



Métrologie de l'indice non-linéaire dans les verres en régime nanoseconde, picoseconde et sub-picoseconde

Franck Billard

► To cite this version:

Franck Billard. Métrologie de l'indice non-linéaire dans les verres en régime nanoseconde, picoseconde et sub-picoseconde. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université de droit, d'économie et des sciences - Aix-Marseille III, 2005. Français. NNT: . tel-00011812v1

HAL Id: tel-00011812

<https://theses.hal.science/tel-00011812v1>

Submitted on 8 Mar 2006 (v1), last revised 10 Mar 2006 (v2)

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.

THÈSE

pour obtenir le grade de **Docteur en Sciences**
de l'Université Paul Cezanne - Aix-Marseille III
n° 2005AIX30016

Discipline : Optique - Électronique, Optronique et Systèmes

**Métrologie de l'indice non-linéaire dans les verres en régime
nanoseconde, picoseconde et sub-picoseconde**

soutenue publiquement le **11 juillet 2005** par

Franck BILLARD

École Doctorale : Physique & Sciences de la Matière

Rapporteurs : Mme Suzanne LACROIX
M. Georges BOUDEBS

Examineurs : Mme Suzanne LACROIX
M. Hassan AKHOUAYRI (directeur de thèse)
M. Claude AMRA
M. Cid B. de ARAÛJO
M. Georges BOUDEBS
M. M.J. SOILEAU

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé au sein de l'équipe Milieux Aléatoires et Photonique de Puissance (MAP²) de l'Institut Fresnel, U.M.R. C.N.R.S. 6133, dans le cadre d'une allocation de recherche du Ministère de l'Education Nationale, de la Recherche et de la Technologie.

En premier lieu, je tiens à remercier Monsieur Claude Amra, directeur de l'institut Fresnel, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire et avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse.

Merci à Madame Suzanne Lacroix et à Monsieur George Boudebs d'avoir accepté d'être rapporteurs de ce travail. Mes remerciements vont également aux autres membres du jury, Messieurs M.J. Soileau et Cid Bartolomeu de Araújo. Merci à tous d'avoir consacré votre temps et vos compétences à juger ce travail.

La direction de ce travail a été assurée par Hassan Akhouayri. J'ai beaucoup appris en le côtoyant et je voudrais qu'il soit assuré de ma reconnaissance pour la confiance qu'il m'a accordée ainsi que pour sa disponibilité, ses compétences et son optimisme.

Je ne sais comment remercier Madame Mireille Commandré, responsable de l'équipe map², pour l'intérêt qu'elle a porté à ce travail et pour tous les efforts qu'elle a entrepris pour obtenir le financement d'une source ultra-courte et ainsi rendre ce travail possible sur le plan matériel. Que les autres membres de la thématique photonique de puissance du laboratoire trouvent également mes remerciements pour les discussions scientifiques et le prêt de matériel.

Je ne saurais oublier Thomas Olivier, avec qui j'ai eu la chance de travailler en étroite collaboration pendant une grande partie de cette thèse. Son aide, son amitié, sa gentillesse et ses conseils m'ont été précieux. J'ai eu aussi beaucoup de plaisir à travailler avec Sonia Pilorget. Merci (Géraldine!) de ta bonne humeur, de ton aide et de ne pas m'avoir trucidé, malgré les pics (décalés) que je t'ai lancés.

Je tiens à remercier les personnes que j'ai croisées quotidiennement au laboratoire et qui ont contribué aux bonnes conditions de travail, à la bonne ambiance, à l'animation des pauses et des repas... Merci à mes compagnons de bureau et aux joueurs de billard, et pas seulement pour les relectures du manuscrit. Mes remerciements vont également à l'ensemble des thésards (& assimilés) de l'institut Fresnel et en premier lieu à Laure (merci pour tout ce que tu as fait...).

Enfin un grand merci à toutes les personnes qui ont contribué, de près ou de loin, à rendre ces années agréables et avec qui j'ai eu l'occasion de passer de très bons moments, de partager un cours de badminton et de squash, d'arpenter de nouvelles villes, collines et montagnes, de revoir ou découvrir des Woody Allen... Merci pour votre soutien, mais aussi pour les joies intenses. Vous comptez beaucoup, et je vous fais confiance pour vous reconnaître.

μ ...

Table des matières

Introduction	9
1 Introduction à l'optique non-linéaire	13
1.1 Introduction	13
1.2 Optique électromagnétique	14
1.2.1 Les équations de Maxwell et les relations constitutives	14
1.2.2 Equations de Maxwell en régime harmonique	16
1.2.3 Validité de l'approximation d'un régime harmonique	19
1.3 Polarisation et susceptibilités non-linéaires	20
1.3.1 Origines des susceptibilités non-linéaires	20
1.3.2 Susceptibilité et effets non-linéaires du troisième ordre	25
1.4 Définition de l'indice de réfraction non-linéaire	29
1.5 Processus non-linéaires du troisième ordre "effectifs"	33
1.5.1 Réorientation moléculaire	33
1.5.2 Electrostriction	34
1.5.3 Effets thermiques	36
1.6 Conclusion	40
2 Métrologie de l'indice non-linéaire	41
2.1 Introduction	41
2.2 Effet de l'indice non-linéaire	42
2.2.1 Autofocalisation	42
2.2.2 L'automodulation de phase.	44
2.3 Principales méthodes de mesure	46
2.3.1 Mélange à quatre ondes	46
2.3.2 Méthodes interférométriques	49

TABLE DES MATIÈRES

2.3.3	Etude de distorsion de faisceau	52
2.3.4	Etudes spectrales et temporelles	54
2.4	La méthode de Z-scan	56
2.4.1	Principe	56
2.4.2	Transmission normalisée	59
2.4.3	Défectivité	60
2.4.4	Ouverture du diaphragme, mesure de l'absorption non-linéaire . .	61
2.5	Modélisations existantes	64
2.5.1	Modélisation : cas d'échantillons fins	64
2.5.2	Modélisation : cas d'échantillons épais	66
2.5.3	Modélisation : cas des fortes non-linéarités	70
2.6	Etat de l'art de la méthode de Z-scan	72
2.6.1	Etudes de l'indice de réfraction non-linéaire	72
2.6.2	Etudes de l'absorption non-linéaire	74
2.7	Indice non-linéaire des verres	75
3	Modélisation du signal Z-scan en configuration arbitraire	81
3.1	Introduction	81
3.2	Aspect vectoriel du problème	82
3.2.1	Introduction	82
3.2.2	Cas d'une onde plane incidente et d'un milieu linéaire	82
3.2.3	Cas d'un faisceau limité et d'un milieu linéaire	86
3.2.4	Choix du spectre d'onde plane et cartes de champ	90
3.3	Théorie scalaire et approximation de Fresnel	98
3.3.1	Théorie scalaire de la diffraction	98
3.3.2	Configuration et approximation de Fresnel	99
3.3.3	Validité de l'approximation de Fresnel	100
3.3.4	Calcul numérique rapide de l'intégrale de Fresnel	104
3.4	Simulation du faisceau incident	104
3.4.1	Simulation d'un faisceau type "tache d'Airy tronquée" focalisé . .	105
3.4.2	Modélisation d'un faisceau gaussien incident	107
3.5	Propagation dans l'échantillon non-linéaire	109
3.5.1	Choix de l'algorithme de propagation	109
3.5.2	Résolution de l'équation d'Helmholtz non-paraxiale	111

3.6	Résultats numériques	116
3.6.1	Raccordement au modèle Gaussien	116
3.6.2	Importance du type de faisceau	122
3.6.3	Domaine de linéarité de la méthode de Z-scan	125
3.6.4	Effet de la diffusion et de l'absorption	126
3.7	Conclusion	133
4	Mise en place du dispositif expérimental	135
4.1	Introduction	135
4.2	Sources laser utilisées	136
4.2.1	Oscillateur sub-picoseconde	136
4.2.2	Lasers nanoseconde Q-switch	139
4.2.3	Résumé des caractéristiques des lasers utilisés	142
4.3	Mise en forme et caractérisation du faisceau	144
4.3.1	Mise en forme "tache d'Airy tronquée"	145
4.4	Caractérisation spectrale et temporelle des impulsions	152
4.4.1	Caractérisation spectrale	152
4.4.2	Mesure de la durée des impulsions courtes	153
4.4.3	Mesure temporelles des impulsions nanosecondes	158
4.5	Considérations énergétiques et amélioration du rapport signal à bruit	160
4.5.1	Mesure d'énergie	160
4.5.2	Stabilité des sources	160
4.5.3	Amélioration du rapport signal à bruit	163
4.6	Mise en place du banc expérimental	166
4.7	Conclusion	170
5	Resultats expérimentaux	173
5.1	Introduction	173
5.2	Signal expérimental effectivement mesuré	174
5.3	Linéarité effective de la méthode	178
5.4	Calcul d'erreurs	182
5.5	Mesures dans la silice	184
5.5.1	Régime nanoseconde	184
5.5.2	Régime sub-picoseconde	191
5.5.3	Régime picoseconde	197

