO de  $200\mu\text{m}$  d'épaisseur. Une autocorrélation non interférométrique par sommation de fréquences permet de remonter à la largeur temporelle du bleu connaissant celle du rouge. Un filtre UG11 est utilisé après la sommation pour ne laisser passer que l'UV à 267nm. On peut faire une petite remarque concernant la recherche du retard zéro entre les faisceaux bleu et rouge. Cela consiste à déplacer le retard rouge jusqu'à obtention d'un faisceau UV après le filtre. Or pour des longueurs d'onde égales ou inférieures à 400nm, le filtre laisse passer très légèrement un peu de bleu qui nuit à la recherche du retard zéro. Pour la recherche de ce retard, il est donc préférable d'ajuster le laser à une longueur d'onde supérieur à 400nm (vers 410nm), ce qui nous donne un faisceau de 273nm environ. Une fois ce retard trouvé, une légère fuite du bleu à travers le filtre n'est pas très grave car cela n'ajoute qu'un offset au signal et le photomultiplicateur n'est quasiment pas sensible au bleu.

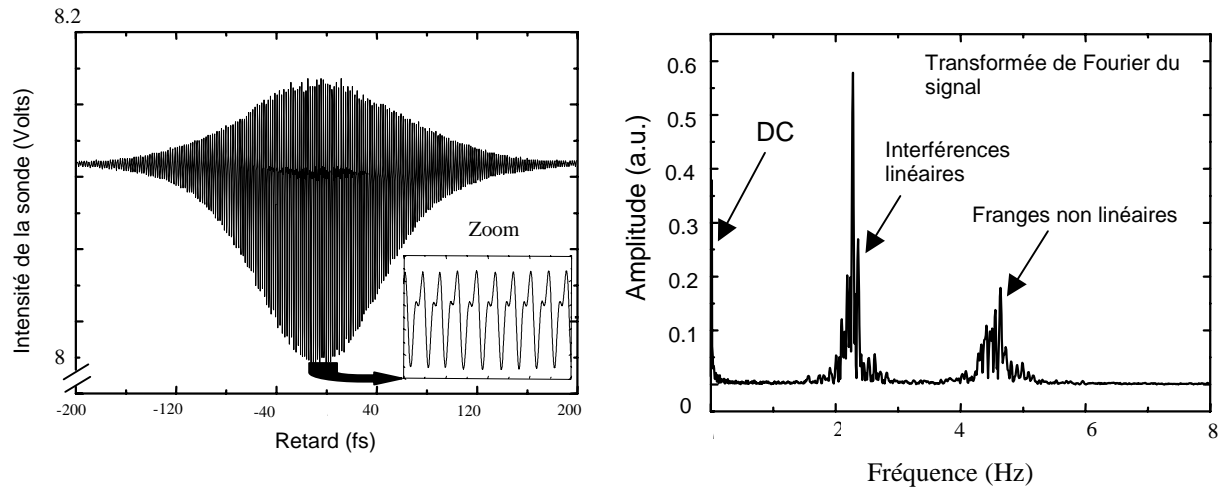
### **3. ACQUISITION DU SIGNAL**

Le signal acquis est l'intensité du faisceau sonde en fonction du retard entre les deux impulsions pompe et sonde. Afin de limiter au maximum le bruit dans la mesure, la détection du signal est faite à l'aide d'une photodiode en silicium provenant de Hamamatsu et comportant un amplificateur intégré dans son boîtier pour la transformation du courant de photoconduction en tension que l'on peut directement envoyer sur une carte d'acquisition de données. Il y a deux méthodes pour acquérir le signal, une à retard lent et l'autre à retard rapide.

#### **a. Retard lent**

Pour déplacer lentement le retard optique disposé sur le faisceau, on utilise un moteur électrique pas à pas qui parcourt la zone de cohérence entre les deux impulsions en deux minutes environ. Le signal enregistré sur la photodiode comporte des oscillations dues aux interférences entre les deux faisceaux ; des franges d'interférences classiques dues à la fuite de la pompe et des franges d'interférences dues aux propriétés non linéaires de l'échantillon que nous verrons plus tard. Avec un retard lent, la fréquence d'oscillation de ces franges d'interférences est de quelques hertz et ces franges sont très affectées par les bruits

mécaniques environnants. Dans cette configuration, on utilise alors une détection synchrone couplée à un hacheur mécanique placé sur un des bras de l'interféromètre. De façon à suivre les oscillations du signal, le temps d'intégration de la détection synchrone est réglé entre 10 à 20 ms. La Figure 12 montre un exemple de signal enregistré à l'aide de cette technique.

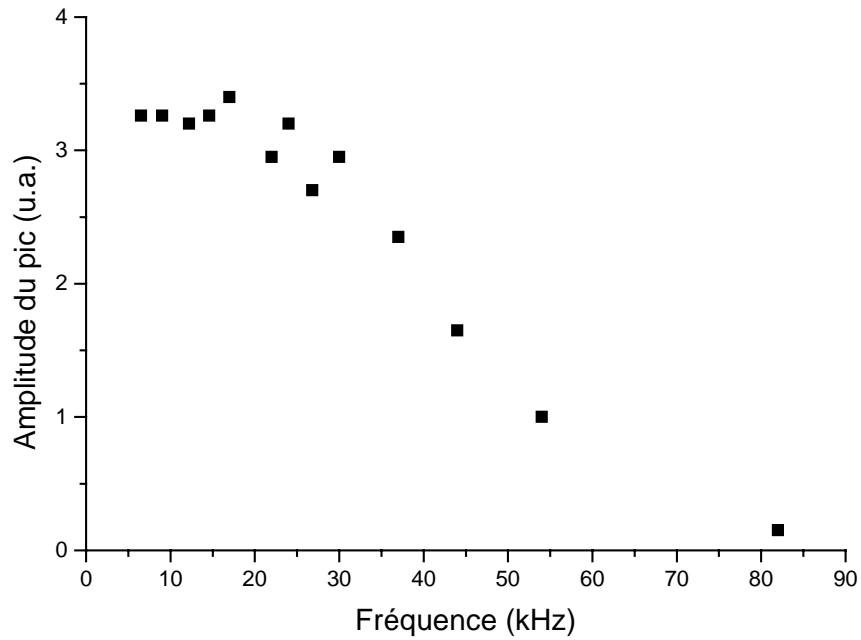


*Figure 13 : Exemple de l'acquisition d'un signal avec un retard lent sur un échantillon de silicium à la longueur d'onde de 1,5  $\mu\text{m}$ .*

L'utilisation de la détection synchrone permet d'éliminer quasiment complètement le bruit dans le signal, mais cette technique a le désavantage de ne pas être rapide. En effet, la mesure de la susceptibilité non linéaire doit se faire lorsque l'échantillon est au niveau du col du faisceau laser, c'est là que le signal non linéaire est le plus important. Donc le réglage de la position de l'échantillon ne peut se faire qu'en optimisant le signal. Pour cela le recours à un déplacement rapide du retard entre les deux faisceaux nous a paru nécessaire.

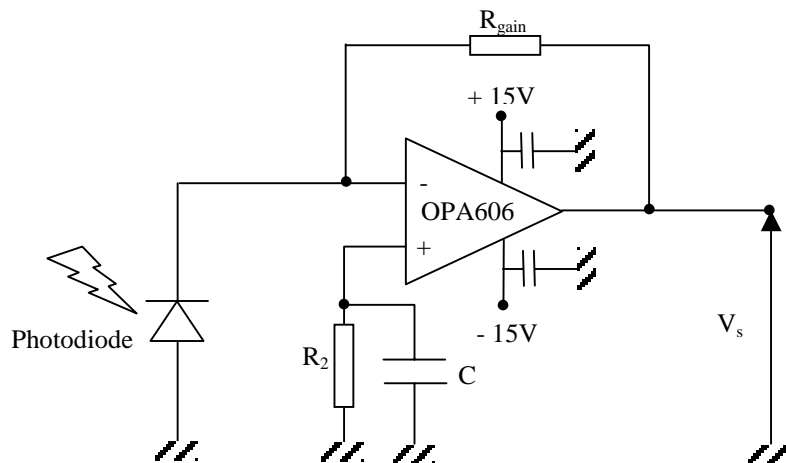
### **b. Retard rapide**

Le moteur pas à pas est remplacé par un pot vibrant oscillant à une fréquence comprise entre 5 et 10 Hertz. Dans ce cas, nous n'utilisons plus de détection synchrone. Les fréquences des franges d'interférences sont de l'ordre de quelques dizaines de kilohertz et le signal représenté par les franges non linéaires sort ainsi des bruits mécaniques dont les fréquences sont généralement inférieures au kilohertz. Cette technique a l'énorme avantage d'avoir le signal quasiment en temps réel et donc de pouvoir régler la position de l'échantillon dans le col du faisceau de manière très précise (environ 250  $\mu\text{m}$  mais cela dépend de l'épaisseur de l'échantillon).



**Figure 14 : Réponse fréquentielle d'une photodiode S1336 en silicium de chez Hamamatsu. La bande passante de cette photodiode est d'environ 25 kHz.**

Ce montage nécessite une bande passante de la détection suffisante pour l'acquisition du signal. Dans ce cas il est recommandé de polariser les photodiodes de manière à accélérer la migration des charges et en particulier le temps de recombinaison. Néanmoins, la polarisation des photodiodes entraîne inévitablement l'addition d'un bruit électronique supplémentaire du essentiellement à l'alimentation (c'est la raison pour laquelle, il est souvent fait usage de piles ou batteries). Dans notre cas, nous avons choisi de ne pas polariser nos photodiodes qui après mesure se sont révélées avoir une bande passante d'environ 30 kHz suffisante pour l'acquisition du signal.



**Figure 15 : Schéma électronique de montage des photodiodes utilisées. C'est un montage classique convertisseur courant tension avec un gain proportionnel à la résistance de gain.**

### c. Acquisition et traitement des données

Une carte d'acquisition (DT322 de Data Translation) placée dans un ordinateur permet d'acquérir les données avec un échantillonnage en amplitude de 16 bits et en temps de 250 kHz. La carte comporte 16 voies d'acquisition mais nous n'en utilisons que trois. Une voie pour le signal, une pour l'enregistrement de la puissance moyenne à l'aide d'une photodiode placée en amont du montage et une dernière voie pour l'acquisition de la largeur temporelle de l'impulsion à l'aide d'une photodiode deux photons. Un programme écrit en langage C met les données en mémoire (voir Complément III. A), résout l'équation de propagation de l'impulsion sonde comme décrit dans le prochain paragraphe et sort en temps réel les valeurs réelles et imaginaires de la susceptibilité non linéaire d'ordre trois de l'échantillon.

Les données provenant de la photodiode un photon sont au nombre de 90 échantillons dont on fait la moyenne. Un mesureur de puissance permet de calibrer la photodiode pour une longueur d'onde donnée.

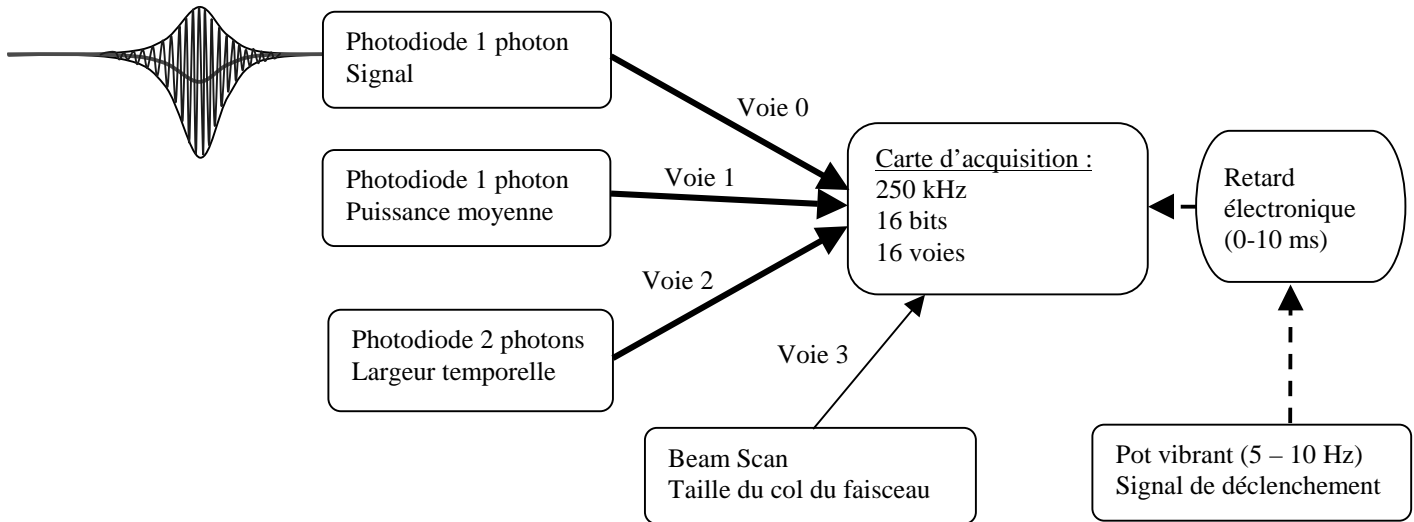
$$S_1(\lambda) = \kappa_1(\lambda) \cdot P_m. \quad (1)$$

On fait également la moyenne des données de la photodiode deux photons calibrée à l'aide d'une autocorrélation.

$$S_2(\lambda) = \kappa_2(\lambda) \cdot \frac{P_m^2}{w_0^2 \tau_0}. \quad (2)$$

Le signal provenant de la photodiode deux photons est dû à l'absorption non linéaire dans la photodiode. Ce signal proportionnel à la puissance moyenne au carré et inversement proportionnel à la largeur temporelle et à la taille du col du faisceau au carré peut varier de manière très importante. On s'est rendu compte de manière pratique que le moindre déplacement du faisceau sur le semi-conducteur ou la moindre modification spatiale de celui-ci peut grandement perturber la mesure de la largeur temporelle. Cette technique très pratique se révèle en fait souvent trop sensible aux moindres perturbations spatiales du faisceau laser et il a été choisi de garder comme mesure de la largeur temporelle la mesure de l'autocorrélation de l'impulsion juste avant les séries de mesures sachant que l'on utilise un laser très stable au cours du temps. C'est la raison pour laquelle il est possible de supprimer dans le programme l'acquisition de la voie 2 et de rentrer la largeur temporelle comme paramètre.

Le signal de nature oscillatoire possède trois composantes à mesurer : une composante continue due à l'absorption non linéaire et deux composantes oscillantes. Le but de l'analyse primaire du signal est de remonter à l'amplitude exacte des ces trois composantes. Pour cela le traitement le plus approprié est la transformée de Fourier. Néanmoins, nous savons qu'une transformée de Fourier classique donne une information erronée sur l'amplitude réelle des oscillations du signal à cause des erreurs numériques. En spectroscopie, pour connaître la fréquence des oscillations du signal et éliminer les pics secondaires, il est courant d'utiliser des fenêtres de type Blackman, Hanning, Hamming. Dans le cas qui nous intéresse, la fréquence n'a que peu d'importance, mais ce sont plutôt les amplitudes des pics de la transformée de Fourier qui doivent être fidèles aux amplitudes des oscillations. Pour cela, on utilise une fenêtre dénommée « Flattop » ou fenêtre à « toit plat ».



**Figure 16: Schéma de l'acquisition du signal et des caractéristiques du laser en quasi-temps réel (5 à 10 acquisitions par seconde)**

*α. Transformée de Fourier à « toit plat »*

Dans le cas de l'analyse de notre signal, deux types d'erreurs peuvent intervenir dans l'analyse spectrale. Tout d'abord, le signal étant inévitablement perturbé par la fuite de la pompe qui provoque des franges d'interférences classiques, la transformée de Fourier de ces oscillations donne un pic à  $\omega$  mais aussi un lobe secondaire à  $2\omega$  qui s'ajoute au signal non linéaire oscillant à cette fréquence et fausse complètement la mesure de la hauteur de ce pic. Le filtre utilisé doit éliminer le plus possible les lobes secondaires. Le deuxième problème est que la hauteur du pic à  $2\omega$  doit être égale à l'amplitude des franges non linéaires. Ceci n'est généralement pas le cas avec une transformée de Fourier classique à cause de l'échantillonnage qui n'est jamais parfait (cf. Figure 19).

La solution utilisée par des constructeurs d'analyseurs de spectres est d'utiliser une fenêtre de pondération « à toit plat ». On donne ce nom à cette fenêtre de pondération en raison de la forme aplatie que prennent les pics après filtrage. Cette fenêtre opère un filtrage numérique sur le spectre obtenu par transformée de Fourier. C'est un filtre à réponse impulsionnelle courte (quelques points seulement). Le spectre corrigé est donc le spectre brut convolué par la relation suivante :

$$\sum_{k=-\mu}^{\mu} a_k \delta(f - k) , \quad a_k = a_{-k} , \quad \mu = 4 , \quad a_1 = -0.934516 , \quad a_3 = -0.179644 \quad ( 3 )$$

$$a_0 = 1 , \quad a_2 = 0.597986 , \quad a_4 = 0.015458$$

Cette fenêtre donne une amplitude du signal très sensiblement indépendante de la fréquence de ce signal, mais la largeur à mi-hauteur du pic obtenu est 4 fois plus grande d'où une résolution en fréquence 4 fois moins bonne.

Le signal non linéaire est le plus fort au retard zéro, c'est à dire quand les impulsions pompe et sonde sont présentes en même temps dans l'échantillon. Donc, pour toujours avoir un pic dont la hauteur est égale à l'amplitude maximum des franges non linéaires, la transformée de Fourier du signal n'est effectuée qu'au centre du signal et sur seulement 512 points pour un signal en comprenant un peu plus de 9000. Le filtrage numérique permettra enfin d'obtenir un spectre dont la mesure de la hauteur des pics nous donnera l'amplitude des franges d'interférences avec une bonne précision.

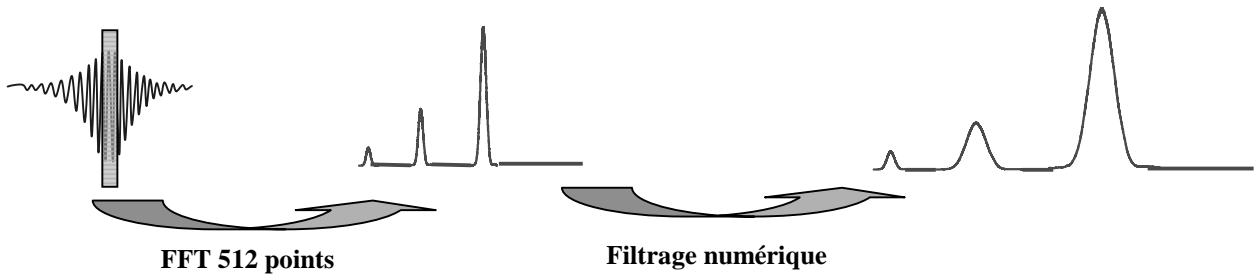


Figure 17: Schéma de l'analyse spectrale du signal.

Une autre analyse du signal est possible par filtrage temporel mais demande plus de temps de calcul. Il faut pour cela faire une transformée de Fourier classique du signal pour situer la position des pics en fréquence. Ensuite l'application d'un filtre passe haut (ou d'un filtre passe bas pour l'absorption non linéaire) permet de ne garder que les franges non linéaires dont on peut mesurer l'amplitude. Cette technique nous a permis de vérifier la validité du filtre « à toit plat ».

Le nombre de points pris pour faire l'analyse spectrale peut être modifié. Cela peut dépendre en particulier de la vitesse d'oscillation du pot vibrant, mais on doit trouver un réglage de manière à avoir dans la fenêtre d'analyse un minimum de franges pour une bonne mesure. La Figure 18 montre bien qu'en dessous d'une dizaine de franges, l'amplitude du lobe secondaire induit une erreur importante sur la hauteur du pic. En pratique, nous avons toujours travaillé avec au minimum une vingtaine de franges d'oscillations pour le pic à  $\omega$  soit une quarantaine d'oscillations pour le pic à  $2\omega$ .

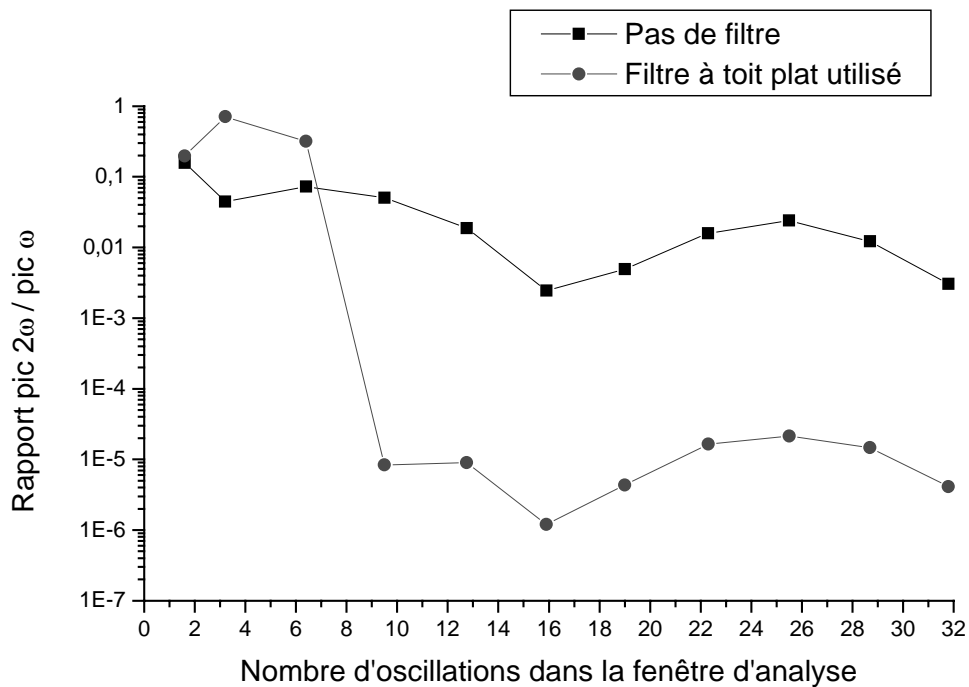


Figure 18: Evaluation théorique de l'amplitude du lobe secondaire dans le cas d'une transformée de Fourier classique et dans le cas de l'utilisation du filtre "à toit plat". La bosse observée sur la fin de la courbe est due à la phase du point d'arrêt dans la fenêtre d'analyse sachant que celle-ci est mise à zéro pour le point de départ.



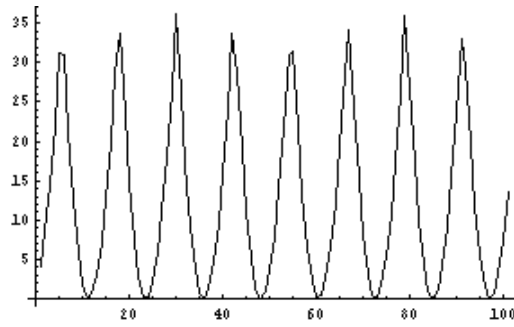


Figure 19 : Evolution de l'amplitude du pic en pourcentage par rapport à la fréquence d'oscillation des franges dans le cas d'une transformée de Fourier rapide sans application de fenêtre. L'utilisation de la fenêtre à toit plat élimine complètement ces oscillations et l'amplitude du pic est fidèle à l'amplitude des oscillations et cela quelle que soit la fréquence d'oscillation des franges (à condition qu'il y ait un minimum).

#### 4. EFFET DE L'AUTOCOLLIMATION DE L'ÉCHANTILLON SUR LE SIGNAL NON LINEAIRE

Problème découvert en raison de modifications de valeurs de non linéarité sur le même échantillon au cours de plusieurs mesures, nous avons étudié l'influence de l'inclinaison de l'échantillon par rapport à l'axe du faisceau laser incident. Nous nous sommes rendu compte que proche de l'autocollimation, l'amplitude des franges non linéaires était plus importante pour des caractéristiques du faisceau laser identiques. Il s'est même avéré qu'à l'autocollimation de l'échantillon et donc en régime continu du laser, nous avons toujours des franges à  $2\omega_0$  que nous ne pouvons plus appeler franges non linéaires. Ce phénomène, même si l'on pense qu'il est dû à un couplage avec l'oscillateur laser, n'a pas été encore compris. Quoi qu'il en soit, comme le montre la Figure 20, lorsque l'inclinaison de l'échantillon est supérieure à un degré, ces franges indésirables disparaissent. Bien entendu, cette inclinaison est bien trop faible pour tenir compte d'une modification de l'épaisseur d'échantillon traversée ou du coefficient de Fresnel sur la transmission de l'intensité de la pompe. Il est à noter que c'est grâce à l'acquisition quasi-temps réel du signal que nous avons pu mettre en valeur cet effet tout à fait inattendu.

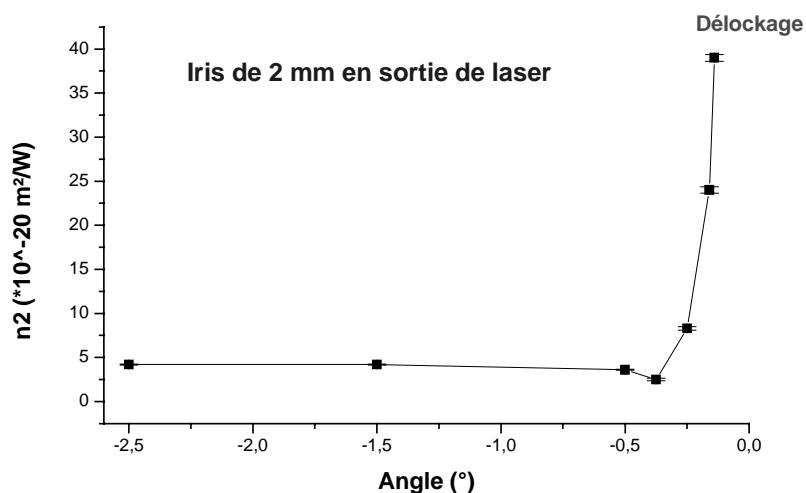
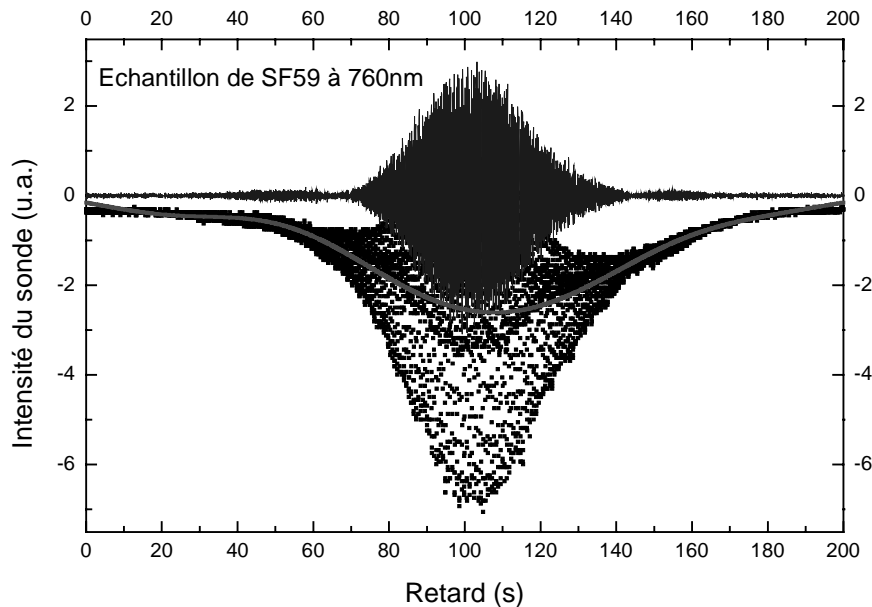


Figure 20 : Evolution de l'indice non linéaire d'un échantillon de silice fondue en fonction de l'angle d'inclinaison de l'échantillon par rapport à l'axe du faisceau laser incident. Proche de l'autocollimation, le retour du faisceau dans l'oscillateur arrête son régime impulsif ("délockage").

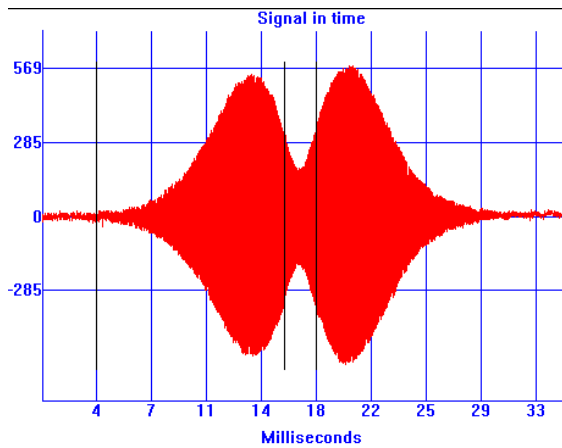
## 5. QUELQUES EXEMPLES DE SIGNAUX EXPERIMENTAUX

Deux exemples de signaux sont présentés : le premier est un signal classique obtenu sur un échantillon de SF59. On distingue bien sur ce signal, les deux composantes du signal non linéaire obtenues par filtrage temporel ; les franges non linéaires et l'absorption non linéaire ou l'absorption à deux photons.

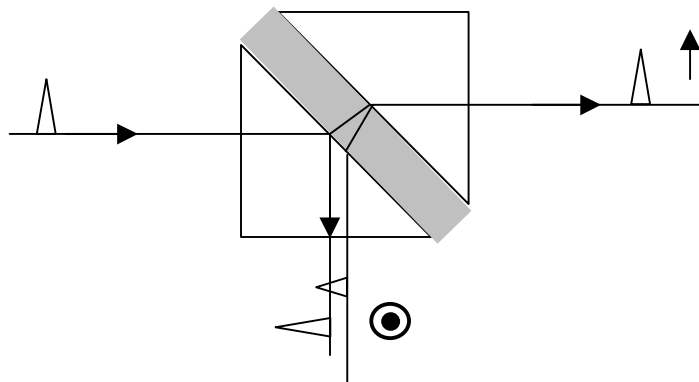


*Figure 21 : Signal expérimental sur un échantillon de SF59 à la longueur d'onde de 760nm. Le signal complet est représenté par des points, les franges non linéaires sont en trait continu et l'absorption non linéaire est en gros trait.*

Plus original est le signal obtenu en baissant au minimum la puissance du faisceau sonde à l'aide de la lame demi-onde. Ce signal peut être obtenu avec ou sans échantillon, il n'est pas dû à un effet non linéaire. On observe deux bosses au lieu d'une habituellement. Cet effet est dû à une réflexion multiple dans le cube séparateur de polarisation. Le faisceau sonde est alors composé de deux pulses séparés d'une distance d'environ  $30\mu\text{m}$  ce qui cause ces deux bosses. Ces franges linéaires sont causées par la fuite de pompe à travers le prisme de Glan. Pour une faible puissance de la sonde, le signal hétérodyne provenant des interférences entre chacune des deux petites impulsions sondes et la fuite de la pompe donne deux bosses d'égale amplitude. Une légère augmentation de la puissance de la sonde fait accroître très rapidement une bosse par rapport à l'autre jusqu'à ce qu'elles ne forment plus qu'une bosse.



*Figure 22 : Signal obtenu sans échantillon. Les franges sont uniquement dues à la fuite de la pompe. La puissance du faisceau pompe est réglée au minimum à l'aide de la lame demi-onde.*



*Figure 23 : Schéma d'un cube séparateur polarisant. Explication des deux bosses.*

La visualisation de la deuxième réflexion n'a été possible qu'en diminuant fortement la l'intensité du faisceau sonde. On peut noter sur la réflexion du cube qu'il y a aussi une fuite du faisceau pompe polarisé orthogonalement par rapport à la sonde. Les deux faisceaux traversant ensuite un polariseur de Glan, il est impossible à cette fuite d'interférer avec le faisceau pompe à cause de la différence de vitesse de groupe dans le Glan.

## C. Analyse théorique du signal expérimental

L'analyse théorique du signal peut être faite de plusieurs manières. Elle consiste à résoudre l'équation de propagation de l'impulsion sonde dans l'échantillon en présence de l'impulsion pompe (uniquement présente dans le terme source de l'équation, la polarisation non linéaire). On fait l'approximation que l'impulsion pompe n'est pas modifiée au cours de sa propagation dans l'échantillon. Cela suppose que l'impulsion pompe n'est pas subi d'automodulation de phase pertinente ce qui est généralement le cas avec les puissances crêtes et les matériaux avec lesquels on travaille. Comme nous l'avons vu dans le premier chapitre cette équation de propagation s'écrit de manière générale :

$$\Delta_{\perp} A(r, t) - 2ik(\omega_0) \left( \frac{\partial A(r, t)}{\partial z} + \left( \frac{dk}{d\omega} \right)_{\omega_0} \frac{\partial A(r, t)}{\partial t} \right) - \left( k(\omega_0) \left( \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right)_{\omega_0} + \left( \frac{dk}{d\omega} \right)_{\omega_0}^2 \right) \frac{\partial^2 A(r, t)}{\partial t^2} - i \left( \frac{k(\omega_0)}{3} \left( \frac{d^3 k}{d\omega^3} \right)_{\omega_0} + \left( \frac{dk}{d\omega} \right)_{\omega_0} \left( \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right)_{\omega_0} \right) \frac{\partial^3 A(r, t)}{\partial t^3} + \dots = \mu_0 \left( 2i\omega_0 \frac{\partial p_{nl}^{(3)}(r, t)}{\partial t} - \omega_0^2 p_{nl}^{(3)}(r, t) \right) \quad (4)$$

équation dans laquelle l'approximation de l'enveloppe lentement variable a été effectuée et seule la composante à  $\omega_0$  a été prise en compte. Il reste ici à calculer l'expression de la polarisation non linéaire.

### 1. CALCUL DE LA POLARISATION NON LINEAIRE

Dans le cadre des approximations explicitées dans le premier chapitre, la polarisation non linéaire à l'ordre trois s'écrit en choisissant arbitrairement l'axe  $x$  comme étant la direction du faisceau sonde et l'axe  $y$  la direction du faisceau pompe.

$$\mathbf{P}_x^{(3)}(\mathbf{r}, t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} R_{xjkl}(t - \tau_1, t - \tau_2, t - \tau_3) E_j(\mathbf{r}, \tau_1) E_k(\mathbf{r}, \tau_2) E_l(\mathbf{r}, \tau_3) d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3 \quad (5)$$

où les indices  $j, k, l$  peuvent prendre les valeurs  $x$  ou  $y$ . Dans les milieux isotropes, les éléments du tenseur de susceptibilité sont tous nuls sauf les composantes  $R_{xyxy}, R_{xyyx}, R_{xyyy}$  et  $R_{xxxx}$  qui sont linéairement dépendantes suivant la relation :  $R_{xyxy} = R_{xyyx} = R_{xyyy} = \frac{1}{3} R_{xxxx}$ . Ayant négligé l'automodulation de phase de l'impulsion pompe, celle de l'impulsion sonde peut aussi être négligée et ainsi le terme en  $R_{xxxx}$ . La polarisation non linéaire s'écrit alors :

$$\mathbf{P}_x^{(3)}(\mathbf{r}, t) = 3\epsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} R_{xyxy}(t - \tau_1, t - \tau_2, t - \tau_3) E_y(\mathbf{r}, \tau_1) E_x(\mathbf{r}, \tau_2) E_y(\mathbf{r}, \tau_3) d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3. \quad (6)$$

En introduisant dans cette équation les expressions complexes du champ et de la polarisation non linéaire :

$$E(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \left[ A(r, t) e^{i(\omega_0 t - k(\omega_0)z)} + \bar{A}(r, t) e^{-i(\omega_0 t - k(\omega_0)z)} \right] \quad (7)$$

$$P_{NL}^{(3)}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \left[ p_{nl}(r, t) e^{i(\omega_0 t - k(\omega_0)z)} + \bar{p}_{nl}(r, t) e^{-i(\omega_0 t - k(\omega_0)z)} \right] \quad (8)$$

où  $u$  est le retard entre la pompe et la sonde, la polarisation non linéaire s'écrit finalement :

$$p_x^{(3)}(z,t) = \frac{3\epsilon_0 \chi^{(3)}}{4} \left[ 2A_s(z,t) |A_p(z,t-u)|^2 + \bar{A}_s(z,t) A_p^2(z,t-u) \exp(-2i\omega_0 u) \right] \quad (9)$$

## 2. EXPRESSION DU SIGNAL ANALYTIQUE, OBTENTION DE LA SUSCEPTIBILITE NON LINEAIRE DU TROISIEME ORDRE

La résolution de l'équation se fait par développement perturbatif (cf. complément III.1.) par rapport aux variables de perturbation proportionnelles à la susceptibilité non linéaire. L'intensité du faisceau s'exprime en fonction du retard pompe sonde  $u$  comme :

$$I_s \propto I_s^0 \left\{ 1 - \frac{3k_0^2}{4\sqrt{2}} \frac{P_m T}{c\epsilon_0} G(u) \left[ 2\beta + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \sin(2\omega_0 u - \phi) \right] F(w_0, k_0, l) \right\} \quad (10)$$

où  $G(u) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} s(t)s(t-u)dt}{\left( \int_{-\infty}^{+\infty} s(t)dt \right)^2}$  exprime la dépendance temporelle du signal en fonction du retard

pompe sonde  $u$ . La susceptibilité non linéaire d'ordre trois s'écrit :  $\chi_{xxx}^{(3)} = \alpha - i\beta$ .

$F(w_0, k_0, l) = \arctan \left[ \frac{l}{k_0 n_0 w_0^2} \right]$  est la fonction spatiale qui dépend de la longueur de l'échantillon  $l$ , de la taille du col du faisceau  $w_0$ , du vecteur d'onde  $k_0$  et de l'indice de réfraction linéaire  $n_0$ .  $\phi = \arctan \left( -\frac{\beta}{\alpha} \right)$  est la phase des franges non linéaires ne dépendant uniquement que de la susceptibilité non linéaire.

A partir de l'expression de l'intensité du faisceau sonde, on peut tirer deux quantités sans dimension correspondant respectivement à l'amplitude des franges non linéaires et à l'amplitude de l'absorption non linéaire.

$$v_1 = \frac{3k_0^2}{4\sqrt{2}} \frac{P_m T}{c\epsilon_0} G(u=0) \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} F(w_0, k_0, l), \quad (11)$$

$$v_2 = \frac{3k_0^2}{2\sqrt{2}} \frac{P_m T}{c\epsilon_0} G(u=0) \beta F(w_0, k_0, l). \quad (12)$$

Connaissant les paramètres du laser et de l'échantillon, les mesures des variations de l'intensité du faisceau sonde  $v_1$  et  $v_2$  nous donnent directement les valeurs réelle et imaginaire de la susceptibilité non linéaire.

## 3. CALCULS D'INCERTITUDES

Les mesures de susceptibilité non linéaire d'ordre trois peuvent se faire soit de manière relative par rapport à un échantillon de référence, soit de manière absolue. On peut être amené à calculer deux types d'incertitudes. Ces incertitudes dépendent de trois types d'erreurs de mesure :

- Les erreurs absolues dépendant de la calibration de l'appareil de mesure. Par exemple, le mesureur de puissance fait des mesures à 3% près dans des conditions d'utilisation parfaite (température stable). Ces erreurs ont un module et un signe constant et elles ne peuvent être diminuées en effectuant une moyenne sur plusieurs mesures.

- Les erreurs de mesures, quant à elles peuvent être diminuées par multiplication du nombre de mesures et moyenne. On augmente ainsi par la même occasion le rapport signal sur bruit.
- Les erreurs de réglages dues à d'éventuels mauvais alignements des faisceaux dans l'expérience.

Le module de la susceptibilité non linéaire s'écrivant :  $|\chi^{(3)}| = \sqrt{\alpha^2 + \beta^2}$ , on peut calculer les incertitudes sur cette valeur à partir des équations donnant l'amplitude des franges non linéaires. Ainsi, dans le cas d'une mesure relative, l'incertitude sur la susceptibilité non linéaire s'écrit :

$$\left( \frac{\Delta|\chi^{(3)}|}{|\chi^{(3)}|} \right)_{Relative} = \frac{\Delta v_1}{v_1} + \frac{1}{k_0 n_0 w_0^2 \left( 1 + \frac{l^2}{k_0^2 n_0^2 w_0^4} \right) \text{Arc tan} \left( \frac{l}{k_0 n_0 w_0^2} \right)} \left( \Delta l + 2l \frac{\Delta w_0}{w_0} + l \frac{\Delta n_0}{n_0} \right). \quad (13)$$

Dans le cas d'une mesure absolue, les erreurs commises sur les mesures de la puissance moyenne, du taux de répétition, de la longueur d'onde du laser et sur la forme temporelle de l'impulsion doivent être ajoutées ce qui donne :

$$\left( \frac{\Delta|\chi^{(3)}|}{|\chi^{(3)}|} \right)_{Absolue} = \frac{\Delta v_1}{v_1} + \frac{\Delta T}{T} + \frac{\Delta P_m}{P_m} + \frac{\Delta G}{G} + 2 \left| \frac{1}{\lambda_0} - \frac{n_0 l \pi w_0^2}{(4n_0^2 \pi^2 w_0^4 + l^2 \lambda_0^2) \text{Arc tan} \left( \frac{l \lambda_0}{2n_0 \pi w_0^2} \right)} \right| \Delta \lambda_0 + \frac{1}{k_0 n_0 w_0^2 \left( 1 + \frac{l^2}{k_0^2 n_0^2 w_0^4} \right) \text{Arc tan} \left( \frac{l}{k_0 n_0 w_0^2} \right)} \left( \Delta l + 2l \frac{\Delta w_0}{w_0} + l \frac{\Delta n_0}{n_0} \right) \quad (14)$$

Dans le cadre de l'utilisation de la fonction  $G$  définissant la forme temporelle de l'impulsion, il n'apparaît pas dans le calcul d'incertitude d'erreur commise sur la largeur temporelle de l'impulsion. En effet, si celle-ci varie, alors la puissance moyenne varie de la même façon pour une valeur constante de la fonction  $G$ . Si l'on ne connaît pas la valeur de la fonction  $G$  que l'on peut déduire d'un signal non linéaire dans une photodiode deux photons, alors les expressions doivent s'exprimer en fonction de la puissance crête puis de la largeur temporelle :

$$v_1 = \frac{3k_0^2}{2\sqrt{2}} \frac{P_c}{\pi c \epsilon_0} \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} F(w_0, k_0, l) = \frac{3k_0^2}{2\sqrt{2}} \frac{P_m T}{\pi c \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} s^2(t) dt} \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} F(w_0, k_0, l) \quad (15)$$

$$= \frac{3k_0^2}{2} \frac{P_m T}{\pi \sqrt{\pi c \epsilon_0} \tau_0} \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} F(w_0, k_0, l)$$

$$v_2 = \frac{3k_0^2}{4} \frac{P_m T}{\pi \sqrt{\pi c \epsilon_0} \tau_0} \beta F(w_0, k_0, l). \quad (16)$$

L'incertitude absolue peut alors se calculer de la manière suivante :

$$\left( \frac{|\Delta \chi^{(3)}|}{|\chi^{(3)}|} \right)_{Absolue} = \frac{\Delta v_1}{v_1} + \frac{\Delta T}{T} + \frac{\Delta P_m}{P_m} + \frac{\Delta \tau_0}{\tau_0} + 2 \left| \frac{1}{\lambda_0} - \frac{n_0 l \pi w_0^2}{(4n_0^2 \pi^2 w_0^4 + l^2 \lambda_0^2) \text{Arc tan} \left( \frac{l \lambda_0}{2n_0 \pi w_0^2} \right)} \right| \Delta \lambda_0$$

$$+ \frac{1}{k_0 n_0 w_0^2 \left( 1 + \frac{l^2}{k_0^2 n_0^2 w_0^4} \right) \text{Arc tan} \left( \frac{l}{k_0 n_0 w_0^2} \right)} \left( \Delta l + 2l \frac{\Delta w_0}{w_0} + l \frac{\Delta n_0}{n_0} \right)$$

( 17 )

Le tableau suivant montre les plages de variation des incertitudes relative et absolue qui dépendent énormément de la qualité optique de l'échantillon et de la longueur d'onde du laser (rouge ou bleu).

| <i>Incertitudes</i>                     | <i>Mesure relative</i> | <i>Incertitude relative (%)</i>         | <i>Mesure absolue</i> | <i>Incertitude absolue (%)</i>           |
|---|------------------------|---|-----------------------|--|
| <b>Puissance moyenne</b>                | Non                    | 0%                                      | Oui                   | 3 – 5%                                   |
| <b>Longueur d'onde</b>                  | Oui                    | < 0,1%                                  | Oui                   | < 0,1%                                   |
| <b>Taux de répétition du laser</b>      | Non                    | 0%                                      | Oui                   | < 0,1%                                   |
| <b>Taille du col du faisceau</b>        | Oui                    | 2 – 3%<br>3 – 4% (bleu)                 | Oui                   | 2 – 3%<br>3 – 4% (bleu)                  |
| <b>Largeur temporelle</b>               | Non                    | 0%                                      | Oui                   | 2 – 4%<br>4 – 10% (bleu)                 |
| <b>Amplitude des franges NL</b>         | Oui                    | 0,1 – 10%                               | Oui                   | 0,1 – 10%                                |
| <b>Longueur de l'échantillon</b>        | Oui                    | 0,1 – 1%                                | Oui                   | 0,1 – 1%                                 |
| <b>Indice linéaire de l'échantillon</b> | Oui                    | 0,1 – 2%                                | Oui                   | 0,1 – 2%                                 |
| <b><i>Incertitude totale</i></b>        | -                      | <b>2 – 16%</b><br><b>3 – 17% (bleu)</b> | -                     | <b>7 – 25%</b><br><b>10 – 36% (bleu)</b> |

#### D. Applications de l'expérience pompe sonde colinéaire à la caractérisation non linéaire en surface

Quel est l'effet de la polarisation non linéaire de la surface de l'échantillon sur le signal ? Une expérience assez simple consistant à déplacer l'échantillon autour du col du faisceau et de regarder l'amplitude des franges non linéaires nous montre que dans notre cas (cf. Figure 24), les interfaces verre air ne jouent pas de rôle important dans la mesure du  $\chi^{(3)}$  volumique. En effet, la polarisation est une quantité proportionnelle au nombre d'entités hyperpolarisables dans le matériau. Or il y a 5 à 6 ordres de grandeurs entre le nombre d'entités d'une surface excitée par un faisceau laser focalisé et celui d'un volume délimité par le même faisceau dans un échantillon de quelques millimètres. Néanmoins il nous a paru

intéressant d'étudier les propriétés non linéaires aux interfaces à l'aide de la technique pompe sonde colinéaire qui est très sensible.