TABLE DES MATIÈRES

5.5.4	Conclusions des mesures dans la silice	200
5.6	Mesures d'autre matériaux	202
5.6.1	Mesures nanosecondes	202
5.6.2	Mesures sub-picosecondes	206
5.7	Conclusion	207
Conclusion		209
A Transformation de Hankel numérique		213
A.1	Principe	214
A.2	Application à notre cas	215
B Conversion entre les systèmes S.I. et CGS		219
C Propriétés optiques linéaires de quelques verres silicates		221
C.1	Diagramme d'Abbe : indice et dispersion	221
C.2	Absorption linéaire	221
D Propriétés de la silice		223
D.1	Transmission de la silice	223
D.2	Indice non-linéaire de la silice	225
Bibliographie		242

Introduction

Depuis leur invention dans les années soixante les lasers se sont principalement développés dans deux directions parfois très proches : obtenir des illuminations lasers puissantes et obtenir des impulsions très courtes [1, 2]. Ces types de sources présentent un intérêt fondamental du point de vue des problèmes de conception et de modélisation qu'elles suscitent et une importance considérable sur le plan des applications modernes qu'elles permettent.

Premièrement, l'intérêt que suscite la génération d'impulsions lumineuses ultracourtes se comprend en constatant que notre capacité à percevoir les phénomènes naturels est directement liée à la résolution temporelle des instruments que nous utilisons : l'œil est incapable de voir des phénomènes qui durent moins de quarante millisecondes ; les oscilloscopes modernes permettent de descendre dans le domaine picoseconde. Or les lasers à impulsions ultracourtes mis au point depuis quelques années déjà permettent maintenant des investigations dans le domaine femtoseconde voire attoseconde. Ainsi par des méthodes optiques, nous pouvons sonder la matière dans tous les régimes temporels allant du continu à quelques femtosecondes. Les applications des impulsions femtosecondes sont de plus en plus nombreuses et concernent des disciplines très variées comme par exemple la médecine [3], l'usinage des matériaux [4, 5, 6], la chimie [7, 8, 9], l'imagerie [10, 11], l'optique non-linéaire [12], et la métrologie. Ces applications mettent à profit la très courte durée de ces impulsions, leur largeur spectrale ou leur intensité.

Ces impulsions, générées via des systèmes optiques complexes nécessitant des réglages soignés, sont cependant à manipuler avec précaution, pour ne pas en dégrader les caractéristiques, et ainsi contrôler l'application mise en place. Aussi, leur propagation dans les milieux transparents fait l'objet d'un effort de recherche important, qui a montré que la réponse non-linéaire du milieu joue un rôle clef dans la propagation de ses impulsions [13].

En outre, les sources de forte puissance sont quant à elles particulièrement intéressantes pour les applications industrielles telles que le façonnage, la découpe et l'inscription des matériaux ou des tissus vivants (chirurgie) pour la réalisation de capteurs ou de composants d'optique intégrée [14, 15, 16]. Ces applications tirent profit des endommagements créés dans la matière. Notons que ces sources laser sont aussi intéressantes pour des projets de recherche fondamentale. Or certaines de ces applications sont encore limitées par la tenue au flux de leur composants optiques. C'est le cas du projet Laser Mégajoule développé par le CEA pour amorcer la fusion thermonucléaire. En effet les densités d'énergie mises en jeu dans ces systèmes nécessitent l'utilisation de composants optiques de hautes performances en tenue au flux pour éviter tout endommagement dans les optiques intermédiaires. Si la qualité de ces composants et notre compréhension des mécanismes d'endommagement laser se sont considérablement améliorées [17, 18, 19], des questions demeurent et cette problématique représente une part importante des activités de recherche de l'équipe milieux aléatoires et photonique de puissance (MAP²) de l'institut Fresnel.

Les mécanismes qui peuvent mener à un endommagement du matériau sont nombreux et d'origines variées. La présence de défauts absorbants, de fissures, de résidus et contaminants est un facteur important, surtout pour des durées d'impulsions longues (régime nanoseconde). L'excitation d'effets non-linéaires qui peut conduire au claquage diélectrique est une autre source possible d'initiation de l'endommagement laser.

Dans le cas de l'endommagement comme dans le cas de la propagation des impulsions courtes l'une des principales non-linéarités à considérer est l'effet Kerr optique. Cet effet fait qu'un faisceau de très grande puissance peut "se contracter" sur lui-même (s'autofocaliser) et ainsi l'amplitude du champ électromagnétique peut s'accroître localement de façon considérable. Lorsque le champ électrique est supérieur au champ de claquage, la matière est ionisée, et un endommagement est créé. Cependant, même si la puissance du faisceau n'est pas suffisante pour provoquer un endommagement du matériau, l'autofocalisation amplifie néanmoins les fluctuations spatiales du faisceau, dégrade le front d'onde et peut conduire à l'excitation d'effets non-linéaires d'ordre supérieur encore plus perturbateurs.

Sur le plan temporel, l'effet Kerr optique peut constituer une limite des systèmes utilisant des impulsions courtes, vu qu'il conduit à la déformation et à l'étirement des impulsions. Comme d'une part les verres sont le principal constituant des systèmes optiques et que d'autre part la silice est l'un des matériaux qui supporte le mieux le flux laser, il est particulièrement intéressant de quantifier l'effet Kerr optique à travers l'indice non-linéaire dans les verres et notamment la silice. Une étude en fonction de la durée des impulsions semble pertinente pour fournir quelques éléments supplémentaires expliquant les différences de morphologie et de comportement des endommagements en régime femtoseconde, picoseconde et nanoseconde.

Pour ces raisons, nous nous sommes donc attaché dans ce travail, à mesurer de façon adaptée l'indice non-linéaire de quelques verres. La maîtrise de cette mesure nous a conduit à analyser de manière critique la méthode utilisée, à développer un modèle numérique général pour exploiter les résultats expérimentaux et à mettre en place un banc de mesure original.

Dans le premier chapitre, nous nous attarderons sur quelques éléments d'optique non-linéaire et la définition de ce que l'on mesurera par la suite c'est-à-dire l'indice de réfraction non-linéaire. A cette occasion nous verrons l'origine de cette non-linéarité et son lien avec d'autres effets non-linéaires. Ceci nous permettra également de nous familiariser avec l'optique non-linéaire et nous aidera à mieux comprendre la problématique de la métrologie de l'indice de réfraction non-linéaire. D'autre part, les principaux mécanismes pouvant engendrer une variation d'indice de réfraction photo-induite seront présentés et nous estimerons leur influence respective dans le cas d'une mesure dans la silice.

Dans le deuxième chapitre, les différentes méthodes de mesures de l'indice de réfraction non-linéaire seront présentées et expliquées, afin de déterminer la méthode la plus adaptée à notre étude. La méthode de Z-scan, que nous avons adoptée pour effectuer cette étude, est alors présentée en détail. Nous nous attarderons alors sur certaines de ses limites et nous présenterons les différents modèles analytiques développés dans le cas de faisceaux gaussiens pour interpréter les mesures et déduire l'indice de réfraction non-linéaire. Enfin, nous présenterons les résultats des études expérimentales et théoriques menées dans les verres.

Dans le troisième chapitre, nous proposerons une étude numérique de la méthode de Z-scan. Afin de réduire les erreurs commises sur l'interprétation des mesures, il convient de vérifier la robustesse des modèles existants aux contraintes expérimentales. Les aspects vectoriels du champ seront discutés dans un premier temps puis un modèle scalaire et numérique sera développé pour observer l'effet du profil spatial du faisceau d'analyse, de la diffusion et de l'absorption. Ce code permettra par la suite d'interpréter les mesures réalisées sur notre banc.

Dans le quatrième chapitre, nous utiliserons les connaissances acquises dans les premiers chapitres pour mettre en place un montage expérimental adapté à notre problématique : l'étude de l'indice de réfraction non-linéaire des verres optiques par la même méthode de mesure en régime nanoseconde, picoseconde et sub-picoseconde. Cette mise en place est particulièrement exigeante et nous oblige à utiliser la méthode de Z-scan à ses limites. Outre l'effort particulier que nous devons porté à accroître la sensibilité de la méthode, nous devons particulièrement bien contrôler la métrologie, ce qui passe par des caractérisations in-situ répétées des paramètres spatio-temporels réels du faisceau incident.

Enfin, dans le cinquième chapitre, nous mettrons à profit l'outil expérimental très sensible et l'outil théorique général que nous avons développé à l'institut Fresnel, afin de réaliser une mesure de l'indice de réfraction non-linéaire dans les verres et notamment la silice. Dans un premier temps, nous nous attarderons sur le signal expérimental mesuré et son lien avec les simulations numériques. Une estimation des erreurs et une vérification des hypothèses sera ensuite entreprise. Enfin nous présenterons les résultats des études menées dans la silice pour les différentes durées d'impulsions dont nous disposons, ainsi que les mesures pour quelques autres matériaux avant de conclure.

Chapitre 1

Introduction à l'optique non-linéaire

1.1 Introduction

Notre étude se situe dans le cadre de la compréhension de l'interaction de la lumière avec la matière lorsque la puissance des faisceaux lumineux utilisés est importante. Dans ce cas les propriétés optiques des matériaux deviennent dépendantes de l'illumination. A l'inverse de l'optique linéaire, il n'est pas possible de caractériser ces propriétés (indice de réfraction, absorption...) indépendamment de l'excitation. Il en découle de nouveaux processus donnant lieu à une grande richesse de phénomènes comme par exemple la génération de nouvelles fréquences ou l'autofocalisation des faisceaux laser. Ces processus sont exploités pour mettre en oeuvre des dispositifs originaux, mais sont dans certains cas nuisibles, par exemple lorsqu'ils perturbent la propagation de faisceaux intenses et conduisent à l'endommagement laser. Nous nous sommes intéressés dans ce travail à l'effet Kerr optique, c'est-à-dire la dépendance de l'indice de réfraction des verres à l'intensité lumineuse de l'onde électromagnétique s'y propageant. Dans ce premier chapitre nous allons tout d'abord rappeler quelques éléments de l'optique électromagnétique non-linéaire. Nous discuterons ensuite des origines de la polarisation non-linéaire et l'étude sera rapidement recentrée sur les non-linéarités du troisième ordre dont fait partie l'effet Kerr optique. Cette analyse nous permettra de définir avec précaution la notion d'indice de réfraction non-linéaire, rendant compte des variations d'indice de réfraction photo-induites. Enfin nous verrons que la cascade de certains mécanismes (linéaires lorsqu'ils sont pris séparément) donne naissance à des variations de l'indice de réfraction photo-induites c'est-à-dire qu'il nous faut définir une non-linéarité effective dont il faut tenir compte en

pratique dans le cadre de l'étude de l'autofocalisation ou de l'automodulation de phase¹.

1.2 Optique électromagnétique

1.2.1 Les équations de Maxwell et les relations constitutives

Le champ électromagnétique est représenté par la donnée de deux vecteurs que sont le vecteur champ électrique $\vec{\mathcal{E}}$ et le vecteur champ magnétique $\vec{\mathcal{H}}$. La donnée des relations constitutives permet de décrire l'influence du champ électromagnétique sur la matière. Elles font intervenir trois autres vecteurs qui sont : le vecteur déplacement électrique $\vec{\mathcal{D}}$, le vecteur induction magnétique $\vec{\mathcal{B}}$ et le vecteur densité de courant $\vec{\mathcal{J}}$. Dans le cas général, il faut aussi considérer les densités volumiques de charge ρ . Toutes ces grandeurs sont des fonctions du vecteur position (variables d'espace) $\vec{r}$ et du temps t .

L'évolution dans le temps et l'espace de ces champs est décrite par les équations de Maxwell. Elles s'écrivent sous la forme [20] :

$$\overrightarrow{rot} \vec{\mathcal{E}}(\vec{r}, t) = -\frac{\partial \vec{\mathcal{B}}(\vec{r}, t)}{\partial t} \quad (1.1)$$

$$\overrightarrow{rot} \vec{\mathcal{H}}(\vec{r}, t) = \frac{\partial \vec{\mathcal{D}}(\vec{r}, t)}{\partial t} + \vec{\mathcal{J}}(\vec{r}, t) \quad (1.2)$$

$$div \vec{\mathcal{D}}(\vec{r}, t) = \rho(\vec{r}, t) \quad (1.3)$$

$$div \vec{\mathcal{B}}(\vec{r}, t) = 0 \quad (1.4)$$

Nous supposons dans ce travail que les milieux étudiés sont non-magnétiques. Dans ce cas, les champs $\vec{\mathcal{H}}$ et $\vec{\mathcal{B}}$ sont proportionnels et reliés par la relation :

$$\vec{\mathcal{B}}(\vec{r}, t) = \mu_0 \vec{\mathcal{H}}(\vec{r}, t) \quad (1.5)$$

c'est-à-dire, que la perméabilité magnétique est égale à celle du vide μ_0 . La seconde relation constitutive de la matière s'exprime de la manière suivante :

$$\vec{\mathcal{D}}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \vec{\mathcal{E}}(\vec{r}, t) + \vec{\mathcal{P}}(\vec{r}, t) \quad (1.6)$$

où $\vec{\mathcal{P}}$ représente la polarisation électrique du matériau et est caractéristique du milieu. La polarisation électrique peut être interprétée comme l'action du champ électromagnétique sur la densité électronique et la réponse de cette dernière. En effet, dans le cas d'un

¹Ces deux phénomènes seront détaillés au chapitre 2

champ électrique statique nous savons qu'un déplacement des charges est induit dans le matériau diélectrique et que la séparation des charges positives et négatives induit à son tour un champ électrique statique. Pour les mêmes raisons le champ électrique oscillant de l'onde lumineuse met en mouvement les charges présentes dans un milieu diélectrique et cette oscillation crée à son tour un champ électromagnétique oscillant qui vient s'ajouter à l'onde incidente. Le domaine de l'optique linéaire traite le cas où la réponse du milieu peut être considérée comme proportionnelle à l'excitation. Cela permet d'obtenir la solution générale du problème considéré, à l'aide du principe de superposition linéaire, comme une combinaison linéaire des solutions obtenues dans le cas où l'onde incidente est une onde plane monochromatique. Cependant lorsque l'intensité du champ électrique est trop importante l'approximation linéaire n'est plus valide : il faut prendre en compte des termes correctifs négligés jusqu'alors. Il est alors courant d'utiliser une décomposition de la polarisation du type "perturbatif" sous forme d'un développement limité :

$$\vec{\mathcal{P}}(\vec{r}, t) = \vec{\mathcal{P}}^{(1)}(\vec{r}, t) + \vec{\mathcal{P}}^{(2)}(\vec{r}, t) + \vec{\mathcal{P}}^{(3)}(\vec{r}, t) + \dots \quad (1.7)$$

où $\vec{\mathcal{P}}^{(1)}$ désigne alors le terme linéaire de la polarisation par rapport aux champs excitateurs, tandis que les autres composantes représentent les termes d'ordre supérieur.