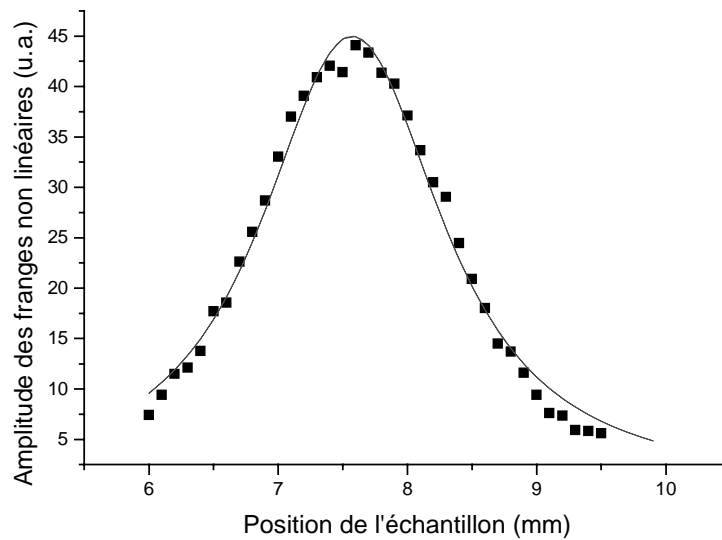


Figure 24 : Amplitude des franges non linéaires en fonction de la position d'un échantillon de CaPb à la longueur d'onde de 400nm.

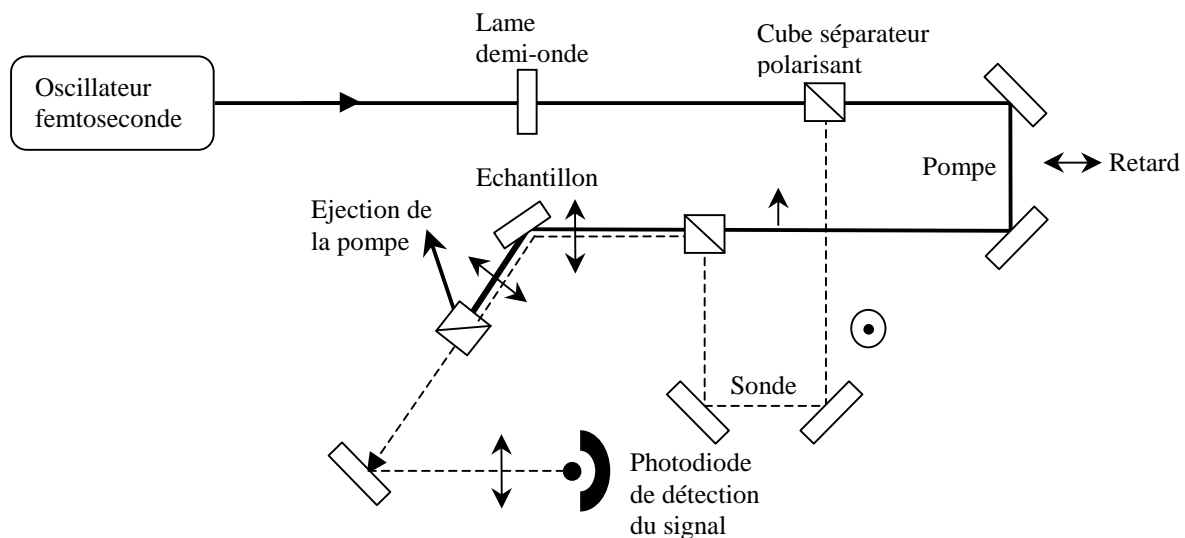


Figure 25 : Technique pompe sonde colinéaire en réflexion pour l'étude de la non linéarité de surface.

### 1. L'EXPERIENCE POMPE SONDE COLINEAIRE EN REFLEXION

L'expérience présentée ici ne diffère pas beaucoup de la technique présentée précédemment. De manière à minimiser les fuites de la pompe dans la détection, l'échantillon est placé à l'angle de Brewster pour l'incidence et la polarisation du faisceau pompe. Ainsi il s'est avéré souvent inutile de placer avant la détection un prisme de Glan pour éliminer le faisceau pompe déjà très fortement atténué. Néanmoins, un réglage minutieux de la planéité des faisceaux et de l'angle de Brewster est indispensable afin d'obtenir un signal sans trop de fuite de la pompe. L'expérience qui s'est avérée très délicate à mettre en œuvre nous a permis d'observer trois fois un signal non linéaire à la surface de l'échantillon de tellure. En effet l'amplitude du signal obtenu est 10 fois plus faible que sur la silice. Un calcul naïf de la non



linéarité de surface en prenant en compte l'indice non linéaire trouvé dans le volume et en supposant que l'onde réfléchie ait une profondeur de pénétration dans le matériau de l'ordre de la longueur d'onde donne une non linéarité de surface environ 20 fois plus forte que celle de volume.

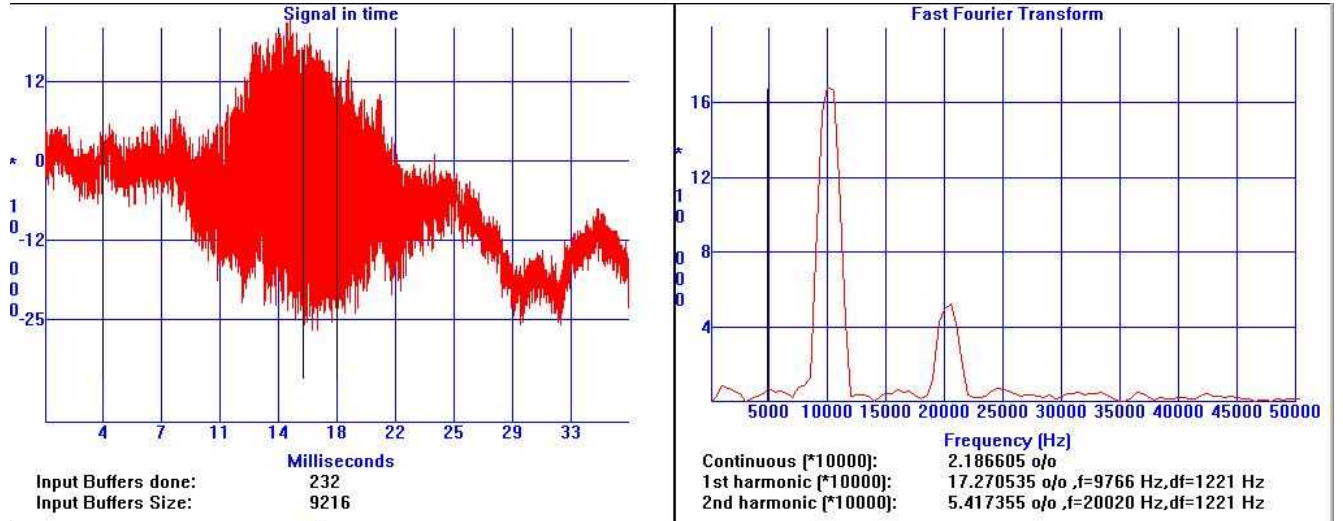


Figure 26 : Signal pompe sonde en réflexion sur un échantillon de tellure. Le bruit important sur le signal ne nous a pas permis de sortir la forme caractéristique de ce type de signal.

## 2. CALCUL SIMPLIFIÉ DU SIGNAL EN RÉFLEXION

Comme suggéré dans l'article de Martinelli<sup>32</sup>, la focalisation d'un faisceau laser intense sur la surface d'un échantillon modifie son indice de réfraction et donc d'après les expressions de Fresnel, le coefficient de réflexion de celui-ci va s'en trouver aussi modifié de la façon suivante :

$$R = \frac{\cos \theta - \sqrt{(\epsilon + \epsilon_{nl}) - \sin^2 \theta}}{\cos \theta + \sqrt{(\epsilon + \epsilon_{nl}) - \sin^2 \theta}}, \quad (18)$$

où l'on exprime la permittivité électrique comme étant la somme de la permittivité linéaire et de la permittivité non linéaire que l'on notera  $\epsilon_{nl}$ . La permittivité non linéaire étant proportionnelle à la susceptibilité non linéaire, celle-ci est également un tenseur. Donc, dans cette expérience, seuls les éléments non diagonaux du tenseur de permittivité vont jouer un rôle dans le signal. Bien entendu, la formulation du coefficient de Fresnel ci-dessus ne peut être écrite que dans le cas du faisceau sonde suivant la polarisation verticale. Un développement en série au premier ordre autour de cette variable nous donne le coefficient de réflexion suivant :

$$R = \frac{\cos \theta - \sqrt{\epsilon - \sin^2 \theta}}{\cos \theta + \sqrt{\epsilon - \sin^2 \theta}} + \left( -\frac{\cos \theta}{\sqrt{\epsilon - \sin^2 \theta} (\cos \theta + \sqrt{\epsilon - \sin^2 \theta})^2} \right) \epsilon_{ijkl}^{nl} + \dots \quad (19)$$

En reprenant l'expression de la polarisation non linéaire (Eq. 9), on peut écrire la polarisation sachant que la sommation de tous les termes non diagonaux de la polarisation non linéaire donne un terme proportionnel au terme diagonal par les relations de Kleimann :

$$p_x^{(3)}(r, z, t) = \epsilon_0 \epsilon_{xxx}^{nl} A_s(r, z, t) \quad (20)$$

avec

$$\varepsilon_{xxxx}^{nl} = \frac{3\chi_{xxxx}^{(3)}}{4} [2 + e^{-2i\omega_0 u}] I_p(r, z, t). \quad (21)$$

Les faisceaux ne se propageant pas dans l'échantillon, on peut négliger la phase du champ pompe et introduire directement l'intensité de l'onde pompe dans l'expression de la permittivité électrique non linéaire. Ainsi pour un champ sonde incident  $E_s$ , le champ réfléchi  $E_r$  s'écrit dans le repère tournant :

$$E_r(r, z, t) = \left[ \frac{\cos\theta - \sqrt{\varepsilon - \sin^2\theta}}{\cos\theta + \sqrt{\varepsilon - \sin^2\theta}} + \left( -\frac{\cos\theta}{\sqrt{\varepsilon - \sin^2\theta} (\cos\theta + \sqrt{\varepsilon - \sin^2\theta})^2} \right) \varepsilon_{xxxx}^{nl} \right] E_s(r, z, t) \quad (22)$$

On calcule l'intensité du champ réfléchi de la manière suivante :

$$I_r(r, z, t) = E_r(r, z, t) \overline{E_r(r, z, t)} \quad (23)$$

en posant ( $\alpha$  et  $\beta$  étant les parties réelle et imaginaire de la susceptibilité non linéaire) :

$$(\alpha - i\beta)(2 + e^{-2i\omega_0 u}) = [2\alpha + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \cos(2\omega_0 u - \phi)] - i[2\beta + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \sin(2\omega_0 u - \phi)] \quad (24)$$

L'intensité devient :

$$I_r(r, z, t) = \frac{16(-1 + \varepsilon)^2}{(2\cos\theta + \sqrt{2}\sqrt{-1 + 2\varepsilon + \cos(2\theta)})^4} E_s^2(r, z, t) + \frac{3(-1 + \varepsilon)\cos^2\theta}{\sqrt{2}\sqrt{-1 + 2\varepsilon + \cos(2\theta)}(\cos\theta + \sqrt{\varepsilon - \sin^2\theta})^4} [2\alpha + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \cos(2\omega_0 u - \phi)] E_s^2(r, z, t) I_p(r, z, t) \quad (25)$$

où le premier terme représente la variation linéaire classique de l'intensité d'un faisceau réfléchi sur un matériau décrit par les formules de Fresnel. En introduisant dans les expressions la nature gaussienne des impulsions :

$$I_p(r, z, t) = \frac{\rho_p^2}{w^2(z)} \exp\left(-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right) s^2(t - u) \quad (26)$$

$$E_s(r, z, t) = \frac{\rho_s}{w(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{w^2(z)}\right) s(t) \quad (27)$$

On en déduit finalement l'intensité réfléchie :

$$I_r \propto I_s \left\{ 1 + J(\theta, \varepsilon) G(u) \frac{P_m T}{c \varepsilon_0} [2\alpha + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \cos(2\omega_0 u - \phi)] \right\} \quad (28)$$

avec

$$J(\theta, \varepsilon) = \frac{3\cos^2\theta}{\sqrt{2}(\varepsilon - 1)w_0^2\sqrt{-1 + 2\varepsilon + \cos(2\theta)}} \quad \text{et} \quad G(u) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} s^2(t) s^2(t - u) dt}{\left( \int_{-\infty}^{+\infty} s^2(t) dt \right)^2}. \quad (29)$$

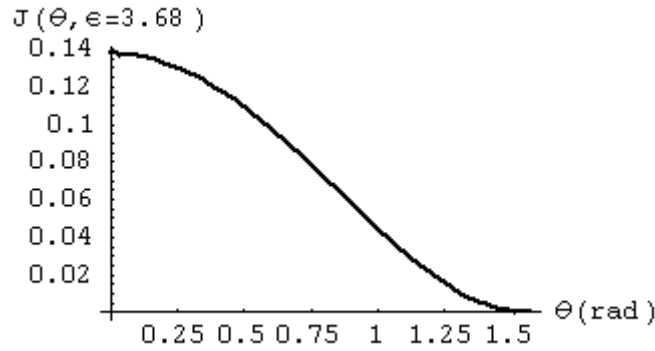


Figure 27 : Evolution de l'amplitude du signal non linéaire en fonction de l'angle d'incidence du faisceau sonde sur l'échantillon.

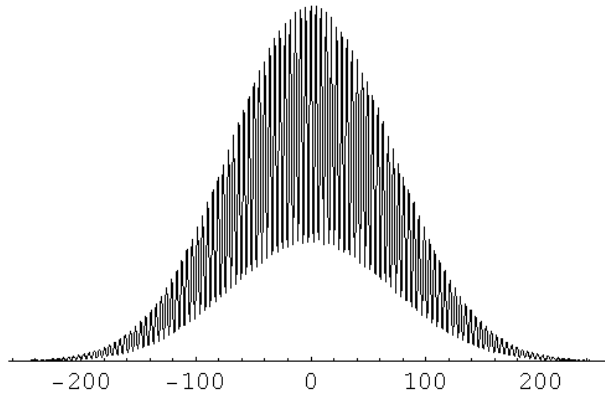


Figure 28 : Graphe théorique de la variation de l'intensité du faisceau sonde normalisée en fonction du retard entre les impulsions pompe et sonde. La forme temporelle de l'impulsion est une gaussienne.

Le petit nombre d'expériences réalisées dans cette configuration et le bruit de mesure ne nous ont pas permis de vérifier les calculs théoriques présentés ici. L'observation du signal de franges non linéaires en réflexion est d'ailleurs tout à fait inattendue. Cela montre en tout cas que la susceptibilité non linéaire à la surface d'un milieu est certainement beaucoup plus importante que celle en volume.

### E. Complément III.1. : Résolution de l'équation de propagation du sonde par développement perturbatif

En négligeant l'autoraidissement dû à la dérivée première en temps de la polarisation non linéaire et de la dispersion, l'équation de propagation de l'impulsion sonde à résoudre devient :

$$\Delta_{\perp} A_s(r,t) - 2ik(\omega_0) \frac{\partial A_s(r,t)}{\partial z} = -\frac{3k_0^2}{4} \chi^{(3)} \left[ 2A_s(r,t) |A_p(r,t)|^2 + \bar{A}_s(r,t) A_p^2(r,t) e^{-2i\omega_0 t} \right]. \quad (30)$$

Cette équation n'a pas de solution analytique. On résout l'équation à l'aide d'un développement perturbatif autour de la solution gaussienne pure :

$$A_0(r, z, t) = \frac{\rho_0}{w(z)} \exp\left[-\frac{r^2}{w^2(z)}\right] \exp\left[-ik(\omega_0)\frac{r^2}{2R(z)}\right] \exp[i\xi(z)]s(t) \quad (31)$$

dont l'intensité s'écrit :

$$I_0(r, z, t) = \frac{\rho_0^2}{w^2(z)} \exp\left[-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right] s^2(t). \quad (32)$$

On peut remarquer ici, qu'on ne choisit pas de forme temporelle d'impulsion dont la fonction en champ s'écrit  $s(t)$ . On introduit deux variables de perturbation :

$$\sigma_1 = -\frac{3k_0^2}{2}(\alpha - i\beta) \quad \text{et} \quad \sigma_2 = -\frac{3k_0^2}{4}(\alpha - i\beta)e^{-2i\omega_0 t}. \quad (33)$$

Au premier ordre la solution s'écrit alors :

$$A_s = A_0 + \sigma_1 A_1 + \bar{\sigma}_1 A_2 + \sigma_2 A_3 + \bar{\sigma}_2 A_4 \quad (34)$$

En remplaçant  $A_s$  dans l'équation de propagation, on est ramené à résoudre deux équations différentielles sur  $A_1$  et  $A_3$  sachant que  $A_2$  et  $A_4$  sont solutions de l'équation sans second membre et sont donc égales à la solution d'ordre 0.

$$\Delta_{\perp} A_1(r, z, t) - 2ik(\omega_0) \frac{\partial A_1(r, z, t)}{\partial z} = A_p(r, z, t) \overline{A_p(r, z, t)} A_0(r, z, t), \quad (35)$$

$$\Delta_{\perp} A_3(r, z, t) - 2ik(\omega_0) \frac{\partial A_3(r, z, t)}{\partial z} = A_p^2(r, z, t) \overline{A_0(r, z, t)}. \quad (36)$$

Les deux équations ci-dessus ne diffèrent que par le membre de droite d'un terme de phase. Considérant que le faisceau n'est pas modifié au cours de sa propagation, sa phase est identique à la phase d'un faisceau sonde non perturbé qui est la solution d'ordre 0. En conséquence, les solutions  $A_1$  et  $A_3$  sont identiques et il ne reste plus qu'à résoudre une seule équation différentielle.

Cette équation ne faisant pas intervenir la variable recherchée dans le membre de droite est beaucoup moins complexe que l'équation initiale. La résolution se fait dans l'espace de Fourier conjugué à la variable à deux dimensions  $r$ . La relation de passage d'un espace à l'autre est la transformée de Fourier à deux dimensions :

$$A_1(r, z, t) = \frac{1}{4\pi^2} \iint \tilde{A}_1(q, z, t) e^{iq_x x} e^{iq_y y} dq_x dq_y. \quad (37)$$

L'équation différentielle s'écrit alors :

$$-q^2 \tilde{A}_1(q, z, t) - 2ik(\omega_0) \frac{\partial \tilde{A}_1(q, z, t)}{\partial z} = \tilde{S}(q, z, t) \quad (38)$$

où  $\tilde{S}(q, z, t) = \left| \tilde{A}_p(q, z, t) \right|^2 \tilde{A}_0(q, z, t)$  désigne la fonction conjuguée du membre de droite. La résolution de l'équation dans l'espace conjugué peut se faire classiquement par la technique de variation de la constante et l'on obtient :

$$\tilde{A}_1(q, z, t) = \frac{i}{2k(\omega_0)} \exp\left(i \frac{q^2 z}{2k(\omega_0)}\right) \int_{-l/2}^z \tilde{S}(q, \eta, t) \exp\left(-i \frac{q^2 \eta}{2k(\omega_0)}\right) d\eta. \quad (39)$$

Le calcul de  $A_I$  se résume maintenant au calcul par transformée de Fourier de  $\tilde{S}(q, z, t)$  puis au retour dans l'espace des  $r$ . Le calcul de  $\tilde{S}(q, z, t)$  donne :

$$\tilde{S}(q, \eta, t) = \frac{\rho_p^2 s^2(t-u) \rho_0 s(t)}{w^3(z)} e^{i\xi(z)} \frac{\pi}{\varepsilon(z)} \exp\left(-\frac{q^2}{4\varepsilon(z)}\right) \quad (40)$$

avec  $\varepsilon(z) = \frac{3}{w^2(z)} + i \frac{k_0 n_0}{2R(z)}$  et  $q^2 = q_x^2 + q_y^2$  et le retour dans l'espace des  $r$  donne :

$$A_1(r, z, t) = \frac{i}{8k(\omega_0)} \rho_p^2 \rho_0 s^2(t-u) s(t) \int_{-1/2}^z \frac{\exp\left(-\frac{r^2}{4\psi(z, \eta)}\right) e^{i\xi(z)}}{\varepsilon(\eta) w^3(\eta) \psi(z, \eta)} d\eta \quad (41)$$

avec  $\psi(z, \eta) = \frac{1}{4\varepsilon(\eta)} + \frac{i(\eta - z)}{2k_0 n_0}$ .

La solution de l'amplitude du champ sonde s'écrit d'après les résultats du développement perturbatif comme :

$$A_s(r, z, t) = A_0(r, z, t) + (\sigma_1 + \sigma_2) A_1(r, z, t) = A_0(r, z, t) - \frac{3k_0^2}{4} (\alpha - i\beta) (2 + e^{-2i\omega_0 u}) A_1(r, z, t). \quad (42)$$

L'intensité s'écrit en éliminant les termes du second ordre :

$$A_s(r, z, t) \overline{A_s(r, z, t)} = A_0(r, z, t) \overline{A_0(r, z, t)} - \frac{3k_0^2}{4} (\alpha + i\beta) (2 + e^{2i\omega_0 u}) A_0(r, z, t) \overline{A_1(r, z, t)} \\ - \frac{3k_0^2}{4} (\alpha - i\beta) (2 + e^{-2i\omega_0 u}) \overline{A_0(r, z, t)} A_1(r, z, t) \quad (43)$$

Soit en remplaçant les champs par leurs valeurs et en intégrant l'expression sur les variables  $x$ ,  $y$  et  $t$  :

$$I_s \propto I_s^0 \left\{ 1 - \frac{3k_0}{8\sqrt{2}n_0} \rho_p^2 \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} s^2(t) s^2(t-u) dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} s^2(t) dt} \Re \left[ (\alpha - i\beta) (2 + e^{-2i\omega_0 u}) \frac{i \exp(-i\xi(l/2))}{w(l/2)} \right] \right. \\ \left. \times \int_{-1/2}^{l/2} \frac{\exp(i\xi(\eta))}{\varepsilon(\eta) w^3(\eta) \psi(l/2, \eta) \left[ \frac{1}{4\psi(l/2, \eta)} + \frac{1}{w^2(l/2)} - i \frac{k_0}{2R(l/2)} \right]} d\eta \right\} \quad (44)$$

On peut faire apparaître le module de la susceptibilité non linéaire et les franges non linéaires en transformant un peu l'expression suivante :

$$(\alpha - i\beta) (2 + e^{-2i\omega_0 u}) = \left[ 2\alpha + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \cos(2\omega_0 u - \phi) \right] - i \left[ 2\beta + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \sin(2\omega_0 u - \phi) \right]. \quad (45)$$

Pour deux expressions complexes  $A$  et  $B$  on démontre facilement :

$$\Re(AB) = \Re(A)\Re(B) - \Im(A)\Im(B). \quad (46)$$

Ce qui nous permet d'écrire l'intensité du faisceau sonde sous la forme compacte suivante :

$$I_s \propto I_s^0 \left\{ 1 - \frac{3k_0 \rho_p^2}{16\sqrt{2}n_0} \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} s^2(t)s^2(t-u)dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} s^2(t)dt} \left( \left[ 2\alpha + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \cos(2\omega_0 u - \phi) \right] \Re(Y) \right. \right. \\ \left. \left. + \left[ 2\beta + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \sin(2\omega_0 u - \phi) \right] \Im(Y) \right) \right\} \quad (47)$$

avec

$$Y = \frac{i \exp(-i\xi(l/2))}{w(l/2)} \int_{-l/2}^{l/2} \frac{\exp(i\xi(\eta))}{\varepsilon(\eta)w^3(\eta)\psi(l/2,\eta) \left[ \frac{1}{4\psi(l/2,\eta)} + \frac{1}{w^2(l/2)} - i \frac{k_0}{2R(l/2)} \right]} d\eta. \quad (48)$$

on peut rappeler ici les définitions des fonctions utilisées dans l'expression de Y :

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right)^2}, \quad R(z) = z \left[ 1 + \left( \frac{\pi w_0^2}{\lambda z} \right)^2 \right], \quad \xi(z) = \arctan \left( \frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right) \\ \varepsilon(\eta) = \frac{3}{w^2(z)} + i \frac{k_0 n_0}{2R(z)}, \quad \psi(z, \eta) = \frac{1}{4\varepsilon(\eta)} + \frac{i(\eta - z)}{2k_0 n_0}.$$

Y est donc juste un facteur de pondération numérique rassemblant toutes les variables spatiales ; la taille du col du faisceau, l'épaisseur de l'échantillon, la longueur d'onde, l'indice de réfraction linéaire. Après un calcul analytique assez laborieux nécessitant l'usage d'un logiciel de calcul formel (ici Mathematica 3.0), l'intégrale peut se réduire à une forme concise :

$$\int_{-l/2}^{l/2} \frac{k_0 n_0 w_0^3}{k_0^2 n_0^2 w_0^4 + 4\eta^2} d\eta + i \int_{-l/2}^{l/2} \frac{k_0 n_0 l w_0}{k_0^2 n_0^2 w_0^4 + 4\eta^2} d\eta \quad (49)$$

En intégrant analytiquement les intégrales précédentes, on arrive au résultat final pour Y :

$$Y = i k_0 n_0 \arctan \left( \frac{l}{k_0 n_0 w_0^2} \right).$$

L'amplitude  $\rho_p$  du champ électrique de la pompe s'exprime en fonction de la puissance crête comme :  $P_c = \frac{1}{2} c \varepsilon_0 \rho_p^2 \frac{\pi}{2}$ <sup>b</sup>. La moyenne d'un train d'impulsions lumineuses s'écrit :

$P_m = \frac{P_c}{T} \int_T s^2(t) dt$ , en conséquence on a :

$$\rho_p^2 = \frac{4P_m T}{\pi c \varepsilon_0 \int_T s^2(t) dt} \quad (50)$$

L'expression finale de l'intensité de la sonde en fonction du retard  $u$  entre la pompe et la sonde s'écrit alors :

$$I_s \propto I_s^0 \left\{ 1 - \frac{3k_0^2}{4\sqrt{2}} \frac{P_m T}{\pi c \varepsilon_0} G(u) \left[ 2\beta + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \sin(2\omega_0 u - \phi) \right] F(w_0, k_0, l) \right\} \quad (51)$$

avec

<sup>b</sup> Le facteur  $\pi/2$  provient de l'intégrale spatiale de la gaussienne.

$$G(u) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} s^2(t)s^2(t-u)dt}{\left(\int_{-\infty}^{+\infty} s^2(t)dt\right)^2}, F(w_0, k_0, l) = \arctan\left[\frac{l}{k_0 n_0 w_0^2}\right], \phi = \arctan\left(-\frac{\beta}{\alpha}\right).$$

## F. Complément III.2. : Fonctionnement du programme d'acquisition

Le but de ce complément n'est pas d'expliquer en détail tout le programme d'acquisition, mais de voir les principales étapes visant à extraire les données et les valeurs finales souhaitées. L'ordinateur utilisé fonctionne avec le système d'exploitation Windows NT4.0.

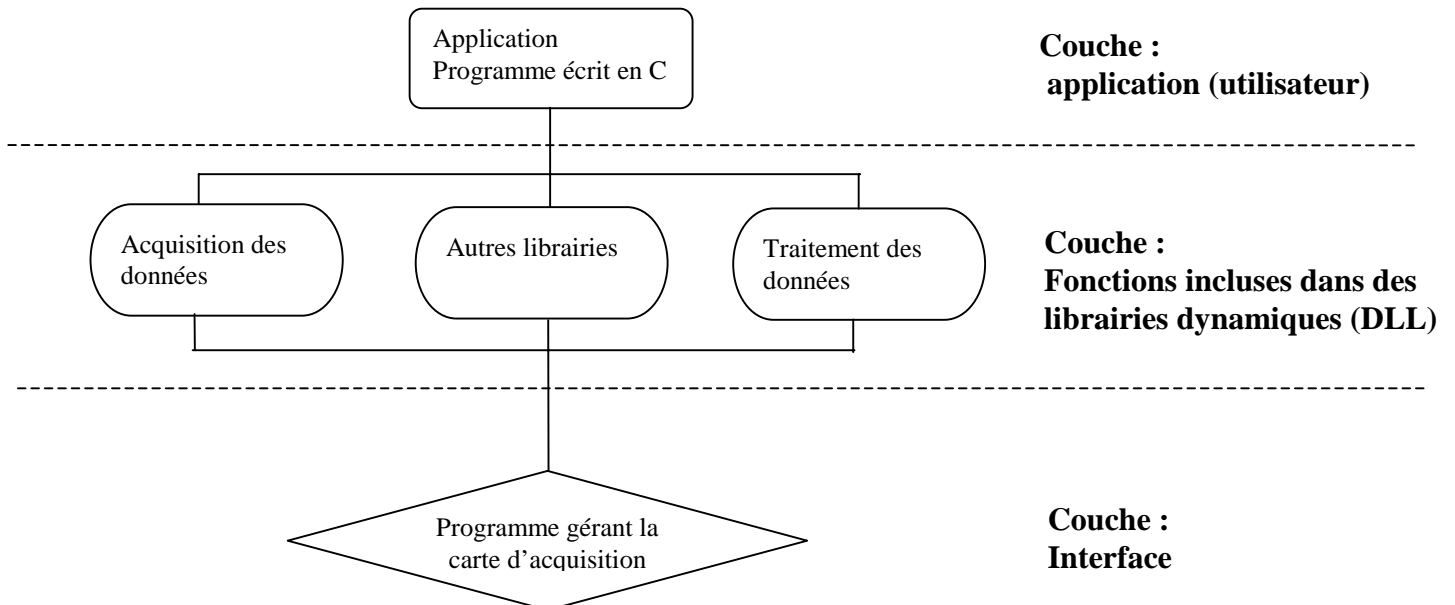
### 1. BASES SUR WINDOWS NT4.0 POUR COMPRENDRE LE PROGRAMME

Contrairement à d'autre système d'exploitation, Windows NT4.0 possède une architecture sous forme de couches dans laquelle les applications de l'utilisateur ne peuvent pas interférer avec des services importants du système d'exploitation exécutés dans la couche protégée appelée Mode noyau. Ce Mode noyau (niveau 0 du microprocesseur) est inaccessible directement aux applications de l'utilisateur qui elles, fonctionnent en Mode Utilisateur (niveau 3 du microprocesseur). Les applications en Mode utilisateur utilisent pour accéder aux adresses du noyau un protocole de communication unique à Windows NT4.0 sous la forme de message. Cela augmente considérablement la stabilité générale du système mais la gestion de transmission des messages surcharge un peu plus l'ordinateur. C'est la raison pour laquelle les fonctions de l'interface graphique (GDI : Graphics Device Interface, GDD : Graphics Device Drivers) dérogent à cette règle. Ainsi le programme d'acquisition est constitué d'une boucle dédiée à l'analyse des messages transmis et émis entre l'application de l'utilisateur et le noyau du système. Pour donner un exemple simple, chaque mouvement de la souris est interprété par un message renvoyant les coordonnées de celle-ci. Comme nous allons le voir, l'analyse des messages transitant entre le noyau et l'application est un élément clef du programme d'acquisition. En effet pendant l'échantillonnage des données et l'acquisition de celles-ci, il n'existe qu'un instant très court pendant lequel les données peuvent être lues et enregistrées en mémoire. C'est à cet instant que la carte d'acquisition renvoie un message à l'utilisateur pour lui signaler que les données peuvent être enregistrées.

Une autre caractéristique importante est que le système d'exploitation comprend des interfaces d'applications (API Win32 : Applications Programming Interfaces) qui permet au développeur d'intégrer dans leurs applications des fonctionnalités de Windows NT4.0. Ces fonctions permettent par exemple de gérer des fichiers, les fenêtres, la mémoire, les processus, les entrées de souris et de clavier, ... A la création d'un objet (une fenêtre, un processus, un événement, ...) correspond toujours une adresse de cet objet dans le noyau du système. Or, nous n'avons pas accès directement au noyau. C'est la raison pour laquelle lorsque l'objet est créé par l'utilisateur le système renvoie à celui-ci une poignée (« handle ») qu'il pourra utiliser dans son application. Ainsi l'adresse mémoire de la carte d'acquisition n'étant pas accessible, l'ordinateur renvoie une poignée pointant sur l'adresse de la carte d'acquisition que nous pouvons utiliser tout le long du programme pour communiquer avec la carte.

### 2. ARCHITECTURE GENERALE DE L'ENSEMBLE DES PROGRAMMES UTILISES

En dehors du système d'exploitation, trois couches de programmes sont nécessaires au fonctionnement de la carte d'acquisition. Tout d'abord, l'électronique de la carte est gérée par un programme d'interface (Driver). Les fonctions utilisées par la carte sont incluses dans des bibliothèques dynamiques (DLL : Dynamics Link Bibliothèques) formant la seconde couche logiciel.



*Figure 29: Architecture générale de l'ensemble des programmes utilisés pour le fonctionnement de la carte d'acquisition, l'enregistrement et le traitement des données.*

Ces bibliothèques compilées en langage machine ont l'avantage de pouvoir être utilisées avec n'importe quelle application. Il faut remarquer que toutes les fonctions API sont incluses dans des DLL. La troisième et dernière couche logiciel est le programme de l'utilisateur qui peut à priori être écrit dans n'importe quel langage de programmation. Au départ, nous avons commencé par écrire le programme de traitement des données en Fortran90 (Developpeur Studio de Microsoft). Normalement, cela ne devait pas poser de problème sauf que les fonctions de la carte étant écrites en C, il était nécessaire d'écrire une interface pour pouvoir les utiliser en Fortran90. Cette solution nous a posé beaucoup de problème en particulier au niveau de traitement du message renvoyé par la carte pour signaler l'enregistrement possible des données acquises. Nous avons donc été obligés d'écrire tout le programme d'acquisition et de traitement des données en langage C (sous Developpeur Studio).

### 3. LE PROGRAMME D'ACQUISITION<sup>33</sup>

La carte d'acquisition utilisée est de marque Data Translation dont les principales caractéristiques sont les suivantes : échantillonnage à 250kHz, 16 bits et 16 voies simples ou 8 voies travaillant en différence.

#### a. Initialisation des paramètres de la carte

Plusieurs opérations sont nécessaires à l'initialisation de la carte. La première fonction consiste à demander au système une poignée ("handle") permettant d'accéder à l'adresse mémoire de la carte. Il faut ensuite configurer la carte pour le type d'application expérimentale souhaitée. Pour cela il faut définir une liste des voies à échantillonner avec le



nombre de points pris par chacune des voies et leur gain respectif. Cette liste peut se présenter sous la forme du tableau suivant :

| Channel-List Entry | Channel | Gain | Description                          |
|--------------------|---------|------|--------------------------------------|
| 0                  | 1       | 2    | Echantillon voie 1 avec un gain de 2 |
| 1                  | 1       | 2    | Echantillon voie 1 avec un gain de 2 |
| 2                  | 2       | 4    | Echantillon voie 2 avec un gain de 4 |
| 3                  | 2       | 4    | Echantillon voie 2 avec un gain de 4 |
| 4                  | 0       | 1    | Echantillon voie 0 avec un gain de 1 |
| ...                | ...     | ...  | ...                                  |
| 1022               | 0       | 1    | Echantillon voie 0 avec un gain de 1 |
| 1023               | 0       | 1    | Echantillon voie 0 avec un gain de 1 |

Cette liste ne peut gérer au maximum que 1024 entrées en raison de la mémoire disponible sur la carte. A chaque entrée de la liste est définie une voie à acquérir avec un gain pouvant prendre les valeurs 1, 2, 4. Chaque entrée représente un point de mesure. Dans l'exemple ci-dessus, 2 mesures de la voie 1 sont échantillonnées avec un gain de 2, puis 2 mesures de la voie 2 avec un gain de 4 et 1020 mesures de la voie 0 avec un gain de 1. Cette liste de points de mesures peut être parcourue plusieurs fois (le nombre maximum de scan peut être demandé à la carte).

Dans le cas de notre programme, trois voies d'acquisition sont utilisées : la voie 1 pour la puissance moyenne, la voie 2 pour la largeur temporelle et la voie 0 pour le signal. 20 points sont consacrés aux voies 1 et 2 et 1004 points au signal. Cette liste est parcourue 9 fois.

| Channel-List Entry | Channel | Gain | Description                          |
|--------------------|---------|------|--------------------------------------|
| 0                  | 1       | 1    | Echantillon voie 1 avec un gain de 1 |
| ...                | ...     | ...  | ...                                  |
| 9                  | 1       | 1    | Echantillon voie 1 avec un gain de 1 |
| 10                 | 2       | 1    | Echantillon voie 2 avec un gain de 1 |
| ...                | ...     | ...  | ...                                  |
| 19                 | 2       | 1    | Echantillon voie 2 avec un gain de 1 |
| 20                 | 0       | 1    | Echantillon voie 0 avec un gain de 1 |
| ...                | ...     | ...  | ...                                  |
| 1023               | 0       | 1    | Echantillon voie 0 avec un gain de 1 |

**Tableau 1:** Liste des entrées de la carte d'acquisition dans le cadre de l'expérience pompe sonde colinéaire.

L'initialisation de la carte se poursuit par l'entrée de la fréquence d'échantillonnage pris ici à 250 kHz sur l'horloge interne de la carte et l'entrée du mode de synchronisation. Le déclenchement de l'échantillonnage se fait à partir du signal du pot vibrant. Compte tenu du décalage temporel qu'il peut y avoir entre le déplacement réel du pot vibrant et l'arrivée du signal électrique dans la carte d'acquisition du à l'électronique et en particulier à l'amplificateur de courant, un retard électronique est disposé sur le signal de déclenchement de la carte aisément réglable à l'aide d'un potentiomètre permettant de centrer en temps réel le signal dans la fenêtre d'acquisition. Suivant les instructions définies dans la liste des entrées de la carte, l'échantillonnage se fait alors suivant le schéma Figure 30.

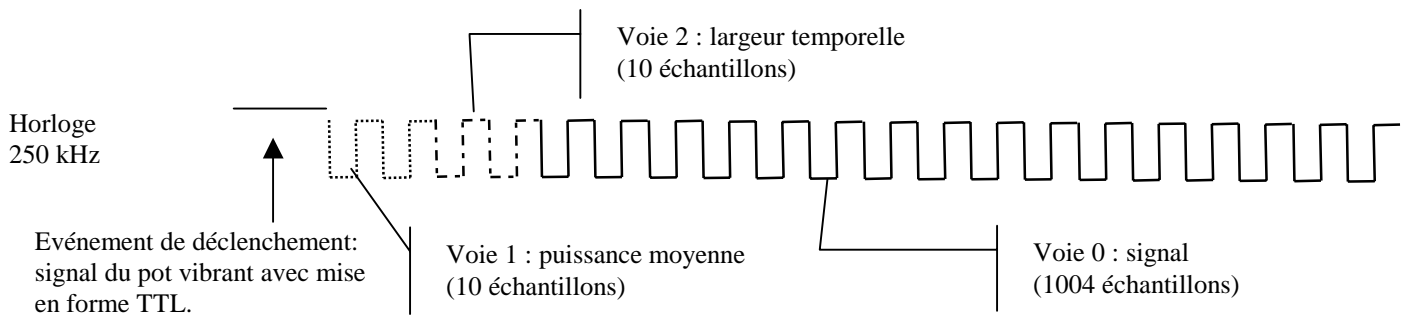


Figure 30 : Schéma de l'acquisition des données dans le cadre de l'expérience pompe sonde colinéaire.

### b. Mise en mémoire des données

La mise en mémoire des échantillons se fait par l'intermédiaire de "buffers" qui sont des emplacements de mémoire dans la carte d'acquisition. Les buffers peuvent être stockés dans trois types de queues : la "Ready queue", la "Inprocess queue" et la "Done queue". Pour allouer l'espace mémoire du buffer, l'utilisateur doit connaître le nombre d'échantillons qu'il a l'intention d'acquérir. Dans notre cas la taille du buffer alloué est de :  $1024 * 9 = 9216$  échantillons. Le buffer alloué mais vide est alors placé dans la "Ready queue". Quand l'utilisateur démarre l'acquisition, celui-ci passe alors dans la "Inprocess queue" où il sera rempli d'échantillons suivant les instructions de la liste d'entrée. Une fois rempli, il est déplacé dans la "Done queue". A ce moment un message de la carte est généré pour signaler que ce buffer peut être lu et placé dans une mémoire de l'ordinateur pour traitement ultérieur. Pendant ce temps, un autre buffer peut passer dans la "Inprocess queue" pour être rempli. Le nombre d'états que peut prendre un buffer étant de trois, le nombre optimal de buffer à allouer sera aussi de trois de manière à toujours avoir un buffer prêt à être rempli dans la "Ready queue".

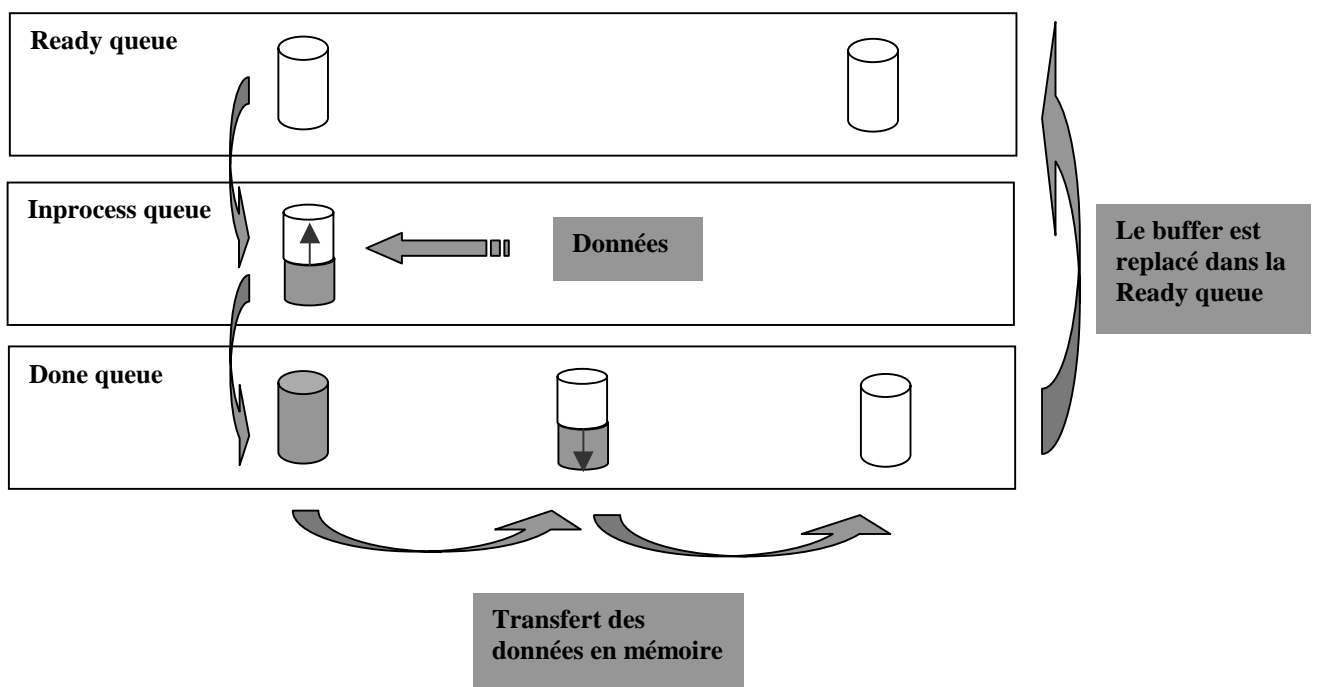
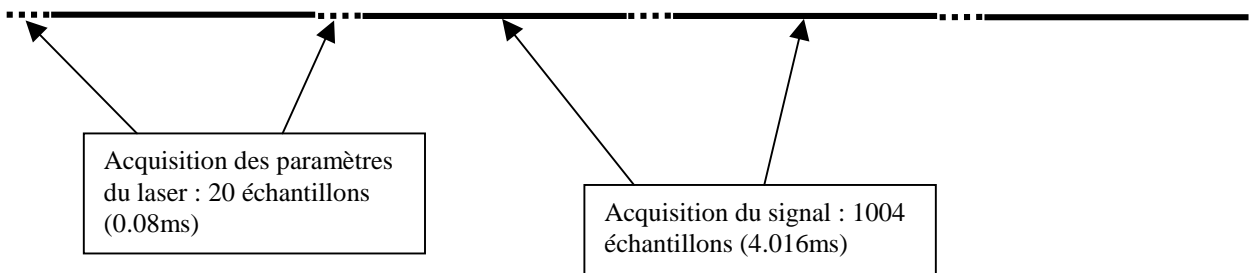


Figure 31 : Schéma de la gestion des buffers en cours d'acquisition.

Ces opérations de transferts de buffers prennent en fait un petit peu de temps. Si un événement de déclenchement arrive pendant une acquisition, cela peut causer des messages d'erreurs. Afin d'éviter cela, on doit rentrer dans le programme un temps minimum pour lequel l'opération d'acquisition des données et de transfert du buffer doivent être effectués.

$$\text{Temps min} = \frac{(\text{Nb entrées dans la liste}) \times (\text{Nb de scan de la liste})}{\text{Fréquence de l'horloge}} + 2\mu\text{s} = \frac{1024 \times 9}{250\text{kHz}} + 2\mu\text{s} = 36.866\text{ms}.$$

En pratique, on rentre dans le programme la fréquence maximum de redéclenchement correspondant à l'inverse du temps précédent.



*Figure 32 : Séquence d'acquisition du signal.*

#### 4. L'INTERFACE GRAPHIQUE DU PROGRAMME

##### a. Les fenêtres

Elles sont au nombre de quatre : la première sert à la visualisation du signal dans son ensemble, du nombre de points dans le signal et du nombre de « buffers » acquis. La fenêtre (2) affiche un zoom sur les franges d'interférences correspondant à la partie du signal choisie pour réaliser la transformée de Fourier et l'analyse complète du signal. Cette fenêtre affiche également les valeurs (tensions, puissance moyenne et largeur temporelle) des photodiodes de caractérisation du faisceau laser. La fenêtre (3) affiche la transformée de Fourier de la partie centrale du signal. Elle affiche également les valeurs de la hauteur des pics. Enfin la fenêtre (4) récapitule toutes les caractéristiques du laser, de l'échantillon, les mesures des pics et affiche les valeurs réelle et imaginaire de la susceptibilité non linéaire d'ordre trois et ses variations en pourcentage. Ses variations peuvent être rendues très petites en faisant une moyenne sur plusieurs acquisitions.

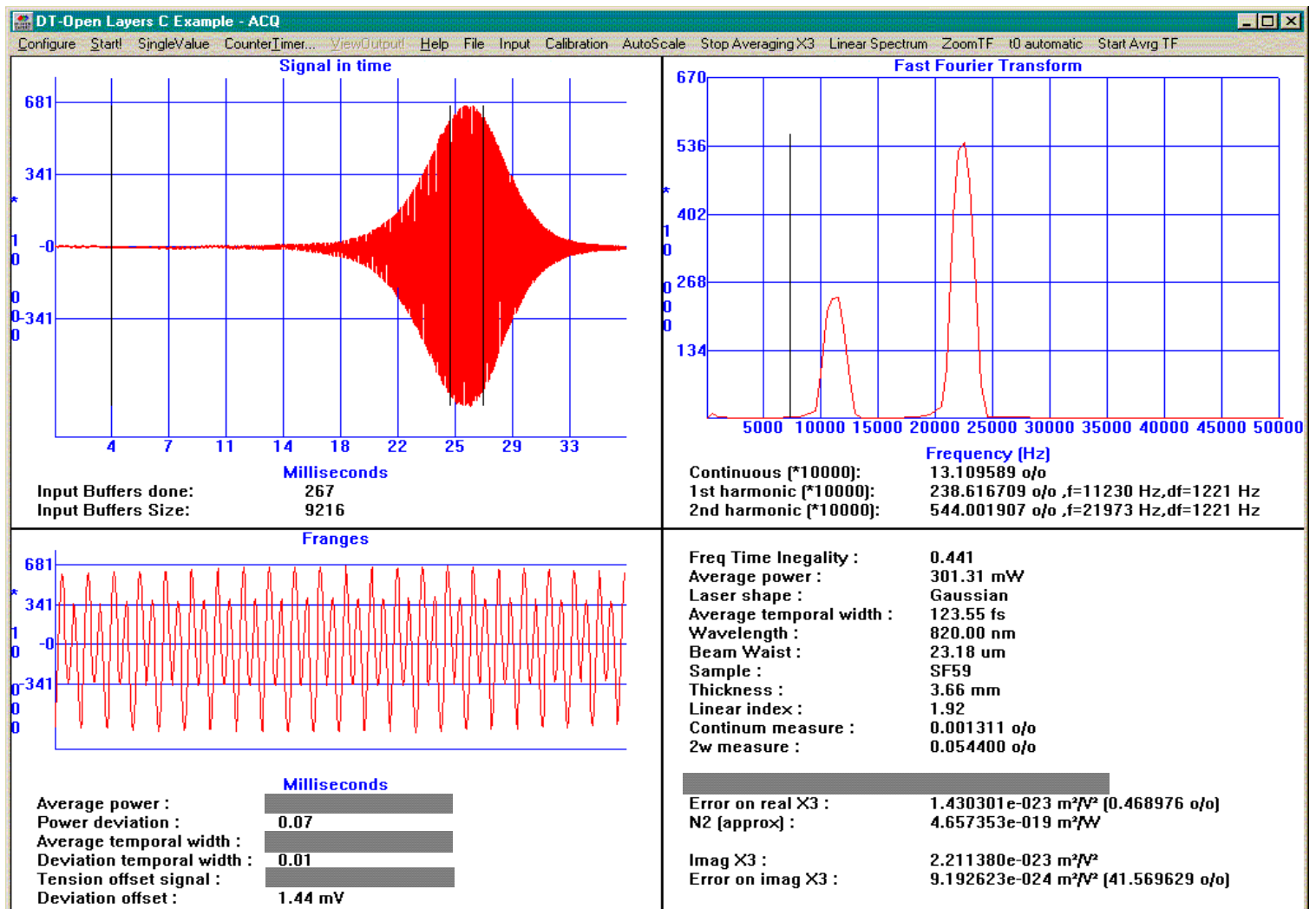


Figure 33 : Apparence de la fenêtre du programme d'acquisition. Les fenêtres sont numérotées de haut en bas et de droite à gauche (1,2,3,4).

## b. Les fonctions principales des menus

Parmi les fonctions principales du menu, nous avons la possibilité de régler les paramètres d'acquisition de la carte tels que la fréquence d'échantillonnage, la liste des entrées, le choix du mode de déclenchement, le nombre de buffers, ... Un autre menu est dédié à l'entrée des paramètres du laser, de l'échantillon et à des paramètres de réglage. Par exemple, le signal non linéaire comporte un offset en dehors de la zone de cohérence des impulsions qu'il faut mesurer pour pouvoir normaliser le signal. Un pointeur que l'on peut déplacer sur le signal permet de fixer la limite du calcul de la valeur moyenne du signal qui nous donnera la valeur de l'offset. Il est aussi possible de changer la position de la fenêtre d'analyse ainsi que sa largeur en fixant le nombre de points pour la transformée de Fourier. Un autre pointeur placé dans la fenêtre spectrale permet de faciliter la recherche du premier pic à  $\omega$ .

### *α. Statistique "glissante"*

Dans le cadre de l'acquisition et du traitement du signal en temps, il peut être intéressant de faire des moyennes au cours du temps sur les valeurs de la puissance moyenne

ou sur les amplitudes des pics du spectre. Comme on ne conserve en mémoire que l'acquisition courante et la dernière acquisition, on utilise un calcul de moyenne "glissante". On démontre aisément par récurrence que :

$$y_n = \frac{(n-1)y_{n-1} + x_n}{n} \quad ( 52 )$$

où  $x_n$  est la  $n^{\text{ième}}$  valeur mesurée (correspondant au  $n^{\text{ième}}$  buffer) et  $y_n$  est la valeur moyenne des  $n$  premières valeurs. De même la déviation standard  $\sigma_n$  s'écrit :

$$\sigma_n = \frac{(n-1)\sigma_{n-1} + |x_n - y_{n-1}|}{n}. \quad ( 53 )$$

- 
- <sup>1</sup> M. Sheik-Bahae, A.A. Said, E.W. Van Stryland, *Opt. Lett.* **14**, 955 (1989)
- <sup>2</sup> M. Sheik-Bahae, A.A. Said, T. Wei, D.J. Hagan, and E.W. Van Stryland, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-26**, 760 (1990)
- <sup>3</sup> A.A. Said, M. Sheik-Bahae, D.J. Hagan, T. Wei, J. Wang, J. Young, and E.W. Van Stryland, *J. Opt. Soc. Am.* **B 9**, 405 (1992)
- <sup>4</sup> N.A. Kurnit, T. Shimada, M.S. Sorem, A.J. Taylor, G. Rodriguez, T.S. Clement, H. Fearn, D.F.V. James, and P.W. Milonni, *SPIE*, vol. 3047 (1997)
- <sup>5</sup> Y.L. Huang, C.K. Sun, *J. Opt. Soc. Am.* **B 17**, N°1, 43-47 (2000)
- <sup>6</sup> R. DeSalvo, A.A. Said, D.J. Hagan, E.W. Van Stryland and M. Sheik-Bahae, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-32**, N° 8 (1996)
- <sup>7</sup> T. Kawazoe, H. Kawaguchi, J. Inoue, O. Haba, M. Ueda, *Opt. Comm.* **160**, 125-129 (1999)
- <sup>8</sup> Weiliang Li, L. Sarger, L. Canioni, P. Segonds, F. Adamietz, A. Ducasse, *Opt. Comm.* **132**, 583-592 (1996)
- <sup>9</sup> D.J. Moss, H.M. van Driel, and J.E. Sipe, *Appl. Phys. Lett.* **48**, 1150 (1986)
- <sup>10</sup> J.E. Sipe, D.J. Moss, H.M. van Driel, *Phys. Rev. B* **11**, 35, 1129 (1987)
- <sup>11</sup> D. McMorro, W.T. Lotshaw, and G.A. Kenney-Wallace, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-24**, 443 (1988)
- <sup>12</sup> S. Palese, L. Scilling, R.J.D. Miller, P.R. Staver, T. Lotshaw, *J. Phys. Chem.* **98**, 6308 (1994)
- <sup>13</sup> R. Trebino and D.J. Kane, *J. Opt. Soc. Am.* **A 10**, N° 5, 1101-1111 (1993)
- <sup>14</sup> V. Wong and I.A. Walmsley, *J. Opt. Soc. Am.* **B 14**, N° 4, 944-949 (1997)
- <sup>15</sup> J. Chilla and O.E. Martinez, *Opt. Lett.* **16**, N° 1, (1991)
- <sup>16</sup> Marc Olivier Martin, « Détermination des propriétés non linéaires des matériaux optiques à 1,5 $\mu$ m par interférométrie et absorption transitoire en configuration pompe sonde colinéaire. Prise en compte de la forme spatio-temporelle du champ », *Thèse de l'Université de Bordeaux I*, 15 décembre 1998, N° d'ordre 2010.
- <sup>17</sup> S. Rivet, M.O. Martin, L. Canioni, L. Sarger, *Opt. Comm.* **181**, 425-435, (2000)
- <sup>18</sup> C. Froehly, *Nouvelle revue d'optique* **4**, 183 (1973)
- <sup>19</sup> L. Petit, G. Chériaux and M. Joffre, *J. Opt. Soc. Am.* **B 12**, N° 12, 2467-2474, (1995)
- <sup>20</sup> C. Iaconis and I. A. Walmsley, "Self-referencing spectral interferometry for measuring ultrashort optical pulses," *IEEE J. Quantum Electron.* **35**, 501-9 (1999)
- <sup>21</sup> A.J. Taylor, G. Rodriguez, T.S. Clement, *Opt. Lett.* **21**, N° 22, 1812-1814, (1996)
- <sup>22</sup> E.T.J. Nibbering, G. Grillon, M.A. Franco, B.S. Prade, and A. Mysyrowicz, *J. Opt. Soc. Am.* **B 14**, N°3, 650-660, (1997)
- <sup>23</sup> E.T.J. Nibbering, M.A. Franco, B.S. Prade, G. Grillon, C. Le Blanc, A. Mysyrowicz, *Opt. Comm.* **119**, 479-484, (1995)
- <sup>24</sup> I. Kang, T. Krauss, and K. Wise, *Opt. Lett.* **22**, 1077-1079, (1997)
- <sup>25</sup> R. Adair, L.L. Chase, and S.A. Payne, *J. Opt. Soc. Am.* **B 4**, 875 (1987)
- <sup>26</sup> P.W. Smith, W.J. Tomlinson, D.J. Eilenberger, and P.J. Maloney, *Opt. Lett.* **6**, 581-583, (1981)
- <sup>27</sup> A.P. Veduta and B.P. Kirsanov, *Sov. Phys. – JETP*, vol 27, 736-738, (1968)
- <sup>28</sup> L. Sarger, P. Segonds, L. Canioni, F. Adamietz, A. Ducasse, C. Duchesne, E. Fargin, R. Olazcuaga, G. Le Flem, *J. Opt. Soc. Am.* **B 11**, N°6 (1994)
- <sup>29</sup> L. Canioni, M.O. Martin, B. Bousquet, L. Sarger, *Opt. Comm.* **151**, 241-246, (1998)
- <sup>30</sup> Lionel Canioni, « Propriétés non linéaires des verres et liquides analysé par interférométrie femtoseconde », *Thèse de l'Université de Bordeaux I*, 30 mai 1994, N° d'ordre 1067

---

<sup>31</sup> M.O. Martin, L. Canioni, and L. Sarger, *Opt. Lett.* 23, 1874-1876, (1998)

<sup>32</sup> M. Martinelli, S. Bian, J.R. Leite, and R.J. Horowicz, *Appl. Phys. Lett.* 72, N°12, 1427-1429, (1998)

<sup>33</sup> Data Translation, DataAcq SDK, Manuel d'utilisation.

## CHAPITRE IV

# Mesures d'indices non linéaires en configuration non dégénérée : interféromètre de Sagnac

### A. Introduction

Le but de l'expérience présentée ici est de mesurer l'indice non linéaire non dégénéré d'un matériau pompé à une longueur d'onde et sondé avec un faisceau à la longueur d'onde doublée  $\lambda/2$ . Les faisceaux pompe et sonde ne pouvant plus interférer entre eux, la technique de mesure de l'amplitude des franges non linéaires doit être abandonnée. La mesure de l'intensité du faisceau ne peut nous apporter ici de l'information que sur l'absorption non linéaire de l'échantillon. Pour avoir l'information sur l'indice non linéaire de réfraction, on doit avoir recours à une mesure de phase du faisceau sonde. On doit donc utiliser une technique interférométrique pour la mesure de l'onde sonde. L'interféromètre de Mach-Zhender développé dans le groupe<sup>1</sup> est donc l'instrument adapté pour ce genre de mesure. Néanmoins, cette expérience est très lourde à monter. Elle nécessite un asservissement électronique très délicat à régler pour égaliser les deux bras sonde et référence de l'interféromètre. Une modulation électro-optique particulière du faisceau pompe doit être mise en place pour coder le signal à une fréquence en dehors de l'asservissement. Pour simplifier l'expérience, nous avons conçu un autre montage basé sur l'interféromètre de Sagnac qui ne nécessite aucun asservissement. De plus, il a été montré que cet interféromètre est très sensible<sup>2</sup>; il avait été potentiellement retenu pour le projet LIGO<sup>3</sup> (Laser Interferometer Gravitational-Wave Observatory) pour la détection d'ondes gravitationnelles et a déjà été utilisé dans la mesure de l'indice de réfraction non linéaire de fibre optique en polymère<sup>4</sup>.

#### 1. L'INTERFEROMETRE DE SAGNAC : GYROSCOPE LASER<sup>5</sup>

##### a. Principe général

L'interféromètre de Sagnac<sup>6,7</sup> est à la base des gyroscopes lasers. L'onde incidente est divisée en deux ondes par une séparatrice, ondes qui parcourent un anneau et interfèrent sur la même séparatrice. Les deux faisceaux sont contre propageants dans la cavité et parcourent exactement le même trajet optique. La réflexion d'une onde sur une interface air verre entraîne un déphasage de  $\pi$ . En conséquence, les deux faisceaux de la sortie 2 (retour vers le laser – cf. Figure 1) ont chacun accumulé un déphasage de  $\pi$  et interfèrent constructivement. Pour la sortie 1, seul un des faisceaux a accumulé un déphasage de  $\pi$  d'où des interférences destructives (d'où le nom d'anneau antirésonant). Le déphasage d'un faisceau par rapport à l'autre va se traduire par une variation de l'intensité de la sortie 1 suivant :

$$I_1 = \frac{I_0}{2}(1 - \cos \Delta\phi) \quad (1)$$

où  $I_0$  est l'intensité de l'onde incidente.



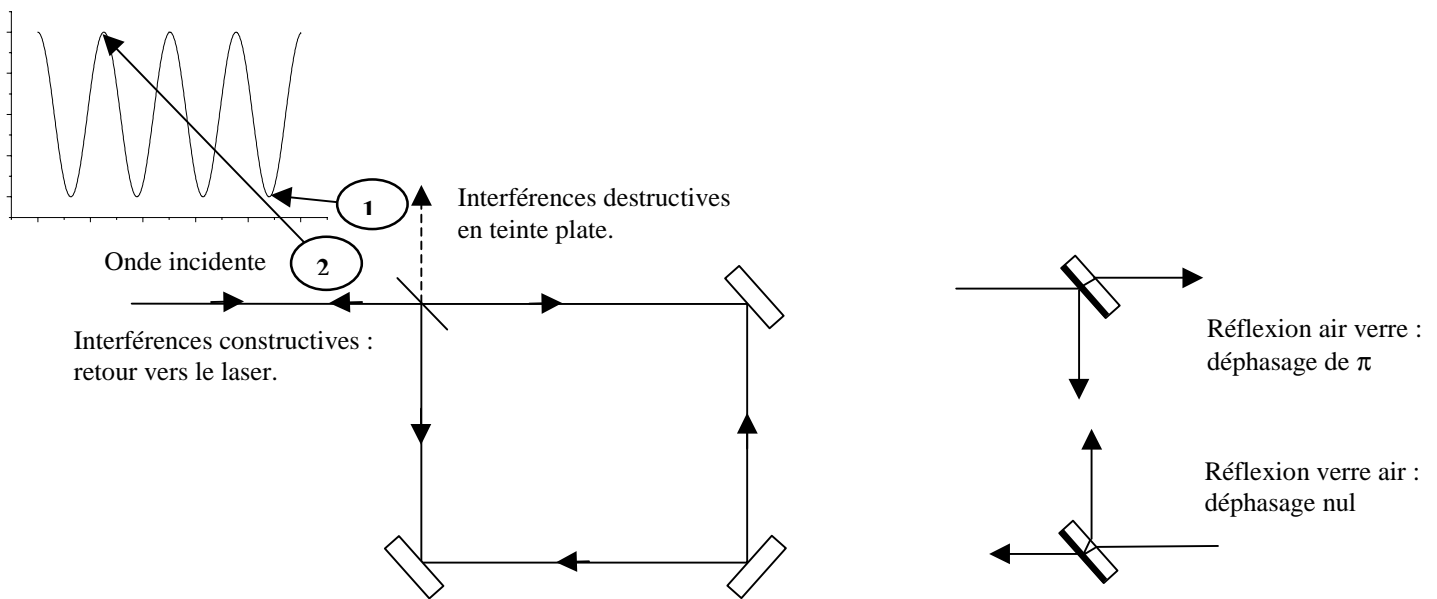


Figure 1 : Interféromètre de Sagnac simple. Fonctionnement automatique sur fond noir.

Cette technique est très sensible à la plus petite variation de phase. Néanmoins, malgré tout le soin que l'on peut apporter au réglage de l'interféromètre, on n'arrive jamais à éteindre complètement la sortie 1 de l'interféromètre. Au lieu de travailler sur un fond complètement noir, on a toujours un bruit de fond qui peut perturber la mesure de phase. De plus la relation liant l'intensité et la phase n'est pas strictement linéaire.

### b. Le gyroscope laser

Imaginons maintenant que cet interféromètre tourne autour de lui-même avec une vitesse angulaire  $\Omega$ . La lumière ayant une vitesse finie égale à  $c$ , le faisceau lumineux accompagnant la rotation arrivera en avance sur la séparatrice par rapport à l'autre contre propageant, d'où un déphasage entre les deux ondes. On démontre (cf. complément IV.1) que le déphasage entre les deux faisceaux vaut :

$$\Delta\phi = \frac{8\pi S\Omega}{\lambda c}. \quad (2)$$

C'est la raison pour laquelle cet interféromètre a remplacé les gyroscopes mécaniques à partir des années 1960<sup>8</sup>. Les gyroscopes sont maintenant beaucoup utilisés dans la navigation aérienne. L'anneau est fibré et peut faire jusqu'à 1 km de longueur en un grand nombre de tours pour avoir une grande sensibilité ou seulement une centaine de mètres si l'on recherche plutôt une grande plage de mesure de la vitesse angulaire, la vitesse angulaire maximale étant donnée par :

$$\Omega_{\pi} = \frac{\lambda c}{8NS} \text{ où } N \text{ est le nombre de tours.} \quad (3)$$

En raison de la sensibilité de cet interféromètre à la vitesse angulaire, il est aussi sensible à la rotation de la Terre. Le déphasage correspondant est loin d'être négligeable lorsque l'on désire mesurer de faible déphasage. C'est la raison pour laquelle lorsque cet

interféromètre n'est pas utilisé pour mesurer des vitesses angulaires, on fait en sorte d'annuler la surface équivalente de celui-ci en adoptant une géométrie en forme de 8.

### c. Bande passante de l'interféromètre de Sagnac

Considérons la cavité antirésonante de l'interféromètre de Sagnac dans laquelle on met un échantillon excité par un faisceau pompe. Sans faisceau pompe, les faisceaux sonde et référence interfèrent destructivement à la sortie de l'interféromètre et il n'y a pas de signal. En présence de l'impulsion pompe synchrone avec l'impulsion sonde, le faisceau sonde va acquérir une phase dont le temps caractéristique est le temps de réponse du matériau qui dépend du processus non linéaire. Si ce temps de réponse est très court, le faisceau référence arrivant après (l'échantillon étant décentré dans la cavité Sagnac) ne verra pas de phase et le signal de sortie sera donc dépendant de la phase ajoutée par l'échantillon. Par contre, si le temps caractéristique de réponse du milieu est plus long, alors le faisceau référence verra une phase due au processus non linéaire et le signal sera alors faussé. On peut donc en conclure que cette cavité Sagnac joue le rôle de filtre passe haut<sup>9</sup> en ce qui concerne l'observation des processus non linéaires. La fréquence de coupure de ce filtre peut s'exprimer très simplement en fonction de la longueur de la cavité Sagnac :

$$f_c = \frac{c}{L} \quad (4)$$

soit 300MHz pour une cavité Sagnac de 1m de longueur.

## 2. L'INTERFEROMETRE DE SAGNAC MODIFIE

L'idée est de modifier l'interféromètre de Sagnac de manière à linéariser la mesure, en utilisant des sorties complémentaires 1' et 2' de façon équivalentes à celles de l'interféromètre de Mach-Zhender qui a servi à la mesure d'indice non linéaire. En fait cela veut dire travailler à mi-frange au lieu de travailler sur fond noir. Pour cela nous avons placé un jeu de polarisation à l'intérieur de l'interféromètre. Une lame demi-onde tournée de 45° par rapport à ces axes permet de tourner la polarisation des faisceaux d'une polarisation  $s$  à une polarisation  $p$  et inversement. Une lame quart onde placée suivant ces lignes neutres permet d'introduire un déphasage de  $\pi/2$  sur chacun des faisceaux. De cette manière, on montre (cf. complément IV.2.) que la sortie en réflexion sur le prisme de Glan à l'entrée de l'interféromètre est complémentaire de la sortie classique :

$$I_1 = \frac{I_0}{2} [1 - \sin(\phi_{NL})], \quad (5)$$

$$I_2 = \frac{I_0}{2} [1 + \sin(\phi_{NL})]. \quad (6)$$

La différence donne un signal proportionnel au déphasage non linéaire. Cette relation n'est valable que pour un Sagnac de surface nulle dans lequel le déphasage dû à la rotation de la Terre est annulé. Néanmoins en tournant la lame quart d'onde, il est possible d'introduire un déphasage réglable de la forme (cf. complément IV.2.) :

$$\Delta I(\phi_{NL} = 0) = \frac{I_0}{2} \sin^2(2\theta). \quad (7)$$

En raison de ce degré de liberté, il est toujours possible de compenser un décalage à l'origine.

$$\Delta I = |I_1 - I_2| = I_0 \sin \phi_{NL} \approx I_0 \phi_{NL} \quad (8)$$

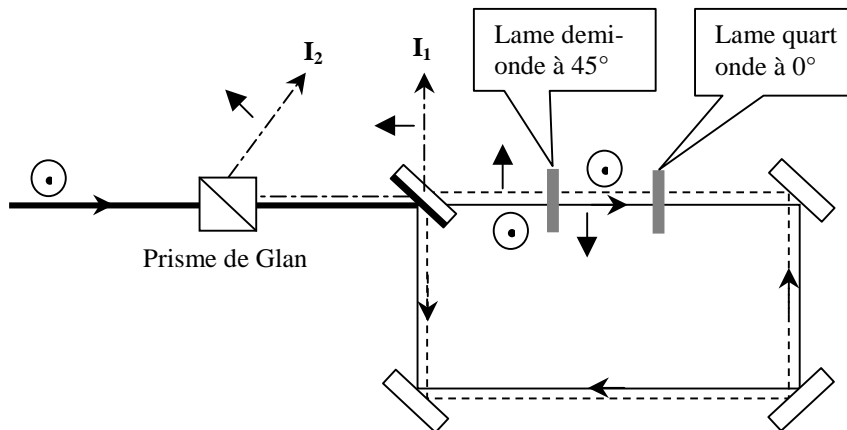


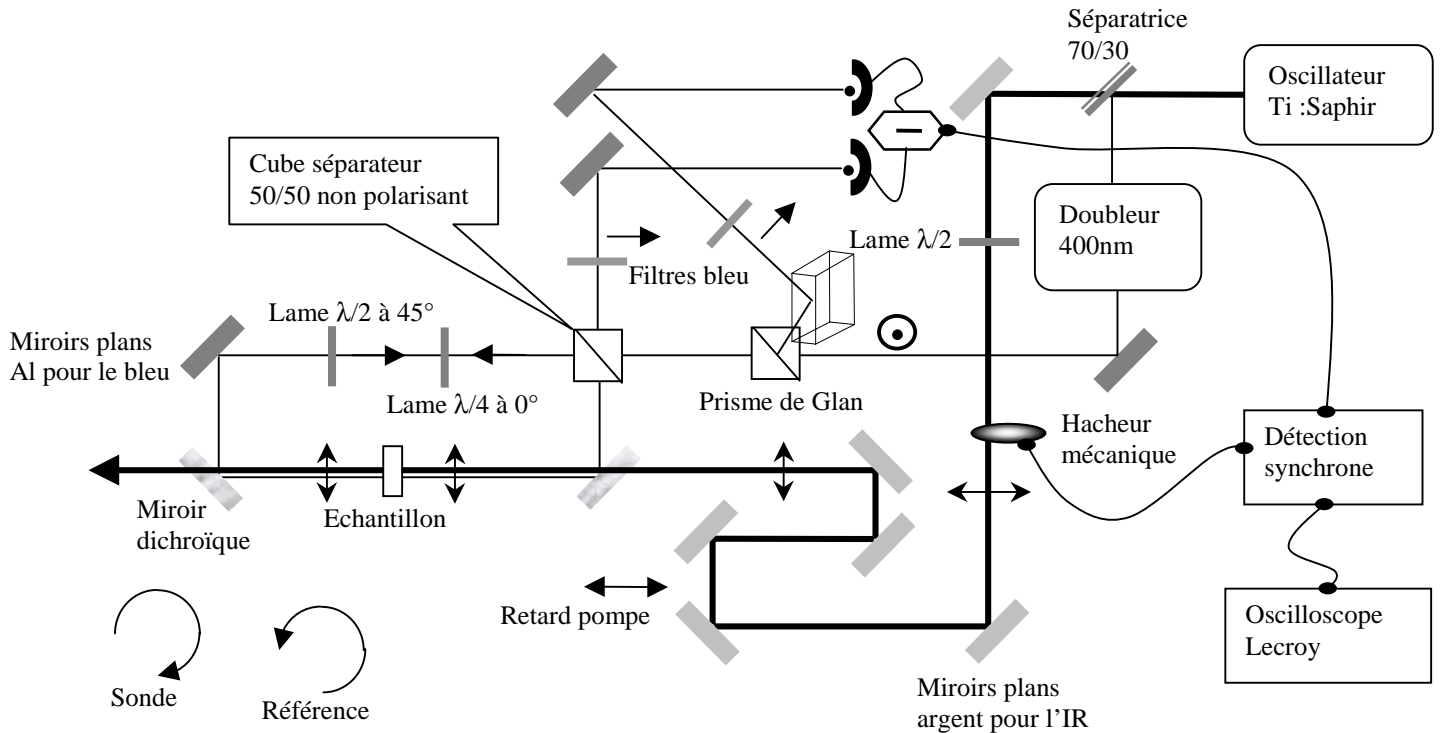
Figure 2 : Interféromètre de Sagnac modifié de telle manière à avoir deux sorties complémentaires.

## B. Technique pompe sonde colinéaire non dégénérée en fréquence : interféromètre de Sagnac

### 1. MONTAGE EXPERIMENTAL

Le montage expérimental est montré sur la Figure 3. Le faisceau provenant de l'oscillateur Titane : Saphir est séparé en deux avec une séparatrice. Environ 30% de la l'IR( $\omega$ ) est doublé pour l'illumination de l'interféromètre de Sagnac alors que les 70% restant agissent en tant que faisceau pompe. La polarisation du bleu ( $2\omega$ ) à la sortie du doubleur est verticale. Une lame demi-onde placée sur le trajet de la pompe permet de régler la polarisation de celui-ci. Le faisceau bleu après traversé du prisme de Glan arrive sur un cube séparateur 50/50 non polarisant qui sert de séparatrice pour l'interféromètre de Sagnac. Ce cube séparateur est constitué de deux prismes de silice séparés d'une certaine distance avec un traitement diélectrique. Le principe de fonctionnement de ce cube est le même que les FTIR<sup>10</sup> utilisés dans l'interféromètre de Mach-Zhender. L'interféromètre de Sagnac est décrit dans le paragraphe précédent. La première sortie de cet interféromètre est située au niveau de cube séparateur alors que la deuxième sortie est rejetée par le prisme de Glan vers le haut. Des difficultés géométriques nous obligent à utiliser deux miroirs pour la deuxième sortie et un miroir pour la première. L'utilisation d'un nombre différent de miroirs pour les deux sorties et l'utilisation de photodiodes non appariées entraînent forcément un décalage du zéro du signal qu'il faut compenser par rotation de la lame quart onde. Deux filtres bleus sont disposés sur chacune des sorties pour éliminer les inévitables fuites du faisceau pompe IR réfléchi sur les miroirs dichroïques.

Le réglage du retard pompe sonde se fait à l'aide d'un cristal de BBO de 200 $\mu$ m posé à la place de l'échantillon et en coupant le faisceau référence. Ce cristal est taillé pour faire la somme des rayonnements à ( $\omega$ ) et ( $2\omega$ ) pour donner de l'UV. La détection de la lumière UV avec un photomultiplicateur nous donne la position du retard zéro, permet de mesurer la largeur temporelle du faisceau à ( $2\omega$ ) connaissant celle à ( $\omega$ ). Elle permet aussi de déterminer la position du col du faisceau dans le système afocal. En effet, le signal non linéaire ne comporte pas de franges d'interférences comme dans l'expérience dégénérée, et le signal ayant une forme gaussienne n'est donc pas porté par une modulation. Ainsi, le bruit toujours présent à basse fréquence peut complètement cacher le signal non linéaire.



**Figure 3 : Schéma général de l'interféromètre de Sagnac. Les miroirs argent pour l'IR sont en gris clair, les miroirs aluminium dédiés au bleu sont en gris foncé et les miroirs dichroïques sont en gris marbré.**

C'est la raison pour laquelle il est préférable de coder le signal non linéaire en plaçant sur le faisceau pompe un hacheur mécanique et d'enregistrer le signal à l'aide d'une détection synchrone pour éliminer le bruit. Cela suppose l'enregistrement du signal en utilisant un retard lent et, dans ce cas, il est plus délicat de trouver la position du col du faisceau. Néanmoins, avant la mesure, l'oscillation d'une cale piézo-électrique sur un miroir du faisceau pompe peut permettre à l'utilisateur le réglage précis de l'échantillon dans le col du faisceau.

L'une des difficultés principale de l'interféromètre de Sagnac est le réglage de la cavité de telle manière que les faisceaux sonde et référence soient colinéaires sur tout le parcours et interfèrent en teinte plate sur le cube séparateur. Si ce réglage est assez aisé lorsque la cavité est vide, l'introduction de lames biréfringentes mais surtout d'un système afocal complique un peu ce réglage. Ainsi, chaque fois que l'on touche un élément dans la cavité et en particulier l'échantillon que l'on doit changer, on est obligé de régler à nouveau l'interféromètre et la colinéarité du faisceau pompe.

## 2. CALCUL DU SIGNAL DE DEPHASAGE NON LINEAIRE

Le but est de calculer le déphasage introduit par l'échantillon dans l'interféromètre de Sagnac en fonction du retard  $u$  entre les impulsions pompe et sonde. Tout d'abord, un calcul similaire à celui fait dans le chapitre III nous donne la polarisation non linéaire de l'échantillon en fonction des champs pompe et sonde. Le calcul est fait dans le cas général en ce qui concerne les polarisations des faisceaux pompe et sonde. Si les faisceaux pompe et sonde sont polarisés identiquement, on mesurera la composante  $\chi_{xxx}^{(3)}$  de la susceptibilité non

linéaire, sinon on mesurera la composante  $\chi_{xyxy}^{(3)}$ . Le faisceau sonde est toujours polarisé verticalement et la polarisation non linéaire suivant celui-ci s'écrit alors :

$$p_x^{(3)}(z,t) = \frac{3\varepsilon_0\chi^{(3)}}{4} A_s(z,t) |A_p(z,t-u)|^2. \quad (9)$$

La mesure du signal se fait sur la phase du faisceau sonde. En faisant l'approximation qu'il n'y a pas de couplage spatio-temporel, on peut écrire l'expression du champ sonde sous la forme suivante :

$$A_s(z,\eta) = \rho_s(z,\eta) e^{i\varphi_s(z,\eta)}. \quad (10)$$

Le remplacement de cette expression dans l'équation de propagation tenant compte de l'aspect transverse du faisceau sachant que  $\chi^{(3)} = \alpha - i\beta$  nous donne le système d'équations couplées suivant :

$$\begin{cases} (\partial_x^2 + \partial_y^2) \rho_s - [(\partial_x \varphi_s)^2 + (\partial_y \varphi_s)^2] \rho_s + 4k(\omega_0) \rho_s \partial_z \varphi_s = -\frac{3k_0^2}{4} \rho_s \alpha |A_p(r,z,\eta-u)|^2 \\ 2(\partial_x \rho_s \partial_x \varphi_s + \partial_y \rho_s \partial_y \varphi_s) + \rho_s (\partial_x^2 + \partial_y^2) \varphi_s - 4k(\omega_0) \partial_z \rho_s = \frac{3k_0^2}{4} \rho_s \beta |A_p(r,z,\eta-u)|^2 \end{cases} \quad (11)$$

où  $\partial_x = \frac{\partial}{\partial x}, \partial_y = \frac{\partial}{\partial y}, \partial_z = \frac{\partial}{\partial z}$ .

Contrairement au cas de l'expérience pompe sonde colinéaire dégénérée, le système d'équations à résoudre ne se prête pas à la prise en compte de la structure transverse des faisceaux. Ces équations n'ont pas de solution de forme analytique et, devant la complexité de celles-ci, il est plus simple d'adopter une résolution en ondes planes. D'autant plus qu'à faible puissance, l'erreur commise avec un traitement en ondes planes n'est que de quelques pourcent<sup>11</sup>. En supprimant le terme transverse, l'équation de propagation s'écrit alors :

$$-2ik(\omega_0) \left( \frac{\partial A_s(z,t)}{\partial z} + \frac{dk}{d\omega} \bigg|_{\omega_0} \frac{\partial A_s(z,t)}{\partial t} \right) = -\mu_0 \omega_0^2 p_{nl}^{(3)}(z,t). \quad (12)$$

La résolution de cette équation dans le repère de l'impulsion sonde nous permet de sortir la phase introduite par l'échantillon sur le faisceau sonde (cf. complément IV.C.). Après intégration spatio-temporelle des champs  $\rho_s^2(z,\eta) \rho_p^2(z,\eta-u)$ , la différence d'intensité  $\Delta I \approx I_0 \phi_{NL}$  s'écrit :

$$d\Delta I(z,u) = a_s^2 a_p^2 \frac{\pi}{2} \frac{3k_0}{4n_0} \alpha \frac{1}{w_p^2(z) + w_s^2(z)} \int_{-\infty}^{\infty} \delta_s^2(\eta) \delta_p^2 \left( \eta + z \frac{v_p - v_s}{v_p v_s} - u \right) d\eta dz \quad (13)$$

où les significations des variables sont :

- $\tau_p$  : largeur temporelle de l'impulsion pompe
- $\tau_s$  : largeur temporelle de l'impulsion sonde
- $w_p$  : taille du col du faisceau pompe
- $w_s$  : taille du col du faisceau sonde
- $\lambda_p$  : longueur d'onde de la pompe
- $\lambda_s$  : longueur d'onde de la sonde

- $v_p$  : vitesse de groupe de l'impulsion pompe dans l'échantillon
- $v_s$  : vitesse de groupe de l'impulsion sonde dans l'échantillon
- $u$  : retard entre les impulsions pompe et sonde
- $k_0$  : vecteur d'onde du champ sonde
- $n_0$  : indice de réfraction linéaire à la longueur d'onde du faisceau sonde
- $\alpha$  : partie réelle de la susceptibilité non linéaire du troisième ordre.

Dans cette expression tout à fait générale du signal interférométrique (en traitement ondes planes), se pose l'ambiguïté du sens d'intégration sur la variable temporelle  $\eta$  et sur la variable spatiale  $z$  ; ambiguïté qui ne se pose pas dans le cas d'une expérience non dégénérée car, étant à la fois dans le référentiel de la pompe et de la sonde, on peut permuter les deux intégrales sans en changer le résultat. Dans le cas dégénéré, le résultat de l'intégration diffère suivant que l'on intègre d'abord par rapport à  $\eta$  ou par rapport à  $z$ . Physiquement, on doit sommer toutes les phases accumulées dans chaque tranche  $dz$  de l'échantillon, il faut donc intégrer d'abord en temps puis en espace sur toutes les tranches  $dz$  de l'échantillon. Pour une forme temporelle gaussienne de l'impulsion, la première intégration est analytique et donne :

$$\int_{-\infty}^{\infty} \delta_s^2(\eta) \delta_p^2 \left( \eta + z \frac{v_p - v_s}{v_p v_s} - u \right) d\eta = \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\tau_p^2} + \frac{1}{\tau_s^2}}} \exp \left( -2 \frac{[u v_p v_s - (v_p - v_s) z]^2}{v_p^2 v_s^2 (\tau_p^2 + \tau_s^2)} \right) \quad (14)$$

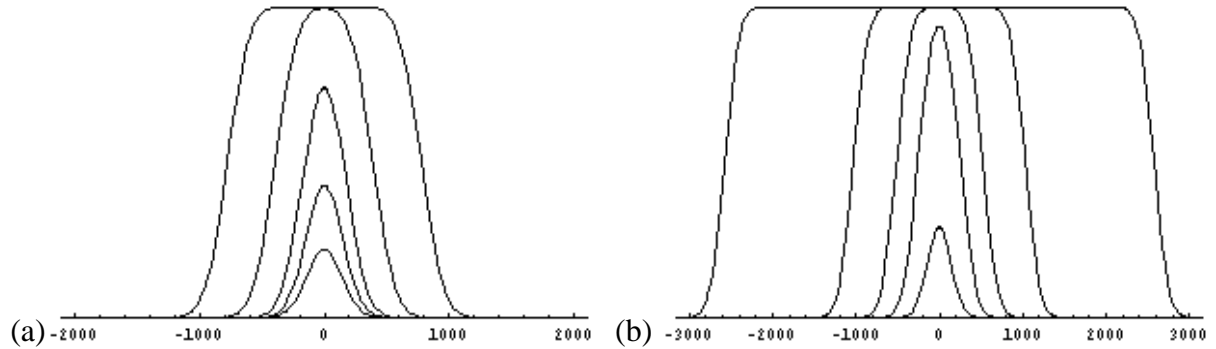
La deuxième intégration suivant  $z$  n'est plus analytique en raison de la présence de cette variable dans l'exponentielle. Le traitement du signal étant en ondes planes, commençons par calculer l'évolution du signal dans ce cas ; cela revient à intégrer l'expression précédente suivant  $z$  en omettant le terme  $\frac{1}{w_p^2(z) + w_s^2(z)}$  qui rend compte de

l'extension spatiale gaussienne des faisceaux. On obtient alors l'évolution en unité relative du signal le long de la propagation :

$$S(u) \propto \frac{\pi \sqrt{\tau_p^2 + \tau_s^2} v_p v_s}{4(v_s - v_p) \sqrt{\frac{1}{\tau_p^2} + \frac{1}{\tau_s^2}}} \left[ \text{Erf} \left( \frac{2u v_p v_s + (v_s - v_p) l}{\sqrt{2} v_p v_s \sqrt{\tau_p^2 + \tau_s^2}} \right) - \text{Erf} \left( \frac{2u v_p v_s - (v_s - v_p) l}{\sqrt{2} v_p v_s \sqrt{\tau_p^2 + \tau_s^2}} \right) \right] \quad (15)$$

Malgré l'approximation grossière, la forme du signal montré en Figure 4 sur deux exemples de matériaux différents permet de bien voir les effets de la dispersion. Au grand écart de longueur d'onde entre les faisceaux pompe et sonde correspond une différence de vitesse de groupe entre les deux impulsions assez importante. Cette-ci va jouer le rôle de retard optique intrinsèque supplémentaire par rapport au retard optique contrôlé par l'expérimentateur. A chaque position du retard va correspondre un point de croisement des impulsions pompe et sonde dans l'échantillon. L'expérimentateur peut donc explorer tous les points de croisement sur toute la longueur de l'échantillon. Suivant la différence de vitesse de groupe, les impulsions pompe et sonde vont se propager ensemble sur une certaine longueur ou zone de cohérence. Si l'échantillon est assez long, toute la zone de cohérence sera couverte et le déphasage sera maximum (le signal a alors un plateau autour du retard zéro), par contre

si l'échantillon n'est pas assez long, le déphasage ne s'accumulera que sur la longueur de l'échantillon.

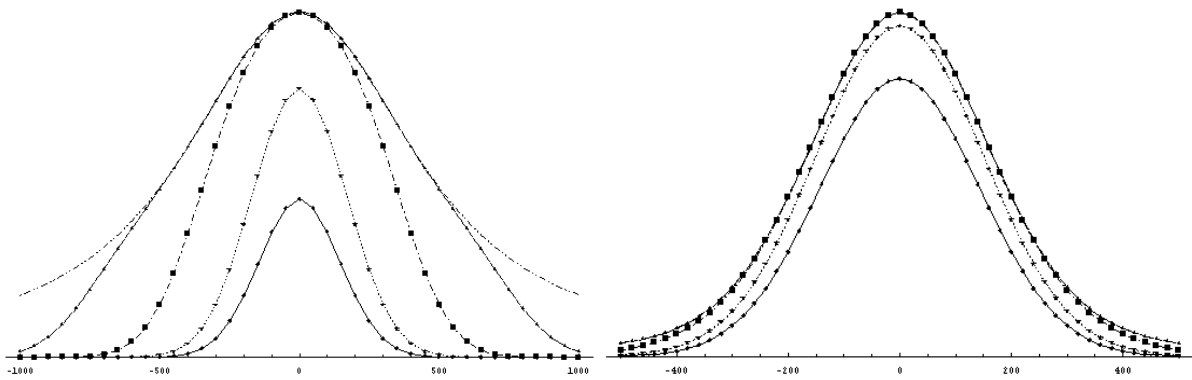


**Figure 4 :** Signal non linéaire dans l'approximation ondes planes pure (les faisceaux n'ont pas de col). L'axe des abscisses est gradué en fs.

La figure (a) est une simulation sur de la silice fondue pour des longueurs de 0,5mm – 1mm – 2mm – 5mm – 10mm.

La figure (b) est une simulation sur du SF6 pour des longueurs de 0,1mm – 0,5mm – 1mm – 2mm – 5mm – 10mm.

Naturellement, la forme de ces signaux va être aussi affectée par la nature gaussienne des impulsions. L'échantillon étant centré autour du col des faisceaux (en supposant que les cols des deux faisceaux soient confondus ce qui n'est pas le cas), on voit bien que le signal sera plus faible lorsque le point de coïncidence sera soit au début soit à la sortie de l'échantillon, (c'est à dire pour des retards  $u$  loin de zéro) et maximal lorsque ce point de croisement sera au niveau du col des deux faisceaux. Pour tenir compte de la nature gaussienne des faisceaux (malgré un traitement initial ondes planes), on doit introduire le terme  $\frac{1}{w_p^2(z) + w_s^2(z)}$  puis intégrer numériquement l'expression.