Pour relier la polarisation linéaire $\vec{\mathcal{P}}^{(1)}(t)$ au champ électrique $\vec{\mathcal{E}}(t)$, la notion de susceptibilité électrique est introduite. Dans le domaine optique, les longueurs d'ondes mises en jeu sont grandes devant la taille des dipôles élémentaires, de sorte que le champ local peut être considéré comme uniforme. Dans beaucoup de situations la réponse du matériau peut alors être supposée comme locale, ce qui signifie que la polarisation en un point $\vec{r}$ ne dépend que de la valeur du champ en ce même point $\vec{r}$. Cependant elle ne peut pas être considérée en toute rigueur comme instantanée. En effet le matériau met un certain temps à réagir à l'excitation et par conséquent sa réponse dépend du champ à l'instant t mais aussi de ses valeurs aux instants précédents. Elle s'écrit donc comme un produit de convolution temporel entre le champ électrique $\vec{\mathcal{E}}$ et une distribution $R^{(1)}$, appelée "fonction réponse du milieu". La réponse devant être causale [21], elle ne peut précéder l'excitation, c'est à dire qu'un champ nul pour $t < 0$ doit entraîner une réponse nulle pour $t < 0$, et ainsi la distribution $R^{(1)}$ doit être à support positif. Ainsi, en omettant la dépendance spatiale par souci d'allègement des notations, il vient pour le terme linéaire :

$$\mathcal{P}_i^{(1)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} R_{ij}^{(1)}(\tau) \mathcal{E}_j(t - \tau) d\tau \quad (1.8)$$

où la notation de sommation implicite d'Einstein a été utilisée ($a_{ij}b_j = \sum_j a_{ij}b_j$) et où $\mathcal{P}_i^{(1)}$ désigne la composante i ($i = x, y, z$) du vecteur polarisation électrique $\vec{\mathcal{P}}^{(1)} = (\mathcal{P}_x^{(1)}, \mathcal{P}_y^{(1)}, \mathcal{P}_z^{(1)})^t$.

De même la i ème composante du vecteur de polarisation électrique d'ordre n s'écrit en fonction de la "fonction réponse d'ordre n " :

$$\mathcal{P}_i^{(n)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau_1 \dots \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau_n \dots R_{i;j_1 \dots j_n}^{(n)}(\tau_1, \dots, \tau_n) \mathcal{E}_{j_1}(t - \tau_1) \dots \mathcal{E}_{j_n}(t - \tau_1 - \dots - \tau_n) \quad (1.9)$$

Dans le cas des non-linéarités du troisième ordre qui nous intéresse dans ce travail, cette expression devient :

$$\mathcal{P}_i^{(3)}(t) = \epsilon_0 \iiint_{-\infty}^{+\infty} R_{ijkl}^{(3)}(\tau, \tau_1, \tau_2) \mathcal{E}_j(t - \tau) \mathcal{E}_k(t - \tau - \tau_1) \mathcal{E}_l(t - \tau - \tau_1 - \tau_2) d\tau d\tau_1 d\tau_2 \quad (1.10)$$

Dans ce cas, $R_{ijkl}^{(3)}$ désigne un tenseur de rang 4, nul dès qu'un des arguments est négatif d'après le principe de causalité. Il est à noter que dans ces expressions la notation de sommation implicite d'Einstein a aussi été utilisée pour alléger les écritures.

1.2.2 Equations de Maxwell et relations constitutives en régime harmonique

Les expressions 1.8, 1.9 et 1.10 faisant intervenir des produits de convolution où des fonctions multilinéaires d'ordre n , il est naturel de passer dans l'espace des fréquences. La réponse linéaire pourra ainsi s'exprimer comme un simple produit. La transposition des équations précédentes dans le domaine fréquentiel se fait à l'aide de la transformation de Fourier suivante :

$$\mathcal{F}(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} F(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega \quad \text{et} \quad F(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{F}(t) \exp(i\omega t) dt \quad (1.11)$$

Il est à noter dès lors, que les grandeurs conjuguées $F(\omega)$ sont a priori à valeurs complexes, étant donné que les grandeurs temporelles $\mathcal{F}$, auxquelles nous nous intéressons ici,

²Ici t désigne la transposée.

sont des grandeurs réelles mais non obligatoirement paires. La relation $F(-\omega) = F(\omega)^*$ est cependant vérifiée étant donné que ce sont des grandeurs réelles. Il sera donc suffisant de connaître la fonction F pour des valeurs positives de la fréquence. Ainsi pour une onde monochromatique, considérer uniquement les fréquences positives revient à écrire $\mathcal{F}(t) = \frac{1}{2}F_\omega e^{-i\omega t} + cc$ où cc désigne le complexe conjugué, et à ne travailler qu'avec le terme en $e^{-i\omega t}$.

Ainsi, en régime harmonique et dans le cas d'un milieu non chargé et sans source de courant, les équations de Maxwell deviennent :

$$\vec{\text{rot}} \vec{E}(\vec{r}, \omega) = i\omega\mu_0 \vec{H}(\vec{r}, \omega) \quad (1.12)$$

$$\vec{\text{rot}} \vec{H}(\vec{r}, \omega) = -i\omega \vec{D}(\vec{r}, \omega) \quad (1.13)$$

$$\text{div} \vec{D}(\vec{r}, \omega) = 0 \quad (1.14)$$

$$\text{div} \vec{H}(\vec{r}, \omega) = 0 \quad (1.15)$$

L'application de la transformation de Fourier à l'expression 1.6 permet de définir le vecteur déplacement électrique en régime harmonique $\vec{D}(\vec{r}, \omega)$ intervenant dans ces équations, c'est à dire :

$$\vec{D}(\vec{r}, \omega) = \epsilon_0 \vec{E}(\vec{r}, \omega) + \vec{P}(\vec{r}, \omega) \quad (1.16)$$

Les propriétés de la transformation de Fourier permettent d'écrire les produits de convolution dans l'espace direct comme de simples produits dans l'espace conjugué. Ainsi l'expression de la polarisation linéaire 1.8 devient simplement :

$$\vec{P}^{(1)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \vec{E}(\omega) \quad (1.17)$$

où $\chi^{(1)}$ représente maintenant la susceptibilité électrique linéaire en régime harmonique à la pulsation ω , transformée de Fourier de $R^{(1)}$. La susceptibilité électrique linéaire est a priori un tenseur d'ordre un qui contient l'information d'anisotropie du milieu.

En optique linéaire il est courant, à ce stade, d'introduire la notion de permittivité électrique relative $\epsilon_r(\omega) = 1 + \chi^{(1)}(\omega)$ qui permet d'écrire simplement le vecteur déplacement en fonction du champ électrique de la façon suivante :

$$\vec{D}(\omega) = \epsilon_0 \epsilon_r(\omega) \vec{E}(\omega) \quad (1.18)$$

Cela permet de définir l'indice de réfraction linéaire du milieu $n(\omega)$ comme la racine carrée de la permittivité électrique relative et le vecteur d'onde $k(\omega)$:

$$n(\omega) = \sqrt{\epsilon_r(\omega)} \quad \text{et} \quad k(\omega) = n(\omega)\omega/c \quad (1.19)$$

Notons à ce stade que la causalité de la réponse du matériau se traduit par un lien entre la partie réelle et la partie imaginaire de la susceptibilité linéaire. Ce lien s'exprime par la relation suivante³ [20, 22] :

$$\Re \{ \chi^{(1)}(\omega) \} = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\Im \{ \chi^{(1)}(\omega') \}}{\omega'^2 - \omega_j^2} d\omega' \quad (1.20)$$

De même, dans le cas non-linéaire, par application de la transformation de Fourier aux expressions 1.9 et 1.10, la composante i du vecteur de polarisation d'ordre n et d'ordre 3 en particulier deviennent en toute rigueur :

$$P_i^{(n)}(\omega_\sigma) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega_1 \dots \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega_n \dots \chi_{i;j_1 \dots j_n}^{(n)}(\omega_\sigma; \omega_1, \dots, \omega_n) E_{j_1}(\omega_1) \dots E_{j_n}(\omega_n) \quad (1.21)$$

avec $\omega_\sigma = \sum_{k=1,n} \omega_k$

$$P_i^{(3)}(\omega_4) = \epsilon_0 \iiint_{-\infty}^{+\infty} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_4; \omega_1, \omega_2, \omega_3) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l(\omega_3) d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3 \quad (1.22)$$

avec $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$

Ici $\chi_{i;j_1 \dots j_n}^{(n)}(\omega_\sigma; \omega_1, \dots, \omega_n)$ est le tenseur de susceptibilité non-linéaire d'ordre n et il est relié au tenseur "fonction réponse d'ordre n " $R_{i;j_1 \dots j_n}^{(n)}(\tau_1, \dots, \tau_n)$ par transformée de Fourier :

$$\chi^{(n)}(\omega_\sigma; \omega_1, \dots, \omega_n) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau_1 \dots \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau_n \dots R^{(n)}(\tau_1, \dots, \tau_n) \exp \left(i \sum_{k=1,n} \omega_k \tau_k \right) \quad (1.23)$$

Dans ces expressions, il apparaît clairement que lors de la propagation dans un milieu non-linéaire les différentes composantes fréquentielles du champ interagissent au sein de la polarisation électrique de multiples et complexes façons. L'étude de la propagation dans un milieu non-linéaire est donc un problème difficile dans le cas général. En pratique dans une configuration expérimentale donnée, le problème est simplifié en conservant uniquement un nombre réduit d'effets non-linéaires significatifs parmi la variété possible.