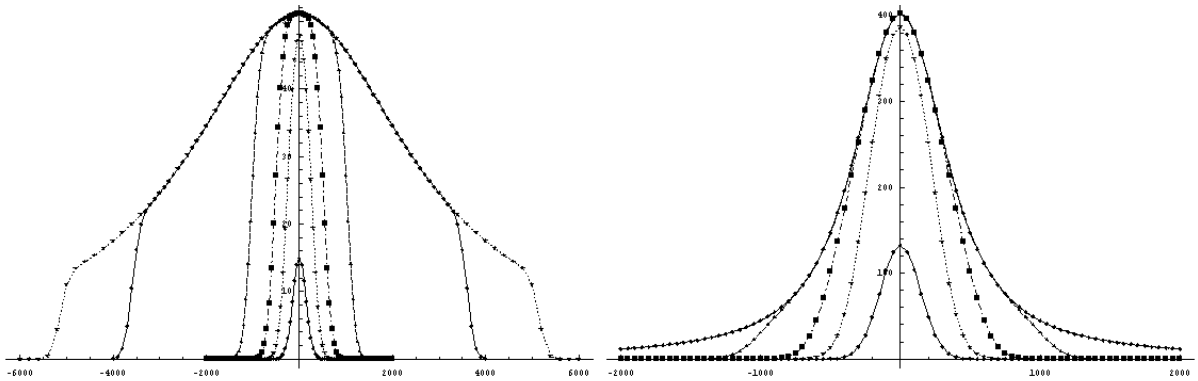
**Figure 5 :** Simulation numérique du signal de déphasage non linéaire en faisceaux gaussiens sur de la silice fondue. Les paramètres des faisceaux sont pris égaux à :  $\tau_s = 210\text{ fs}$ ,  $\tau_p = 180\text{ fs}$ ,  $\lambda_p = 0,8\mu\text{m}$ ,

$\lambda_s = 0,4\mu\text{m}$ . L'axe des abscisses est gradué en fs.

La première simulation est réalisée pour des tailles de col de faisceaux de :  $w_s = 15\mu\text{m}$  et  $w_p = 30\mu\text{m}$  et pour des longueurs d'échantillon de 0,5mm – 1mm – 2mm – 5mm – 10mm

La deuxième simulation est réalisée pour des tailles de col de faisceaux de :  $w_s = 5\mu\text{m}$  et  $w_p = 10\mu\text{m}$  et pour des longueurs d'échantillon de 0,5mm – 1mm – 2mm – 5mm – 10mm

La simulation numérique avec des faisceaux gaussiens montrent également une saturation du déphasage au retard zéro à partir d'une certaine distance de propagation. Mais contrairement au cas purement ondes planes, la saturation en forme de plateau est modulée de manière lorentzienne. On prend alors en compte dans cette modulation la nature gaussienne des faisceaux (cf. Figure 5 et Figure 6). Plus les tailles des cols des faisceaux sont petites (et en particulier la taille du col du faisceau bleu que le faisceau pompe va balayer) plus le signal sera étroit et important en amplitude. Un cas amusant est celui du SF6 pour des tailles des cols des faisceaux moyennes. On voit bien sur la Figure 6 que le plateau prend une forme lorentzienne mais pour des longueurs d'échantillons pas trop importantes, apparaît une rupture de pente due à la dispersion du verre.



**Figure 6 : Simulation numérique du signal de déphasage non linéaire en faisceaux gaussiens sur du SF6. Les paramètres des faisceaux sont pris égaux à :  $\tau_s = 210 fs$ ,  $\tau_p = 180 fs$ ,  $\lambda_p = 0,8\mu m$ ,  $\lambda_s = 0,4\mu m$ .**

*L'axe des abscisses est gradué en fs.*

*La première simulation est réalisée pour des tailles de col de faisceaux de :  $w_s = 15\mu m$  et  $w_p = 30\mu m$  et pour des longueurs d'échantillon de 0,1mm – 0,5mm – 1mm – 2mm – 5mm*

*La deuxième simulation est réalisée pour des tailles de col de faisceaux de :  $w_s = 5\mu m$  et  $w_p = 10\mu m$  et pour des longueurs d'échantillon de 0,1mm – 0,5mm – 1mm – 2mm – 5mm*

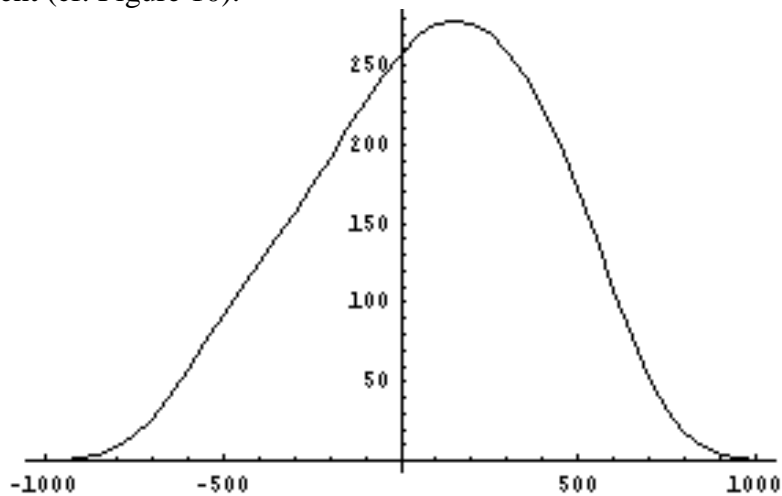
Un dernier sujet à prendre en compte dans cette étude théorique correspond à la chromaticité de lentille de focalisation. Non seulement les tailles des faisceaux ne sont pas identiques mais également la focale de la lentille donc la position des cols de faisceaux dans l'échantillon. Si comme on l'a vu plus haut, il est très difficile de résoudre complètement les équations de propagation en prenant en compte la diffraction, on peut néanmoins se donner une idée de ce décalage en le rajoutant, de manière phénoménologique, dans les expressions

des profils spatiaux des faisceaux. Dans ce cas le terme  $\frac{1}{w_p^2(z) + w_s^2(z)}$  s'écrit :

$$\frac{1}{w_p^2(z) + w_s^2(z)} = \frac{1}{w_p^2 \left( 1 + \frac{\lambda_p z}{\pi w_p^2} \right)^2 + w_s^2 \left( 1 + \frac{\lambda_s (z - \delta f)}{\pi w_s^2} \right)^2} \quad (16)$$

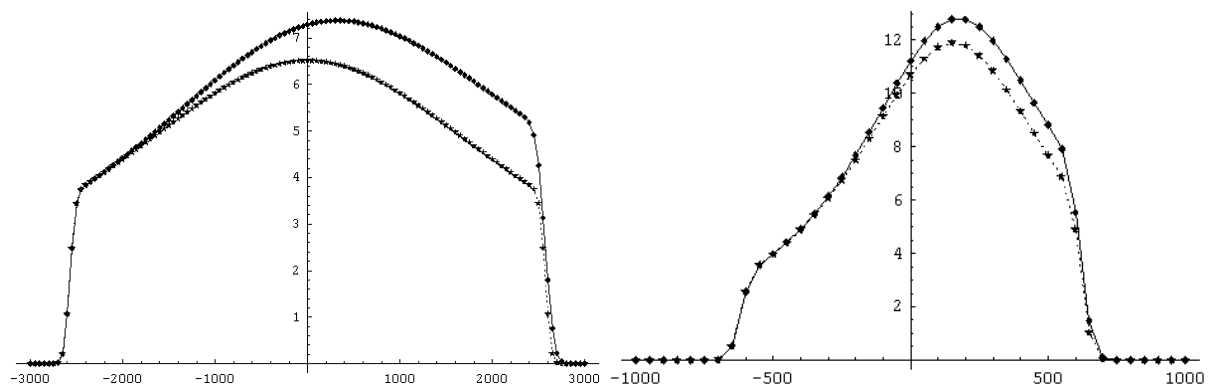


où  $\delta f$  est l'écart entre le col du faisceau pompe et le col du faisceau sonde. La Figure 7 montre la simulation d'un signal de déphasage sur un échantillon de silice fondue. La lentille de focalisation est une lentille de focale environ 50mm en silice fondue également. Ce décalage des positions des cols rend le signal dissymétrique. Ce résultat a été observé expérimentalement (cf. Figure 10).



**Figure 7 :** Signal non linéaire de déphasage sur de la silice fondue de 8mm d'épaisseur en prenant en compte la chromaticité de la lentille. Ainsi, il y a un écart d'environ 2mm entre les positions des cols des faisceaux pompe et sonde. Le signal devient dissymétrique. L'axe des abscisses est gradué en fs.

Naturellement, la dispersion au deuxième ordre est également présente dans la propagation des faisceaux. Néanmoins, celle-ci influence beaucoup moins le signal que la différence de vitesse de groupe (DVG). Elle va avoir pour effet d'élargir temporellement les faisceaux pompe et sonde de manière différente au cours de la propagation.



**Figure 8 :**

– Courbes de gauche : Comparaison de deux simulations numériques réalisées sur un échantillon de SF6 de 5mm d'épaisseur sans prise en compte de la dispersion de second ordre et avec prise en compte de la dispersion du second ordre. La chromaticité de la lentille de focalisation n'est pas prise en compte. La largeur temporelle initiale du faisceau pompe (rouge) est de 60fs et celle de la sonde (bleu) de 80fs.

– Courbes de droite : Comparaison de deux simulations numériques réalisées sur un échantillon de silice de 8mm d'épaisseur sans prise en compte de la dispersion de second ordre et avec prise en compte de la dispersion du second ordre. La chromaticité de la lentille de focalisation est également prise en compte. La largeur temporelle initiale du faisceau pompe (rouge) est de 30fs et celle de la sonde (bleu) de 50fs. Les axes des abscisses est fs pour tous les graphes. Les axes des ordonnées sont en unité arbitraire.

L'évolution du signal lorsque l'on tient compte de la dispersion au second ordre est un peu plus compliquée. Au cours de la propagation, deux processus entrent en compétition pour l'évolution de l'amplitude du signal. D'une part, les faisceaux pompe et sonde s'élargissent temporellement. Cela accroît la zone d'interaction entre les deux impulsions et favorise alors l'amplitude du signal. D'autre part, comme les faisceaux s'élargissent, ils perdent alors de la puissance crête d'où une diminution du signal. Toutefois, l'impulsion bleue s'élargit beaucoup plus vite que l'impulsion rouge. Le processus d'augmentation du signal avec l'allongement de la zone de cohérence va alors être beaucoup plus important que la perte de puissance crête de l'impulsion pompe qui est responsable du déphasage non linéaire. Le graphe gauche de la Figure 8 montre bien que pour de petits retards, l'amplitude du signal n'est pas modifiée et qu'au fur et à mesure de la propagation, l'amplitude augmente. Elle pourrait augmenter jusqu'à la fin de l'échantillon, mais la taille du faisceau corrige cette amplitude de sorte que l'amplitude maximum du signal est décalée par rapport à un signal ne prenant pas en compte la dispersion. Sur la courbe droite est représenté un signal sur de la silice fondue pour des impulsions ultra courtes auquel a été ajouté la chromaticité de la lentille de focalisation. Sans dispersion, le signal est décalé par rapport au retard zéro à cause des positions différentes des cols des deux faisceaux. Avec dispersion, l'amplitude du signal devient un peu plus importante et le maximum est décalé un peu plus vers les retards positifs. Il faut tout de même noter de ces simulations ont été réalisées avec des impulsions très courtes et que dans le cas de l'utilisation d'impulsions de durée supérieure à 100fs, la dispersion du second ordre peut être négligée.

Le signal interférométrique s'accroît à mesure que l'épaisseur de l'échantillon augmente jusqu'à un maximum. Ce signal atteint une limite liée à la différence de vitesse de groupe entre les deux faisceaux. Théoriquement, cette limite est maximale pour une longueur infinie de l'échantillon, mais 99% de cette limite peut être atteinte en général pour une longueur réaliste. On peut considérer qu'à 99% de cette limite, la longueur d'échantillon correspondante est la longueur d'interaction des faisceaux dans l'échantillon. Plus la différence de vitesse de groupe est importante, plus cette longueur d'interaction sera réduite. On peut estimer cette longueur d'interaction (ou longueur de cohérence) que nous appellerons  $L_c$  par simulation numérique autour du retard zéro :

$$dS(z,0) \propto \frac{\exp\left[-2 \frac{(-v_p + v_s)^2 z^2}{v_p^2 v_s^2 (\tau_p^2 + \tau_s^2)}\right]}{w_s^2 (\pi^2 w_p^4 + \lambda_p^2 z^2) + w_p^2 (\pi^2 w_s^4 + \lambda_s^2 z^2)} \quad (17)$$

La Figure 9 montre deux exemples de simulations pour des échantillons de silice fondue et de SF6.

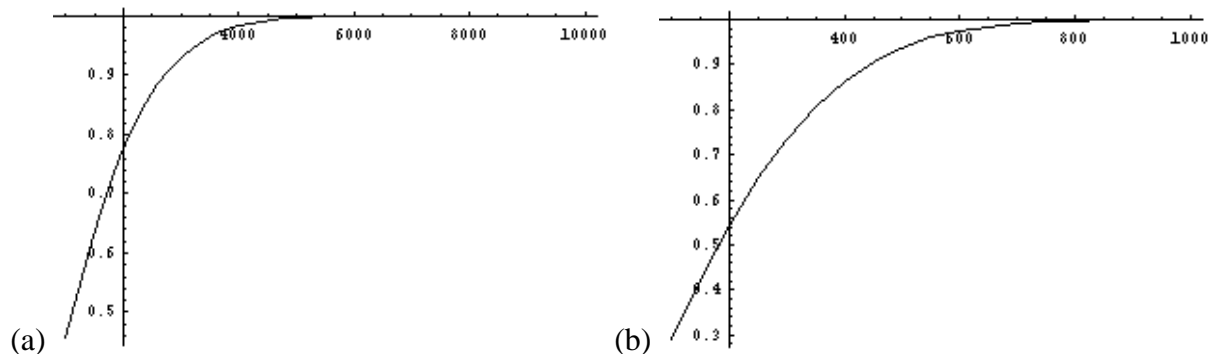


Figure 9 : Simulation numérique de l'évolution du signal de déphasage maximum en fonction de l'épaisseur de l'échantillon pour de la silice fondue (a) et pour du SF6 (b). L'axe des abscisses est gradué en  $\mu\text{m}$ .

Dans le cas de la silice fondue, la longueur de cohérence vaut 4,282mm et dans le cas du SF6 0,691mm.

La mesure de l'indice non linéaire se fait au retard 0 quand l'amplitude du signal de déphasage est maximum. Après normalisation du signal par rapport à l'amplitude de la frange d'interférence, on obtient la valeur de l'indice non linéaire à l'aide de la relation suivante :

$$n_2 = \frac{\aleph \sqrt{\pi} \lambda_s}{8\pi^2 \sqrt{2} n_0^2 P_m T} \frac{1}{\zeta} \quad (18)$$

où  $\aleph$  est la mesure expérimentale de la phase non linéaire en radians

et 
$$\zeta = \sqrt{\frac{\pi}{2}} \int_{-1/2}^{1/2} \frac{w_p^2 w_s^2}{w_s^2 (\pi^2 w_p^4 + \lambda_p^2 z^2) + w_p^2 (\pi^2 w_s^4 + \lambda_s^2 z^2)} G(z, u=0) dz \quad (19)$$

où  $G$  est la fonction d'autocorrélation normalisée déjà rencontrée dans le signal d'absorption transitoire.

$$G(z, u=0) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \delta_s^2(\eta) \delta_p^2 \left( \eta + z \frac{v_p - v_s}{v_p v_s} \right) d\eta}{\left( \int_{-\infty}^{\infty} \delta_s^2(\eta) d\eta \right) \left( \int_{-\infty}^{\infty} \delta_p^2(\eta) d\eta \right)} \quad (20)$$

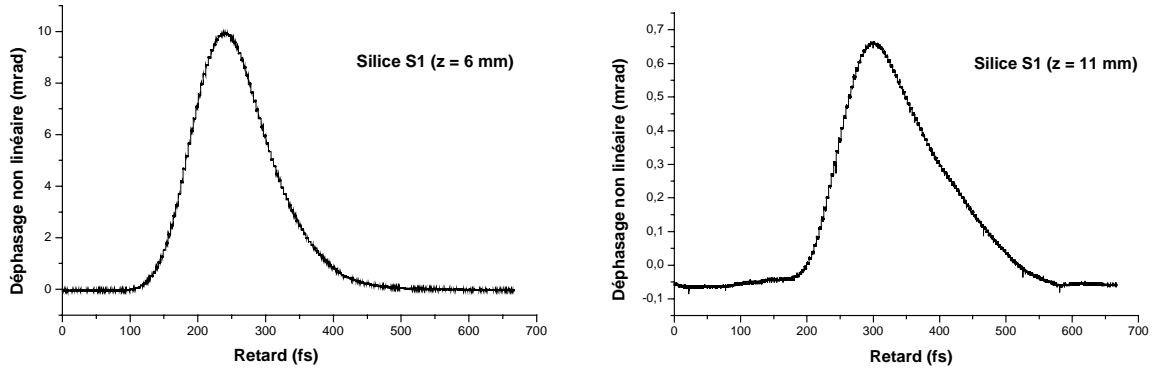
L'intégrale  $\zeta$  est un facteur numérique de pondération calculable à partir des caractéristiques des faisceaux lasers et de l'échantillon. Dans le cas d'impulsions de forme temporelle gaussienne, la fonction  $G$  s'écrit :

$$G(z, u=0) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{1}{\tau_s \tau_p \sqrt{\frac{1}{\tau_p^2} + \frac{1}{\tau_s^2}}} \exp \left( -2 \frac{(v_p - v_s)^2 z^2}{v_p^2 v_s^2 (\tau_p^2 + \tau_s^2)} \right) \quad (21)$$

A l'aide de cette expérience, il est également possible de mesurer la partie imaginaire de la susceptibilité non linéaire ou l'absorption à deux photons. Pour cela, il est nécessaire de couper le faisceau référence dans l'interféromètre de Sagnac et l'on mesure simplement l'intensité du faisceau sonde en fonction du retard  $u$ .

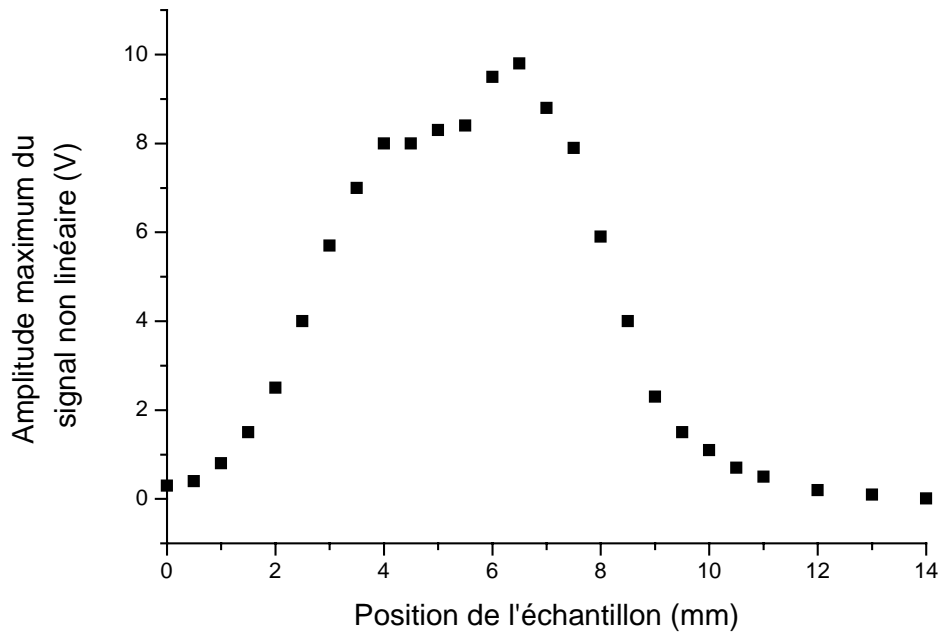
### 3. RESULTATS EXPERIMENTAUX PRELIMINAIRES

La Figure 10 montre une expérience réalisée sur un échantillon de silice fondue de 8mm d'épaisseur pour deux positions, soit au voisinage du col du faisceau soit en dehors du col de celui-ci. On observe bien la dissymétrie attendue due à la chromaticité de la lentille.



*Figure 10 : Signaux de déphasage non linéaire obtenus sur un échantillon de silice S1 (Heraeus) de 8,1mm d'épaisseur autour du col du faisceau ( $z = 6\text{mm}$ ) et en dehors du col du faisceau ( $z = 11\text{mm}$ ). La dissymétrie du signal est due à la dispersion des faisceaux pompe (800nm) et sonde (400nm) durant la propagation dans l'échantillon.*

La chromaticité de la lentille se retrouve également lorsque l'on déplace l'échantillon autour du col du faisceau (cf. Figure 11).



*Figure 11 : Evolution de l'amplitude maximum du signal non linéaire en fonction de la position de l'échantillon autour du col du faisceau (centré vers 6,5mm).*

N'ayant pas mesuré les largeurs temporelles et les tailles des cols des faisceaux au cours de cette expérience, il nous est impossible d'évaluer l'indice non linéaire de la silice. Toutefois, en prenant des valeurs typiques pour les caractéristiques des impulsions lasers, on obtient la valeur suivante :

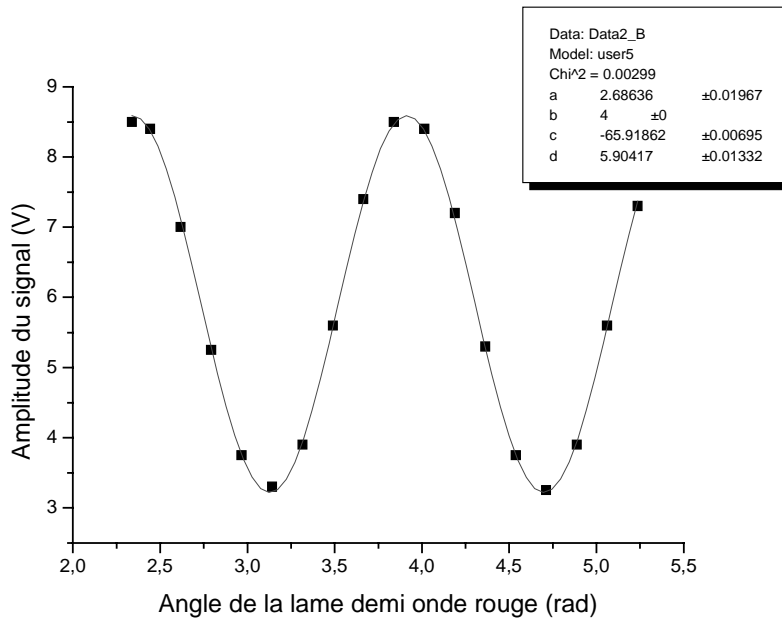
$$\begin{cases} \tau_p = 180 \text{ fs} \\ \tau_s = 200 \text{ fs} \\ w_p = 60 \mu\text{m} \Rightarrow n_2(\omega, 2\omega) \approx 2,8 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W} \\ w_s = 40 \mu\text{m} \\ P_m = 820 \text{ mW} \end{cases}$$

Cette valeur est tout à fait en accord avec l'ordre de grandeur de la non linéarité habituelle de la silice.

Cette expérience permet également de faire des mesures de la susceptibilité non linéaire du troisième ordre en fonction de la polarisation du faisceau. Ainsi, sur un matériau isotrope et hors résonance (comme sur la silice fondue), on peut vérifier la relation de symétrie de Kleimann :

$$\chi_{yyyy}^{(3)} / \chi_{yyxx}^{(3)} = 3. \quad (22)$$

L'expérience faite sur la silice fondue nous donne un rapport de 2,66 au lieu de 3 (cf. Figure 12). Cette différence peut être due au faisceau sonde qui n'est pas bien polarisé. En effet, afin d'éliminer des déphasages parasites introduit dans l'interféromètre de Sagnac par un élément d'optique, on est obligé de compenser ce déphasage par une rotation de la lame quart onde. Cela a pour effet de donner au faisceau sonde une polarisation légèrement elliptique. C'est la raison de cette différence dans le rapport. Une des manières d'améliorer ce résultat serait de déterminer l'état de polarisation des deux ondes de façon précise au niveau de l'échantillon.



**Figure 12 : Evolution de l'amplitude maximum du signal de déphasage non linéaire en fonction de la polarisation du faisceau pompe (donnée par l'angle d'inclinaison de la lame demi-onde) sachant que la polarisation du faisceau sonde est verticale et que la polarisation de la pompe est également verticale pour un angle de la lame demi-onde de 2,3 rad. Un ajustement sinusoïdal nous donne alors un rapport  $\chi_{yyyy}^{(3)} / \chi_{yyxx}^{(3)}$  égale à 2,66 au lieu de 3 théoriquement pour un milieu isotrope hors résonance.**

Cette expérience est en cours de développement et c'est la raison pour laquelle nous n'avons pas encore beaucoup de résultats. Un essai de mesure sur un échantillon de SF6 assez

épais de 1cm nous a permis d'enregistrer le signal en raison d'une ligne à retard trop courte, mais nous a permis néanmoins d'obtenir un signal de déphasage non linéaire supérieure à  $\pi$ , ce qui est tout à remarquable pour ce genre de verre. Une simple estimation de l'indice non linéaire nous donnerait alors une valeur supérieure à  $4.10^{-17} \text{ m}^2/\text{W}$  soit un rapport supérieur à 1400 par rapport à la silice. Sachant que dans des mesures dégénérées, ce rapport vaut environ 20, il y a de quoi être surpris par un signal d'une telle importance observable à l'œil nu à l'aide d'un modulateur mécanique tournant à faible fréquence. Une raison simple à ce phénomène est le fait que la longueur d'onde du faisceau sonde est très proche de la fréquence de coupure (et donc de la résonance) du matériau. Dans ce cas, nous ne sommes plus dans les conditions de travail hors résonance définies au départ, et notre modèle n'est plus valide.

### C . Complément IV.1. : Calcul du déphasage d'un interféromètre de Sagnac en rotation

Considérons un interféromètre de Sagnac (fibré) de forme circulaire. Soit  $\Omega$  la vitesse de rotation angulaire de l'interféromètre.

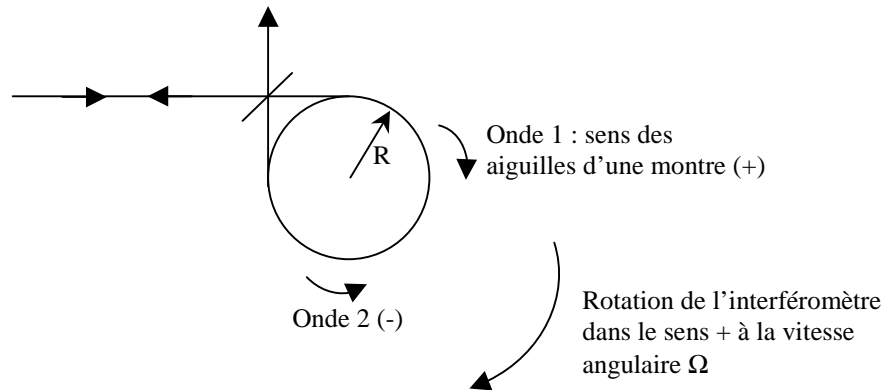


Figure 13 : Interféromètre de Sagnac circulaire. Conventions sur les sens de rotation.

Pour une vitesse angulaire nulle, la lumière met un temps  $T$  pour faire le tour complet.

$$T = \frac{2\pi R}{c}. \quad (23)$$

L'onde 1 se propageant dans le sens de rotation de l'interféromètre parcourt plus de chemin que la circonférence du Sagnac :  $cT^+ = 2\pi R + R\Omega T^+$ .

Les temps de parcours de l'onde 1 et 2 sont respectivement :

$$T^+ = \frac{2\pi R}{c - R\Omega} \text{ et } T^- = \frac{2\pi R}{c + R\Omega}. \quad (24)$$

La différence de marche entre les faisceaux vaut donc :

$$T^+ - T^- = \Delta T = \frac{4\pi R^2 \Omega}{c^2 - R^2 \Omega^2} \approx \frac{4S\Omega}{c^2} \text{ où } S \text{ est la surface délimitée par la cavité.}$$

Soit un déphasage de :

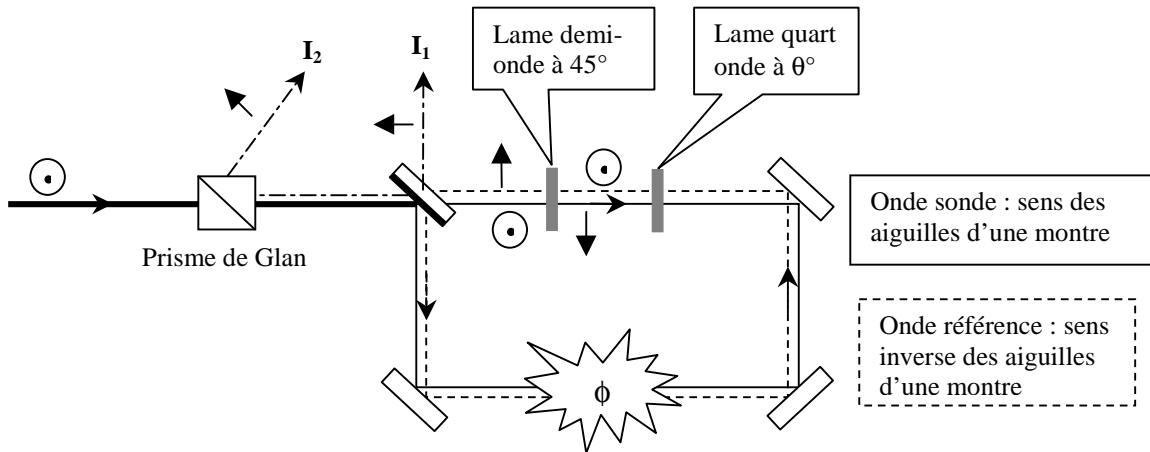
$$\varphi = \frac{2\pi}{\lambda} c \Delta T = \frac{8\pi S \Omega}{\lambda c} \quad (25)$$

Pour une cavité d'une surface de 1 m<sup>2</sup>, le déphasage maximal dû à la rotation de la Terre est environ égal à 0,01 mrad à la longueur d'onde du laser He-Ne.

## D. Complément IV.2. : Calcul des intensités de sorties du Sagnac modifié

Pour ce calcul, nous allons utiliser le formalisme des vecteurs de Jones. Le champ incident polarisé horizontalement est représenté par le vecteur :

$$E_i = \begin{pmatrix} E_0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (26)$$



Les matrices des éléments de polarisation s'écrivent :

$M(\lambda/2(45^\circ)) = M_2 = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$  est la matrice de la lame demi-onde tournée d'un angle de 45° par rapport à ces lignes neutres.

$$M(\lambda/4(\theta^\circ)) = M_4 = \begin{pmatrix} \cos^2 \theta \exp\left(i\frac{\pi}{4}\right) + \sin^2 \theta \exp\left(-i\frac{\pi}{4}\right) & i\sqrt{2} \cos \theta \sin \theta \\ i\sqrt{2} \cos \theta \sin \theta & \cos^2 \theta \exp\left(-i\frac{\pi}{4}\right) + \sin^2 \theta \exp\left(i\frac{\pi}{4}\right) \end{pmatrix} \quad (27)$$

est la matrice de la lame quart onde tournée d'un angle  $\theta$  par rapport à ces lignes neutres.

$M(\text{Réflexion séparatrice}) = M_\pi = \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$  est la matrice rapportant le déphasage  $\pi$  dû à la réflexion d'un faisceau sur l'interface air verre de la séparatrice.

$M(\text{Glan}(90^\circ)) = M_g = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$  est la matrice du polariseur de Glan incliné à 90°.

Le déphasage ne perturbe que l'onde sonde parcourant la cavité dans le sens des aiguilles d'une montre. Donc par le changement de polarisation de la lame demi-onde, le déphasage ne porte que sur la polarisation verticale.

$M$  (Déphasage non linéaire) =  $M_\phi = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{i\phi_{NL}} \end{pmatrix}$  est la matrice traduisant le déphasage non linéaire apporté au faisceau sonde par rapport au faisceau référence.

En appliquant le formalisme pratique des vecteurs de Jones, on peut calculer facilement les champs  $E_1$  et  $E_2$  sortant de l'interféromètre de Sagnac.

Le champ  $E_1$  à la sortie de la séparatrice s'écrit :

$$E_1 = \underbrace{M_\phi \cdot M_4 \cdot M_2}_{\text{transmis}} \cdot \begin{pmatrix} E_0/2 \\ 0 \end{pmatrix} + \underbrace{M_2 \cdot M_4 \cdot M_\pi}_{\text{réfléchi}} \cdot \begin{pmatrix} E_0/2 \\ 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ \frac{E_0}{2\sqrt{2}} [-1 + e^{i\phi_{NL}} - i(1 + e^{i\phi_{NL}})\cos(2\theta)] \end{pmatrix}. \quad (28)$$

Le champ  $E_2$  à la sortie du prisme de Glan s'écrit :

$$E_2 = \underbrace{M_g \cdot M_\pi \cdot M_\phi \cdot M_4 \cdot M_2}_{\text{transmis}} \cdot \begin{pmatrix} E_0/2 \\ 0 \end{pmatrix} + \underbrace{M_g \cdot M_2 \cdot M_4 \cdot M_\pi}_{\text{réfléchi}} \cdot \begin{pmatrix} E_0/2 \\ 0 \end{pmatrix} \\ = \begin{pmatrix} 0 \\ \frac{(-1)^{3/4} E_0}{4} (1+i) [1 + e^{i\phi_{NL}} - i(-1 + e^{i\phi_{NL}})\cos(2\theta)] \end{pmatrix} \quad (29)$$

On en déduit les expressions des intensités :

$$I_1 = \frac{E_0^2}{4} \{ 1 - \cos\phi_{NL} + [1 + \cos\phi_{NL}] \cos^2(2\theta) - 2 \cos(2\theta) \sin\phi_{NL} \} \underset{\theta=0}{=} \frac{I_0}{2} (1 - \sin\phi_{NL}) \quad (30)$$

$$I_1(\phi_{NL} = 0) = \frac{I_0}{2} \cos^2(2\theta) \quad (31)$$

$$I_2 = \frac{E_0^2}{4} \{ 1 + \cos\phi_{NL} - [-1 + \cos\phi_{NL}] \cos^2(2\theta) + 2 \cos(2\theta) \sin\phi_{NL} \} \underset{\theta=0}{=} \frac{I_0}{2} (1 + \sin\phi_{NL}) \quad (32)$$

$$I_2(\phi_{NL} = 0) = \frac{I_0}{2}, \quad \forall \theta. \quad (33)$$

On peut remarquer ici que l'intensité  $I_2$  ne varie pas en fonction de l'angle de rotation de la lame quart onde. La raison est que quand la lame n'est pas tournée suivant ses lignes neutres ( $\theta = 0^\circ$ ), une partie du faisceau retourne vers le laser avec une intensité :

$$I_{\text{retour vers laser}}(\phi_{NL} = 0) = \frac{I_0}{2} \sin^2(2\theta). \quad (34)$$

Et enfin la différence entre les intensités  $I_1$  et  $I_2$  est donnée par :

$$\Delta I = |I_1 - I_2| = \frac{I_0}{2} [\cos\phi_{NL} \sin^2(2\theta) + 2 \sin\phi_{NL} \cos(2\theta)] \underset{\theta=0}{=} I_0 \sin\phi_{NL} \approx I_0 \phi_{NL} \quad (35)$$



$$\Delta I(\phi_{NL} = 0) = \frac{I_0}{2} \sin^2(2\theta). \quad (36)$$

### E. Complément IV.3. : Calcul du signal de déphasage non linéaire en ondes planes

L'équation de propagation écrite en ondes planes s'écrit pour l'amplitude du champ sonde suivant :

$$-2ik(\omega_0) \left( \frac{\partial A_s(z,t)}{\partial z} + \frac{dk}{d\omega} \Big|_{\omega_0} \frac{\partial A_s(z,t)}{\partial t} \right) = -\mu_0 \omega_0^2 p_{nl}^{(3)}(z,t). \quad (37)$$

On fait un changement de variable pour se placer dans le référentiel de l'impulsion sonde :

$$\eta = z - \frac{t}{v_s} \quad \text{où} \quad v_s = \frac{dk}{d\omega} \Big|_{\omega_0}. \quad (38)$$

L'équation devient alors :

$$\frac{\partial A_s(z,\eta)}{\partial z} = -i \frac{3k_0}{4n_0} \chi^{(3)} A_s(z,\eta) |A_p(z,\eta-u)|^2 \quad (39)$$

où  $\chi^{(3)} = \alpha - i\beta$  représente l'écriture de la susceptibilité non linéaire du troisième ordre. En écrivant l'amplitude du champ sonde suivant :

$$A_s(z,\eta) = \rho_s(z,\eta) e^{i\varphi_s(z,\eta)}. \quad (40)$$

L'équation de propagation se transforme en deux équations non couplées sur l'amplitude et la phase du champ sonde :

$$\begin{cases} \frac{1}{\rho_s(z,\eta)} \frac{\partial \rho_s(z,\eta)}{\partial z} = -\frac{3k_0}{4n_0} \beta \rho_p^2(z,\eta-u) \\ \frac{\partial \varphi_s(z,\eta)}{\partial z} = -\frac{3k_0}{4n_0} \alpha \rho_p^2(z,\eta-u) \end{cases} \quad (41)$$

Dans le cas de l'interféromètre de Sagnac, il faut déterminer la phase accumulée par le faisceau sonde dans l'échantillon, soit à résoudre la deuxième équation. Pour résoudre l'équation, on prendra un modèle gaussien en espace et en temps pour les impulsions pompe et sonde. Si ce modèle est quasiment toujours vérifié sur la forme spatiale des faisceaux, ce n'est pas toujours le cas dans le domaine temporel. Néanmoins, ce modèle facilite grandement les calculs. Par contre, étant donnée la nature non dégénérée de l'expérience, les deux impulsions n'ont pas du tout les mêmes caractéristiques et à chaque faisceau correspondront ses paramètres dont voici les notations :

- $\tau_p$  : largeur temporelle de l'impulsion pompe
- $\tau_s$  : largeur temporelle de l'impulsion sonde
- $w_p$  : taille du col du faisceau pompe
- $w_s$  : taille du col du faisceau sonde
- $\lambda_p$  : longueur d'onde de la pompe
- $\lambda_s$  : longueur d'onde de la sonde

- $v_p$  : vitesse de groupe de l'impulsion pompe dans l'échantillon
- $v_s$  : vitesse de groupe de l'impulsion sonde dans l'échantillon.

Dans le référentiel de l'impulsion sonde, l'amplitude de l'impulsion sonde s'écrit alors :

$$\rho_s^2(z, \eta) = a_s^2 \frac{\exp\left(-2 \frac{r^2}{w_s^2(z)}\right)}{w_s^2(z)} \delta_s^2(\eta). \quad (42)$$

Dans le référentiel de l'impulsion pompe, l'amplitude de l'impulsion pompe retardée de  $u$  s'écrit :

$$\rho_p^2(z, t-u) = a_p^2 \frac{\exp\left(-2 \frac{r^2}{w_p^2(z)}\right)}{w_p^2(z)} \delta_p^2(t-u), \quad (43)$$

soit après passage dans le référentiel de l'impulsion sonde :

$$\rho_p^2(z, \eta-u) = a_p^2 \frac{\exp\left(-2 \frac{r^2}{w_p^2(z)}\right)}{w_p^2(z)} \delta_p^2\left(\eta + z \frac{v_p - v_s}{v_p v_s} - u\right). \quad (44)$$

L'expression de ces champs peut être remplacée dans l'équation gouvernant la phase du faisceau sonde :

$$d\varphi_s(z, \eta) = -\frac{3k_0}{4n_0} \alpha \rho_p^2(z, \eta-u) dz. \quad (45)$$

Le signal de différence en intensité des deux voies de sorties s'écrivant :

$$\Delta I \approx I_0 \phi_{NL} \quad (46)$$

alors l'écriture du signal peut prendre ici plusieurs formes suivant la méthode d'intégration :

$$\Delta I \propto \int_{-l/2}^{l/2} \rho_s^2(z, \eta) \rho_p^2(z, \eta-u) dz \quad (47)$$

$$\Delta I \propto \rho_s^2(-l/2, \eta) \int_{-l/2}^{l/2} \rho_p^2(z, \eta-u) dz \quad (48)$$

$$\Delta I \propto \rho_s(-l/2, \eta) \int_{-l/2}^{l/2} \rho_s(z, \eta) \rho_p^2(z, \eta-u) dz. \quad (49)$$

L'ambiguïté sur la formulation à adopter provient du fait qu'étant en formalisme ondes planes, nous prenons tout de même en compte la nature gaussienne des faisceaux. Ce point est discuté dans la thèse de Marc Olivier Martin<sup>12</sup> qui compare l'importance du signal en fonction de la méthode d'intégration choisie et montre que la différence entre les modèles devient négligeable pour un échantillon de longueur inférieure au paramètre confocal. Dans notre cas, nous prendrons la première équation :

$$d\Delta I(r, z, \eta, u) = \rho_s^2(r, z, \eta) \rho_p^2(r, z, \eta-u) \frac{3k_0}{4n_0} \alpha dz. \quad (50)$$

Le signal est calculé en sommant sur des tranches infinitésimales de l'échantillon. Mais tout d'abord, nous effectuons une intégration sur le temps  $\eta$  pour tenir compte de la bande passante de nos détecteurs. L'expression devient :

$$d\Delta I(r, z, u) = a_s^2 \frac{\exp\left(-2\frac{r^2}{w_s^2(z)}\right)}{w_s^2(z)} a_p^2 \frac{\exp\left(-2\frac{r^2}{w_p^2(z)}\right)}{w_p^2(z)} \frac{3k_0}{4n_0} \alpha \int_{-\infty}^{\infty} \delta_s^2(\eta) \delta_p^2\left(\eta + z \frac{v_p - v_s}{v_p v_s} - u\right) d\eta dz. \quad (51)$$

La tranche  $dz$  de l'échantillon est ensuite intégrée sur toute sa surface :

$$d\Delta I(z, u) = a_s^2 a_p^2 \frac{\pi}{2} \frac{3k_0}{4n_0} \alpha \frac{1}{w_p^2(z) + w_s^2(z)} \int_{-\infty}^{\infty} \delta_s^2(\eta) \delta_p^2\left(\eta + z \frac{v_p - v_s}{v_p v_s} - u\right) d\eta dz. \quad (52)$$

Ce signal doit être étalonné par rapport à une référence connue afin de se débarrasser des constantes d'efficacité rentrant en jeu dans la détection. En tournant la lame quart onde d'un angle de  $\pi/4$ , on passe sans échantillon d'un signal de différence égal à 0 à un signal égal à  $I_0/2$ . Contrairement à un interféromètre de Mach-Zhender, le Sagnac ne nous permet pas de parcourir toute la frange d'interférence, néanmoins, on sait que l'on parcourt exactement la moitié de la frange soit un déphasage de  $\pi$  qui correspond au signal :

$$\Delta I = I_0 / 2 = \frac{\pi a_s^2}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \delta_s^2(\eta) d\eta \quad (53)$$

après intégration spatiale et temporelle de l'intensité sonde non perturbée.

Au maximum du recouvrement pompe sonde (au retard nul  $u=0$ ), la susceptibilité non linéaire est reliée à la quantité sans dimension :

$$\mathfrak{K} = a_p^2 \alpha \frac{3k_0}{4n_0} \int_{-l/2}^{l/2} \frac{1}{w_p^2(z) + w_s^2(z)} \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \delta_s^2(\eta) \delta_p^2\left(\eta + z \frac{v_p - v_s}{v_p v_s} - u\right) d\eta}{\int_{-\infty}^{\infty} \delta_s^2(\eta) d\eta} dz \quad (54)$$

Connaissant les paramètres des deux faisceaux laser et les caractéristiques de l'échantillon, on peut calculer l'intégrale numériquement qui n'est qu'un facteur de pondération.