³Cette relation est appelée *relation de dispersion*. De plus intégrale est à prendre au sens de la valeur principale de Cauchy.

La validité de ces approximations dépend fortement des symétries du matériau considéré, qui imposeront à leur tour des relations entre les différents termes des tenseurs de susceptibilité, voire des annulations de certains termes [23].

Remarquons encore que la causalité de la réponse du système permet, comme dans le cas linéaire, de trouver des relations entre la partie réelle des composantes du tenseur de susceptibilité non-linéaire d'ordre n et leur partie imaginaire suivant [24] :

$$\Re \{ \chi^{(n)}(\omega_\sigma; \omega_1, \dots, \omega_j, \dots, \omega_n) \} = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\Im \{ \chi^{(n)}(\omega_\sigma; \omega_1, \dots, \omega', \dots, \omega_n) \}}{\omega'^2 - \omega_j^2} d\omega' \quad (1.24)$$

Il existe n relations de ce type, c'est-à-dire une pour chaque pulsation ω_j , intervenant dans le terme de susceptibilité $\chi^{(n)}(\omega_\sigma; \omega_1, \dots, \omega_j, \dots, \omega_n)$ et où la variable d'intégration du second membre de l'équation ω' est justement la j -ième pulsation du terme de susceptibilité considéré. Ses relations de dispersion sont souvent ignorées et peu exploitées de manière générale mais ont permis de montrer les liens entre l'effet kerr optique, l'absorption à deux photons et l'effet Raman dans les semi-conducteurs massifs [25, 26].

1.2.3 Validité de l'approximation d'un régime harmonique

En pratique, dans le cas de la lumière d'un laser continu, le spectre des champs $E(\omega)$ et $H(\omega)$ est extrêmement étroit et centré autour d'une pulsation ω_0 : On parle de "raie laser". La largeur spectrale des raies est due entre autre à l'agitation thermique, ou aux vibrations désordonnées de la structure cristalline (l'élargissement par phonons) mais elle reste faible. L'approximation d'un régime harmonique monochromatique est alors faite légitimement et le problème est résolu pour la seule pulsation ω_0 . Dans le cas des lasers impulsionnels il convient de vérifier cette approximation. En effet, le spectre d'une onde et son évolution temporelle sont reliés par transformée de Fourier. Cela impose une borne inférieure au produit des largeurs temporelles et spectrales : $\Delta t \Delta \omega \geq 2\pi$. La largeur temporelle la plus petite compatible avec cette relation est alors $\Delta t_{min} = 2\pi/\Delta \omega$. Du fait de l'émission stimulée dans la cavité laser, le produit $\Delta t \Delta \omega$ peut être très proche de cette limite pour les sources impulsives. Dans le cas d'un laser Nd:Yag Q-switch émettant des impulsions de quelques nanosecondes à 1064 nm , le rapport $\Delta \omega/\omega_0$ est de l'ordre de 10^{-7} . L'approximation de monochromaticité reste justifiée dans ce cas et cela tant que la longueur d'interaction (ou le temps de propagation) est courte. Il faut pourtant manipuler avec précaution ce type d'approximation dans le cas d'impulsions ultracourtes.

En effet, pour une impulsion de l'ordre de 10 fs , le rapport $\Delta\omega/\omega_0$ est de l'ordre de 10^{-1} et l'approximation n'est plus valable.

Dans le cadre de ce travail, nous avons utilisé plusieurs sources lasers et l'épaisseur des milieux fortement dispersifs du montage (principalement le polariseur et l'échantillon testé) est restée de l'ordre de quelques centimètres. Dans le cadre des mesures en régime nanoseconde réalisées avec un laser Nd:Yag Q-switch, l'approximation de monochromaticité est légitime. De même la largeur spectrale des impulsions délivrées par l'oscillateur Ti:saphir en régime picoseconde reste très faible : elle est inférieure 1 nm qui est la résolution de notre spectromètre. Les impulsions les plus courtes utilisées dans le cadre de ce travail étaient de 100 fs à 200 fs et le spectre mesuré ne dépasse pas 6 nm de largeur et aucun élargissement significatif n'a été mesuré après propagation dans l'échantillon testé (nous le verrons dans le chapitre 4) : l'approximation de monochromaticité reste valide à 1% près.

1.3 Polarisation et susceptibilités non-linéaires

1.3.1 Origines des susceptibilités non-linéaires

La matière peut être considérée comme une assemblée de particules chargées : les électrons et les ions. Lorsqu'un champ électrique est appliqué ces charges se déplacent : les charges positives dans le sens du champ, et à l'inverse les charges négatives dans le sens opposé. Contrairement au cas des conducteurs, dans lesquels tout ou partie des particules sont libres de se déplacer dans le matériau, les diélectriques se caractérisent par des charges liées entre elles et se déplacent très peu de leur position moyenne lorsque qu'une excitation est appliquée. Ainsi l'action d'un champ sur ces matériaux peut être représentée par une assemblée de dipôles électriques induits. La polarisation induite est donc fortement liée à la densité électronique. La lumière étant un champ électromagnétique oscillant à des fréquences allant de 10^{13} à 10^{17} , la polarisation induite est aussi oscillante à ces mêmes fréquences. On peut dès lors remarquer que les contributions des électrons et des ions positifs, seront différentes et changeront en fonction de la fréquence excitatrice, les masses de ces particules étant très différentes.

Pour décrire de façon simple la réponse du milieu, on peut dans un premier temps, utiliser une approche classique unidimensionnelle [27, 21]. La densité électronique est décrite par une assemblée de dipôles régis par le modèle de l'électron élastiquement lié

à un ion positif. Soit Ω la fréquence de résonance et Γ le facteur d'amortissement de cet oscillateur. Le déplacement x de l'électron relativement à sa position moyenne (et donc la polarisation induite par proportionnalité) sous l'influence d'un champ électrique $\mathcal{E}$ est alors solution de l'équation :

$$\frac{d^2x}{dt^2} + 2\Gamma \frac{dx}{dt} + \Omega^2 x + (\xi^{(2)}x^2 + \xi^{(3)}x^3 + \dots) = \frac{-e}{m}\mathcal{E}(t) \quad (1.25)$$

Si nous ignorons les termes anharmoniques $\xi^{(2)}x^2 + \xi^{(3)}x^3 + \dots$ nous obtenons le modèle simple d'un oscillateur harmonique forcé, linéaire par conséquent, dont la solution à une excitation à la fréquence ω ($\mathcal{E} = \frac{1}{2}E_0e^{-i\omega t} + cc$) est :

$$\begin{aligned} x(t) &= \frac{-eE_0}{2m} \frac{e^{-i\omega t}}{\Omega^2 - 2i\Gamma\omega - \omega^2} + cc \\ x(t) &= \frac{-eE_0}{2m} \frac{e^{-i\omega t}}{(\sqrt{\Omega^2 - \Gamma^2} - i\Gamma - \omega)(\sqrt{\Omega^2 - \Gamma^2} + i\Gamma + \omega)} + cc \\ x(t) &= \frac{-eE_0}{2m} \frac{e^{-i\omega t}}{2\sqrt{\Omega^2 - \Gamma^2}} \left[\frac{1}{\sqrt{\Omega^2 - \Gamma^2} - i\Gamma - \omega} + \frac{1}{\sqrt{\Omega^2 - \Gamma^2} + i\Gamma + \omega} \right] + cc \end{aligned} \quad (1.26)$$