On en déduit la formule pour l'indice non linéaire suivante :

$$n_2 = \frac{\mathfrak{K} \lambda_s}{4\pi n_0 P_m T \zeta} \quad (55)$$

avec

$$\zeta = \int_{-l/2}^{l/2} \frac{1}{w_p^2(z) + w_s^2(z)} G(z, u=0) dz \quad (56)$$

où  $G$  est la fonction d'autocorrélation normalisée déjà rencontrée dans le signal d'absorption transitoire.

$$G(z,u) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \delta_s^2(\eta) \delta_p^2 \left( \eta + z \frac{v_p - v_s}{v_p v_s} - u \right) d\eta}{\left( \int_{-\infty}^{\infty} \delta_s^2(\eta) d\eta \right) \left( \int_{-\infty}^{\infty} \delta_p^2(\eta) d\eta \right)}. \quad (57)$$

Dans le cas d'une modélisation gaussienne de la forme temporelle de l'impulsion la fonction  $G(z,u)$  s'écrit :

$$G(z,u) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{1}{\tau_s \tau_p \sqrt{\frac{1}{\tau_p^2} + \frac{1}{\tau_s^2}}} \exp \left( -2 \frac{[v_p v_s u + (-v_p + v_s)z]^2}{v_p^2 v_s^2 (\tau_p^2 + \tau_s^2)} \right). \quad (58)$$

- 
- <sup>1</sup> L. Canioni, Thèse de Doctorat de l'Université de Bordeaux I, (1994)
- <sup>2</sup> Ke-Xun Sun, E.K. Gustafson, M.M. Fejer, R.L. Byer, *Opt. Lett.* **22**, N°17, (1997)
- <sup>3</sup> Ke-Xun Sun, M.M. Fejer, E. Gustafson, R.L. Byer, *Phys. Rev. Lett.* **76**, N°17, 3053-3056, (1996)
- <sup>4</sup> D.W. Garvey, Q. Li, M.G. Kuzyk, C.W. Dirk, S. Martinez, *Opt. Lett.* **21**, N°2, (1996)
- <sup>5</sup> Hervé Lefèvre, « The fiber-optic gyroscope », Artech house, Boston-London
- <sup>6</sup> G. Sagnac, *Compte Rendus de l'Académie des Sciences*, Vol. **95**, 708-710, (1913)
- <sup>7</sup> G. Sagnac, *J. de Phys.* **5**, 177, (1914)
- <sup>8</sup> W.M. Macek, D.T.M. Davis, *Appl. Phys. Lett.* **2**, 67-68, (1963)
- <sup>9</sup> R. Trebino, C.C. Hayden, *Opt. Lett.* **16**, N° 7, (1991)
- <sup>10</sup> L. Canioni, *Thèse de Doctorat de l'Université de Bordeaux I*, (1994)
- <sup>11</sup> Marc Olivier Martin, *Thèse de l'université de Bordeaux I*, p. **104**, 15 décembre 1998, N° d'ordre 2010
- <sup>12</sup> Marc Olivier Martin, *Thèse de l'université de Bordeaux I*, p. **70**, 15 décembre 1998, N° d'ordre 2010

## CHAPITRE V

# Résultats : mesure et origine de la susceptibilité non linéaire dans les verres

Au cours de ce travail de thèse, nous avons pu exploiter la plate-forme de métrologie pour des matériaux divers. Dans ce mémoire, nous insisterons principalement sur les points qui mettent en valeur la sensibilité, la nature absolue, la précision et la versatilité de la mesure. En effet, la connaissance des propriétés d'ordre trois sont la clef de beaucoup d'applications des lasers. Si les fortes non linéarités sont à rechercher et à optimiser pour les applications de commutation dans les technologies de l'information, les faibles non linéarités également doivent être comprises et maîtrisées quand on utilise des lasers intenses. Nous avons mesuré tout d'abord des matériaux très faiblement non linéaires tels que les silices et mis en évidence une dispersion très importante de leurs propriétés non linéaires d'ordre trois en fonction de leur préparation. Cette dispersion des matériaux purs, accessible grâce à la sensibilité et à la précision de notre métrologie, est tout à fait inhabituelle en science des matériaux et n'est pas analysable au vu de leurs propriétés bien connues à l'ordre un (l'indice linéaire). Notre étude présente un impact non seulement scientifique et devrait permettre de comprendre les origines de la non linéarité dans ce matériau archétype de l'optique, mais aussi au point de vue industriel car elle devrait permettre d'optimiser les procédés de fabrication pour les éléments des chaînes laser ultra intense (Laser Mega Joule par exemple). Nous avons aussi réussi à mesurer les profils d'indice non linéaires dans des préformes de fibres, ouvrant ainsi la voie à un contrôle de la propagation dans les fibres dopées. De l'autre côté de l'échelle, nous avons pu mesurer des matériaux fortement non linéaires et nous détaillerons comme un exemple les mesures relatives aux verres à base de tellure qui semblent particulièrement prometteurs pour les systèmes fonctionnels en télécommunication tout optique. Nos mesures précises et absolues permettent ici d'effectuer une ingénierie non linéaire liant les propriétés structurales aux propriétés optiques de façon similaire aux travaux effectués avec les matériaux organiques. Enfin, la versatilité de l'approche expérimentale nous a permis d'élucider les processus non linéaires dans les photodiodes, permettant ainsi d'exploiter correctement ces photo-capteurs dans la métrologie d'impulsions ultracourtes.

## A. Etude de la susceptibilité non linéaire de la silice fondue

### 1. INTRODUCTION

La silice fondue est à la base de toute l'instrumentation en optique. Ces caractéristiques bien connues en font un matériau idéal pour la fabrication de lentilles, fenêtres ou substrats de miroirs. Ce matériau est transparent de l'UV jusque dans l'IR. De nombreuses sortes de silices existent sur le marché que l'on peut classer en deux catégories : la silice naturelle et la silice synthétique. La silice naturelle se trouve dans la roche sous différentes formes d'oxydes ou de silicates. Sa forme la plus naturelle est le quartz mais on en trouve dans beaucoup de minéraux comme le sable, le silex, l'agate, le mica et même dans les carapaces de certains organismes vivants. La silice synthétique est fabriquée en laboratoire par différents procédés comme la réaction chimique avec du silicate de sodium ( $\text{SiO}_2/\text{Na}_2\text{O}$ ) ou par pyrohydrolyse avec du  $\text{SiCl}_4$ . La silice synthétique possède généralement des propriétés optiques meilleures que la silice naturelle en particulier du point de vue des

impuretés, des inhomogénéités dans le verre et de la transparence dans l'UV. Néanmoins, si les propriétés linéaires de ces matériaux sont très bien connues et sont depuis longtemps cataloguées par les constructeurs, les propriétés non linéaires le sont beaucoup moins et toujours de façon imprécise. Or ces propriétés auparavant anecdotiques deviennent de plus en plus importantes avec l'utilisation courante de sources lasers de forte puissance en optique. Comme on l'a vu dans le premier chapitre I, la focalisation d'une impulsion ultra courte dans un échantillon peut modifier de manière importante la propagation de celle-ci dans le matériau sur l'amplitude comme la phase. De façon similaire, dans une expérience utilisant des impulsions fortement énergétiques, on doit donc tenir compte de la susceptibilité non linéaire de tous les matériaux traversés par le faisceau laser et la silice est de façon certaine à prendre en considération.

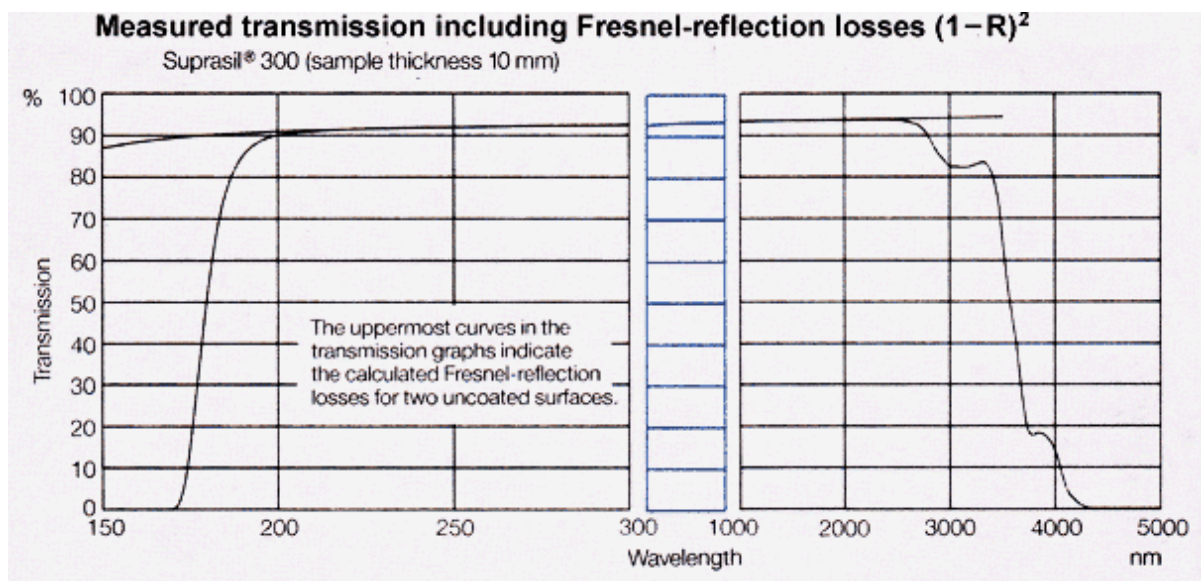


Figure 1: Spectre de transmission d'un échantillon de Suprasil S300 de 10mm d'épaisseur de chez Heraeus.

La silice fondue est l'un des matériaux pour l'optique les moins non linéaires connus (avec les verres fluorés). C'est donc le matériau le plus utilisé dans la conception d'expériences avec des impulsions très énergétiques. Le projet de simulation Laser Méga Joule (LMJ) nécessite environ 35 tonnes de silice fondue pour les différents composants optiques. L'indice non linéaire de réfraction de ce matériau est un paramètre fondamental dans la propagation des faisceaux du LMJ. Les codes de simulation de propagation des faisceaux montrent qu'une variation de 10% sur l'indice non linéaire de la silice peut entraîner une erreur de 20% sur l'énergie déposée sur la cible finale. Ainsi, pour ce projet, il faut déterminer quelle est la silice la moins non linéaire compatible avec les coûts prévus initialement.

De nombreuses mesures ont été effectuées sur la silice aux longueurs d'ondes des lasers intenses existants (principalement 1064nm, 800nm, 532nm, 355nm). Les valeurs de l'indice non linéaire de réfraction de la silice fondue recensées dans la littérature sont comprises entre  $2,5 \cdot 10^{-20}$  et un peu plus de  $3 \cdot 10^{-20}$  m<sup>2</sup>/W dans l'IR et autour de  $3 \cdot 10^{-20}$  m<sup>2</sup>/W dans le bleu et le proche UV. Néanmoins, aucune étude sur différentes silices fondues n'a montré de variation de l'indice non linéaire, sauf en ce qui concerne les classes de silice naturelle et de silice synthétique qui sont de manière générale, moins non linéaires.

Au cours de cette étude, nous avons effectué une métrologie extensive de diverses silices du point de vue de leurs propriétés non linéaires et structurales. Une analyse des origines de la non linéarité nous a permis de proposer quelques pistes permettant de

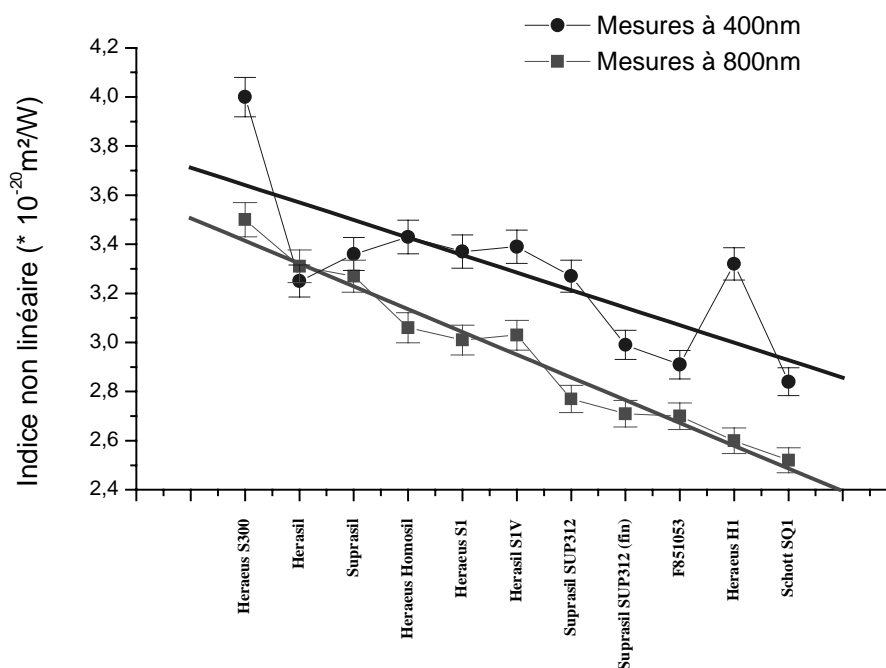
comprendre les variations importantes d'indice non linéaire observées. Enfin, nous avons pu mesurer et comparer aux valeurs en volume, l'indice non linéaire des silices fondues destinées au tirage de fibre pour les télécommunications tout optique.

## 2. VARIATIONS DE L'INDICE NON LINEAIRE DE REFRACTION DES SILICES

Nous avons réalisé ici, une étude comparative de l'indice non linéaire d'une dizaine d'échantillons de silice fondue.

| <i>Nom de la silice fondue</i> | <i>Indice non linéaire à 800nm (* 10<sup>-20</sup> m<sup>2</sup>/W)</i> | <i>Indice non linéaire à 400nm (* 10<sup>-20</sup> m<sup>2</sup>/W)</i> |
|--------------------------------|---|---|
| <b>Heraeus S300</b>            | 3.50  | 4.00  |
| <b>Herasil</b>                 | 3.31  | 3.25  |
| <b>Suprasil</b>                | 3.27  | 3.36  |
| <b>Heraeus Homosil</b>         | 3.06  | 3.43  |
| <b>Heraeus S1</b>              | 3.01  | 3.37  |
| <b>Herasil S1V</b>             | 3.03  | 3.39  |
| <b>Suprasil SUP312</b>         | 2.77  | 3.27  |
| <b>Suprasil SUP312 (fin)</b>   | 2.71  | 2.99  |
| <b>F851053</b>                 | 2.70  | 2.91  |
| <b>Heraeus H1</b>              | 2.60  | 3.32  |
| <b>Schott SQ1</b>              | 2.52  | 2.84  |

*Tableau 1 : Mesures d'échantillons de silice fondue à 400 et 800nm. Les mesures à 800nm sont absolues. Les mesures à 400nm sont relatives par rapport à l'échantillon S300 dont la valeur a été prise en tenant compte de la dispersion non linéaire (modèle équation de PERT, cf. paragraphe 4 sur la dispersion du n<sub>2</sub>). La précision relative des mesures est inférieure à 2% alors que l'incertitude absolue est de l'ordre de 10%.*

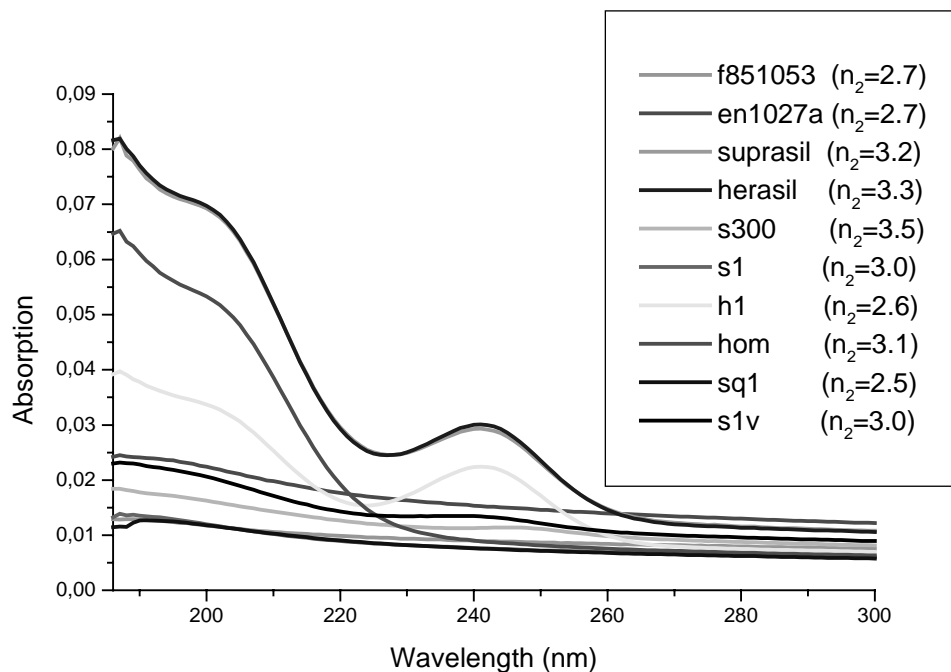


*Figure 2 : Comparaison des mesures de l'indice non linéaire à 800 et 400nm. Excepté pour deux ou trois échantillons, les variations observées à 800nm sont aussi observées à 400nm.*



Les mesures du tableau 1 montrent clairement des variations supérieures à 30% sur l'indice non linéaire de réfraction entre les silices alors que les variations de l'indice linéaire entre ces échantillons sont inférieures à 1%. Les variations observées à 800nm ont également été observées à 400nm (cf. Figure 2).

L'analyse comparative des valeurs du tableau 1 suscite de nombreuses interrogations sur l'origine possible de ces variations. Plusieurs origines peuvent en être la cause. Tout d'abord, la présence d'impuretés dans le verre peut correspondre à des entités hyperpolarisables dans le verre et accroître l'indice non linéaire à la manière d'un dopant. La comparaison des mesures avec les spectres d'absorption des verres (Figure 3) ne montre aucune corrélation notable. On peut tout de même remarquer que les verres présentant des bandes d'absorption vers 200, 240nm sont parmi ceux qui ont l'indice non linéaire le plus élevé. A contrario, on peut noter que le verre H1 de chez Heraeus, possédant des bandes d'absorption vers 200 et 240nm, a un indice non linéaire faible de  $2,6 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$  alors que le verre S300 n'ayant pas de bandes d'absorption jusqu'à moins de 190nm, a un indice non linéaire fort de  $3,5 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ . Si les impuretés contribuent certainement un peu à l'origine de la non linéarité du verre, ce n'est sûrement pas le seul effet.



**Figure 3 : Spectres d'absorption des silices dans le proche UV.**

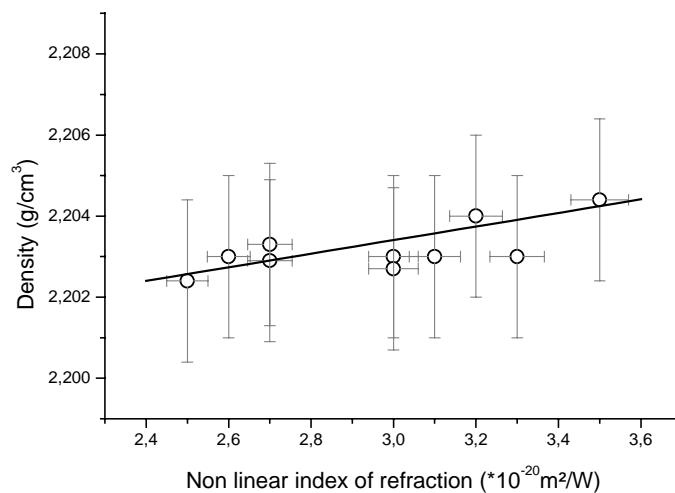
Une autre origine peut provenir de la structure moléculaire à courte distance du verre. En effet, la fabrication d'un verre se fait par mélange d'éléments dans un creuset chauffé jusqu'à la fusion, suivi par un refroidissement à une certaine vitesse pour obtenir un verre solide. L'étape de trempage du verre est la plus délicate car le refroidissement de celui-ci ne doit pas être trop lent afin d'éviter la cristallisation, et pas trop rapide pour éviter de casser le verre par contrainte excessive. Néanmoins, entre ces deux modes de trempage extrêmes, il y a une marge de manœuvre, et cette opération de trempage va être déterminante dans la structure que va adopter le verre. Fujiwara<sup>1</sup> montre bien avec des expériences de diffusion l'évolution de la structure moléculaire de la silice au cours du refroidissement et en particulier l'évolution de la distribution angulaire de la liaison Si-O-Si qui se resserre. Cette relaxation structurale est déterminante pour les propriétés futures du verre, en particulier l'indice de réfraction linéaire ou la densité.

Faire une corrélation de l'indice linéaire avec l'indice non linéaire n'est pas une chose facile sur les verres de silices fondues. En effet, mesurer avec une grande précision ( $10^{-5}$ ) l'indice linéaire d'un verre demande un appareillage de type réfractomètre d'Abbe performant, afin d'éviter les incertitudes de coupe sur les prismes dans les mesures classiques. Les valeurs d'indices données par les fabricants de verres sont valables pour l'échantillon mesuré, mais des échantillons ayant exactement la même composition peuvent avoir un indice linéaire différent sur la 5<sup>ème</sup> décimale car ils proviennent d'une coulée différente et peuvent donc avoir une structure moléculaire légèrement différente. Voici un exemple de mesures de l'indice linéaire de deux échantillons taillés sous forme de prisme de même composition provenant de coulées différentes.

|                          |                          |                                |
|--------------------------|--------------------------|--------------------------------|
| Heraeus 1SV (N° 97-0044) | $n_0 = 1,453769$ (780nm) | $\Delta n = 4,3 \cdot 10^{-5}$ |
| Heraeus 1SV (N° 99-0009) | $n_0 = 1,453726$ (780nm) |                                |

Généralement les variations d'indice linéaire entre différents échantillons de silice fondue sont comprises entre  $1 \cdot 10^{-5}$  et  $2 \cdot 10^{-4}$  et les variations locales, sur un même échantillon sont de l'ordre de  $10^{-6}$ .

La densité du verre étant directement liée à l'indice linéaire de celui-ci, nous avons effectué des mesures de densités. La Figure 4 montre une faible corrélation, limitée ici par les incertitudes sur nos mesures de la densité. La densité dépendant de la position respective des atomes dans le verre et donc de sa structure, celle-ci est déterminante sur la valeur de la non linéarité du verre.

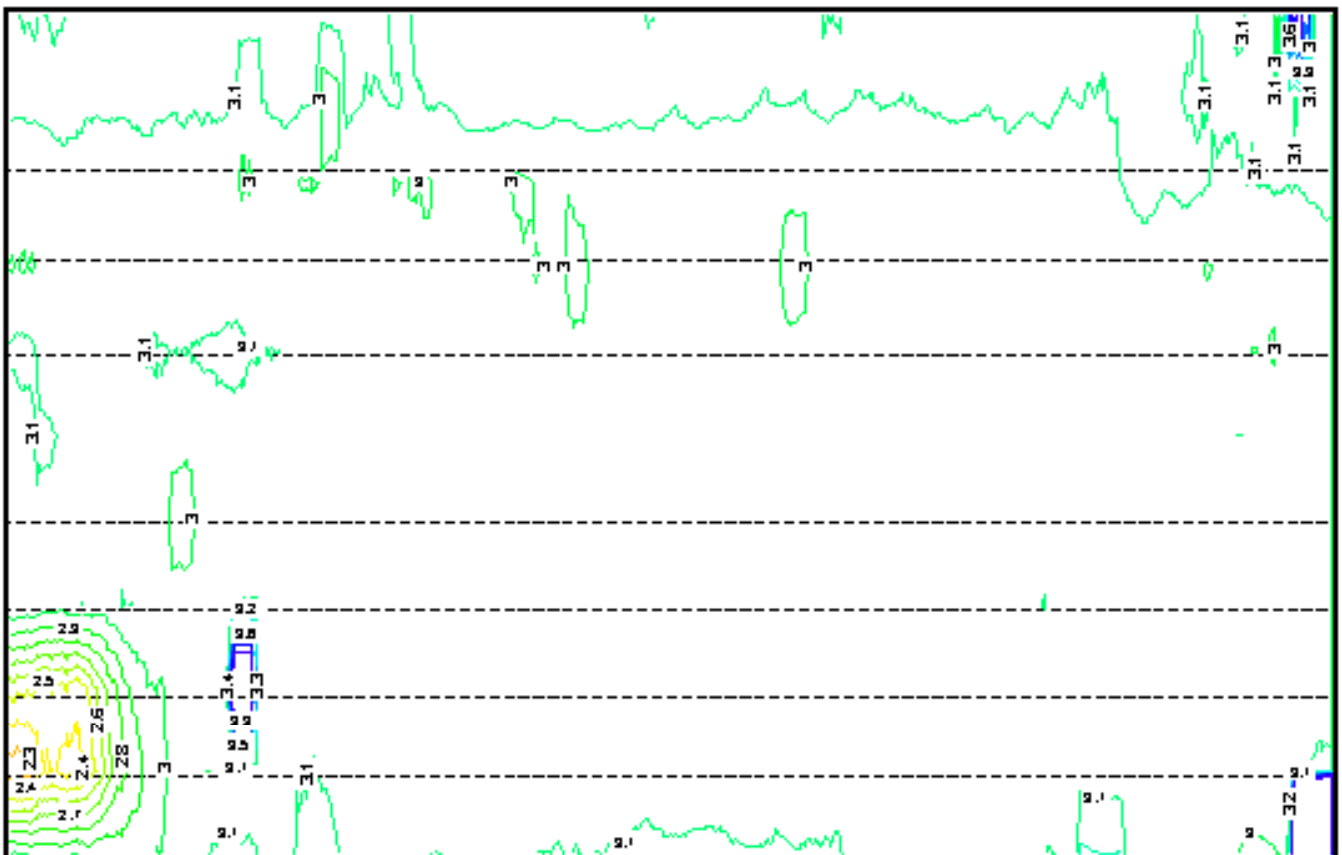


*Figure 4 : Mesure de la densité de différentes silices en fonction de l'indice non linéaire. La droite représente un ajustement linéaire des points expérimentaux.*

### 3. MESURE DE L'INDICE NON LINEAIRE LOCAL SUR UN ECHANTILLON : IMAGERIE ET HOMOGENEITE NON LINEAIRE

La mesure de l'indice non linéaire en temps réel nous a permis de regarder l'homogénéité des échantillons de silice sur des surfaces  $5 \cdot 5 \text{ mm}^2$ . Généralement, les échantillons de silice fondue étant de bonne qualité optique sont très homogènes et l'indice non linéaire est le même sur toute sa surface à moins de 3% près (cf. Figure 5). L'image présentée ici sur l'échantillon d'Homosil possède néanmoins une petite surface un peu moins non linéaire que le reste du verre. Les petits pics étroits sont dus quant à eux à des erreurs de

mesures qui peuvent être dues soit à une poussière, soit à un petit défaut sur le verre ou même à un mauvais déclenchement de l'acquisition. Les variations du  $n_2$  local sur l'ensemble de l'échantillon sont inférieures à 3% , ce qui est la preuve de la qualité du procédé de fabrication de ce type de matériau. [Des mesures équivalentes sur des verres expérimentaux fabriqués à base de tellure à l'ICMCB, de niobium ou de titane présentent des variations supérieures à 20% sur toute leur surface (cf. Figure 6)]. Si la non linéarité de la silice dépend en partie de sa structure moléculaire, comme nous allons le voir dans le prochain paragraphe, cela est encore plus vrai pour ces verres expérimentaux. Ainsi, une structure moléculaire légèrement différente d'un point à un autre du verre peut entraîner de telles variations. Cette expérience est un bon moyen de caractériser le verre dans son ensemble et en particulier son homogénéité d'une manière certainement plus performante qu'à l'aide des mesures classiques linéaires (comme le Foucatage par exemple).



Homosil

*Figure 5: Mesure de l'indice non linéaire d'un échantillon de silice fondue (Homosil Heraeus). Les courbes représentent des lignes « d'iso-susceptibilité non linéaire ». On peut remarquer sur le coin en bas à gauche de l'image une zone moins non linéaire que l'ensemble de l'échantillon. Les 3 petits pics élevés sont dus à des erreurs de mesure durant le déplacement latéral de l'échantillon dans le faisceau.*

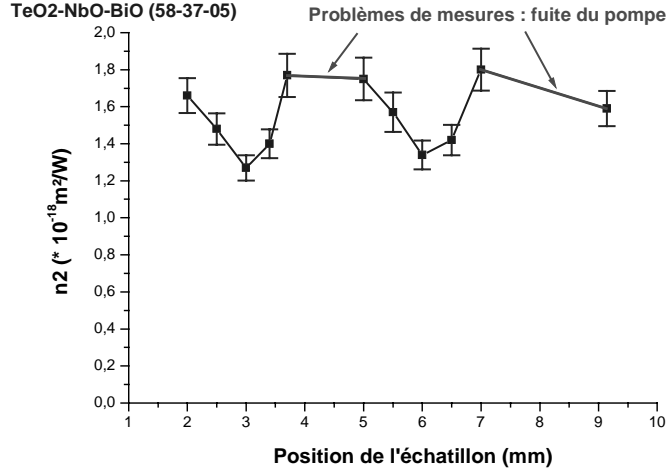


Figure 6 : Indice non linéaire d'un échantillon à base de tellure sur une ligne d'un centimètre. Les variations sont supérieures à 20% sur les parties mesurées. Certaines zones vraisemblablement légèrement biréfringentes ne nous ont pas permis de faire des mesures en raison d'une trop grande fuite de la pompe.

#### 4. DISPERSION DE L'INDICE NON LINEAIRE DE LA SILICE FONDUE

Ayant fait des mesures de l'indice non linéaire de réfraction à trois longueurs d'ondes, nous nous sommes intéressés à la vérification de quelques lois de dispersion non linéaire. Les premières lois de dispersion peuvent être décrites par les relations dites de B.G.O.<sup>2</sup> (suivant les noms de leurs auteurs) entre l'indice non linéaire et l'indice linéaire.

$$n_2^{BGO} = k \frac{(n_0 - 1)(n_0^2 + 2)^2}{v_d \sqrt{1,52 + (n_0^2 + 2)(n_0 + 1) \frac{v_d}{6n_0}}} \text{ en unité esu} \quad (1)$$

où  $n_0$  est l'indice linéaire,  $v_d$  le nombre d'Abbe (cf. Annexes) et  $k$  est une constante d'ajustement.

Un modèle plus récent à deux niveaux proposé par Sheik-Bahae *et al*<sup>3</sup> qui prend aussi en compte l'absorption à deux photons et permet de déduire une forme analytique de l'indice non linéaire en utilisant les relations de Kramers-Krönig. Cette approche permet de bonnes prédictions sur de nombreux échantillons allant des semi-conducteurs aux isolants.

$$n_2 = K' \frac{\sqrt{E_p}}{n_0 E_g^4} G_2(\hbar\omega / E_g) \text{ en unité esu} \quad (2)$$

avec

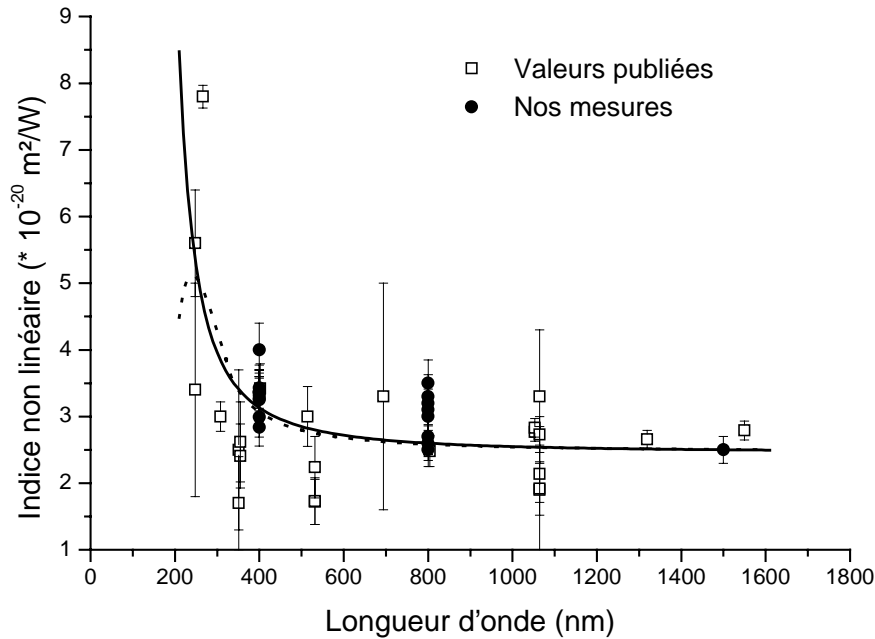
$$G_2(x) = \frac{1}{2x^6} \left[ -\frac{3}{8} x^2 (1-x)^{-1/2} + 3x(1-x)^{1/2} - 2(1-x)^{3/2} + 2\theta(1-2x)(1-2x)^{3/2} \right] \quad (3)$$

où  $E_p = 2|p_{vc}|^2 / m_0$  en eV,  $p_{vc}$  est l'élément de matrice du moment interbande,  $m_0$  la masse de l'électron libre,  $E_g$  en eV l'énergie de la bande interdite et  $K'$  est une constante qui peut prendre différentes valeurs dépendant du matériau.

Plus récemment encore, un nouveau modèle perturbatif<sup>4</sup> (équation de PERT) a été proposé pour prédire l'évolution de la dispersion de l'indice non linéaire.

$$\frac{n_2(x)}{n_2(0)} = \frac{n(0) \left( \frac{n(x)^2 + 2}{n(0)^2 + 2} \right)^4}{n(x) \left( \frac{n(0)^2 + 2}{n(x)^2 + 2} \right)} \frac{1}{1-x^2} \left( \frac{1-x^2}{1-4x^2} + \frac{1}{2K} \left( \frac{1-x^2}{1-4x^2} - \frac{1+x^2/3}{1-x^2} \right) \right) \quad (4)$$

( $x$  est la longueur d'onde en  $\text{cm}^{-1}$  et  $K = \langle r^4 \rangle / 2 \langle r^2 \rangle^2 - 1$  est la distribution électronique de Kurtosis<sup>2</sup>, qui a une valeur proche de 0,5 pour des verres ayant une grande bande interdite)



**Figure 7 : Valeurs de l'indice non linéaire de la silice fondue en fonction de la longueur d'onde. La valeur du coefficient non linéaire est un multiple de  $1 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ . Nos mesures sont signalées par les ronds noirs alors que les valeurs de comparaisons publiées dans la littérature<sup>5</sup> sont indiquées par des carrés blancs. La courbe en trait plein est l'ajustement correspondant à l'équation de PERT et la courbe en pointillée l'ajustement du modèle utilisant les relations de Kramers Krönig.**

La Figure 7 présente une comparaison des valeurs mesurées avec des valeurs de la littérature. Les ajustements ont été réalisés sur un de nos échantillons de silice pour lequel nous disposons d'une mesure à la longueur d'onde de  $1,5\mu\text{m}$ . Naturellement, il faudrait tracer toutes les courbes d'ajustement sur les autres ce que nous n'avons pas fait pour ne pas surcharger le graphe. Néanmoins, étant donné la dispersion présente sur plusieurs échantillons pour une longueur d'onde, il n'est pas étonnant de rencontrer dans la littérature des variations importantes de l'indice non linéaire de réfraction.

## 5. CONTRIBUTIONS NON INSTANTANÉES DE LA NON LINEARITE DE LA SILICE.

Notre expérience de mesure de l'indice non linéaire de réfraction utilise des impulsions femtoseconde. Certaines mesures, et en particulier celles sur la silice fondue, sont dédiées à des codes de propagation d'impulsions pour les chaînes lasers de forte puissance. Or la largeur temporelle des impulsions se propageant dans ces chaînes est plutôt de l'ordre de la nanoseconde.

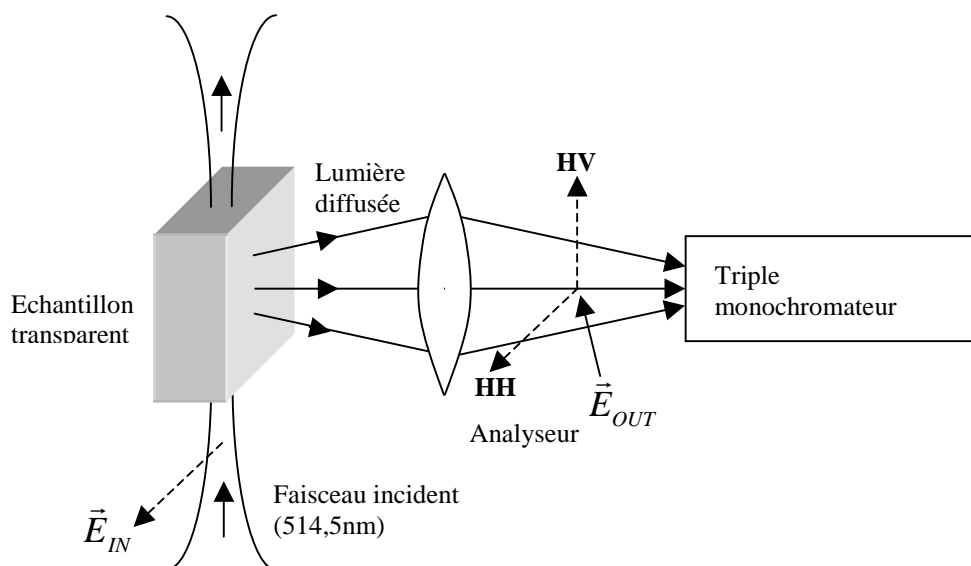
Les contributions non linéaires dans un matériau isotrope et excité hors résonance sont au nombre de quatre :

- La contribution la plus rapide est la réponse électronique avec un temps de réponse instantané<sup>6</sup> (~fs) correspondant à la déformation du nuage électronique.
- La réponse nucléaire a un temps de réponse compris entre 100fs et 10ps, c'est à dire le temps de plusieurs cycles de vibration ou de rotation de la molécule<sup>7,8</sup>.
- La réponse électrostrictive correspond à un temps caractéristique de l'ordre de la nanoseconde, dû aux temps de propagation des ondes acoustiques induites dans le matériau<sup>9</sup>.
- La réponse thermique, avec un temps de réponse de l'ordre de quelques millisecondes.

Ces différentes contributions non linéaires vont être plus ou moins importantes suivant la durée d'excitation du milieu, c'est à dire suivant la largeur temporelle de l'impulsion excitatrice. Pour un laser fonctionnant à un taux de répétition supérieure à 10kHz, la contribution non linéaire thermique devient constante au cours du temps et dépend uniquement de la puissance moyenne du faisceau laser. Néanmoins, notre expérience pompe sonde colinéaire n'est sensible qu'au couplage entre la pompe et la sonde dans le matériau et la détection se faisant sur l'intensité du faisceau sonde, le signal n'est pas sensible à une éventuelle phase ajoutée comme celle que produit la lentille thermique associée. Donc, la contribution thermique n'intervient pas dans nos mesures.

Récemment<sup>10</sup>, il a été montré dans les fibres optiques que l'amplitude de la contribution électrostrictive ne devient significative que pour une excitation du matériau avec des impulsions de largeur temporelle supérieure à la nanoseconde qui est le temps caractéristique de réponse de cet effet. Néanmoins, il est quand même possible de créer une onde acoustique dans le matériau avec une impulsion femtoseconde qui pourrait affecter l'impulsion lumineuse suivante. Donc, notre expérience n'est pas non plus sensible à la non linéarité électrostrictive.

Enfin, pour évaluer la contribution nucléaire de la non linéarité, nous avons réalisé des spectres Raman basses fréquences (en collaboration avec M. Couzi du Laboratoire de Physico-Chimie Moléculaire de l'Université de Bordeaux I) de plusieurs des échantillons de silice fondue.



**Figure 8 : Expérience de diffusion Raman à 90°. L'analyseur est sur la position  $HH$  pour le spectre Raman polarisé et en position  $HV$  pour le spectre dépolarisé.**

Généralement, les spectres sont équivalents quels que soient les échantillons de silice mesurés. Les spectres montrés sur la Figure 9 présentent deux caractéristiques principales : le pic de Boson et une bande large. Le pic de Boson<sup>11</sup> représente les modes associés aux vibrations acoustiques et la bande large, centrée à 450 cm<sup>-1</sup>, est attribuée à la rotation en dehors du plan formé par les atomes de Si de l'atome d'oxygène dans la liaison Si-O-Si. Une analyse un peu plus détaillée de ces spectres montre deux raies D1 et D2 dans le spectre polarisé qui sont dues à la présence en faible concentration (<1%) de structures moléculaires en forme d'anneaux<sup>12</sup>. La raie D1 est due à la formation d'un anneau avec trois sommets d'atomes de Si alors que la raie D2 est due à la formation d'un anneau avec quatre sommets de Si.

Dans l'approximation de Born-Oppenheimer, la polarisation non linéaire du troisième ordre de matériaux isotropes peut s'écrire :

$$P_x^{(3)}(t) = 3\varepsilon_0 \sigma E_x(t) E_y^2(t) + \varepsilon_0 \left[ E_x(t) \int R_{xxyy}(t-t') E_y^2(t') dt' + 2E_y(t) \int R_{xyyx}(t-t') E_x(t') E_y(t') dt' \right] \quad (5)$$

où  $R$  la fonction de réponse nucléaire du matériau et  $\sigma$  la contribution électronique. Les propriétés de symétrie des matériaux isotropes permettent d'écrire la contribution nucléaire de la non linéarité sous la forme<sup>13</sup> :

$$R_{ijkl}(t) = a(t) \delta_{ij} \delta_{kl} + \frac{1}{2} b(t) [\delta_{il} \delta_{jk} + \delta_{ik} \delta_{jl}]. \quad (6)$$

La fonction de réponse et la susceptibilité non linéaire du milieu sont reliées par une transformée de Fourier :

$$R_{ijkl}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega t} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega) d\omega. \quad (7)$$

En suivant les modèles proposés par Hellwarth<sup>8</sup>, Stolen *et al.*<sup>14</sup>, il est possible de calculer les fonctions de réponses  $a(t)$  et  $b(t)$  à partir des spectres Raman, d'en déduire la contribution nucléaire de la susceptibilité non linéaire et l'importance du signal en fonction de la largeur temporelle de l'impulsion excitatrice.

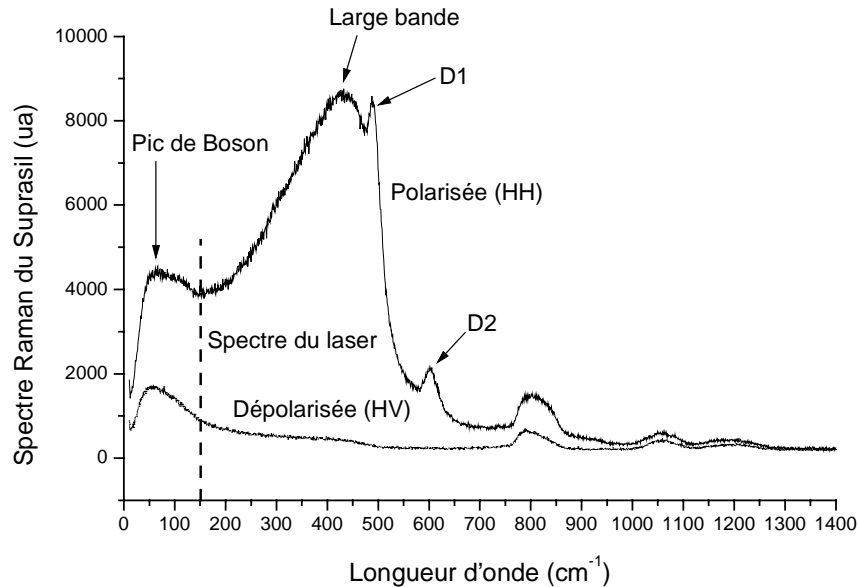


Figure 9 : Spectres Raman basses fréquences polarisé et dépolarisé d'un échantillon de silice fondue. Le faisceau d'excitation est à la longueur d'onde 514,5nm.

Le modèle donne les relations reliant les fonctions de réponses à la susceptibilité non linéaire :

$$a(t) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega t} \chi_{1122}^{(3)}(\omega) d\omega, \quad (8)$$

$$b(t) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega t} [\chi_{1221}^{(3)}(\omega) + \chi_{1212}^{(3)}(\omega)] d\omega = 2 \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega t} \chi_{1212}^{(3)}(\omega) d\omega, \quad (9)$$

$$R_{1111}(t) = a(t) + b(t) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega t} \chi_{1111}^{(3)}(\omega) d\omega. \quad (10)$$

Les relations reliant la partie imaginaire de la susceptibilité à la section efficace de diffusion Raman  $\frac{d^2\sigma_i}{d\Omega d\Delta}$  ( $i = \perp$  dépolarisée,  $i = //$  polarisée) s'écrivent<sup>15</sup> :

$$\Im[\chi_{1212}^{(3)}(\Delta)] = \frac{1}{2} \frac{\pi c^4}{\hbar \nu \omega^3} \frac{d^2\sigma_{\perp}}{d\Omega d\Delta} \left( 1 - e^{-\frac{\hbar\Delta}{kT}} \right), \quad (11)$$

$$\Im[\chi_{1111}^{(3)}(\Delta)] = \frac{1}{2} \frac{\pi c^4}{\hbar \nu \omega^3} \frac{d^2\sigma_{//}}{d\Omega d\Delta} \left( 1 - e^{-\frac{\hbar\Delta}{kT}} \right), \quad (12)$$

où  $\frac{d^2\sigma_i}{d\Omega d\Delta}$  est la fraction de photons incidents à la fréquence  $\nu$  diffusés inélastiquement dans un angle solide  $d\Omega$  et dans une fenêtre fréquentielle  $d\Delta$  autour de la fréquence  $\omega = \nu - \Delta$ .  $\Im$  désigne la partie imaginaire. Les spectres ont été enregistrés à température ambiante, ceux ci sont corrigés par le facteur de Boltzmann :  $\left( 1 - \exp\left(-\frac{\hbar\Delta}{kT}\right) \right)^{-1}$  (Figure 10) :

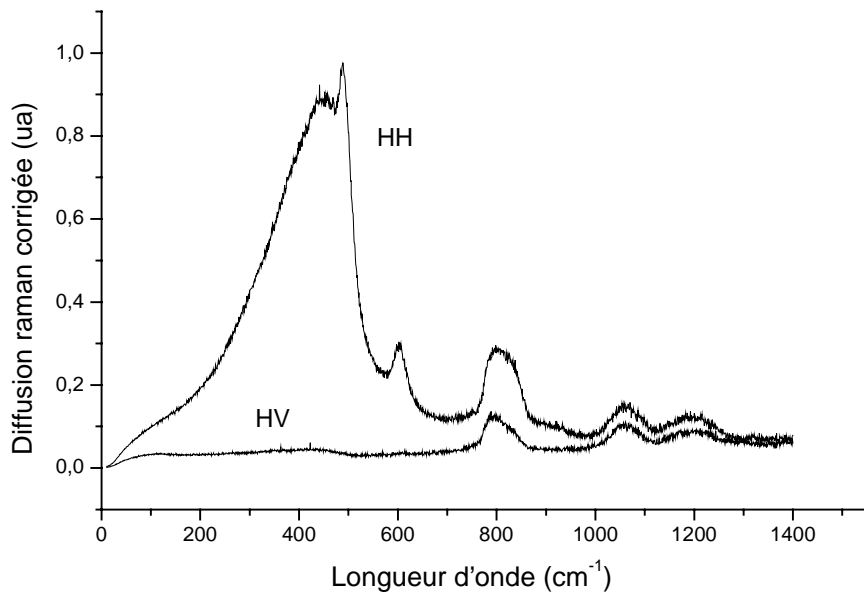


Figure 10 : Spectres de diffusion Raman corrigés par le facteur de Boltzmann.