Si l'on note N le nombre moyen de dipôles par unité de volume, la polarisation linéaire induite a donc pour expression $\mathcal{P}^{(1)} = -Nex$ où e est la charge d'un électron. La polarisation linéaire induite s'écrit aussi $\mathcal{P}^{(1)} = \frac{1}{2}\epsilon_0\chi^{(1)}E_0e^{-i\omega t} + cc$ ce qui conduit à l'expression de la susceptibilité linéaire complexe $\chi^{(1)}$ suivante :

$$\begin{aligned} \chi^{(1)}(\omega) &= \frac{Ne^2}{m\epsilon_0} \frac{1}{\Omega^2 - 2i\Gamma\omega - \omega^2} = \frac{Ne^2}{m\epsilon_0 D_{\Omega,\Gamma}(\omega)} \\ \chi^{(1)}(\omega) &= \frac{Ne^2}{2m\epsilon_0\sqrt{\Omega^2 - \Gamma^2}} \left[\frac{1}{\sqrt{\Omega^2 - \Gamma^2} - i\Gamma - \omega} + \frac{1}{\sqrt{\Omega^2 - \Gamma^2} + i\Gamma + \omega} \right] \end{aligned} \quad (1.27)$$

où $D_{\Omega,\Gamma}(\omega) = \Omega^2 - 2i\Gamma\omega - \omega^2$. L'indice de réfraction linéaire qui en découle s'écrit $n_0 = \text{Re} \left(\sqrt{1 + \chi^{(1)}} \right)$ et l'indice d'extinction $\kappa = \text{Im} \left(\sqrt{1 + \chi^{(1)}} \right)$. Il est à remarquer que pour faciliter la compréhension nous avons utilisé un modèle unidimensionnel. Un modèle tridimensionnel permettrait de prendre en compte l'anisotropie et le caractère tensoriel de la susceptibilité.

Dans le cas où l'amplitude du champ électrique devient particulièrement élevée, la réponse du matériau ne peut plus être considérée comme linéaire. Les termes anharmoniques $\xi^{(2)}x^2 + \xi^{(3)}x^3 + \dots$ ne sont plus négligeables. Cependant, leurs effets restent relativement faibles. La résolution de l'équation en leur présence consiste à chercher les

corrections que ces petites perturbations introduisent. On suppose alors que le déplacement x se développe sous la forme $x = x^{(1)} + x^{(2)} + x^{(3)} + \dots$ avec $x^{(i+1)} \ll x^{(i)}$. Dans le cas où le terme anharmoniques se réduit simplement à $\xi^{(2)}x^2$ les termes $x^{(i)}$ et en se restreignant à l'ordre 3 en perturbation on obtient [28] :

$$\begin{aligned} \frac{d^2x^{(1)}}{dt^2} + 2\Gamma \frac{dx^{(1)}}{dt} + \Omega^2 x^{(1)} &= \frac{-e}{m} \mathcal{E}(t) \\ \frac{d^2x^{(2)}}{dt^2} + 2\Gamma \frac{dx^{(2)}}{dt} + \Omega^2 x^{(2)} &= -\xi^{(2)}(x^{(1)})^2 \\ \frac{d^2x^{(3)}}{dt^2} + 2\Gamma \frac{dx^{(3)}}{dt} + \Omega^2 x^{(3)} &= -2\xi^{(2)}x^{(1)}x^{(2)} \end{aligned} \quad (1.28)$$

Le premier terme du développement vérifie l'équation de l'oscillateur harmonique, c'est donc la réponse linéaire qui s'écrit pour un champ source $\mathcal{E}(t) = \frac{1}{2} [E_1 e^{i\omega_1 t} + E_2 e^{i\omega_2 t} + cc]$ sous la forme :

$$x^{(1)}(t) = \frac{e}{2m} \left[\frac{E_1}{D_{\Omega,\Gamma}(\omega_1)} e^{i\omega_1 t} + \frac{E_2}{D_{\Omega,\Gamma}(\omega_2)} e^{i\omega_2 t} + cc \right]$$

On trouve alors en reportant cette expression de $x^{(1)}$ dans 1.28 le second terme du développement $x^{(2)}$. La polarisation du second ordre s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \mathcal{P}^{(2)}(t) = \frac{Ne^3 \xi^{(2)}}{4m^2 \epsilon_0} & \left[\frac{E_1^2 e^{2i\omega_1 t}}{D_{\Omega,\Gamma}(2\omega_1) D_{\Omega,\Gamma}^2(\omega_1)} + \frac{E_2^2 e^{2i\omega_2 t}}{D_{\Omega,\Gamma}(2\omega_2) D_{\Omega,\Gamma}^2(\omega_2)} + cc \right. \\ & + \frac{2E_1 E_1^*}{D_{\Omega,\Gamma}(\omega_1) D_{\Omega,\Gamma}^2(0) D_{\Omega,\Gamma}^2(-\omega_1)} + \frac{2E_2 E_2^*}{D_{\Omega,\Gamma}(\omega_2) D_{\Omega,\Gamma}^2(0) D_{\Omega,\Gamma}^2(-\omega_2)} + cc \\ & \left. + \frac{2E_1 E_2 e^{i(\omega_1 + \omega_2)t}}{D_{\Omega,\Gamma}(\omega_1) D_{\Omega,\Gamma}^2(\omega_1 + \omega_2) D_{\Omega,\Gamma}^2(\omega_2)} + \frac{2E_1 E_2^* e^{i(\omega_1 - \omega_2)t}}{D_{\Omega,\Gamma}(\omega_1) D_{\Omega,\Gamma}^2(\omega_1 - \omega_2) D_{\Omega,\Gamma}^2(-\omega_2)} + cc \right] \end{aligned} \quad (1.29)$$

La polarisation du second ordre est donc la somme de six termes : un à la fréquence double $2\omega_1$, un à la fréquence double $2\omega_2$, un à la fréquence somme $\omega_1 + \omega_2$, un à la fréquence différence $\omega_1 - \omega_2$ et deux à la fréquence nulle. De plus on voit apparaître la fonction $D_{\Omega,\Gamma}$ précédemment introduite qui indique que les différents tenseurs de susceptibilité sont liés entre eux et dépendent des résonances possibles dans le matériau (pulsation propre de Ω l'oscillateur) et de leur largeur (amortissement Γ). La poursuite du développement permettrait d'obtenir une expression pour la polarisation d'ordre 3, cependant pour décrire correctement la polarisation il faut étudier plus rigoureusement le

comportement dynamique de l'assemblée de particules chargées présentes dans le matériau sous l'action d'un champ électrique. Pour traiter ce problème il faut avoir recours à la mécanique quantique et à la physique statistique (les effets macroscopiques considérés sont liés à un grand nombre de dipôles élémentaires donc à des moyennes d'ensemble du point de vue statistique). La densité électronique ρ doit être considérée comme un opérateur. Dans ce cadre la polarisation du milieu s'écrit alors :

$$\mathcal{P}(t) = \frac{e}{V} \left\langle \sum_k Z_k \mu_k - e \sum_j \mu_j \right\rangle = \frac{1}{V} \text{Tr} \left[\rho(t) \left(\sum_k Z_k \mu_k - e \sum_j \mu_j \right) \right] \quad (1.30)$$

où la sommation sur j est une sommation sur les électrons (charge e , positions μ_j) présents dans le volume élémentaire V considéré, la sommation sur k est une sommation sur les ions (charge $Z_k e$, positions μ_k) présents dans V et où $\langle A \rangle$ et $\text{Tr}[H]$ représentent respectivement la moyenne d'ensemble de la grandeur A et la trace de l'opérateur H . Le développement perturbatif de la polarisation est relié à celui de l'opérateur densité, et pour les différents termes il vient [21] :

$$\mathcal{P}^{(0)} = \frac{1}{V} \text{Tr} \left[\rho^{(0)} \left(\sum_k Z_k \mu_k - e \sum_j \mu_j \right) \right] \quad (1.31)$$

$$\mathcal{P}^{(n)} = \frac{1}{V} \text{Tr} \left[\rho^{(n)}(t) \left(\sum_k Z_k \mu_k - e \sum_j \mu_j \right) \right] \text{ si } n \neq 0 \quad (1.32)$$