A partir des spectres corrigés, il est alors possible de calculer la partie imaginaire de la susceptibilité. Néanmoins, la partie réelle doit être aussi connue pour en déduire les fonctions réponses  $a(t)$  et  $b(t)$ . Une des options serait, si cela est possible, d'utiliser la relation de Kramers-Krönig pour calculer la partie réelle suivant :

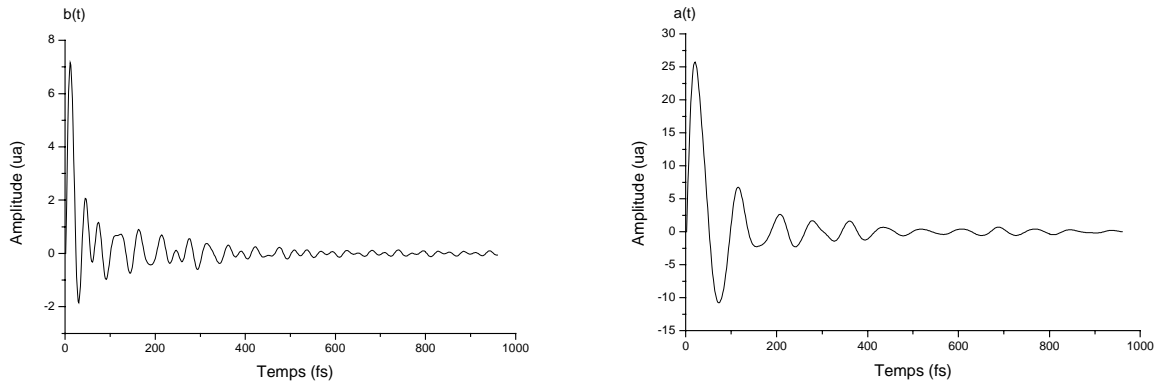
$$\Re[\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega)] = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\nu - \omega} \Im[\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega)] d\nu. \quad (13)$$

Une idée plus astucieuse due à Stolen<sup>14</sup> consiste à calculer directement la fonction réponse à partir de la partie imaginaire de la susceptibilité en utilisant une transformée de Fourier imaginaire :

$$\frac{b(t)}{2} = \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} \Im[\chi_{1212}^{(3)}(\Delta)] \sin(\Delta t) d\Delta, \quad (14)$$

ainsi :

$$a(t) = \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} \Re[\chi_{1111}^{(3)}(\Delta)] \sin(\Delta t) d\Delta - b(t). \quad (15)$$

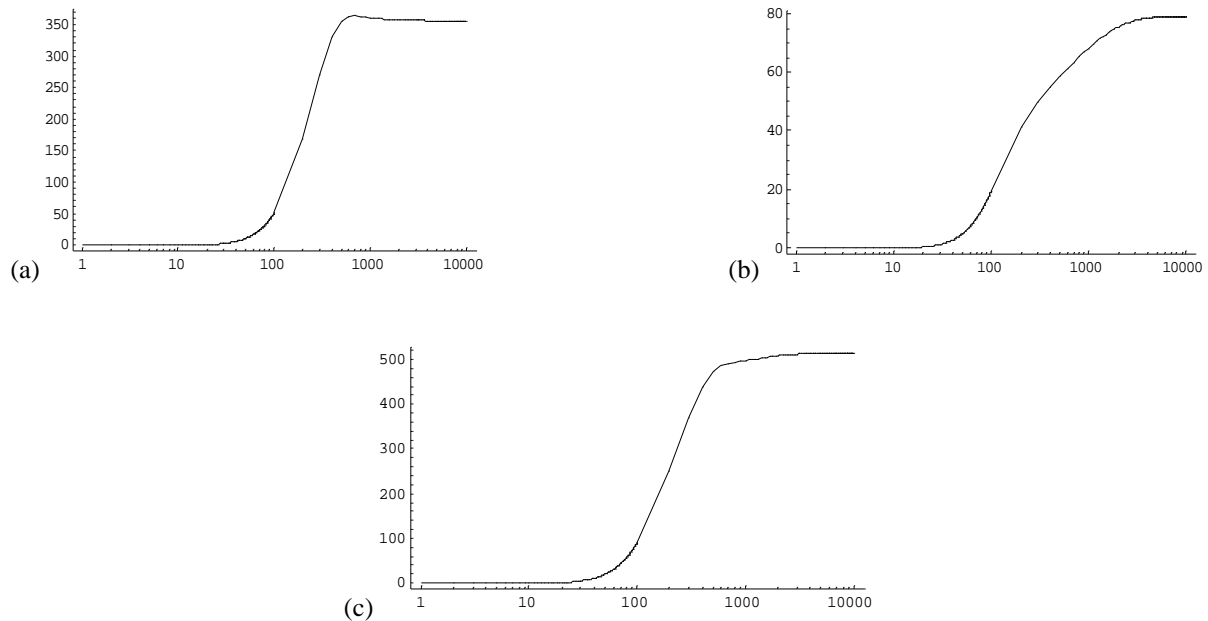


**Figure 11 : Réponses nucléaires  $a(t)$  et  $b(t)$  d'un verre de silice fondue calculées à partir des spectres Raman.**

Le calcul de la polarisation non linéaire en fonction des fonctions réponses donne :

$$P_{nl}^{(3)}(t) \propto e(t) \int_{-\infty}^{+\infty} a(t-t') e^2(t') dt' + 2e(t) \int_{-\infty}^{+\infty} b(t-t') e^2(t') dt' \quad (16)$$

où  $e(t)$  est la forme temporelle de l'impulsion laser avec une certaine largeur temporelle. Les figures ci-dessous montrent la contribution nucléaire du signal au retard zéro entre la pompe et la sonde qui est directement proportionnelle à la polarisation. Dans notre cas, les calculs ont été effectués avec des impulsions de forme gaussienne.



**Figure 12 : Evolution de la contribution nucléaire au signal non linéaire en fonction de la largeur temporelle de l'impulsion utilisée. Les axes des abscisses sont gradués en femtosecondes, les axes des ordonnées en unités arbitraires sachant que les amplitudes relatives entre les différentes contributions nucléaires sont respectées. La courbe (a) est la contribution de la réponse de  $a(t)$ , la courbe (b) la contribution de la réponse  $b(t)$  et la courbe (c) la contribution totale  $a(t)+2b(t)$ .**

Tout d'abord, la contribution nucléaire au signal commence à intervenir à partir d'une largeur de 100fs. Elle est maximale pour une largeur temporelle supérieure à 1ps. La raison de cette évolution peut s'expliquer en regardant la réponse des oscillateurs dans le milieu. Si l'excitation de ces oscillateurs est trop rapide, ceux-ci n'ont pas le temps de se mettre à vibrer et le milieu ne réagit pas. Par contre, une excitation continue du milieu l'emmène dans un régime forcé et c'est donc le faisceau laser continu qui donnera le signal de vibration le plus fort. La bosse observée sur le graphe (a) autour de 500fs est due à la grande oscillation de la réponse  $a(t)$  au départ de l'excitation. En effet, on peut remarquer que, à cause des réponses différentes des fonctions  $a(t)$  et  $b(t)$ , les évolutions du signal en fonction de la largeur temporelle sont également assez distinctes. Si le signal nucléaire est maximum à 500fs pour la fonction  $a(t)$ , celui de  $b(t)$  l'est au bout de 10ps seulement et globalement, le signal est maximum pour 3ps. Contrairement à Stolen et Tomlinson<sup>16</sup> qui ont regardé l'importance du Raman dans des fibres en fonction de la largeur temporelle, nous ne trouvons pas de contribution négative (assez faible) pour de très courtes impulsions due à la phase quadratique. La raison est que notre expérience n'est pas sensible à la phase de l'impulsion mais uniquement au couplage entre la pompe et la sonde dans le milieu. C'est aussi la raison pour laquelle ce montage n'est pas non plus sensible au signe de la non linéarité.

On peut ajouter ici une remarque intéressante sur l'explication de l'évolution du signal nucléaire en fonction de la largeur temporelle. L'explication donnée ci-dessus paraît très logique. Néanmoins, on peut aussi regarder cela d'un point de vue spectral<sup>17</sup>. A une impulsion de 100fs correspond un spectre d'environ 8nm soit  $125\text{cm}^{-1}$ . Cela correspond dans le spectre à l'excitation de toutes les fréquences du pic de Boson. Ainsi, à une impulsion plus courte de 10fs correspond un spectre d'environ 80nm soit  $1250\text{cm}^{-1}$ . Cela correspond alors à l'excitation de toutes les raies basses fréquences du spectre. Chaque fréquence du spectre du laser va exciter les molécules du milieu qui vont réagir comme des oscillateurs non linéaires à l'excitation et émettre de la lumière. A chaque fréquence correspond une émission particulière. S'il n'y a qu'une seule fréquence d'excitation, l'émission est toujours la même et est cohérente, en revanche un large spectre d'excitation donne des émissions incohérentes et

destructives entre elles. Il y a « brouillage » dans la re-émission de la lumière. Cela explique alors l'augmentation du signal nucléaire quand la largeur temporelle de l'impulsion augmente. Regardons maintenant quelle est la part de la contribution Raman dans notre signal. Hellwarth<sup>15</sup> a montré que la non linéarité Raman ne représente que 5% de la non linéarité totale dans les verres de silice fondue (la contribution passe à 20% dans les verres composés de tellure et à 10% pour les verres aux silicates de plomb)<sup>18</sup>. L'utilisation d'impulsions de largeur temporelle d'environ 100-150fs nous donne d'après la courbe calculée une contribution de 30% par rapport au signal Raman maximum. On déduit donc que la contribution Raman à notre signal non linéaire n'est que de  $30\% \times 5\%$  soit 1,5% au maximum dans la silice fondue. Cette contribution passe à 6% au maximum pour un verre composé de Tellure.

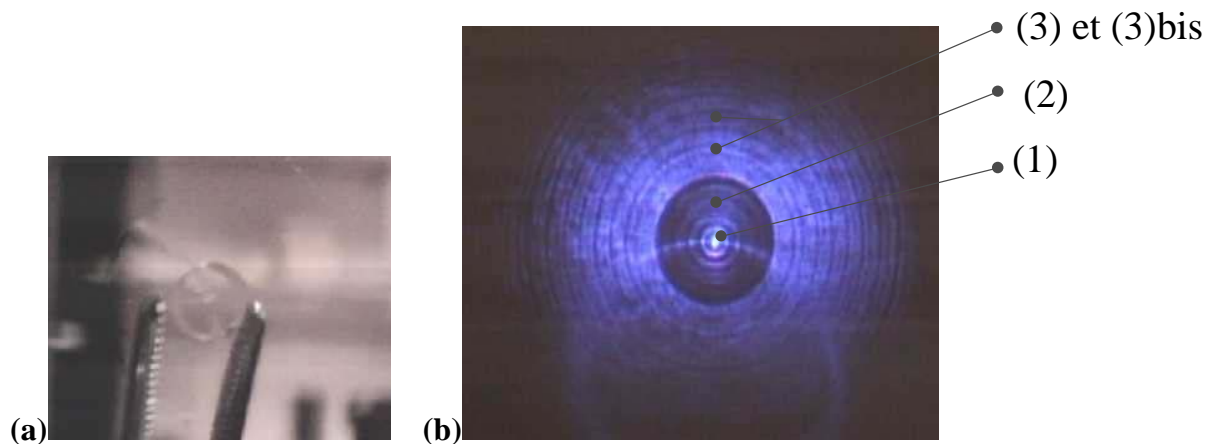
En conclusion, l'expérience pompe sonde colinéaire utilisant des impulsions femtosecondes courtes est très peu sensible aux contributions vibrationnelles non linéaires.

L'expérience n'étant pas sensible, nous l'avons vu aux effets thermiques et électrostrictifs, on peut en conclure que les mesures que nous effectuons concernent quasi-exclusivement les contributions d'origine purement électroniques.

## **6. CARACTERISATION NON LINEAIRE D'UNE PREFORME DE FIBRE OPTIQUE (ALCATEL FIBRES)**

La mesure de l'indice non linéaire d'une fibre<sup>19</sup> se fait généralement en regardant l'automodulation de phase (SPM)<sup>20,21</sup> de l'impulsion à la sortie de la fibre. D'autres techniques comme la modulation de phase croisée (XPM)<sup>22</sup> ou le mélange à quatre ondes (FWM) ont été également mises en œuvre pour cette même mesure. En dehors de notre technique de mesure, ce sont les méthodes les plus précises ; elles donnent des valeurs absolues avec une incertitude inférieure à 10%. En effet, la propagation d'une impulsion lumineuse dans une fibre n'affecte pas le profil spatial du faisceau laser. Seule la phase et l'amplitude temporelle (et spectrale) sont affectées par la non linéarité de la fibre.

Une fibre optique est composée de plusieurs types de silices dopées avec différents atomes pour obtenir un gradient ou un saut d'indice de réfraction entre le cœur et la gaine de verre. Les fibres à gradient d'indice sont préférées si l'on désire une propagation avec peu de modes et donc une bande passante plus importante. La propagation monomode se fait dans ce type de fibres avec un cœur de moins de 10 $\mu$ m de diamètre, fonction de la longueur d'onde de travail. Le cœur de la fibre présente un indice linéaire plus élevé que la gaine, indice obtenu par dopage avec des atomes de germanium par exemple. Tous ces traitements chimiques en vue de réaliser une fibre donnée s'effectuent évidemment avant le tirage et sont présents au niveau de la préforme. Nous avons pu mesurer une préforme de fibre à saut d'indice dont le matériau pour la gaine était dopé avec des atomes de fluor, permettant d'avoir un indice de réfraction linéaire inférieur à celui de la silice fondue qui enrobe l'ensemble.



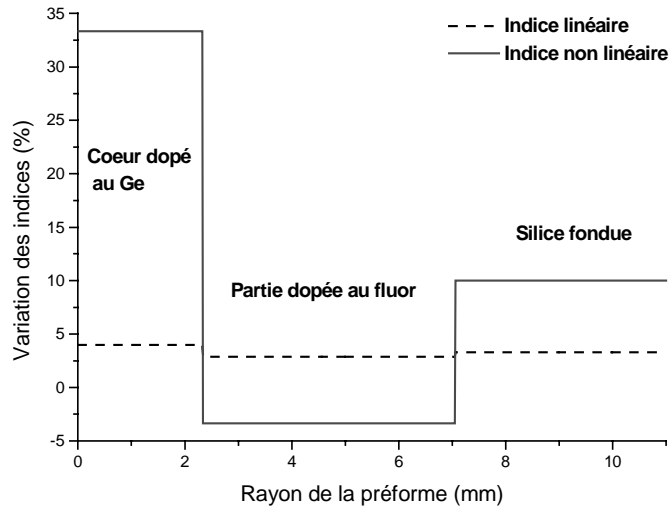
**Figure 13 :** (a), Image de la préforme de fibre. (b), Image de la préforme par éclairage de celle-ci avec un faisceau laser bleu. Les points (1), (2), (3) et (3)bis sont les positions où a été mesuré l'indice non linéaire de réfraction. Nous distinguons bien les anneaux autour du centre de la fibre dus au mode de fabrication en couches.

La préforme de fibre optique est fabriquée par évaporation de silice (plus ou moins dopée). Cette évaporation se fait dans un tube où circule un léger flux de silice évaporée, ainsi la préforme se constitue à partir du bord jusqu'au centre. C'est la raison des formations des couches visibles sur la photo de la Figure 13. Le trou restant au centre de la préforme est comblé avec un recuit de la préforme. Les couches de la préforme, dues au procédé de fabrication séquentiel, ont beaucoup perturbé la mesure de l'indice non linéaire. En effet, même si l'expérience n'est pas très sensible aux phénomènes de diffraction, il reste néanmoins à trouver une zone de la préforme pour laquelle la fuite de la pompe est la plus faible possible et pour laquelle la diffraction ne gêne pas trop le parcours du faisceau jusqu'à la détection. Malgré les difficultés, 4 points de mesures ont pu être sélectionnés soit au centre de la préforme, soit dans la gaine de verre et enfin dans la silice alentour.

| <b>Zone de la préforme</b> | <b>Indice non linéaire (<math>*10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}</math>) +/- 10%</b> |
|----------------------------|---|
| <b>Centre (1)</b>          | 4,0   |
| <b>Partie (2)</b>          | 2,9   |
| <b>Partie (3)</b>          | 3,3   |
| <b>Partie (3) bis</b>      | 3,3   |

**Tableau 2 :** Mesures de l'indice non linéaire sur la préforme de fibre optique.

Les résultats montrent un accroissement important de l'indice non linéaire pour la silice dopée avec des atomes de germanium au cœur. Par contre la silice dopée au fluor présente un indice non linéaire plus faible que la silice non dopée. A un saut d'indice linéaire, on peut donc associer un saut d'indice non linéaire. Malgré tout, ici encore, le saut d'indice non linéaire (environ 35% de variation) est beaucoup plus important que le saut linéaire nécessaire pour le guidage (égal à 2%). Cela confirme le fait qu'une petite variation de l'indice linéaire de la silice fondue puisse entraîner des variations importantes sur l'indice non linéaire comme on l'a vu dans le premier paragraphe de ce chapitre.



**Figure 14 :** Comparaison des variations d'indice linéaire et non linéaire du centre de la préforme au bord de la préforme. L'amplitude maximum des variations de l'indice non linéaire est de plus de 35% alors qu'elle est de l'ordre de 2% pour l'indice linéaire.

Il faut noter que ces mesures n'ont rien à voir avec la mesure de l'indice non linéaire d'une fibre optique dans laquelle le champ électrique est distribué à la fois dans le cœur et la gaine de verre. La mesure de la fibre donne alors un indice non linéaire global 'effectif' et non l'indice non linéaire de chacune des parties de la fibre comme on l'a fait. Par contre, cette approche permet d'optimiser a priori le choix et les performances des matériaux - dopants, compositions,...- bien en amont des procédés de tirage de la fibre. Sachant que pour avoir des fibres dans lesquelles on ait des propagations solitoniques sur de longues distances, il faut qu'elles soient les moins non linéaires possibles, on voit ici tout l'intérêt que peut avoir cette expérience dans les mesures en amont sur des préformes de fibres.

## B. Etude de la susceptibilité non linéaire de verres expérimentaux à base d'oxydes (Collaboration ICMCB)

Le développement de nouveaux matériaux pour les systèmes en photonique ou en communication tout optique demande des verres dont la composition doit être choisie de manière à accroître la non linéarité optique. Dans ce contexte, l'identification des origines des non linéarités optiques dans les verres est essentielle. Des familles de verres très prometteuses ont été synthétisées et étudiées à l'Institut de Chimie et de Matière Condensée de Bordeaux (ICMCB) et sont au cœur d'une action commune de recherche sur les matériaux nouveaux fortement non linéaires entre notre équipe de recherche, celle de G. Le Flemm à l'ICMCB, le laboratoire de Science des Procédés Céramiques et de Traitements de Surface (SPCTS) de Limoges et le Laboratoire de Physico-Chimie de la Matière Condensée (LPMC) de Montpellier. Parmi les verres susceptibles d'avoir de forts coefficients non linéaires, les oxydes dans lesquels on introduit des cations lourds de types électronique  $ns^2$  ( $\text{Te}^{4+}$ ,  $\text{Tl}^+$ ,  $\text{Bi}^{3+}$ ,  $\text{Sb}^{3+}$ ,  $\text{Pb}^{2+}$ ) ou de types  $d^0$  ( $\text{Ti}^{4+}$ ,  $\text{Nb}^{5+}$ ,  $\text{W}^{6+}$ ) ou  $d^{10}$  ( $\text{Sb}^{5+}$ ,  $\text{Ga}^{3+}$ ) peuvent être étudiés. Les relations qu'il peut y avoir entre les propriétés structurales et les propriétés non linéaires d'un matériau ont été largement discutées<sup>23,24,25,26</sup>. L'optimisation de la composition de ces verres nous a permis d'obtenir des non linéarités allant de un à deux ordres en magnitude supérieure à la silice fondue. Ici, nous allons passer en revue les mesures d'indices non linéaires de

différents verres d'oxydes et voir que ces mesures sont assez bien corrélées aux données structurales des verres.

Les verres sont préparés à partir de poudres cristallines de différents oxydes comme  $\text{La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{B}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TiO}_2$  ou  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  en proportions choisies pour la stœchiométrie désirée, et placés dans un creuset en platine. Ce creuset est chauffé dans un four électrique à une température d'environ  $1350^\circ\text{C}$  pendant 30 minutes. Le mélange en fusion est ensuite trempé rapidement afin d'obtenir un verre sans cristallites et recuit toute une nuit à une température  $30^\circ\text{C}$  en dessous des températures de transition vitreuse. Tous les échantillons d'environ 2 millimètres d'épaisseur sont polis sur les deux faces pour les mesures optiques.

## 1. VERRES DE BOROPHOSPHATES DE TITANE OU DE NIOBIUM<sup>27</sup>

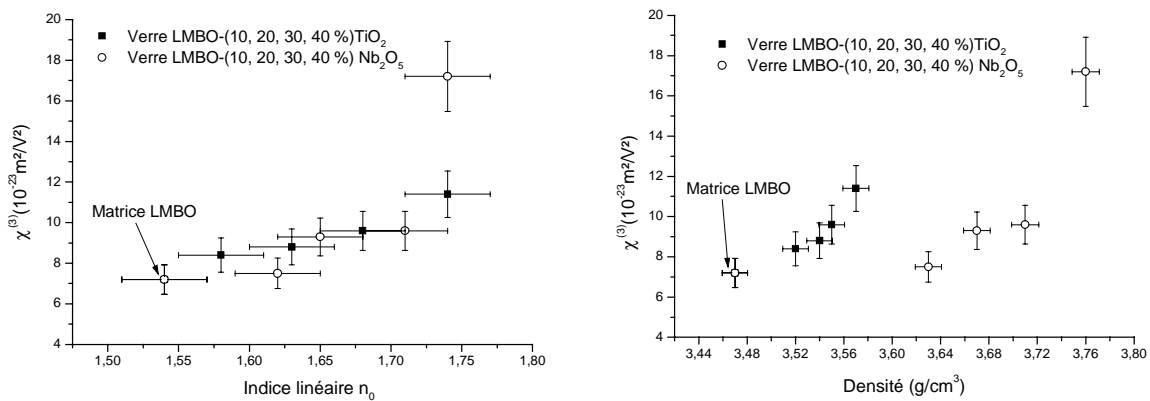
Ces verres ont été élaborés à l'Institut de Chimie et de Matière Condensée de Bordeaux (ICMCB). La matrice principale de ces verres peut être comparée à la structure cristalline du composé  $\text{LaMgB}_5\text{O}_{10}$  (LMBO). Les structures atomique et moléculaire de ces verres ont été obtenues par corrélation de plusieurs techniques de caractérisation : absorption dans l'infrarouge, spectroscopie Raman et technique EXAFS (Extended X-Ray Absorption Fine Structure). Dans le cristal, cette structure est composée de couches bidimensionnelles ou feuillets constitués d'atomes de bore et d'oxygène sous forme de trois tétraèdres  $\text{BO}_4$  et deux triangles  $\text{BO}_3$  reliés par leurs sommets. Le taux des entités ( $\text{BO}_4$ ) est équivalent dans le verre et dans le cristal de mêmes compositions. Les atomes de magnésium et de lanthane sont insérés entre ces couches. A la différence du cristal où les atomes de magnésium forment des sites  $\text{Mg}_2\text{O}_{10}$ , dans le verre ils forment des sites octaédriques ( $\text{MgO}_6$ ) isolés ce qui est cohérent avec la densité plus forte du cristal par rapport au verre.

| Verres                           | Densité ( $\text{g/cm}^3$ ) | Indice linéaire<br>$n_0 (\pm 0,03)$ | Indice non linéaire<br>( $10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ ) $\pm 10\%$ | $\chi^{(3)}$ ( $10^{-23} \text{ m}^2/\text{V}^2$ )<br>$\pm 10\%$ |
|----------------------------------|-----------------------------|-------------------------------------|---|--|
| Herasil S1V                      | 2,20                        | 1,46                                | 2,9   | 10,7   |
| SF59                             | 6,26                        | 1,97                                | 38,2  | 250  |
| LMBO-matrice                     | 3,47 (cristal : 3,87)       | 1,54                                | 7,2   | 30   |
| LMBO-10% $\text{TiO}_2$          | 3,52                        | 1,58                                | 8,4   | 37   |
| LMBO-20% $\text{TiO}_2$          | 3,54                        | 1,63                                | 8,8   | 41   |
| LMBO-30% $\text{TiO}_2$          | 3,55                        | 1,68                                | 9,6   | 45   |
| LMBO-40% $\text{TiO}_2$          | 3,57                        | 1,74                                | 11,4  | 61   |
| LMBO-10% $\text{Nb}_2\text{O}_5$ | 3,63                        | 1,62                                | 7,5   | 34   |
| LMBO-20% $\text{Nb}_2\text{O}_5$ | 3,67                        | 1,65                                | 9,3   | 45   |
| LMBO-30% $\text{Nb}_2\text{O}_5$ | 3,71                        | 1,71                                | 9,6   | 47   |
| LMBO-40% $\text{Nb}_2\text{O}_5$ | 3,76                        | 1,74                                | 17,2  | 92   |

Tableau 3 : Mesures de l'indice non linéaire des verres de titane et de niobium.

L'introduction de  $\text{TiO}_2$  (ou de  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ) dans la composition du verre accroît sensiblement sa densité et son indice linéaire. La susceptibilité non linéaire de ces verres est 3 fois à 10 fois plus forte que celle de la silice fondue. Les atomes de titane ou de niobium vont se placer préférentiellement entre les couches formées par les atomes de bore et d'oxygène formant des sites octaédriques isolés plus ou moins distordus. Pour une faible concentration de ces composants la structure du verre ne change pas trop et seule l'hyperpolarisabilité des cations lourds de titane et de niobium dans leurs sites oxygénés octaédriques intervient dans l'augmentation de la non linéarité du verre. Pour une concentration plus importante de ces composants, la susceptibilité non linéaire du matériau s'accroît plus vite (cf. Figure 16) ; la structure du verre change pour former progressivement des sites octaédriques ( $\text{TiO}_6$  et  $\text{NbO}_6$ )

associés entre eux entre les couches de bore et d'oxygène. Ces associations sont encore plus hyperpolarisables que les sites isolés de titane ou de niobium. Dans la mesure de la non linéarité du verre, ce changement de structure se symbolise par une rupture de la pente de la courbe de la susceptibilité non linéaire en fonction de la concentration de niobium. Cette rupture de pente est bien visible sur la Figure 17. On peut également remarquer que la susceptibilité non linéaire n'est pas très corrélée à l'indice linéaire surtout pour les verres riches en niobium. L'augmentation importante de la densité des verres en fonction de la concentration en métal s'explique également par la modification structurale des sites. Pour une concentration élevée en métal, les sites oxygénés s'associent entre eux entre les feuillets boratés, obligeant ainsi la distance inter feuillets à augmenter, favorisant ainsi une augmentation relativement plus faible de la densité du matériau avec le taux de métal.



**Figure 15 : Comparaison de la susceptibilité non linéaire d'ordre trois avec l'indice linéaire et la densité des verres composés de différentes concentrations de cations lourds. Les verres composés de titane et de niobium ne sont pas sur la même droite de densité en raison du fait que les atomes de Niobium (numéro atomique 41) sont plus gros que ceux de titane (numéro atomique 22).**

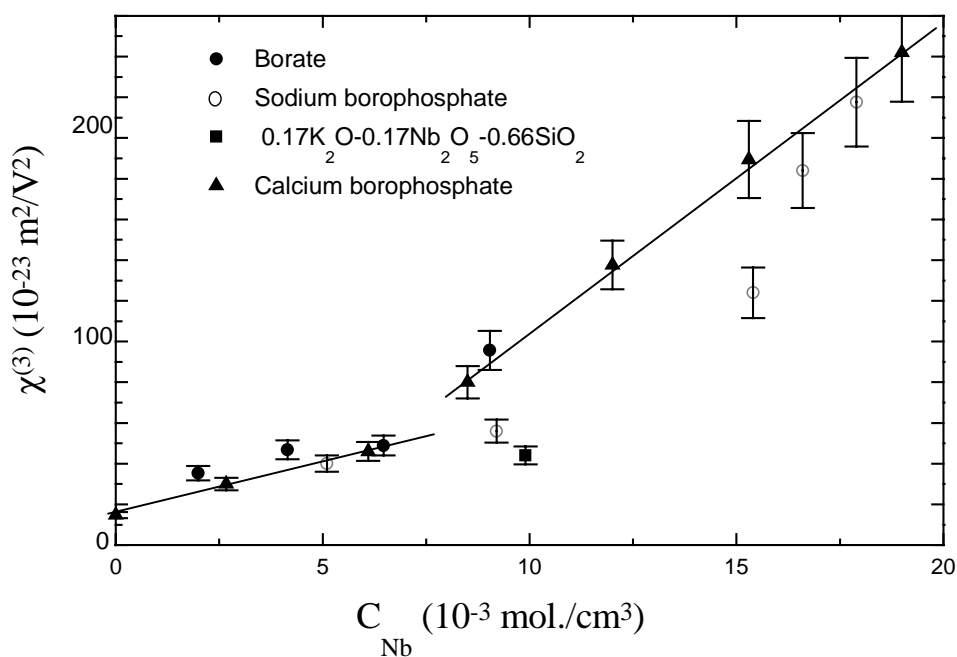


Figure 16 : Mesures de la partie réelle de la susceptibilité optique du troisième ordre de verres en fonction de la concentration en niobium ( 818nm).

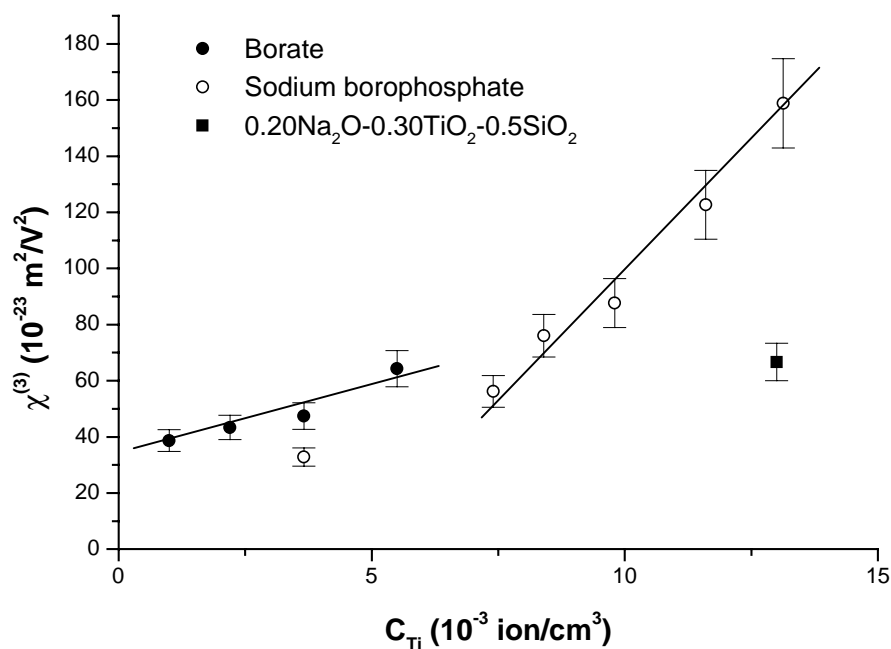


Figure 17 : Mesures de la partie réelle de la susceptibilité optique du troisième ordre de verres en fonction de la concentration en titane (818nm). Pour comparaison, les mesures précédentes pour les verres au niobium et au titane des systèmes borophosphates sont également reportées.



## 2. VERRES DE TELLURE

Les verres de tellure mesurés sont des composés binaires et ternaires de métaux de configuration électronique  $ns^2$ ,  $d^0$  et  $d^{10}$ . Ces verres ont été préparés par l'Université de Limoges (SPCTS), l'Université de Montpellier II (LPMC) et l'ICMCB de l'Université de Bordeaux I. La méthode d'élaboration reste la fusion du mélange d'oxydes appropriés en proportions stœchiométriques, suivie d'une trempe et d'un recuit à 20°C en dessous de la température de transition vitreuse.

Les mesures de susceptibilité non linéaire d'ordre trois de ces verres donnent des valeurs 20 fois à plus de 60 fois supérieures à la non linéarité de la silice fondue. Ces forts indices non linéaires sont essentiellement dus au tellure. En effet, la configuration électronique de cet atome ( $Te^{4+}$ , configuration  $ns^2$ ) et la structure moléculaire particulière qu'il adopte en formant des liaisons avec les atomes d'oxygènes sont responsables de cette forte non linéarité. Les atomes d'oxygènes se lient avec l'atome de tellure pour former des sites bipyramidaux à base triangulaire  $[TeO_4]$  ou tétraédriques  $[TeO_3]$  (cf. Figure 19) dans lesquels un doublet d'électrons localisé sur le tellure et extérieur aux sites, se trouve de ce fait fortement hyperpolarisable. Les atomes de thallium, de bismuth et de plomb ont des configurations électroniques semblables à celle du tellure (configuration électronique  $ns^2$ ) et contribuent de la même manière à la forte non linéarité des verres. Comme le montre le Tableau 4, les verres composés d'oxydes de tellure, thallium, bismuth, ou plomb présentent les indices non linéaires les plus forts. Néanmoins l'augmentation de la proportion de thallium dans la composition du verre de tellure diminue la non linéarité du verre (cf. Tableau 4, 2<sup>ème</sup> série de mesures) ce qui témoigne d'une contribution plus importante du tellure par rapport au Thallium. Par contre, l'introduction de plomb ou de bismuth dans le verre tellurite amène une amplification notable de la non linéarité, le bismuth étant l'élément le plus performant (Tableau 4, Figure 18).

La Figure 18 montre l'évolution de la réponse non linéaire en fonction du type d'oxyde entrant dans la composition du verre pour une proportion comparable d'oxyde de tellure. En ce qui concerne les verres binaires, on constate une efficacité décroissante de la non linéarité dans l'ordre suivant :  $Tl_2O > TiO_2$ ,  $Nb_2O_5 > WO_3 > BaO > Sb_2O_3/Sb_2O_5 > Ga_2O_3$ . Ainsi, la contribution à la non linéarité d'éléments de configuration  $d^0$  est moins importante que celle d'éléments de configuration électronique  $ns^2$ , et chute encore pour les éléments de configuration  $d^{10}$ .

En ce qui concerne les métaux dont la couche électronique  $d$  est vide, la création de liaisons avec les atomes d'oxygènes environnant entraîne la délocalisation des électrons des atomes d'oxygène concernés par ces liaisons, en direction du métal. Ceci les rend alors plus polarisables sous l'action d'un champ électrique. La possibilité de déformation du nuage électronique correspondant reste cependant moins efficace que celle d'un nuage correspondant à un doublet localisé sur le bismuth, le plomb, le tellure ou le thallium à l'extérieur d'un site oxygéné.

Enfin les verres de tellure les moins non linéaires ont été obtenus par ajout d'éléments de configuration électronique  $d^{10}$  (antimoine, gallium). Dans ce cas la non linéarité est due à la classique déformation du nuage électronique très diffus correspondant aux électrons  $d$ . Les verres composés d'antimoine sont un mélange de  $90TeO_2-10Sb_2O_3$  et de  $90TeO_2-10Sb_2O_5$ , donc d'ions  $Sb^{3+}$  de type  $ns^2$  et d'ions  $Sb^{5+}$  de type  $d^{10}$ . C'est la raison pour laquelle on trouve que ces verres ont une non linéarité supérieure à ceux composés de gallium. Quant aux ions de baryum, ils se distinguent par une configuration électronique externe de type  $5p^6$  et leur non linéarité est due essentiellement aux électrons de cette couche externe.

| Verres  | $\chi^{(3)}$ ( $10^{-23} \text{ m}^2/\text{V}^2$ ) $\pm 10\%$ |
|---|---|
| 58TeO <sub>2</sub> -36TiO <sub>0,5</sub> -5BiO <sub>1,5</sub>                           | 632   |
| 57TeO <sub>2</sub> -38TiO <sub>0,5</sub> -5PbO  | 562   |
| 75TeO <sub>2</sub> -25TiO <sub>0,5</sub>  | 482   |
| 60TeO <sub>2</sub> -40TiO <sub>0,5</sub>  | 476   |
| 50TeO <sub>2</sub> -50TiO <sub>0,5</sub>  | 294   |
| 54TeO <sub>2</sub> -36TiO <sub>0,5</sub> -10GaO <sub>1,5</sub>                          | 445   |
| 58,5TeO <sub>2</sub> -39TiO <sub>0,5</sub> -2,5GaO <sub>1,5</sub>                       | 359   |
| 90TeO <sub>2</sub> -10TiO <sub>2</sub>  | 421   |
| 85TeO <sub>2</sub> -15TiO <sub>2</sub>  | 395   |
| 92TeO <sub>2</sub> -8Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>                                     | 420   |
| 85TeO <sub>2</sub> -15NbO <sub>2,5</sub>  | 350   |
| 75TeO <sub>2</sub> -25NbO <sub>2,5</sub>  | 184   |
| 85TeO <sub>2</sub> -15BaO   | 323   |
| 90TeO <sub>2</sub> -10WO <sub>3</sub>   | 332   |
| 90TeO <sub>2</sub> -10(Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Sb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) | 303   |
| 90TeO <sub>2</sub> -10Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                    | 227   |
| 80TeO <sub>2</sub> -10Sb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> -10WO <sub>3</sub>                 | 295   |
| 80TeO <sub>2</sub> -10Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -10WO <sub>3</sub>                 | 241   |

Tableau 4 : Mesures de la susceptibilité non linéaire d'ordre trois à 800nm de quelques composés binaires et ternaires à base de tellure. Les composés sont regroupés en différentes catégories suivant la nature des métaux introduits.

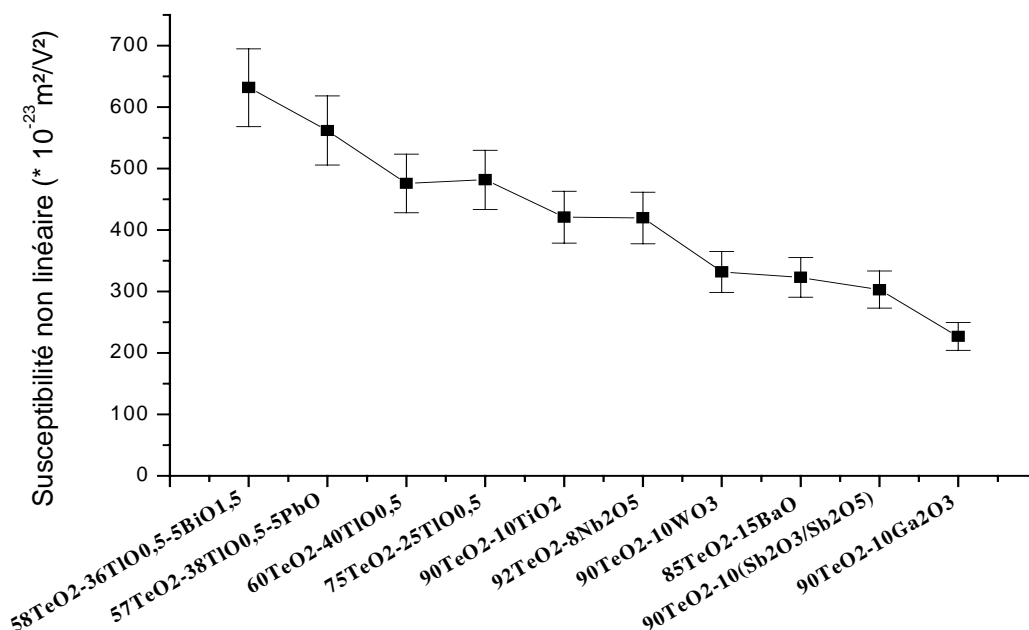
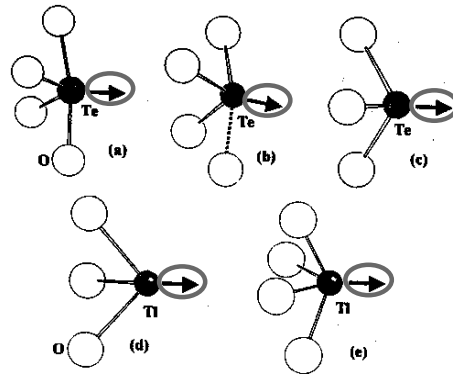


Figure 18 : Evolution de la susceptibilité non linéaire d'ordre trois en fonction de la nature du métal introduit dans le verre de base de tellure. Pour toutes les compositions vitreuses liées entre elles, le pourcentage atomique de tellure est à peu près constant. Les quatre premiers verres sont composés uniquement d'éléments de configuration électronique type  $ns^2$ . Les trois suivants sont composés d'éléments de configuration électronique  $d^0$  et les trois derniers ont des éléments de configuration  $d^{10}$ .



*Figure 19 : Structure des sites de tellure et de thallium. La flèche représente la paire d'électrons non liée responsable de la forte non linéarité de ces verres.*

La métrologie non linéaire sur ces matériaux nous a permis de mieux comprendre les origines des forts coefficients non linéaires mesurés. Ainsi, on se rend compte que les délocalisations des électrons dans le verre dues à sa structure ou aux différentes configurations électroniques de certaines entités permettent d'avoir de forts indices non linéaires. Dans les verres organiques constitués de longues chaînes carbonées, la forte non linéarité de ces verres est également due aux électrons délocalisés le long de ces chaînes. Contrairement aux verres inorganiques, ces chaînes ne sont pas résistantes à de forts flux lumineux. Les études développées ici, vont permettre de faire de l'ingénierie sur les verres afin d'adapter leurs structures de manière à accroître leurs indices non linéaires tout en conservant leurs fortes résistances au flux lumineux.

## C. Etude de la non linéarité sur les semi-conducteurs des photodiodes par autocorrélation

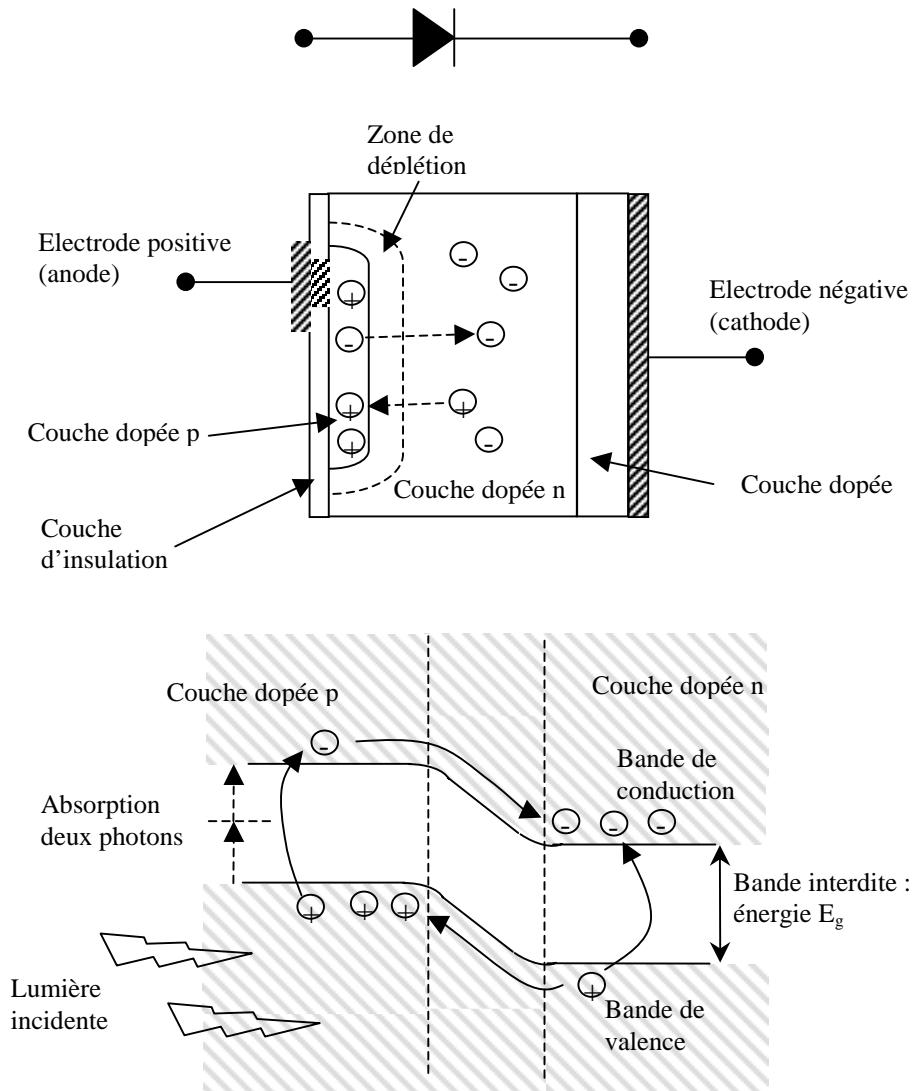


Figure 20 : Structure et schéma de bandes d'une photodiode.

Les semi-conducteurs composants les photodiodes sont des cristaux qui possèdent des propriétés photoconductrices. Dans l'exemple de la photodiode employée pour la mesure de la largeur temporelle dans l'infrarouge ( $1,5\mu\text{m}$ ) par autocorrélation<sup>28</sup>, la largeur de bande interdite du silicium qui la compose ( $1,12\text{eV}$ ) limite sa sensibilité au domaine spectral allant jusqu'à  $1,1\mu\text{m}$ . Un photon à  $1,5\mu\text{m}$  n'est pas suffisamment énergétique pour porter un électron de la bande de valence dans la bande de conduction, mais deux photons simultanés peuvent éventuellement réussir. C'est l'absorption à deux photons particulièrement importante avec des lasers en régime d'impulsions femtosecondes. Ce phénomène beaucoup moins efficace que l'absorption à un photon est un effet non linéaire. Sa modélisation fait intervenir la partie imaginaire de la susceptibilité non linéaire du troisième ordre. Dans le cas des semi-conducteurs (cristal), les éléments du tenseur de susceptibilité sont généralement plus complexes que dans le cas des matériaux vitreux isotropes du paragraphe précédent. Avant d'analyser le comportement des photodiodes en régime d'absorption à deux photons et

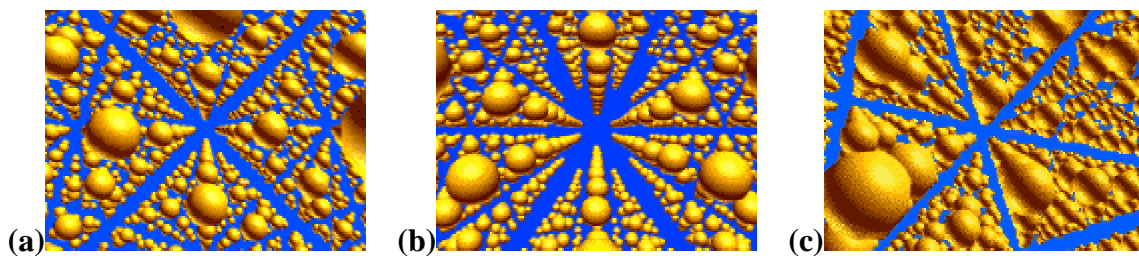
de proposer la mesure des coefficients de tenseur de susceptibilité du troisième ordre, nous allons faire un rappel de données structurales de ces matériaux.

## 1. CRISTALLOGRAPHIE DE SEMICONDUCTEURS UTILISES DANS LES PHOTODIODES

### a. Photodiode Si

Le silicium constituant une photodiode standard est un cristal cubique faces centrées appartenant à la classe cristallographique 432. C'est un cristal qui peut être taillé suivant principalement trois axes : (100), (110) et (111). Le cristal de silicium utilisé dans les photodiodes Hamamatsu est orienté suivant l'axe (100). Les éléments non nuls des tenseurs de susceptibilité d'ordre 2 et 3 sont les suivants :

| <b>Silicium (Si) (F432)</b>                                     |   |
|---|---|
| $\chi_{ijk}^{(2)}$  | $\chi_{ijkl}^{(3)}$   |
| $xyz = -xzy = yzx = -yxz = zxy = -zyx$<br>1 élément indépendant | $xxxx = yyyy = zzzz,$<br>$yyzz = zzyy = zzxx = xxzz = xxyy = yyxx,$<br>$yzzy = zyzy = zxzx = xzxx = xyxy = yxyx,$<br>$yzzy = zyyz = zxxz = xzzx = xyyx = yxxy.$ |
| $d_{il}$ (coefficient électro-optique) <sup>b</sup>             |   |
| Tous les éléments sont nuls                                     | $\chi_{xxyy}^{(3)} = \chi_{xyxy}^{(3)} = \chi_{xyyx}^{(3)}$<br>2 éléments indépendants <sup>a</sup>   |



**Figure 21 :** Vues de la structure cristalline du silicium suivant l'axe (100) (a), suivant l'axe (110) (b) et suivant l'axe (111) (c). On peut remarquer la symétrie d'ordre 4 de la vue (a), la symétrie d'ordre 3 de la vue (b) et la symétrie d'ordre 2 de la vue (c).

<sup>a</sup> On suppose dans tous les calculs que les éléments non diagonaux du tenseur  $\chi^{(3)}$  sont tous égaux. Cela repose uniquement sur des expériences pompe sonde menées sur des semi-conducteurs du même type par Dvorak *et al.* (cf. références).

<sup>b</sup> La définition du coefficient électro optique  $d_{il}$  est correcte à condition que le tenseur de susceptibilité d'ordre 2 reste inchangé par permutation des fréquences.

## b. Photodiode GaAsP

Les symétries du cristal de GaAsP sont légèrement différentes de celles du silicium. Ainsi les éléments des tenseurs de susceptibilité s'écrivent ici :

| <b>GaAsP</b><br>$\bar{F}43m$                                 |   |
|--|---|
| $\chi_{ijk}^{(2)}$   | $\chi_{ijkl}^{(3)}$   |
| $xyz = xzy = yzx = yxz = zxy = zyx$<br>1 élément indépendant | $xxxx = yyyy = zzzz,$<br>$yyzz = zzyy = zzxx = xxzz = xxyy = yyxx,$<br>$yzyz = zyzy = zxzx = xzxx = xyxy = yxyx,$<br>$yzzy = zyyz = zxxz = xzzx = xyyx = yxxy.$ |
| $d_{ij}$ (coefficient électro-optique)                       |   |
| $d_{14} = d_{25} = d_{36}$<br>1 élément indépendant          | $\chi_{xxyy}^{(3)} = \chi_{yyxy}^{(3)} = \chi_{yyyx}^{(3)}$<br>2 éléments indépendants  |

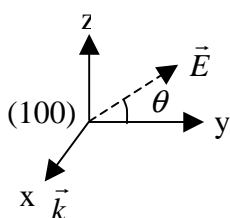
Contrairement au Si, les éléments du tenseur électro-optique ne sont pas tous nuls. En conséquence, la génération de seconde harmonique dans ce cristal est possible. Toutefois le cristal étant cubique, ce matériau reste tout de même isotrope et même si la génération de seconde harmonique est possible, l'accord de phase que l'on a dans les cristaux biréfringents n'est pas réalisable dans ce cristal. Néanmoins ce processus devra être pris en compte car les éventuels photons à fréquence double (bleu) générés par doublage du faisceau à 800nm ont alors l'énergie suffisante pour générer directement une paire électron-trou dans la photodiode.

## 2. SIGNAL THEORIQUE OBTENU EN FOCALISANT UN FAISCEAU DANS UNE PHOTODIODE

Regardons l'évolution du courant de photoconduction de la photodiode lorsque l'on focalise un faisceau polarisé à 1.5 $\mu$ m sur une photodiode en Si ou un faisceau à 800nm dans une photodiode en GaAsP. Le signal électrique détecté aux bornes de la photodiode ne peut être dû qu'à un effet non linéaire d'ordre trois (et éventuellement aussi d'ordre deux pour la photodiode en GaAsP). Dans le premier paragraphe, nous allons étudier l'absorption à deux photons (TPA) dans n'importe laquelle de ces photodiodes sachant que ce sont les mêmes éléments du tenseur de susceptibilité d'ordre trois qui sont non nuls. Nous étudierons ensuite la génération de seconde harmonique (SHG) dans le cristal de GaAsP puis nous interpréterons un signal expérimental sur la photodiode en GaAsP.

### a. Signal d'absorption à deux photons (TPA)

Le calcul du signal TPA généré par le faisceau laser dans la photodiode est explicité dans le complément V.1. On considère un faisceau polarisé suivant une direction faisant un angle  $\theta$  avec l'axe cristallographique du cristal. A partir de ce champ, on calcule par produit



tensoriel entre le champ incident et le tenseur  $\chi^{(3)}$  de susceptibilité la polarisation non linéaire. La polarisation non linéaire n'aura qu'une composante si la polarisation du champ incident est suivant

un des axes du cristal. On résout alors l'équation de propagation de l'impulsion incidente dans l'approximation en ondes planes. Ainsi, on exprime que la variation de l'amplitude du champ électrique suivant la propagation est égale à la polarisation non linéaire ajoutée au champ incident à sa condition initiale. L'épaisseur du semi-conducteur étant très petite, on résout l'équation de propagation par simple linéarisation. Connaissant le champ perturbé par l'effet non linéaire, il est possible ensuite de calculer l'intensité de ce champ et ainsi l'intensité ou l'énergie perdue par celui-ci par absorption non linéaire. Ainsi l'intensité du faisceau à la sortie de la photodiode peut s'écrire de la manière suivante :

$$I_{ph}(e) = I_0 - \alpha(e)I_0 - \beta(e)I_0^2 - \gamma(e)I_0^3 \quad (17)$$

où  $e$  est l'épaisseur de semi-conducteur où a lieu le processus non linéaire,  $\alpha$  est l'absorption linéaire,  $\beta$  l'absorption à deux photons et  $\gamma$  l'absorption à trois photons (dans le calcul du signal, les termes d'absorption à trois photons sont négligés ; l'absorption à trois photons fait également intervenir la susceptibilité non linéaire à l'ordre 5). Finalement, l'intensité perdue par absorption à 2 photons dans une photodiode de type symétrie cubique s'écrit pour une propagation suivant la direction 100:

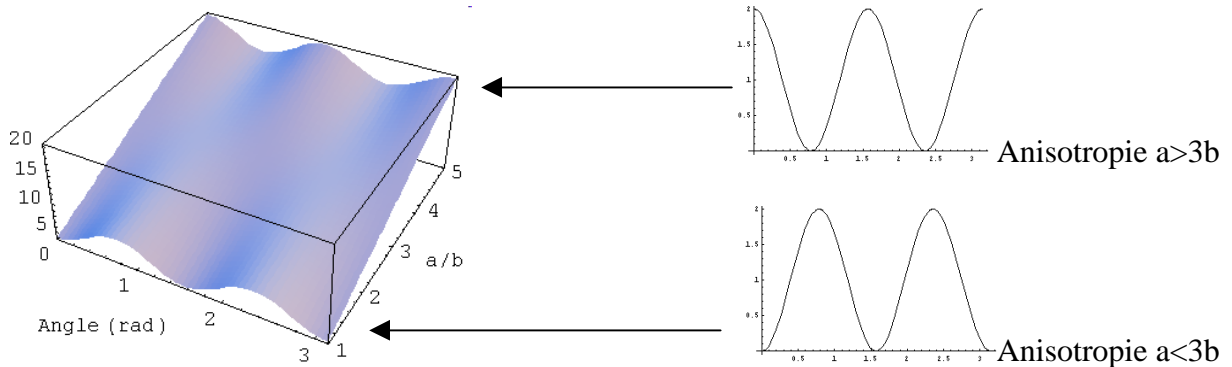
$$I_{abs}^{(100)} = \beta^{(100)}(e,t)I_0^2 \propto \frac{3P_m T^2 ek}{8\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} \kappa [3(a+b) - (a-3b)\cos(4\theta)] \quad (18)$$

où  $a = \Im[\chi_{xxxx}^{(3)}]$  et  $b = \Im[\chi_{xyxy}^{(3)}]$ ,  $P_m$  la puissance moyenne,  $T$  le taux de répétition,  $k$  le nombre d'onde,  $w_0$  la taille du col du faisceau,  $\kappa$  un facteur de pondération dépendant de la forme temporelle du champ.

$$\kappa = \frac{\int_T s^4(t) dt}{\left(\int_T s^2(t) dt\right)^2} \quad (19)$$

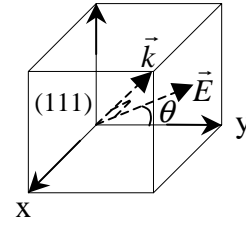
$\kappa = \sqrt{2}/2$  pour une gaussienne,  $2/3$  pour une Sécante hyperbolique et 1 pour un créneau.

La première remarque évidente que l'on peut faire sur l'expression de l'absorption à deux photons est que la dépendance angulaire disparaît pour un milieu isotrope, c'est à dire lorsque  $a = 3b$ . La dépendance non linéaire est montrée par le fait que l'absorption non linéaire est proportionnelle à la puissance au carré et inversement proportionnelle à la taille du col du faisceau au carré. Pour un milieu anisotrope, l'intensité absorbée varie en fonction de l'angle de la polarisation du champ incident par rapport à l'axe du cristal.



**Figure 22 : Evolution de l'absorption non linéaire en fonction de l'angle de la polarisation incidente par rapport à l'axe cristallographique et en fonction de l'anisotropie du milieu. La périodicité angulaire est de  $\pi/2$ .**

Cette évolution angulaire a une périodicité de  $\pi/2$ . Ce résultat est en accord avec la symétrie d'ordre 4 observée sur Figure 21 (a) sur un cristal de silicium.



Un calcul un peu plus complexe permet de calculer le signal TPA dans le cas où le faisceau se propage suivant la diagonale de la maille du cristal (111). En raison du changement de la symétrie, seul la dépendance angulaire du signal va changer. L'expression est donnée par :

$$I_{abs}^{(111)} = \beta^{(111)}(e)I_0^2 \propto \frac{P_m^2 T^2 e k}{\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} \kappa \{3(25a + 69b) - (a - 3b)[12 \cos(2\theta) + 7 \cos(4\theta) + 8 \sin(2\theta) - 12 \sin(4\theta)]\} \quad (20)$$

La périodicité angulaire du signal est maintenant de  $\pi$  ce qui est encore en accord avec la symétrie d'ordre 2 observée sur la vue (c) de la Figure 21 du cristal de silicium.

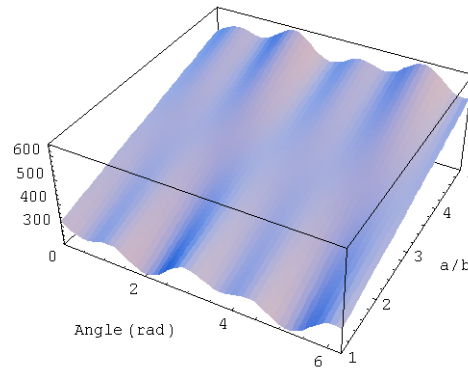


Figure 23 : Evolution de l'absorption non linéaire en fonction de l'angle  $\theta$  et de l'anisotropie du milieu.

### b. Signal de génération de seconde harmonique (SHG)

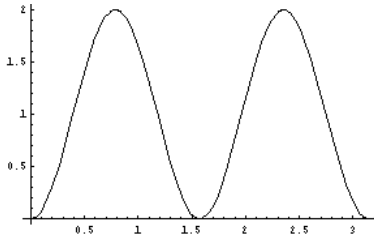
Comme la détection du signal se fait en mesurant le courant de photoconduction aux bornes de la photodiode, on ne peut pas à priori faire de différence entre un signal provenant de la TPA ou de la SHG suivie d'une absorption immédiate. Même si le cristal de la photodiode n'est pas en condition d'accord de phase pour la SHG, étant donné la longueur très petite de la zone d'interaction dans le cristal et la valeur beaucoup plus forte de la susceptibilité d'ordre 2 par rapport à celle d'ordre 3, le signal de SHG ne doit pas être négligé et doit être pris en compte dans le calcul.

Un calcul similaire au calcul du signal TPA donne une intensité à la longueur d'onde harmonique doublée et ensuite absorbée proportionnelle à :

$$I_{abs}^{(100)} = \beta^{(100)}(e,t)I_0^2 \propto \frac{3P_m^2 T^2 e^2 k^2}{8\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} \kappa \sigma [1 - \cos(4\theta)] \quad (21)$$

où  $\sigma$  est l'élément du tenseur de susceptibilité d'ordre 2. Seule la dépendance angulaire change par rapport au signal d'absorption à 2 photons.





Contrairement à l'absorption à 2 photons qui ne s'annule jamais, pour un angle  $\theta$  nul, c'est à dire lorsque que la polarisation est selon l'axe du cristal, la SHG s'annule.

L'axe des abscisses représente l'angle par rapport à l'axe cristallographique en radians.

L'axe des ordonnées est en unité arbitraire.

La phase de l'évolution angulaire du signal est identique à celle de l'absorption à 2 photons pour un milieu anisotrope où  $a > 3b$ .

### c. Analyse expérimentale sur une photodiode GaAsP

L'expérience simple suivante a été réalisée : nous avons focalisé un faisceau polarisé linéairement à la longueur d'onde de 800nm sur la photodiode et mesuré le courant de photoconduction en fonction de l'angle de rotation de la photodiode autour de l'axe de propagation (et donc l'axe du cristal par rapport à la polarisation incidente). Il est important durant l'expérience de focaliser le faisceau toujours au même endroit sur la photodiode. En effet, le semi-conducteur peut présenter des défauts sur sa surface qui peuvent modifier le rendement quantique de celle-ci, voire créer des niveaux intermédiaires dans la bande interdite favorisant ainsi l'absorption linéaire et masquant totalement le signal non linéaire<sup>29</sup>.

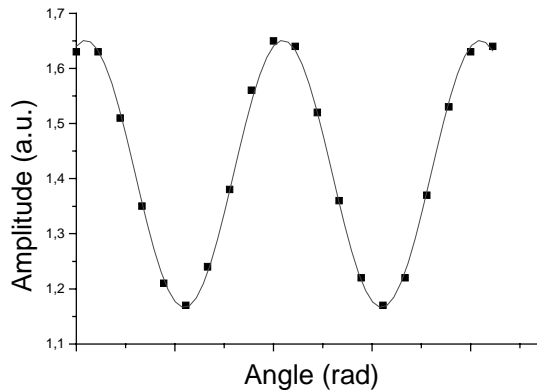


Figure 24 : Signal de photoconduction en fonction de l'angle  $\theta$  pour une photodiode en GaAsP (Hamamatsu -G1116). L'ajustement théorique est une sinusoïde de période  $\pi/2$ .

Le signal expérimental montre une périodicité parfaite en  $\pi/2$  ce qui indiquerait que le semi-conducteur de cette photodiode est orienté suivant (100). La société nous a apporté confirmation sur l'orientation de ces « wafers » au cours du procédé de fabrication de leurs photodiodes.

### 3. ETUDE DE LA PHOTODIODE GAASP (HAMAMATSU G1116) ORIENTE SUIVANT (100)

L'étude porte ici sur la photodiode GaAsP avec propagation des faisceaux suivant l'axe cristallographique du semi-conducteur (100). Il est bien entendu possible de faire l'étude sur un autre axe bien que les calculs deviennent beaucoup plus lourds et ne sont pas pertinents par rapport à notre expérience (l'échantillon étant orienté suivant 100). Deux types d'autocorrélations sont utilisés pour l'étude. La première classique est l'autocorrélation parallèle où les deux impulsions, strictement co-propageantes – autocorrélation colinéaire – sont polarisées identiquement et interfèrent avant d'être focalisées dans la photodiode. La

seconde est l'autocorrélation dite « croisée » dans laquelle les deux impulsions sont polarisées orthogonalement. C'est en fait conceptuellement l'expérience pompe sonde colinéaire dans laquelle on a remplacé l'échantillon par la photodiode et qu'au lieu de mesurer l'intensité du faisceau transmis ce qui est ici impossible à cause de la présence du substrat, on enregistre le courant de photoconduction. Dans les deux types d'expérience, les signaux de TPA et SHG seront étudiés afin de bien comprendre quels sont les processus mis en jeu lors de la mesure de la largeur temporelle d'une impulsion et afin de caractériser la non linéarité de la photodiode.

### a. Autocorrélation parallèle

C'est l'expérience classique permettant d'estimer<sup>c</sup> la largeur temporelle d'une impulsion. Le calcul du signal d'autocorrélation provenant de l'absorption à deux photons dans une photodiode est similaire au calcul du signal non linéaire généré par un seul faisceau mais l'on remplace la forme temporelle  $s(t)$  par la somme des deux impulsions séparées en temps par un retard  $u$  que l'on fait interférer dans la photodiode :

$$s(t) \rightarrow s(t) + s(t+u)e^{i\omega u}. \quad (22)$$

De manière générale, l'autocorrélation d'une impulsion lumineuse dans la photodiode donne un signal TPA proportionnel à (cf. complément V.2) :

$$G_{//}^{abs2}(u) \propto \frac{P_m^2 T^2 ek}{\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} [3(a+b) + (a-3b)\cos(4\theta)] e^{-i2\omega u} \times \int_{-\infty}^{\infty} \left\{ e^{i\omega t} s^2(t) + [1 + e^{i2\omega u}] s(t)s(t+u) + e^{i\omega u} s^2(t+u) \right\}^2 dt \quad (23)$$

En remplaçant  $s(t)$  par la fonction gaussienne :

$$s(t) = e^{-t^2/\tau^2} + e^{-(t+u)^2/\tau^2} e^{i\omega u}, \quad (24)$$

le signal s'écrit alors :

$$G_{//}^{abs2}(u) \propto \frac{P_m^2 T^2 ek}{\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} \tau [3(a+b) + (a-3b)\cos(4\theta)] \left[ 1 + (2 + \cos(2\omega u)) \exp\left(-\frac{u^2}{\tau^2}\right) + 4\cos(\omega u) \exp\left(-\frac{3u^2}{4\tau^2}\right) \right] \quad (25)$$

Naturellement la dépendance angulaire du signal d'autocorrélation est identique à celle du signal provenant d'un seul faisceau. Il vient s'ajouter à l'expression le terme classique d'autocorrélation :

$$\vartheta(u) = \left[ 1 + (2 + \cos(2\omega u)) \exp\left(-\frac{u^2}{\tau^2}\right) + 4\cos(\omega u) \exp\left(-\frac{3u^2}{4\tau^2}\right) \right]. \quad (26)$$

Connaissant la dépendance angulaire du signal de SHG, il est facile d'en déduire le terme de la contribution de la SHG au signal d'autocorrélation :

$$G_{//}^{shg}(u) \propto \frac{P_m^2 T^2 e^2 k^2}{\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} \tau \sigma [1 - \cos(4\theta)] \vartheta(u). \quad (27)$$

<sup>c</sup> On dit estimer car cette mesure se fait toujours sur la base d'un modèle (type gaussien) qui ne reflète pas forcément la réalité sur la forme temporelle de l'impulsion.

L'autocorrélation parallèle n'apporte rien de plus que l'expérience à un faisceau sur les caractéristiques non linéaires de la photodiode. Nous ne montrerons pas les signaux expérimentaux qui ont été présentés dans le chapitre II (page 59) à propos de la mesure de la largeur temporelle d'une impulsion. On peut juste conclure que la SHG et la TPA donnent des traces d'autocorrélation  $\vartheta(u)$  strictement identiques alors que les processus non linéaires mis en jeu ne sont pas les mêmes et par voie de conséquence la conduite des calculs. Bien entendu, cela peut se comprendre d'un point de vue énergétique : si deux photons infrarouges sont nécessaires pour créer une paire électron trou, ils sont aussi nécessaires pour créer un photon bleu qui générera également une paire électron trou avec une grande probabilité.

La question naturelle que l'on peut se poser maintenant est de savoir quelle est la part de signal TPA et de signal SHG dans la photodiode. Si le signal du premier processus non linéaire est directement proportionnel à la partie imaginaire du  $\chi^{(3)}$ , l'autre signal de SHG est proportionnel au produit du module du tenseur  $\chi^{(2)}$  par l'absorption linéaire. Pour regarder l'importance relative de ces deux processus non linéaires, nous avons eu recours à des expériences d'autocorrélations « croisées ».

### b. Autocorrélation avec des polarisations orthogonales

L'autocorrélation « croisée » est réalisée simplement à partir de l'expérience pompe sonde colinéaire, en plaçant la photodiode à la place de l'échantillon.

#### *α. Signal d'absorption à deux photons*

Le calcul de TPA est sensiblement différent de celui pour l'autocorrélation classique car les deux champs sont polarisés orthogonalement. Ainsi, on ne pourra avoir des interférences que par participation d'éléments non diagonaux d'un tenseur de susceptibilité non linéaire. Voici le résultat du calcul de l'autocorrélation croisée pour la partie TPA (cf. complément V.2.) :

$$G_{\perp}^{abs2}(u) \propto \frac{P_m^2 T^2 ek}{\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} \int_{-\infty}^{\infty} \left\{ - [3(a+b) + (a-3b)\cos(4\theta)] [s^4(t) + s^4(t+u)] \right. \\ \left. + 2(2 + \cos(2\omega u)) [-a - b + (a-3b)\cos(4\theta)] s^2(t) s^2(t+u) \right. \\ \left. + 4(a-3b)\sin(4\theta)\cos(\omega u) s(t) s(t+u) [s^2(t) - s^2(t+u)] \right\} dt \quad (28)$$

Le résultat général de cette autocorrélation est assez complexe et on peut remarquer que la fonction d'autocorrélation et la fonction angulaire sont couplées dans cette expression ce qui n'était pas le cas pour l'autocorrélation parallèle. Pour analyser un peu mieux ce signal, prenons comme modèle de forme temporelle une fonction gaussienne, l'expression devient :

$$G_{\perp}^{abs2}(u) \propto \frac{P_m^2 T^2 ek}{\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} \tau e^{-\frac{u^2}{\tau^2}} \left[ (a-3b)\cos(4\theta) \left( -2 + e^{\frac{u^2}{\tau^2}} - \cos(2\omega u) \right) + (a+b) \left( 2 + \cos(2\omega u) + 3e^{\frac{u^2}{\tau^2}} \right) \right] \quad (29)$$

Cette formule plus claire nous montre qu'il n'y a que des franges d'interférences oscillant à  $2\omega$ , ce sont les franges non linéaires de l'expérience pompe sonde colinéaire qui ne peuvent trouver leur origine que via les éléments non diagonaux du tenseur  $\chi^{(3)}$ .

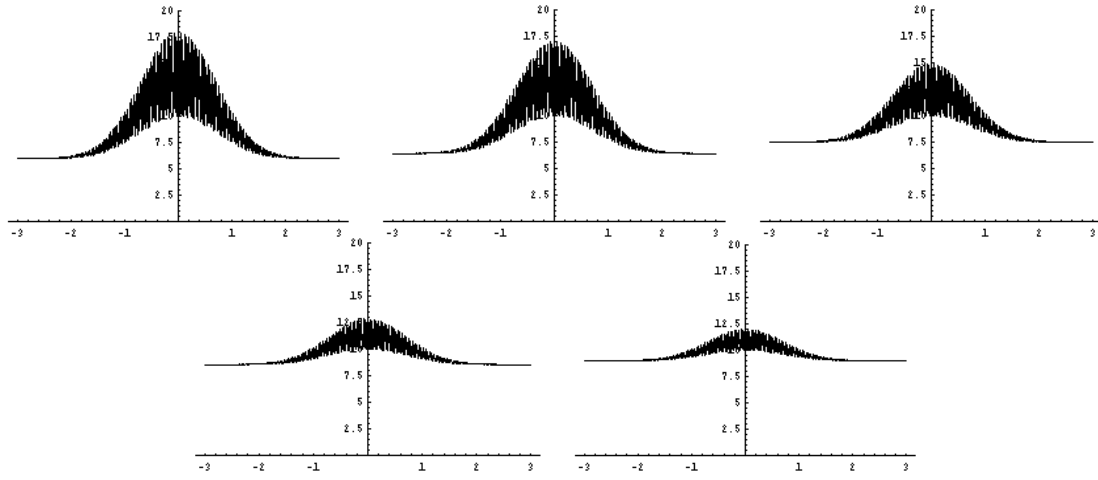


Figure 25 : Simulation du signal d'autocorrélation croisée TPA pour un angle  $\theta$  variant de 0 à  $\pi/4$  par pas de  $\pi/16$ , et une anisotropie  $a/b=1,5$ . On remarque que le minimum de l'enveloppe est constant au cours de l'évolution de l'angle.

La caractérisation de la courbe représentant l'autocorrélation se fait sur trois points : l'analyse du « pied » (à un retard  $u$  infini) de la courbe en fonction de l'angle  $\theta$ , le minimum de l'enveloppe des franges au retard nul et le maximum de l'enveloppe des franges au retard nul. La fonction à analyser peut s'écrire plus simplement :

$$f(u) = (a - 3b) \cos(4\theta) \left[ 1 - 2e^{-u^2/\tau^2} - e^{-u^2/\tau^2} \cos(2\omega u) \right] + (a + b) \left[ 3 + 2e^{-u^2/\tau^2} + e^{-u^2/\tau^2} \cos(2\omega u) \right]. \quad (30)$$

Pour déterminer comment varie le « pied » de la fonction, il suffit de prendre la limite quand le retard  $u$  tend vers l'infini :

$$\lim_{u \rightarrow \pm\infty} f(u) = \text{pied}(f) = (a - 3b) \cos(4\theta) + 3(a + b). \quad (31)$$

Les franges non linéaires dépendant de l'angle et celles n'en dépendant pas n'ont pas le même signe. La détermination des minimum et maximum de l'enveloppe n'est pas immédiate d'autant plus que l'on ne connaît pas a priori le signe de  $(a - 3b)$ .

□ Si  $a - 3b < 0$

La fonction  $f$  s'écrit alors autour du retard zéro :

$$f(u) = 5(a + b) + \cos(4\theta) |a - 3b| + [a + b + \cos(4\theta) |a - 3b|] \cos(2\omega u). \quad (32)$$

Suivant le signe de  $\cos(2\omega u)$  et le signe de  $\cos(4\theta)$ , les extrema de l'enveloppe sont égaux à :

$$\begin{aligned} \max(f) &= 6(a + b) \pm 2 \cos(4\theta) |a - 3b| \\ \min(f) &= 4(a + b) \end{aligned} \quad (33)$$

On peut également calculer la valeur moyenne de la trace d'autocorrélation :

$$\text{moy}(f) = 5(a + b) + \cos(4\theta) |a - 3b| \quad (34)$$

Pour des valeurs très singulières de  $a$  et de  $b$ , il peut y avoir inversion entre les maxima et minima définis comme ci-dessus. Néanmoins ces expressions représentent les extrema de l'enveloppe du signal.

Nous ne traiterons pas ici le cas où  $a - 3b > 0$ , car d'une part le raisonnement est le même et d'autre part parce que des expériences sur du GaAs ont montré<sup>30</sup> que  $a/b$  était égal à 1,7 et on peut donc penser que  $a/b < 3$  dans notre cas également.

Dans le cas du processus TPA, l'amplitude des franges non linéaires de l'autocorrélation croisée varie en fonction de l'angle  $\theta$ . Néanmoins, une remarque très intéressante est l'évolution constante du minimum de l'enveloppe des franges non linéaires en fonction de  $\theta$ . Nous verrons par la suite que cette constante va nous permettre de pouvoir différencier les deux processus non linéaires de TPA et de SHG.

### *$\beta$ . Signal de génération de seconde harmonique*

Le calcul de la SHG dans le cristal de GaAsP en autocorrélation croisée nous donne le résultat suivant :

$$G_{\perp}^{SHG}(u) \propto \frac{P_m^2 T^2 e^2 k^2}{\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} \int_{-\infty}^{\infty} \left\{ [s^4(t) + s^4(t+u)] \sin^2(2\theta) + 2s^2(t)s^2(t+u) [1 + \cos(4\theta) - \cos(2\omega u) \sin^2(2\theta)] \right. \\ \left. + 2s(t)s(t+u) \cos(\omega u) \sin(4\theta) [s^2(t) - s^2(t+u)] \right\} dt \quad (35)$$

Comme dans le paragraphe précédent, il est préférable de présenter le signal avec un modèle gaussien, pour plus de clarté :

$$G_{\perp}^{SHG}(u) \propto \frac{P_m^2 T^2 e^2 k^2}{\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} e^{-\frac{u^2}{\tau^2}} \left[ 1 + \cos(4\theta) + \left( e^{-\frac{u^2}{\tau^2}} - \cos(2\omega u) \right) \sin^2(2\theta) \right]. \quad (36)$$

L'expression du signal SHG nous montre également des franges non linéaires comme dans le signal TPA, à la différence que la dépendance angulaire est totalement différente. Comme précédemment, on peut calculer l'évolution angulaire du « pied » et des extrema de l'enveloppe de l'autocorrélation :

$$\begin{aligned} \text{pied}(f) &= 1 - \cos(4\theta) \\ \text{max}(f) &= 4 \\ \text{min}(f) &= 2(1 + \cos(4\theta)) \\ \text{moy}(f) &= \frac{1}{2}(3 + \cos(4\theta)) \end{aligned} \quad (37)$$

Dans le cas où  $\theta = 0^\circ$ , l'autocorrélation ne présente pas de franges non linéaires en raison du fait que les polarisations des faisceaux sont alignées sur les axes du cristal et que les symétries du tenseur  $\chi^{(2)}$  ne le permettent pas. Dans le cas de la SHG, le maximum de l'enveloppe des franges non linéaires reste constant. Sachant que dans le cas de la TPA, c'est le minimum, il est alors possible de décorréler complètement les deux processus.

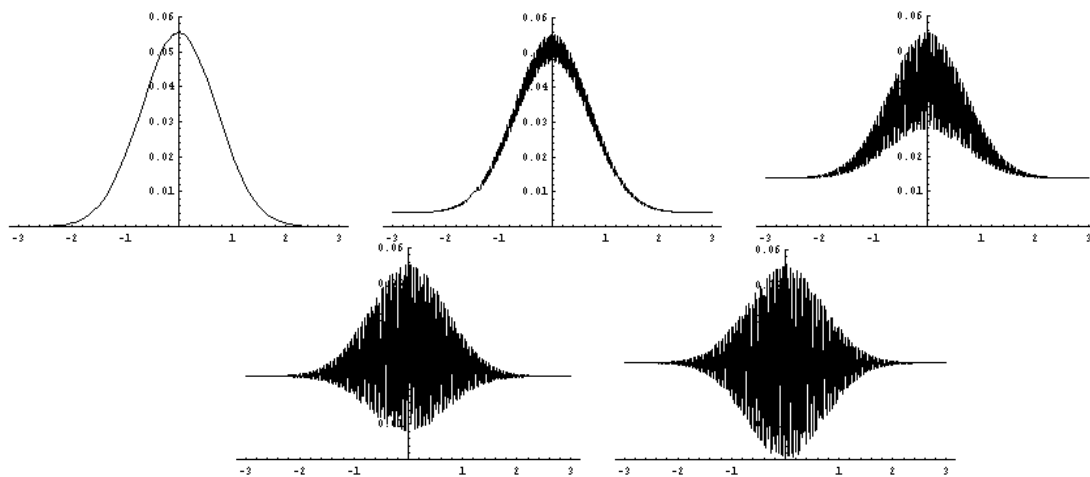


Figure 26 : Simulation du signal d'autocorrélation croisée SHG pour un angle  $\theta$  variant de  $0$  à  $\pi/4$  par pas de  $\pi/16$ . On remarque que le maximum de l'enveloppe est constant quand l'angle évolue.

### $\gamma$ . Analyse expérimentale des résultats

Nous avons réalisé l'autocorrélation sur une photodiode GaAsP (Hamamatsu G1116) dont voici les résultats expérimentaux :

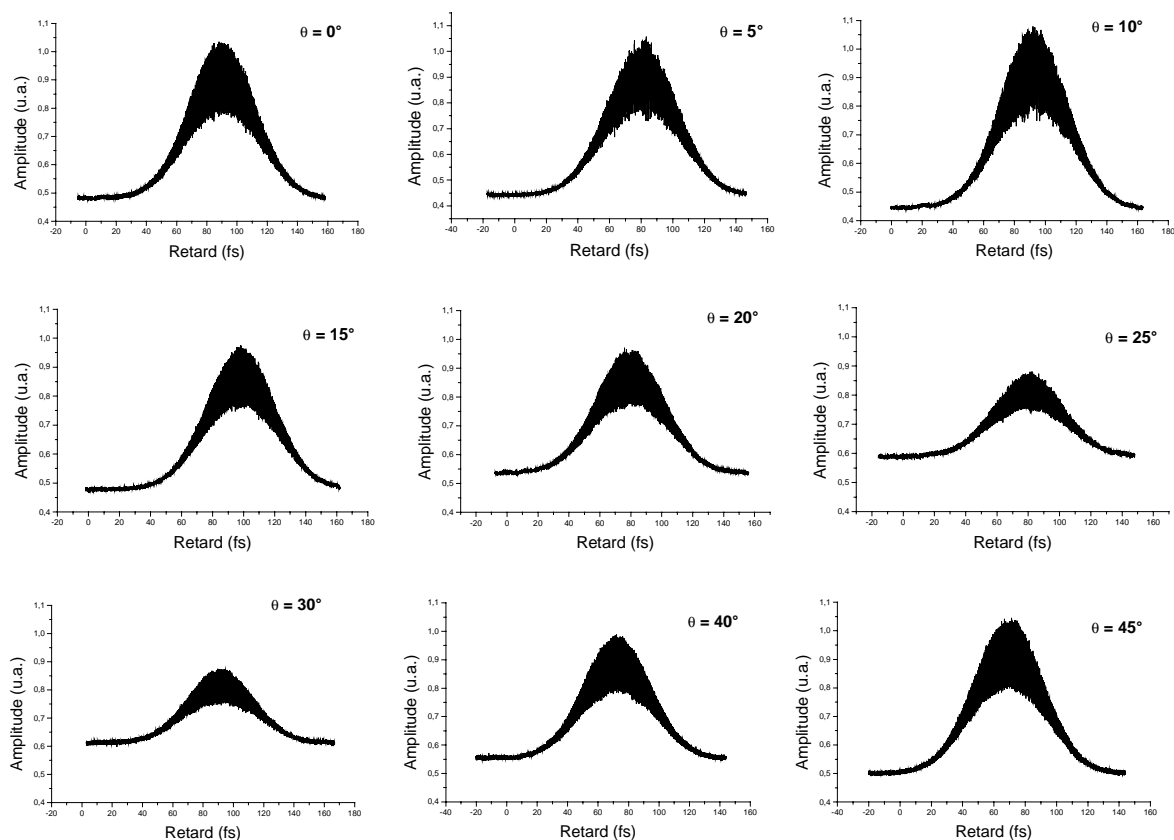


Figure 27 : Série d'autocorrélation croisée et évolution en fonction de l'angle  $\theta$ . Les signaux présentés ont été filtrés de manière à éliminer les franges d'interférences linéaires indésirables.

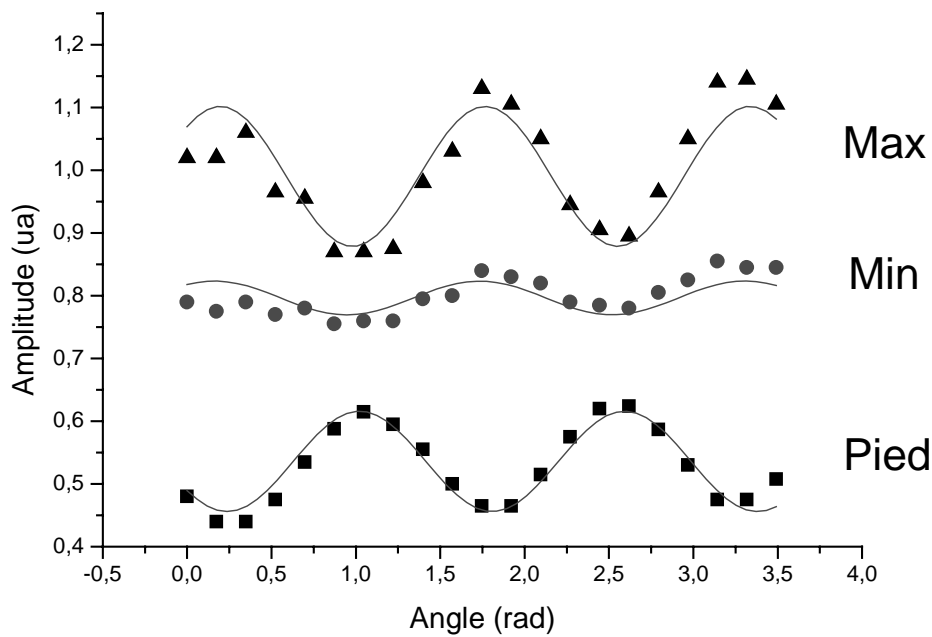


Figure 28 : Evolution des points caractéristiques de la figure d'autocorrélation croisée en fonction de l'angle  $\theta$ . Les ajustements théoriques sont des sinusôïdes de période  $\pi/2$ .

Pour l'analyse des résultats, nous nous plaçons dans le cas où  $a-3b < 0$  ce qui est généralement vérifié<sup>30</sup>. Malgré une normalisation des signaux à l'aide de la mesure de la puissance moyenne en permanence, on peut observer une légère augmentation de l'amplitude des extrema de l'enveloppe au cours de la rotation de la photodiode. Si cette légère évolution peut être due à une petite variation de la largeur temporelle ou de la taille du col du faisceau laser, il est plus probable qu'elle soit due à un déplacement du spot laser sur le semi-conducteur au cours de la rotation de la photodiode. C'est la raison pour laquelle le tableau de mesures montre les résultats de deux ajustements différents sur chacune des courbes ; un ajustement sur la courbe entière et un ajustement sur une partie de la courbe estimée plus stable en fonction de l'angle de rotation de la photodiode.

L'évolution de l'enveloppe suit de manière assez remarquable le modèle décrit plus haut et en particulier celui décrivant l'absorption à deux photons. Tout d'abord l'évolution de l'amplitude du « pied » de l'enveloppe suit une loi sinusôïdale de période  $\pi/2$  comme dans le cas d'un faisceau unique. L'amplitude du maximum de l'enveloppe suit également une loi sinusôïdale de même période mais avec un déphasage de  $\pi$  par rapport au pied, ce qui est fidèle au modèle de la TPA. Néanmoins, une légère oscillation de l'amplitude du minimum de l'enveloppe nous signale que la TPA n'est pas le seul processus non linéaire entrant en jeu mais qu'il doit y avoir également de la génération de seconde harmonique suivie d'une absorption. En effet dans le cas de la SHG, les évolutions des extrema de l'enveloppe sont l'inverse de la TPA ; le maximum de l'enveloppe est constant alors que le minimum varie en opposition de phase par rapport au pied et c'est exactement ce que l'on observe. Néanmoins l'amplitude de l'oscillation du minimum est beaucoup plus petite que celle du maximum ce qui laisserait supposer que la TPA prend plus de part au signal d'autocorrélation croisée que la SHG.

| <b>Ajustements avec la fonction des courbes de mesures de l'enveloppe : <math>m + n \cos(4x + p)</math></b> |                          |                           |                            |                         |
|---|--------------------------|---------------------------|----------------------------|-------------------------|
|   | <b><math>m</math></b>    | <b><math>n</math></b>     | <b><math>p</math></b>      | <b><math>a/b</math></b> |
| <b>Pied</b> (0 → 3,5rad)  | 0,5361±0,0041<br>(±0,7%) | -0,0799±0,0056<br>(±7%)   | -0,9471±0,0742<br>(±8%)    | 1,7638 (±7%)            |
| <b>Pied</b> (1,6 → 3,5rad)  | 0,5436±0,0041<br>(±0,7%) | -0,0785±0,0055<br>(±7%)   | -0,7428±0,0768<br>(±10,3%) | 1,7903 (±7%)            |
| <b>Moy</b> (0 → 3,5rad)   | 0,8928±0,0072<br>(±0,8%) | 0,0691±0,0099<br>(±14,3%) | -0,7533±0,1509<br>(±20%)   | 1,8839 (±15%)           |
| <b>Max</b> (0 → 3,5rad)   | 0,9901±0,0009<br>(±0,1%) | 0,1115±0,0127<br>(±11,4%) | -0,7822±0,1203<br>(±15,4%) | 1,9897 (±12%)           |
| <b>Max</b> (1,6 → 3,5rad)   | 1,0199±0,0000<br>(<0,1%) | 0,1256±0,0045<br>(±3,6%)  | -0,6277±0,0392<br>(±6,2%)  | 1,9209 (±4%)            |
| <b>Min</b> (0 → 3,5rad)   | 0,7965±0,0054<br>(±0,7%) | 0,0268±0,0074<br>(±27,6%) | -0,6513±0,2915<br>(±44,7%) |                         |
| <b>Min</b> (1,6 → 3,5rad)   | 0,8149±0,0000<br>(<0,1%) | 0,0341±0,0027<br>(±7,9%)  | -0,5212±0,0861<br>(±16,5%) |                         |

**Tableau 5 : Résultats des ajustements sinusoïdaux des mesures des points caractéristiques de l'enveloppe de l'autocorrélation croisée. Calculs de l'anisotropie de l'absorption à deux photons  $a/b$ .**

A partir des valeurs des courbes d'ajustement, on peut calculer le rapport entre  $a$  et  $b$ , soit la valeur de l'anisotropie du cristal pour la susceptibilité d'ordre trois. Les ajustements sur le « pied » de l'enveloppe donne une valeur de  $a/b$  comprise entre 1,76 et 1,79 ce qui est comparable à la valeur de  $a/b$  de la référence 30 sur la mesure du GaAs. Les ajustements sur l'amplitude du maximum de l'enveloppe donne une valeur de  $a/b$  comprise entre 1,92 et 1,99 ce qui est incohérent avec la valeur donnée par le « pied ». Ceci est dû au fait que les oscillations du pied (et celles de la valeur moyenne également) sont dues non seulement à la TPA mais aussi à la SHG comme on l'a vu sur l'amplitude du minimum. Cette pollution du signal TPA par la SHG augmente l'amplitude  $n$  des oscillations dont la fonction d'ajustement est :

$$m + n \cos(4x + p). \quad (38)$$

La valeur de  $a/b$  en fonction de l'amplitude des oscillations peut s'écrire de la manière suivante :

$$a/b = \frac{3(n-m)}{m+3n}. \quad (39)$$

Pour les valeurs du tableau de mesures, cette fonction est décroissante ; cela signifie que plus l'amplitude des oscillations est importante, plus la valeur de  $a/b$  sera faible. On peut donc en conclure qu'en regardant les oscillations du « pied » (ou de la valeur moyenne), on sous estime la valeur de  $a/b$ . Par contre, les calculs montrent que l'évolution de l'amplitude du maximum de l'enveloppe n'est pas affectée par la SHG. Finalement dans le cadre de cette photodiode en GaAsP, on peut conclure que la valeur de l'anisotropie de l'absorption à deux photons est environ égale à 1,92. On a donc une anisotropie non linéaire supérieure de plus de 10% par rapport à la valeur publiée par Dvorak. A priori, on ne peut attribuer cette différence qu'à la nature sensiblement différente du cristal (ici du GaAsP au lieu de GaAs). Connaissant cette valeur, on peut en étudiant l'amplitude des oscillations du « pied » en déduire que cette amplitude est environ 6 fois plus importante pour le processus TPA que pour la SHG. Cela veut dire que l'absorption à deux photons est 6 fois plus efficace que la génération de seconde harmonique suivit d'une absorption.