Relation qu'il faut identifier à 1.9. Après calcul on trouve les expressions des susceptibilités d'ordre 1 à 3 suivantes :

$$\begin{aligned} \chi_{ij}^{(1)}(\omega) &= \frac{Ne^2}{\hbar\epsilon_0} \sum_{a,b} \rho^{(0)}(a) \left[\frac{\mu_{ab}^i \mu_{ba}^j}{\Omega_{ba} - i\Gamma_{ba} - \omega} + \frac{\mu_{ab}^j \mu_{ba}^i}{\Omega_{ba} + i\Gamma_{ba} + \omega} \right] \\ &= \frac{Ne^2}{\hbar\epsilon_0} \mathbf{S}_1 \sum_{a,b} \rho^{(0)}(a) \frac{\mu_{ab}^i \mu_{ba}^j}{\Omega_{ba} - i\Gamma_{ba} - \omega} \end{aligned} \quad (1.33)$$

$$\begin{aligned}
 \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_\sigma = \omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) &= \frac{Ne^3}{2\hbar^2\epsilon_0} \mathbf{S}_2 \\
 &\times \sum_{a,b,c} \rho^{(0)}(a) \left[\frac{\mu_{ab}^i \mu_{bc}^j \mu_{ca}^k}{(\Omega_{ba} - i\Gamma_{ba} - \omega_\sigma)(\Omega_{ca} - i\Gamma_{ca} - \omega_2)} \right. \\
 &\quad + \frac{\mu_{ab}^j \mu_{bc}^i \mu_{ca}^k}{(\Omega_{ba} + i\Gamma_{ba} + \omega_1)(\Omega_{ca} - i\Gamma_{ca} - \omega_2)} \\
 &\quad \left. + \frac{\mu_{ab}^j \mu_{bc}^k \mu_{ca}^i}{(\Omega_{ba} + i\Gamma_{ba} + \omega_1)(\Omega_{ca} + i\Gamma_{ca} + \omega_\sigma)} \right] \quad (1.34)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_\sigma = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3; \omega_1, \omega_2, \omega_3) &= \frac{Ne^4}{6\hbar^3\epsilon_0} \mathbf{S}_3 \\
 &\times \sum_{abcd} \rho^{(0)}(a) \left[\frac{\mu_{ab}^i \mu_{bc}^j \mu_{cd}^k \mu_{da}^l}{(\Omega_{ba} - i\Gamma_{ba} - \omega_\sigma)(\Omega_{ca} - i\Gamma_{ca} - \omega_2 - \omega_3)(\Omega_{da} - i\Gamma_{da} - \omega_3)} \right. \\
 &\quad + \frac{\mu_{ab}^j \mu_{bc}^i \mu_{cd}^k \mu_{da}^l}{(\Omega_{ba} + i\Gamma_{ba} + \omega_1)(\Omega_{ca} - i\Gamma_{ca} - \omega_2 - \omega_3)(\Omega_{da} - i\Gamma_{da} - \omega_3)} \\
 &\quad + \frac{\mu_{ab}^j \mu_{bc}^k \mu_{cd}^i \mu_{da}^l}{(\Omega_{ba} + i\Gamma_{ba} + \omega_1)(\Omega_{ca} + i\Gamma_{ca} + \omega_1 + \omega_2)(\Omega_{da} - i\Gamma_{da} - \omega_3)} \\
 &\quad \left. + \frac{\mu_{ab}^j \mu_{bc}^k \mu_{cd}^l \mu_{da}^i}{(\Omega_{ba} + i\Gamma_{ba} + \omega_1)(\Omega_{ca} + i\Gamma_{ca} + \omega_1 + \omega_2)(\Omega_{da} + i\Gamma_{da} + \omega_\sigma)} \right] \quad (1.35)
 \end{aligned}$$

Dans ces expressions μ est l'opérateur moment dipolaire électrique, les sommes sur a et b des sommations sur les différents niveaux quantiques, $\mathbf{S}_i$ un opérateur de symétrisation indiquant que l'expression qui suit est à sommer sur les $i + 1$ permutations possibles des couples $(j_\sigma, \omega_\sigma)$, (j_1, ω_1) , $\dots$ (j_i, ω_i) , Ω_{ab} la fréquence associée à la transition du niveau d'énergie a au niveau b , Γ_{ab} le taux de relaxation du niveau a vers b (parfois appelé taux de déphasage) et $\rho^{(0)}(a)$ la fraction de l'assemblée dipolaire, à l'équilibre thermique, à être dans l'état d'énergie E_a .

Tout d'abord les expressions trouvées dans le cas du modèle simpliste de l'oscillateur harmonique 1.27 et dans le cas d'un traitement quantique du problème 1.33 sont bien similaires. De plus toutes les susceptibilités s'expriment en fonction des mêmes pôles $(\Omega_{fg} + i\Gamma_{fg} + \omega)$. Les Ω_{fg} correspondent à des transitions résonantes entre les niveaux réels d'énergie f et g . Un photon associé à la pulsation ω donc d'énergie $\hbar\omega$ fait passer le système du niveau g au niveau virtuel d'énergie $E_g + \hbar\omega$ dont la durée de vie est déterminé par l'écart d'énergie $\Delta E = |\hbar\omega - E_f - E_g|$ du fait du principe d'incertitude d'Heisenberg.

On comprend donc facilement que plus cet écart est grand plus les mécanismes non-linéaires le faisant intervenir sont faibles étant de moins en moins probable de réunir tout les particules nécessaires à cet effet pendant le temps de vie de l'état virtuel. Les différents effets non-linéaires électroniques se distinguent donc uniquement par les niveaux virtuels intermédiaires qu'ils font intervenir et sont entièrement déterminés par les états propres du système.

D'un point de vu pratique, l'expression 1.33 traduit le fait que tout milieu matériel comporte des pics d'absorption dans l'infrarouge et dans l'ultraviolet résultant respectivement de transitions vibrationnelles et électroniques. Dans une bande de transparence, l'indice de réfraction croît avec la fréquence (dispersion normale), il en résulte une variation non-linéaire du vecteur d'onde $k(\omega) = n(\omega)\omega/c$ avec la fréquence. En général, la dérivée seconde du vecteur d'onde $k(\omega)$ est positive dans le visible en raison de la proximité des résonances ultraviolettes (dispersion positive).

1.3.2 Susceptibilité et effets non-linéaires du troisième ordre

Différents effets non-linéaires d'ordre 3

Dans le cas où la largeur spectrale des sources utilisées est relativement faible, le champ électrique peut être considéré comme une superposition d'ondes monochromatiques. Le champ électrique s'écrit alors simplement en fonction des composantes positives du spectre sous la forme suivante⁴ :

$$\vec{\mathcal{E}}(t) = \frac{1}{2} \sum_{\omega \geq 0} \vec{E}_{\omega} e^{-i\omega t} + cc \quad (1.36)$$

De la même manière, pour chaque composante i du vecteur polarisation électrique non-linéaire du troisième ordre, on a :

$$\vec{\mathcal{P}}^{(3)}(t) = \frac{1}{2} \sum_{\omega \geq 0} \vec{P}_{\omega}^{(3)} e^{-i\omega t} + cc \quad (1.37)$$

⁴L'introduction du facteur $1/2$ n'est pas une convention universelle. Quelques auteurs n'introduisent pas ce facteur [27, 28]. Toutefois, l'absence de facteur $1/2$ mène à des définitions non-conventionnelles du vecteur de Poynting et ne rejoint pas les définitions du champ complexe traditionnelles d'électromagnétisme.

Pulsations impliquées	K	Terme de polarisation ($i^{\text{ième}}$ composante)	Effet non-linéaire résultant
$\omega_1 \neq \omega_2 \neq \omega_3$	$\frac{3}{2}$	$P_i^{(3)}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3) = \frac{3}{2}\epsilon_0 \times \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3, \omega_1, \omega_2, \omega_3) \times E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l(\omega_3)$	mélange à quatre ondes
$\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega$	$\frac{1}{4}$	$P_i^{(3)}(3\omega) = \frac{1}{4}\epsilon_0 \times \chi_{ijkl}^{(3)}(3\omega, \omega, \omega, \omega) E_j(\omega) E_k(\omega) E_l(\omega)$	génération du troisième harmonique
$\omega_1 = \omega_2 = \omega$ et $\omega_3 = 0$	$\frac{3}{2}$	$P_i^{(3)}(2\omega) = \frac{3}{2}\epsilon_0 \times \chi_{ijkl}^{(3)}(2\omega, \omega, \omega, 0) E_j(\omega) E_k(\omega) E_l(0)$	génération de second harmonique en présence d'un champ statique
$\omega_1 = \omega$ et $\omega_2 = \omega_3 = 0$	3	$P_i^{(3)}(\omega) = 3\epsilon_0 \times \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega, \omega, 0, 0) E_j(\omega) E_k(0) E_l(0)$	effet Kerr en présence d'un champ statique (effet électro-optique du second ordre)
$\omega_1 = \omega_2$ et $\omega_3 = -\omega$	$\frac{3}{4}$	$P_i^{(3)}(2\omega_1 - \omega) = \frac{3}{4}\epsilon_0 \times \chi_{ijkl}^{(3)}(2\omega_1 - \omega, \omega_1, \omega_1, -\omega) \times E_j(\omega_1) E_k(\omega_1) E_l^*(\omega)$	diffusion Raman anti-Stokes cohérente (CARS)
$\omega_1 \neq \omega_2$ et $\omega_3 = -\omega_1$	$\frac{3}{2}$	$P_i^{(3)}(\omega_2) = \frac{3}{2}\epsilon_0 \times \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_2, \omega_1, \omega_2, -\omega_1) \times E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l^*(\omega_1)$	effet Kerr optique, diffusions Raman et Brillouin stimulées, spectroscopie d'absorption en configuration pompe-sonde
$\omega_1 = \omega_2 = -\omega_3 = \omega$	$\frac{3}{4}$	$P_i^{(3)}(\omega) = \frac{3}{4}\epsilon_0 \times \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega, \omega, \omega, -\omega) E_j(\omega) E_k(\omega) E_l^*(\omega)$	effet Kerr optique à un seul faisceau (autofocalisation, automodulation de phase, absorption à deux photons, auto-rotation de l'ellipse de polarisation)