#### 4. CONCLUSION

Les expériences d'autocorrélation sur la photodiode en GaAsP nous ont permis de comprendre un peu mieux les processus non linéaires entrant en jeu pour la mesure courante de la largeur temporelle d'une impulsion. Mais ces expériences nous ont permis d'aller plus loin pour déterminer les caractéristiques non linéaires de celle-ci et en particulier une anisotropie sur la susceptibilité non linéaire d'ordre trois de 1,92.

### D. Complément V.1 : Calcul du signal non linéaire d'un faisceau simple dans une photodiode deux photons

#### 1. PROPAGATION DU FAISCEAU SUIVANT L'AXE (100)

Dans le cas où le champ électrique se propage suivant l'axe du cristal (100), si  $\theta$  est l'angle que fait la polarisation du champ avec l'axe du cristal, alors le champ incident se projette sur les deux axes du cristal de la photodiode et il s'écrit :

$$E(x, y, z, t) = \begin{pmatrix} E_0(z, t) \cos(\theta) \\ E_0(z, t) \sin(\theta) \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (40)$$

Dans un semi-conducteur de type cubique, le tenseur de susceptibilité non linéaire de troisième ordre s'écrit de la manière suivante :

$$\overline{\overline{\chi^3}} = \begin{pmatrix} \begin{pmatrix} \sigma_1 & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_2 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_2 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 0 & \sigma_2 & 0 \\ \sigma_2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 0 & 0 & \sigma_2 \\ 0 & 0 & 0 \\ \sigma_2 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} 0 & \sigma_2 & 0 \\ \sigma_2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} \sigma_2 & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_1 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_2 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_2 \\ 0 & \sigma_2 & 0 \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} 0 & 0 & \sigma_2 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_2 \\ 0 & \sigma_2 & 0 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} \sigma_2 & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_2 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_1 \end{pmatrix} \end{pmatrix} \quad (41)$$

avec  $\sigma_1 = \chi_{xxxx}^{(3)}$  et  $\sigma_2 = \chi_{xyxy}^{(3)}$ .

La polarisation non linéaire se déduit en calculant le produit tensoriel entre  $\chi^{(3)}$  et le cube du champ électrique incident :

$$P_{NL}(z, t) = \overline{\overline{\chi^3}} \otimes E^3(x, y, z, t) = \begin{pmatrix} E_0^3(z, t) \cos \theta (\sigma_1 \cos^2 \theta + 3\sigma_2 \sin^2 \theta) \\ E_0^3(z, t) \sin \theta (\sigma_1 \sin^2 \theta + 3\sigma_2 \cos^2 \theta) \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (42)$$

Le champ électrique peut s'écrire sous la forme complexe suivante (les termes de propagation n'étant pas nécessaires, ils ont été volontairement omis pour alléger les écritures):

$$E_0(z,t) = \frac{1}{2} [A(z,t)e^{i\omega t} + \bar{A}(z,t)e^{-i\omega t}]. \quad (43)$$

En négligeant les termes de génération de troisième harmonique qui nécessitent un accord de phase et en ne prenant en compte que les termes oscillant à la fréquence  $\omega$ , la polarisation non linéaire s'écrit :

$$P_{NL}(z,t) = \varepsilon_0 \begin{pmatrix} \frac{3}{16} \cos(\theta) [\sigma_1 + 3\sigma_2 + (\sigma_1 - 3\sigma_2) \cos(2\theta)] A^2(z,t) \bar{A}(z,t) e^{i\omega t} \\ -\frac{3}{16} \sin(\theta) [-\sigma_1 - 3\sigma_2 + (\sigma_1 - 3\sigma_2) \cos(2\theta)] A^2(z,t) \bar{A}(z,t) e^{i\omega t} \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (44)$$

En négligeant les couplages spatiaux temporels, on peut écrire l'amplitude du champ électrique comme le produit :

$$A(z,t) = A(z)s(t) \quad (45)$$

où  $s(t)$  est la forme temporelle de l'impulsion soit  $s(t) = e^{-t^2/\tau_0^2}$  dans le cas d'une gaussienne. Il ne reste plus alors qu'à résoudre l'équation de propagation du champ électrique qui s'écrit dans l'approximation en ondes planes :

$$\frac{\partial A_{ph}(z,t)}{\partial z} = \frac{ik_0}{2} P_{NL}(z,t). \quad (46)$$

En raison de la faible épaisseur de la zone de déplétion de la photodiode où se produit le processus non linéaire, on peut intégrer l'équation linéairement de la manière suivante :

$$A_{ph}(e,t) = \frac{ik_0}{2} P_{NL}(0,t) \cdot e + A(0,t) \cos(\theta) \quad (47)$$

où  $A(0,t) = \rho_0 s(t)$  et  $e$  est la profondeur de la zone de déplétion. Il faut calculer le champ électrique après propagation dans la zone de déplétion pour chacune des composantes de la polarisation non linéaire :

$$A_{ph}(e,t) = \begin{pmatrix} A_{ph}^x(e,t) \\ A_{ph}^y(e,t) \\ A_{ph}^z(e,t) \end{pmatrix}. \quad (48)$$

Soit en posant :  $\sigma_1 = ia$  et  $\sigma_2 = ib$ , les composantes de l'amplitude du champ électrique s'écrivent suivant les trois coordonnées cartésiennes :

$$A_{ph}^x(e,t) = \rho_0 \cos(\theta) s(t) - \frac{3}{32} \rho_0^3 k e s^3(t) \cos(\theta) [a + 3b + (a - 3b) \cos(2\theta)], \quad (49)$$

$$A_{ph}^y(e,t) = \rho_0 \sin(\theta) s(t) - \frac{3}{32} \rho_0^3 k e s^3(t) \sin(\theta) [a + 3b - (a - 3b) \cos(2\theta)], \quad (50)$$

$$A_{ph}^z(e,t) = 0 \quad (51)$$

Connaissant le champ électrique modifié dans la photodiode, on peut calculer l'intensité de ce champ sur chacune des composantes  $x$ ,  $y$ , et  $z$  :

$$I_x = \frac{3}{16} \rho_0^4 e k s^4(t) \cos^2 \theta [a + 3b + (a - 3b) \cos(2\theta)] \quad (52)$$

$$I_y = -\frac{3}{16} \rho_0^4 e k s^4(t) \sin^2 \theta [a + 3b - (a - 3b) \cos(2\theta)] \quad (53)$$

$$I_z = 0 \quad (54)$$

Le calcul du nombre d'électrons portés dans la bande de conduction se fait en calculant l'énergie perdue par le faisceau dans la photodiode par absorption à deux photons. Pour cela, on intègre les termes quadratiques de l'intensité sur le temps pour tenir compte de la lenteur de notre détecteur et sur la surface éclairée de la photodiode. L'intensité totale perdue par le faisceau est proportionnelle au nombre d'électrons portés dans la bande de conduction au rendement quantique près et elle s'écrit finalement sachant que :

$$\rho_0^2 = \frac{4P_m T}{\pi c \epsilon_0 \int_T s^2(t) dt}$$

$$I_{abs}^{(100)} = \beta^{(100)}(e) I_0^2 = \frac{3P_m^2 T^2 e k}{8\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} \kappa [3(a+b) - (a-3b) \cos(4\theta)] \quad (55)$$

avec

$$\kappa = \frac{\int_T s^4(t) dt}{\left( \int_T s^2(t) dt \right)^2} \quad (56)$$

$\kappa = \sqrt{2}/2$  pour une gaussienne,  $2/3$  pour une Sécante Hyperbolique et  $1$  pour un créneau. Si on écrit l'intensité sous la forme :

$$I_{abs}(e) = I_0 - \alpha(e) I_0 - \beta(e) I_0^2 - \gamma(e) I_0^3 \quad (57)$$

où  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  sont respectivement l'absorption linéaire, l'absorption à deux photons et l'absorption à trois photons alors on a :

$$\beta^{(100)}(e) = \frac{3}{32} e k [3(a+b) - (a-3b) \cos(4\theta)] \quad (58)$$

## 2. PROPAGATION DU FAISCEAU SUIVANT L'AXE (111)

Dans le cas où le faisceau incident se propage suivant l'axe (111) et si  $\theta$  est l'angle entre la polarisation du champ et un axe perpendiculaire à l'axe (111) diagonal de la maille élémentaire du cristal, le calcul de la projection du champ incident sur les axes du cristal se fait par changement de référentiel et l'on obtient :

$$E(x, y, z, t) = \begin{pmatrix} -\frac{1}{\sqrt{3}} E_0(z, t) [\cos(\theta) + \sin \theta] \\ \frac{1}{\sqrt{2}} E_0(z, t) \cos \theta \\ \sqrt{\frac{2}{3}} E_0(z, t) \left[ \sin \theta - \frac{\cos \theta}{2} \right] \end{pmatrix}. \quad (59)$$

Le calcul du signal se fait de manière identique à la configuration où l'on se propage suivant les axes du cristal et l'intensité absorbée est donnée par :

$$I_{abs}^{(111)} = \beta^{(111)}(e)I_0^2 \propto \frac{P_m^2 T^2 ek}{\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} \kappa \{3(25a + 69b) - (a - 3b)[12 \cos(2\theta) + 7 \cos(4\theta) + 8 \sin(2\theta) - 12 \sin(4\theta)]\} \quad (60)$$

Les expressions sont un peu plus compliquées et la symétrie plus complexe du cristal dans ce sens nous donne une dépendance en  $2\theta$  en plus de la dépendance en  $4\theta$  obtenue sur le signal (100).

$$\beta^{(111)} \propto ek \{3(25a + 69b) - (a - 3b)[12 \cos(2\theta) + 7 \cos(4\theta) + 8 \sin(2\theta) - 12 \sin(4\theta)]\}. \quad (61)$$

## E. Complément V.2 : Calcul du signal d'autocorrélation parallèle dans une photodiode deux photons

Les premières étapes de calcul sont identiques au calcul du signal pour un faisceau unique (complément V.1.). Ainsi la polarisation non linéaire s'écrit de la même manière. Dans les étapes de calcul suivantes, on remplace  $s(t)$  par  $s(t) + s(t+u)e^{i\omega u}$  pour tenir compte du retard entre les deux impulsions. Le champ calculé après la zone de déplétion s'écrit alors :

$$A_{//}^x(e, t) = \rho_0 \cos \theta [s(t) + s(t+u)e^{i\omega u}] - \frac{3}{32} \rho_0^3 ek \cos \theta [a + b + (a - 3b) \cos(2\theta)] \times [s(t) + s(t+u)e^{-i\omega u}] [s(t) + s(t+u)e^{i\omega u}]^2 \quad (62)$$

$$A_{//}^y(e, t) = \rho_0 \sin \theta [s(t) + s(t+u)e^{i\omega u}] - \frac{3}{32} \rho_0^3 ek \sin \theta [a + b - (a - 3b) \cos(2\theta)] \times [s(t) + s(t+u)e^{-i\omega u}] [s(t) + s(t+u)e^{i\omega u}]^2 \quad (63)$$

$$A_{//}^z(e, t) = 0. \quad (64)$$

Après calcul de l'intensité et intégration sur le temps, on obtient finalement l'expression de l'autocorrélation de deux impulsions polarisées identiquement dans une photodiode :

$$G_{//}^{abs2}(u) \propto \frac{P_m^2 T^2 ek}{\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} [3(a + b) + (a - 3b) \cos(4\theta)] e^{-i2\omega u} \times \int_{-\infty}^{\infty} \{e^{i\omega u} s^2(t) + [1 + e^{i2\omega u}] s(t)s(t+u) + e^{i\omega u} s^2(t+u)\}^2 dt \quad (65)$$

C'est la formulation la plus générale de l'autocorrélation. Si l'on applique un modèle gaussien, on retrouve après un calcul un peu laborieux (40 intégrales) l'expression plus connue :

$$G_{//}^{abs2}(u) \propto \frac{P_m^2 T^2 ek}{\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} \tau [3(a + b) + (a - 3b) \cos(4\theta)] \left[ 1 + (2 + \cos(2\omega u)) \exp\left(-\frac{u^2}{\tau^2}\right) + 4 \cos(\omega u) \exp\left(-\frac{3u^2}{4\tau^2}\right) \right] \quad (66)$$

## F. Complément V.3 : Calcul du signal d'autocorrélation croisée dans une photodiode deux photons

Le principe de calcul est le même que dans le complément précédent, mais avec des champs incidents qui diffèrent par leurs polarisations qui ne sont parallèles mais perpendiculaires. Il en résulte que les projections de ces champs sur les axes cristallographiques du semi-conducteur vont également différer ainsi le champ incident sur la photodiode va s'écrire de la manière suivante :

$$E(x, y, z, t) = \begin{pmatrix} E_a(z, t)\cos(\theta) - E_b(z, t)\sin(\theta) \\ E_a(z, t)\sin(\theta) + E_b(z, t)\cos(\theta) \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (67)$$

Le tenseur de susceptibilité non linéaire du troisième ordre est inchangé et le calcul de la polarisation non linéaire nous donne alors :

$$P_{NL}(z, t) = \begin{pmatrix} (E_a(z, t)\cos\theta - E_b(z, t)\sin\theta) \left[ \begin{array}{l} 3\sigma_2(E_b(z, t)\cos\theta + E_a(z, t)\sin\theta)^2 + \\ \sigma_1(E_a(z, t)\cos\theta - E_b(z, t)\sin\theta)^2 \end{array} \right] \\ (E_b(z, t)\cos\theta + E_a(z, t)\sin\theta) \left[ \begin{array}{l} 3\sigma_2(E_a(z, t)\cos\theta - E_b(z, t)\sin\theta)^2 + \\ \sigma_1(E_b(z, t)\cos\theta + E_a(z, t)\sin\theta)^2 \end{array} \right] \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (68)$$

Entre les champs  $E_a(z, t)$  et  $E_b(z, t)$ , nous prendrons comme référence temporelle l'impulsion  $E_a(z, t)$  ainsi l'impulsion  $E_b(z, t)$  est retardée de  $\tau$  par rapport à  $E_a(z, t)$ . Les conditions initiales sur les  $E_a(z, t)$  et  $E_b(z, t)$  s'écrivent alors :

$$\begin{aligned} E_a(0, t) &= A(0, t)\cos\theta - B(0, t)\sin\theta \\ \bar{E}_a(0, t) &= \bar{A}(0, t)\cos\theta - \bar{B}(0, t)\sin\theta \\ E_b(0, t) &= B(0, t)\cos\theta + A(0, t)\sin\theta \\ \bar{E}_b(0, t) &= \bar{B}(0, t)\cos\theta + \bar{A}(0, t)\sin\theta \end{aligned} \quad (69)$$

Nous n'écrivons pas les expressions des champs qui sont assez longues mais après quelques manipulations, l'autocorrélation croisée s'exprime sous sa forme la plus générale de la manière suivante :

$$\begin{aligned} G_{\perp}^{abs2}(u) &\propto \frac{P_m^2 T^2 ek}{\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} \int_{-\infty}^{\infty} \left\{ - [3(a+b) + (a-3b)\cos(4\theta)] [s^4(t) + s^4(t+u)] \right. \\ &\quad + 2(2 + \cos(2\omega u)) [-a - b + (a-3b)\cos(4\theta)] s^2(t) s^2(t+u) \\ &\quad \left. + 4(a-3b)\sin(4\theta)\cos(\omega u) s(t) s(t+u) [s^2(t) - s^2(t+u)] \right\} dt \end{aligned} \quad (70)$$

L'application d'un modèle gaussien donne alors :

$$G_{\perp}^{abs2}(u) \propto \frac{P_m^2 T^2 e k}{\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} \tau e^{-\frac{u^2}{\tau^2}} \left[ (a-3b) \cos(4\theta) \left( -2 + e^{\frac{u^2}{\tau^2}} - \cos(2\omega u) \right) + (a+b) \left( 2 + \cos(2\omega u) + 3e^{\frac{u^2}{\tau^2}} \right) \right] \quad (71)$$

## G. Complément V.4 : Signal de génération de seconde harmonique pour l'autocorrélation croisée

Contrairement l'autocorrélation parallèle où seule la dépendance angulaire change entre les processus de TPA et de SHG, dans le cas de l'autocorrélation croisée, tout change et on doit refaire le calcul. Ainsi le tenseur de susceptibilité d'ordre deux dans le GaAsP s'écrit :

$$\chi^{(2)} = \begin{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma \\ 0 & \sigma & 0 \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} 0 & 0 & \sigma \\ 0 & 0 & 0 \\ \sigma & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} 0 & \sigma & 0 \\ \sigma & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \end{pmatrix}. \quad (72)$$

Le champ incident dans la photodiode s'exprime :

$$E(x, y, z, t) = \begin{pmatrix} E_a(z, t) \cos(\theta) - E_b(z, t) \sin(\theta) \\ E_a(z, t) \sin(\theta) + E_b(z, t) \cos(\theta) \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (73)$$

Le calcul de la polarisation non linéaire donne un champ polarisé suivant l'axe de propagation :

$$P_{NL}(z, t) = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 2\sigma(E_b(z, t) \cos \theta + E_a(z, t) \sin \theta)(E_a(z, t) \cos \theta - E_b(z, t) \sin \theta) \end{pmatrix}. \quad (74)$$

On obtient alors un signal d'autocorrélation croisée du à la SHG égal à :

$$G_{\perp}^{SHG}(u) \propto \frac{P_m^2 T^2 e^2 k^2}{\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} \int_{-\infty}^{\infty} \left\{ [s^4(t) + s^4(t+u)] \sin^2(2\theta) + 2s^2(t)s^2(t+u)[1 + \cos(4\theta) - \cos(2\omega u) \sin^2(2\theta)] \right. \\ \left. + 2s(t)s(t+u) \cos(\omega u) \sin(4\theta) [s^2(t) - s^2(t+u)] \right\} dt \quad (75)$$

L'application du modèle gaussien donne alors :

$$G_{\perp}^{SHG}(u) \propto \frac{P_m^2 T^2 e^2 k^2}{\pi c^2 \epsilon_0^2 w_0^2} e^{-\frac{u^2}{\tau^2}} \left[ 1 + \cos(4\theta) + \left( e^{\frac{u^2}{\tau^2}} - \cos(2\omega u) \right) \sin^2(2\theta) \right]. \quad (76)$$

- 
- <sup>1</sup> A.J. Ikushima, T. Fujiwara, and K. Saito, *J. Appl. Phys.* **88**, 1201-1213 (2000)
- <sup>2</sup> N.L. Boling, A.J. Glass, A. Owyong, *IEEE J. Quantum Electron.* **14**, 601-608 (1978)
- <sup>3</sup> M. Sheik-Bahae, D. C. Hutchings, D. J. Hagan, E. W. Van Stryland, *IEEE. J. Quantum. Electron.* **27**, N°6, 1296-1309 (1991).
- <sup>4</sup> R. Adair, L. L. Chase, S. A. Payne, *Opt. Mat.* **1**, 185-194 (1992).
- <sup>5</sup> D. Milan, "Review and assessment of measured values of the nonlinear refractive-index coefficient of fused silica", *Applied Optics.* **37**, No. 3, January (1998).
- <sup>6</sup> R. Hellwarth, J. Cherlow, and T.T. Yang, *Phys. Rev.* **B 11**, 964-967 (1975)
- <sup>7</sup> K.A. Nelson, « Time resolved interferometry », *Encyclopedia of Physics, Science, and Technology* (Academic, New York, 1989), p. 607
- <sup>8</sup> R. W. Hellwarth, *Prog. Quantum Electron.* **5**, 1-68 (1977).
- <sup>9</sup> E. Dianov, A. Luchnikov, A. Pilipetskii, and A. Starodumov, *Opt. Lett.* **15**, 314 (1990)
- <sup>10</sup> E.L. Buckland and R.W. Boyd, *Opt. Lett.* **21**, 1117 (1996)
- <sup>11</sup> C. McIntosh, J. Toulouse, P. Tick, *J. Non-Cryst. Solids*, **222**, 335-341, (1997).
- <sup>12</sup> F.L. Galeener, « Raman Spectroscopy. Linear and Nonlinear », *Proc. VIII<sup>th</sup> conference on Raman spectroscopy*, Bordeaux 1982, J. Lascombe and P.V. Huong Ed., J. Wiley & Sons, Chichester (1982)
- <sup>13</sup> R.W. Hellwarth, *Prog. Quantum Electron.* **5**, 1-68 (1977).
- <sup>14</sup> R.H. Stolen, J. P. Gordon, W. J. Tomlinson, and H. A. Haus, *J. Opt. Soc. Am.* **B 6**, 1159-1165 (1989).
- <sup>15</sup> R.W. Hellwarth, J. Cherlow, T.T. Tang, *Phys. Rev.* **B, 11**, N°2, 964 (1975)
- <sup>16</sup> R. H. Stolen, W. J. Tomlinson, *J. Opt. Soc. Am.* **B 9**, 565-573 (1992).
- <sup>17</sup> Discussion avec Eric Freysz.
- <sup>18</sup> S. Montant, Thèse de doctorat de l'Université de Bordeaux I, 12 Octobre 1999, N° 2131bis
- <sup>19</sup> G.P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics* (Academic, San Diego, California, 1989)
- <sup>20</sup> R.H. Stolen and Chinlon Lin, *Phys. Rev. A* **17**, N°4, 1448-1453 (1978)
- <sup>21</sup> K.S. Kim, R.H. Stolen, W.A. Reed, K.W. Quoi, *Opt. Lett.* **19**, N°4, 257-259 (1994)
- <sup>22</sup> T. Kato, Y. Suetsugu, M. Takagi, E. Sasaoka, M. Nishimura, *Opt. Lett.* **20**, N°9, 988-990 (1995)
- <sup>23</sup> A. Berthereau, E. Fargin, A. Villesuzanne, R. Olazcuaga, G. Le Flem, and A. Ducasse, *J. Solid State Chem.* **126**, 143 (1996).
- <sup>24</sup> S. Le Boiteux, P. Segonds, L. Canioni, L. Sarger, T. Cardinal, C. Duchesne, E. Fargin, and G. Le Flem, *J. Appl. Phys.* **81** (3), 1481 (1997).
- <sup>25</sup> E. Fargin, A. Berthereau, T. Cardinal, J.J. Videau, A. Villesuzanne, and G. Le Flem, *Ann. Chim. Sci. Mater.* **23**, 27 (1998).
- <sup>26</sup> B. Jeansannetas and al., *J. of Solid State Chemistry*, **146**, 329-335, (1999).
- <sup>27</sup> V. Nazabal, E. Fargin, B. Ferreira, G. Le Flem, B. Desbat, T. Buffeteau, M. Couzi, V. Rodriguez, S. Santran, L. Canioni, L. Sarger, *J. Non Crystal Solid*, To be published
- <sup>28</sup> J. K. Ranka, A. L. Gaeta, A. Baltuska, M.S. Pshechnikov, D.A. Wiersma, *Opt. Lett.* **22**, N°17, 1344-1346 (1997)
- <sup>29</sup> W. Schade, J. Preusser, D.L. Osborn, Y.Y. Lee, J. deGouw, S.R. Leone, *Opt. Comm.* **162**, 200-204 (1999)
- <sup>30</sup> M.D. Dvorak, W.A. Schoeder, D.R. Andersen, A.L. Smirl, B.S. Wherrett, *IEEE J. Quantum Electron.* **30**, N°2, 256-268 (1994)

## Conclusion et perspectives

Au terme de ce travail, nous avons réalisé des mesures d'indices non linéaires aux longueurs d'ondes de  $0,4\mu\text{m}$  et  $0,8\mu\text{m}$ . L'expérience d'absorption transitoire initialement développée dans le groupe a été améliorée et automatisée de manière à réaliser des mesures d'indices non linéaires précises, absolues et routinières. L'amélioration principale apportée à cette expérience est l'acquisition temps réel du signal. Cela nous a permis de découvrir de nouveaux problèmes expérimentaux et d'améliorer la qualité des mesures. Ainsi le positionnement de l'échantillon dans le col du faisceau est beaucoup plus précis et il est devenu possible de réaliser une moyenne sur de nombreuses acquisitions. Le résultat principal de ces améliorations est la réduction de la précision relative de la mesure jusqu'à des valeurs inférieures à 0,1% pour des échantillons de très bonne qualité optique. Enfin, cela nous a également permis d'effectuer des mesures systématiques sur toute la surface d'un verre afin d'en vérifier l'homogénéité d'un point de vue non linéaire. Il faut rappeler que la précision et la nature absolue de nos mesures reposent sur l'utilisation d'un oscillateur laser très stable de puissance crête modeste permettant de se placer dans des conditions d'approximations valides dans notre modèle, mais aussi suffisante pour avoir un rapport signal sur bruit excellent pour les verres les moins non linéaires comme la silice fondue.

En contrat avec le Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), de nombreuses mesures ont été effectuées sur divers échantillons de silice fondue en vue de choisir la silice présentant le meilleur compromis d'un point de vue indice non linéaire et coût à l'achat pour approvisionner le projet Laser MegaJoule (LMJ). Si les valeurs d'indices non linéaires mesurées correspondent bien à l'ordre de grandeur de celles déjà publiées validant ainsi notre expérience, nous avons trouvé grâce à la précision de nos mesures une variation de l'indice non linéaire supérieure à 30% sur le lot d'échantillons mis à notre disposition. Les variations observées à la longueur d'onde de  $0,8\mu\text{m}$  ont également été observées à  $0,4\mu\text{m}$ . Ces variations surprenantes qui peuvent être dues à la présence d'impuretés dans le verre, ont été attribuées à la nature structurale du verre. Néanmoins, afin de mieux comprendre l'origine des variations de la susceptibilité non linéaire dans la silice, des études complémentaires vont être lancées en collaboration avec d'autres laboratoires. En parallèle, nous avons réalisé une étude sur une préforme de fibre optique à saut d'indice d'Alcatel. Les mesures faites au niveau du cœur, de la gaine et de l'extérieur de la fibre nous ont révélé un saut d'indice non linéaire supérieur à 30% alors que le saut d'indice linéaire est de l'ordre de 2%.

Si notre expérience a donné de bons résultats dans la mesure de faibles non linéarité, les mesures réalisées sur des verres fortement non linéaires ont également été profitables. En collaboration avec l'Institut de Chimie et de la Matière Condensée de Bordeaux (ICMCB), le laboratoire de Science des Procédés Céramiques et de Traitements de Surface (SPCTS) de Limoges et le Laboratoire de Physico-Chimie de la Matière Condensée (LPMC) de Montpellier, nous avons réalisé des mesures d'indices non linéaires sur des matériaux vitreux expérimentaux composés de niobium, de titane, de tellure et de nombreux ions métalliques. Sur les matériaux composés de niobium et de titane, l'étude a montré une relation entre les propriétés non linéaires et les propriétés structurales des verres. Ainsi, il a été montré qu'en fonction des concentrations de ces ions, la structure moléculaire du verre changeait, se traduisant par un changement de pente dans la représentation de la susceptibilité non linéaire en fonction de la concentration de ces ions. Les verres les plus non linéaires mesurés au cours de ces travaux furent ceux composés de tellure. Ces ions de configuration électronique  $ns^2$  ont la particularité de se placer au centre d'une structure moléculaire tétraédrique formée par des atomes d'oxygènes laissant libre un doublet d'électrons isolés. Cette formation particulière est responsable des forts coefficients non linéaires mesurés sur ces verres. Des mesures sur des



composés binaires et ternaires à base de tellure et d'ions de configuration électronique  $ns^2, d^0$  ou  $d^{10}$  nous ont permis de faire un classement sur la susceptibilité non linéaire de ces matériaux suivant la configuration électronique de l'ion rajouté.

Enfin cette expérience pompe sonde colinéaire nous a également permis d'étudier les semi-conducteurs des photodiodes de détection. Ainsi, il a été montré que dans le cadre de la mesure de la largeur temporelle d'une impulsion par autocorrélation directe dans une photodiode deux photons que la signature du processus impliqué correspond essentiellement à un effet non linéaire d'ordre trois faisant intervenir la partie imaginaire de la susceptibilité non linéaire. Cette expérience nous a également permis de mesurer l'anisotropie non linéaire du cristal GaAsP composant d'une photodiode G1116 (Hamamatsu). La valeur trouvée est de 1,92 sachant qu'elle est égale à 3 pour un milieu isotrope.

L'expérience pompe sonde colinéaire a été aussi utilisée dans une configuration en réflexion sur l'échantillon de manière à étudier les non linéarités de surface. Des franges non linéaires de faible amplitude ont été observées sur un échantillon de tellure. Ces premières expériences en réflexion sont le point de départ d'une étude fondamentale de la susceptibilité non linéaire en surface qui semble beaucoup plus importante que la susceptibilité non linéaire en volume. En effet, nous sommes en train de développer dans le groupe une expérience de microscopie par génération de troisième harmonique. Cette expérience tire l'avantage d'une génération de troisième harmonique rendue efficace à la surface par un accord de phase du à la phase spatiale du faisceau incident. L'étude en parallèle de l'origine microscopique de la non linéarité de surface à l'aide de l'expérience en réflexion pourrait permettre de mieux comprendre les processus mis en jeu dans l'éventualité d'améliorer le microscope.

Une première mesure qualitative de l'indice non linéaire en configuration non dégénérée a été réalisée sur un échantillon de silice fondue. Les faisceaux pompe et sonde étant de longueur d'onde différente, l'acquisition du signal non linéaire ne repose plus sur la détection de l'intensité du faisceau sonde, mais sur la détection de sa phase à l'aide d'un interféromètre de Sagnac modifié. Contrairement à l'interféromètre de Mach-Zhender déjà développé dans le groupe dans le même but, cette expérience est beaucoup moins lourde à mettre en œuvre. Ce premier signal a montré la faisabilité de mesures en configuration non dégénérée. Il reste maintenant à utiliser cette expérience dont le but initial est de mesurer les non linéarités dans les cristaux doubleurs de KDP pour la chaîne du LMJ.

Dans le but de réaliser un instrument de caractérisation normatif, nous développons en collaboration étroite avec la Plate-forme d'Applications Laser en Aquitaine (PALA) une source laser en mode femtoseconde fonctionnant à la longueur d'onde de  $1,06\mu\text{m}$ . Cette source de puissance crête suffisante permettra de générer aussi confortablement les harmoniques 2 et 3 de cette source. Ainsi, la valeur de ce coefficient non linéaire serait donnée à des longueurs d'onde standards, de façon équivalente à la mesure de l'indice linéaire à la longueur d'onde de la raie D du Sodium.

# Annexes

Le but de ces annexes est de placer à la fin du document les relations pratiques que l'on utilise quotidiennement.

## 1. DEFINITIONS USUELLES SUR UN CHAMP ELECTRIQUE GAUSSIEN.

$$A_0(r, z, t) = \frac{\rho_0}{w(z)} \exp\left[-\frac{r^2}{w^2(z)}\right] \exp\left[-ik(\omega_0) \frac{r^2}{2R(z)}\right] \exp[i\xi(z)]s(t)$$

- Taille du faisceau en fonction de la variable z.  $w_0$  représente la taille du col du faisceau.

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2}\right)^2}$$

- Rayon de courbure de la surface équiphase :

$$R(z) = z \left[ 1 + \left(\frac{\pi w_0^2}{\lambda z}\right)^2 \right]$$

- Phase de Guoy :

$$\xi(z) = \arctan\left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2}\right)$$

- $s(t)$  représente la forme de l'enveloppe temporelle du champ électrique (Exemples : gaussienne, sécante hyperbolique)

- Expression de l'amplitude du champ électrique  $\rho_p$  (V/m) en fonction de la puissance moyenne  $P_m$  (W), du taux de répétition  $T$  (s)

$$\rho_p^2 = \frac{4P_m T}{\pi c \varepsilon_0 \int_T s^2(t)}$$

- Puissance crête pour une impulsion de forme gaussienne temporellement :

$$P_{crête} = \frac{1}{2} c \varepsilon_0 \rho_0^2 \frac{\pi}{2}$$

- Relation entre la puissance moyenne et la puissance crête :

$$P_{moy} = \frac{\tau_0}{T} \sqrt{\frac{\pi}{2}} P_{crête} \quad \text{pour une impulsion gaussienne}$$

$$P_{moy} = \frac{\tau_0}{T} P_{crête} 1,48014 \quad \text{pour une sécante hyperbolique}$$

$$P_{moy} = \frac{\tau_0}{T} P_{crête} 2 \quad \text{pour une fonction porte.}$$

où T est la période de répétition du laser.

- Paramètre confocal d'un laser ou paramètre Rayleigh :  $q = \frac{2\pi w_0^2}{\lambda}$

- Vitesse de phase :  $v_\phi = \frac{c}{n(\omega)}$
- Vitesse de groupe :  $v_g = \frac{1}{(dk/d\omega)} \approx v_\phi \left( 1 - \frac{\omega}{n(\omega)} \frac{dn(\omega)}{d\omega} \right)$

## 2. REGLES PRATIQUES DE CONVERSION ENTRE LES SYSTEMES S.I. ET C.G.S. ELECTROSTATIQUE.

- Unité de la polarisation en système CGS :

$$[P] = [E] = \frac{\text{statvolt}}{\text{cm}} = \frac{\text{statcoulomb}}{\text{cm}^2} = \left( \frac{\text{erg}}{\text{cm}^3} \right)^{1/2}$$

$$[\chi^{(2)}] = \frac{\text{cm}}{\text{statvolt}} = \left( \frac{\text{erg}}{\text{cm}^3} \right)^{-1/2}$$

$$[\chi^{(3)}] = \frac{\text{cm}^2}{\text{statvolt}^2} = \left( \frac{\text{erg}}{\text{cm}^3} \right)^{-1}$$

- Unité de la polarisation dans le système SI :

Si la polarisation s'écrit de la manière suivante :

$$P(t) = \epsilon_0 [\chi^{(1)} E(t) + \chi^{(2)} E^2(t) + \chi^{(3)} E^3(t) + \dots]$$

ou  $\epsilon_0 = 8,85 \cdot 10^{-12} \text{ F/m}$

$$[P] = \frac{\text{C}}{\text{m}^2}, \quad [E] = \frac{\text{V}}{\text{m}}$$

$$[\chi^{(2)}] = \frac{\text{m}}{\text{V}}, \quad [\chi^{(3)}] = \frac{\text{m}^2}{\text{V}^2}$$

- Conversion entre les deux systèmes :

$$E(SI) = 3 \cdot 10^4 E(CGS)$$

$$\chi^{(1)}(SI) = 4\pi \chi^{(1)}(CGS)$$

$$\chi^{(2)}(SI) = \frac{4\pi}{3 \cdot 10^4} \chi^{(2)}(CGS) = 4,189 \cdot 10^{-4} \chi^{(2)}(CGS)$$

$$\chi^{(3)}(SI) = \frac{4\pi}{(3 \cdot 10^4)^2} \chi^{(3)}(CGS) = 1,4 \cdot 10^{-8} \chi^{(3)}(CGS)$$

$$n_2(\text{m}^2/\text{W}) = \frac{80\pi}{n_0 c} n_2(\text{esu})$$

$$n_2(\text{m}^2/\text{W}) = \frac{3\chi^{(3)}(\text{m}^2/\text{V}^2)}{4c\epsilon_0 n_0^2}$$

- Relations entre l'intensité et le champ

- Unité SI :  $I(\text{W/m}^2) = 2n \left( \frac{\epsilon_0}{\mu_0} \right)^{1/2} |E(\text{V/m})|^2$

- Unité CGS :  $I(\text{erg.s/cm}^2) = \frac{nc}{2\pi} |E(\text{statvolts/cm})|^2$

$$1 \text{ W/cm}^2 \equiv 10^7 \text{ erg.s/cm}^2 \equiv 0,0458 \text{ statvolts/cm} \equiv 10^4 \text{ W/m}^2 \equiv 1,37 \cdot 10^3 \text{ V/m}$$

- Constantes physiques utilisées :

| <i>Désignation</i>     | <i>Symbol</i> | <i>S.I.</i>                        | <i>C.G.S.</i>                        |
|------------------------|---------------|------------------------------------|--------------------------------------|
| Permittivité du vide   | $\mu_0$       | $4\pi \cdot 10^{-7} \text{ H/m}$   | 1                                    |
| Susceptibilité du vide | $\epsilon_0$  | $8,85 \cdot 10^{-12} \text{ F/m}$  | 1                                    |
| Vitesse de la lumière  | c             | $3 \cdot 10^8 \text{ m/s}$         | $3 \cdot 10^{10} \text{ cm/s}$       |
| Charge élémentaire     | e             | $1,602 \cdot 10^{-19} \text{ C}$   | $4,803 \cdot 10^{-10} \text{ esu}$   |
| Constante de Planck    | h             | $6,626 \cdot 10^{-34} \text{ J.s}$ | $6,626 \cdot 10^{-27} \text{ erg.s}$ |
| Constante de Boltzman  | $k_B$         | $1,381 \cdot 10^{-23} \text{ J/K}$ | $1,381 \cdot 10^{-16} \text{ erg/K}$ |
| Electron volt          | eV            | $1,602 \cdot 10^{-19} \text{ J}$   | $1,602 \cdot 10^{-12} \text{ erg}$   |

- Relations de conversion entre les systèmes

$$1 \text{ m} = 100 \text{ cm}$$

$$1 \text{ kg} = 1000 \text{ g}$$

$$1 \text{ newton} = 10^5 \text{ dynes}$$

$$1 \text{ joule} = 10^7 \text{ erg}$$

$$1 \text{ coulomb} = 2,998 \cdot 10^9 \text{ statcoulomb}$$

$$1 \text{ volt} = \frac{1}{299,8} \text{ statvolt}$$

$$1 \text{ ohm} = 1,139 \cdot 10^{-12} \text{ s/cm}$$

$$1 \text{ tesla} = 10^4 \text{ gauss}$$

$$1 \text{ farad} = 0,899 \cdot 10^{12} \text{ cm}$$

$$1 \text{ henry} = 1,113 \cdot 10^{-12} \text{ s}^2/\text{cm}$$

### 3. QUELQUES FORMULES UTILES SUR LES DIFFERENTES PERTURBATIONS APORTEES A UNE IMPULSION

- Dispersion :

$$F(z, t) = \frac{\tau_0}{(\tau_0^4 + 4k''^2 z^2)^{1/4}} \exp\left[-\frac{t^2}{\tau_0^2 + 4k''^2 z^2 / \tau_0^2}\right] \exp\left[\frac{2ik'' z t^2}{\tau_0^4 + 4k''^2 z^2}\right] \exp\left[\frac{i}{2} \arctan\left(\frac{2k'' z}{\tau_0^2}\right)\right]$$

Longueur correspondant à un élargissement temporel d'un facteur  $\sqrt{2}$  :  $L_d = \frac{\tau_0^2}{2|k''|}$

- Automodulation de phase :

$$L_{\text{automod}} = \frac{1}{k_0 n_2 I_{\text{Max}}} = \frac{\pi \omega_0^2}{2k_0 n_2 P_{\text{crête}}}$$

- Autoraidissement :

$$L_{\text{Self-Steep}} = \frac{\tau_0 \omega_0}{12k_0 n_2 I_{\text{Max}}} = \frac{\tau_0 \omega_0}{12} L_{\text{Automod}}$$

### 4. QUELQUES FORMULES SUR LES PHOTODIODES

- Forme du signal dans une photodiode un photon :  $S_1(\lambda) = \kappa_1(\lambda) \cdot P_m$
- Forme du signal dans une photodiode deux photons :  $S_2(\lambda) = \kappa_2(\lambda) \cdot \frac{P_m^2}{\omega_0^2 \tau_0}$
- Fonction de corrélation normalisée (utilisée dans notre cas) de deux impulsions de forme temporelle  $s(t)$  séparées d'un retard  $\tau$  :

$$G(u) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} s^2(t) s^2(t-u) dt}{\left(\int_{-\infty}^{+\infty} s^2(t) dt\right)^2}$$

## 5. AUTOCORRELATION

$\tau_0$  : demi-largeur à 1/e en amplitude, demi-largeur à 1/e<sup>2</sup> en intensité.

$t_0$  : demi-largeur à 1/e en intensité.

$T_0$  : largeur à mi-hauteur en intensité.

$$T_0 = 2\sqrt{\ln 2} t_0 = \sqrt{2 \ln 2} \tau_0$$

| $I(t)$   | $\Delta t$                                  | $I(\omega)$   | $\Delta \omega$        | $\Delta \omega \cdot \Delta t$ | $G'(u)$                                      | $\Delta \tau$                              | $\Delta \tau / \Delta t$ |
|--|---|---|------------------------|--------------------------------|--|--|--------------------------|
| $\exp\left[-2\left(\frac{t}{\tau_0}\right)^2\right]$     | $\sqrt{2 \ln 2} \tau_0$<br>$= 1,177 \tau_0$ | $\sqrt{\frac{\pi}{2}} \tau_0 \exp[-\omega^2 \tau_0^2 / 8]$        | $\frac{4,709}{\tau_0}$ | 5,544                          | $\exp\left[-\frac{u^2}{\tau_0^2}\right]$     | $2\sqrt{\ln 2} \tau_0$<br>$= 1,665 \tau_0$ | 1,414                    |
| $\exp\left[-\left(\frac{t}{t_0}\right)^2\right]$         | $2\sqrt{\ln 2} t_0$<br>$= 1,665 t_0$        | $\sqrt{\pi} t_0 \exp[-\omega^2 t_0^2 / 4]$                        | $\frac{3,330}{t_0}$    | 5,544                          | $\exp\left[-\frac{u^2}{2t_0^2}\right]$       | $2\sqrt{2 \ln 2} t_0$<br>$= 2,355 t_0$     | 1,414                    |
| $\exp\left[-4 \ln 2 \left(\frac{t}{T_0}\right)^2\right]$ | $T_0$                                       | $\sqrt{\frac{\pi}{\ln 2}} T_0 \exp[-\omega^2 T_0^2 / (16 \ln 2)]$ | $\frac{5,544}{T_0}$    | 5,544                          | $\exp\left[-\frac{2u^2 \ln 2}{t_0^2}\right]$ | $\sqrt{2} T_0 =$<br>$1,414 T_0$            | 1,414                    |
| $\text{Sech}^2(t/v_0)$                                   | $1,763 v_0$                                 | $\frac{\pi v_0^2  \omega }{\sinh(\pi v_0  \omega  / 2)}$          | $\frac{2,772}{v_0}$    | 4,887                          | (1)  | $2,72 v_0$                                 | 1,543                    |

$$(1) = \frac{3[u \cosh(u/v_0) - \sinh(u/v_0)]}{\sinh^3(u/v_0)}$$

Fonction de corrélation non normalisée :  $G'(u) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} s^2(t) s^2(t-u) dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} s^2(t) dt}$

Définition de la transformée de Fourier utilisée dans le tableau :  $I(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t) e^{-i\omega t} dt$

| Forme d'impulsion    | $\Delta \nu(\text{Hz}) \cdot \Delta \tau(\text{s})$ |
|----------------------|---|
| Gaussienne           | 0,441   |
| Sécante hyperbolique | 0,315   |
| Rectangle            | 1   |

$$\text{Nombre d'Abbe : } \nu_d = \frac{n_0(\lambda = 587,6 \text{ nm}) - 1}{n_0(\lambda = 486,1 \text{ nm}) - n_0(\lambda = 656,3 \text{ nm})}$$

## **RESUME :**

Ce travail porte sur la réalisation de prototypes de mesure des propriétés optiques non linéaires de verres dans le proche infrarouge et dans le visible. Les montages réalisés sont des expériences pompe sonde colinéaires résolues en temps dans lesquelles la susceptibilité non linéaire est déduite des variations de l'intensité du faisceau sonde induites par un couplage entre les faisceaux pompe et sonde dans le matériau. La sensibilité de ces expériences ont permis entre autre d'observer des variations inattendues, supérieures à 30%, des indices non linéaires de différentes silice fondue, d'analyser les origines de la non linéarité de verres d'oxydes prometteurs pour les applications tout optique et de comprendre et mesurer les processus non linéaire dans les diodes dites « à deux photons ». Enfin, une architecture originale pour la mesure d'indice non linéaire en configuration non dégénérée par une approche de mesure de phase de l'impulsion sonde à l'aide d'un interféromètre de Sagnac est proposée et analysée.

## **Mots clés :**

|  |  |
|--|--|
| Optique non linéaire.                        | Silice fondue.                           |
| Indice non linéaire.                         | Expérience pompe sonde colinéaire.       |
| Susceptibilité non linéaire à l'ordre trois. | Interféromètre de Sagnac.                |
| Métrologie non linéaire.                     | Mesures sensibles, précises et absolues. |
|  | Photodiodes deux photons.                |

## **Non linear characterisation of optical components of a high power laser chain.**

## **ABSTRACT :**

This work concerns the realisation of non linear properties measurement prototypes in glasses in the near infrared and in the visible range. The various devices are time resolved colinear pump probe experiments in which the non linear susceptibility is deduced by the probe beam intensity variations induced by the pump probe coupled in the material. The sensitivity of these experiments allows us to observe unexpected variations, greater than 30%, of several fused silica non linear indexes. As well, this allow us to analyse the origin of the promising oxide glasses non linearity for all optical applications and to understand and measure non linear processes in the two photons photodiodes. Finally, an original structure for the non linear index measurement in non degenerated configuration by a probe pulse phase measurement approach with a Sagnac interferometer is demonstrated and analysed.

## **Keywords :**

|  |   |
|--|---|
| Non linear optic.                      | Fused silica.                                 |
| Non linear index.                      | Colinear pump probe experiment.               |
| Third order non linear susceptibility. | Sagnac interferometer.                        |
| Non linear metrology.                  | Sensitive, precise and absolute measurements. |
|  | Two photons photodiodes.                      |

## **Laboratoires :**

**C.P.M.O.H.**  
**351, cours de la Libération**  
**33405 Talence Cedex, France**

**CEA/CESTA/SCSL/DLP**  
**B.P.2**  
**33114 Le Barp, France**