TAB. 1.1 – Principaux termes possibles de polarisation du troisième ordre et désignation des effets non-linéaires résultants (source : réf. [21]). Remarque : ces expressions font intervenir la sommation implicite d'Einstein sur les indices répétés.

L'expression 1.22 permet d'obtenir l'amplitude complexe $P_\omega^{(3)}$ en fonction du tenseur susceptibilité précédemment défini :

$$(P_{\omega_\sigma}^{(n)})_i = \epsilon_0 \sum_{\omega} K(\omega_\sigma; \omega_1, \dots, \omega_n) \times \chi_{i;j_1 \dots j_n}^{(n)}(\omega_\sigma; \omega_1, \dots, \omega_n) E_{j_1}(\omega_1) \dots E_{j_n}(\omega_n)$$

avec $\omega_\sigma = \sum_{k=1,n} \omega_k$ (1.38)

où une sommation est faite sur les permutations d'une même combinaison $(\omega_1, \dots, \omega_n)$ pour des raisons de symétrie, introduisant le facteur numérique K et où $\sum_{\omega}$ est une somme sur les combinaisons distinctes de $(\omega_1, \dots, \omega_n)$ telles que $\omega_\sigma = \sum_{i=1,n} \omega_i$. Le tableau 1.1 résume les principaux termes de polarisation non-linéaire du troisième ordre dans le cas général où le champ incident est une superposition de trois vibrations monochromatiques de pulsations ω_1 , ω_2 et ω_3 .

Propriétés de symétrie

Les tenseurs de susceptibilité non-linéaire du troisième ordre (de rang 4) sont théoriquement composés de $3^4 = 81$ éléments ! Pour des raisons de symétries liées aux permutations dans l'expression 1.35 lorsque les fréquences mises en jeu $(\omega_1, \omega_2, \omega_1, \omega_\sigma)$ sont toutes éloignées des résonances (symétrie de Kleiman) ou liées à la classe cristallographique du matériau, le nombre de composantes indépendantes peut se réduire considérablement. Pour les cristaux cubiques de la classe 432 comme le CaF_2 ou le ZnSe cristallin, 21 des 81 coefficients sont non nuls et seulement 4 sont indépendants. Dans le cas des milieux isotropes, le tenseur de susceptibilité d'ordre 3 ne compte finalement que 3 éléments indépendants non-nuls. Pour les autres configurations le lecteur est renvoyé aux tables qu'il trouvera dans les ouvrages de référence [21, 23, 28]. Dans le cadre de ce travail, nous nous sommes surtout attachés aux propriétés d'ordre trois des milieux isotropes que sont les verres. Les phénomènes non-linéaires du troisième ordre sont dans ces matériaux les premiers effets non-linéaires observables. En effet comme dans tout milieu centro-symétrique le tenseur susceptibilité d'ordre deux est identiquement nul : l'on ne peut observer d'effets non-linéaires quadratiques dans de tels milieux dans le massif⁵.

En toute rigueur, le tenseur de susceptibilité non-linéaire du troisième ordre vaut dans

⁵Aux interfaces entre différents milieux, où la centro-symétrie n'a plus lieu, des phénomènes non-linéaires du second ordre (génération du second harmonique) surfaciques peuvent avoir lieu [29, 30, 31, 32].

le cas isotrope (le système de coordonnées cartésiennes (x, y, z) est utilisé) :

$$\chi_{ijkl}^{(3)} = \chi_{xxyy}^{(3)} \delta_{ij} \delta_{kl} + \chi_{xyxy}^{(3)} \delta_{ik} \delta_{jl} + \chi_{xyyx}^{(3)} \delta_{il} \delta_{jk} \quad \text{avec} \quad \delta_{ij} = \begin{cases} 1 & \text{si } i = j \\ 0 & \text{si } i \neq j \end{cases} \quad (1.39)$$

Par la suite, le choix des pulsations des différentes vibrations interagissant va imposer un certain nombre de symétries supplémentaires sur ce tenseur de susceptibilité. Par exemple, dans le cas de la génération de troisième harmonique, il est possible de permuter les trois pulsations dans le tenseur de susceptibilité. Il ne reste qu'un seul terme indépendant dans ce cas particulier [23]. Différents termes de polarisation d'ordre 3 sont explicités dans le tableau 1.2, concernant le cas d'un milieu isotrope.

Génération du troisième harmonique : $\vec{P}^{(3)}(3\omega) = \frac{3}{4}\epsilon_0 \times \chi_{xxyy}^{(3)}(3\omega) [\vec{E} \cdot \vec{E}] \vec{E}$
Effet Kerr optique à un seul faisceau : $\vec{P}^{(3)}(\omega) = \frac{3}{4}\epsilon_0 \times \{2\chi_{xxyy}^{(3)}(\omega) [\vec{E} \cdot \vec{E}^*] \vec{E} + \chi_{xyyx}^{(3)}(\omega) [\vec{E} \cdot \vec{E}] \vec{E}^*\}$
Effet Kerr optique en configuration pompe-sonde (ω_p, ω_s) : $\vec{P}^{(3)}(\omega_s) = \frac{3}{2}\epsilon_0 \times \{\chi_{xxyy}^{(3)}(\omega_s, \omega_p) [\vec{E}_s \cdot \vec{E}_p^*] \vec{E}_p + \chi_{xyxy}^{(3)}(\omega_s, \omega_p) [\vec{E}_p \cdot \vec{E}_p^*] \vec{E}_s + \chi_{xyyx}^{(3)}(\omega_s, \omega_p) [\vec{E}_p \cdot \vec{E}_s] \vec{E}_p^*\}$

TAB. 1.2 – *Milieu isotrope : Termes de polarisation pour différentes configurations expérimentales*

Dans notre configuration expérimentale un seul faisceau “monochromatique” et polarisé rectilignement est utilisé. C’est pourquoi la polarisation non-linéaire d’ordre 3 se réduit à deux termes seulement : le terme de génération du troisième harmonique et le terme qui décrit l’effet Kerr optique à un faisceau⁶. Pour les régimes picoseconde et nanoseconde, et pour des épaisseurs de matériau non-linéaire traversés relativement faibles

⁶Ce terme regroupe donc les effets d’automodulation de phase, d’autofocalisation, d’auto-rotation de l’ellipse de polarisation et, le phénomène d’absorption non-linéaire à plusieurs photons dans le cas d’une partie imaginaire de la susceptibilité non nulle.

comme c'est le cas expérimentalement, l'effet d'automodulation de phase est négligeable devant le terme d'autofocalisation. Dans le cas des impulsions femtoseconde nous reverrons la validité de cette approximation.

1.4 Définition de l'indice de réfraction non-linéaire

Dans le cas de l'effet Kerr optique où de l'absorption à deux photons il est d'usage de définir un indice de réfraction non-linéaire à partir de la susceptibilité de la même manière que l'indice optique et l'absorption ont été définis dans le cas linéaire. Pour cela, reprenons l'expression de la polarisation non-linéaire d'ordre trois dans quelques cas particuliers (tableau 1.2) et donnons dans le tableau 1.3 l'expression théorique de la susceptibilité dans ces cas.

Les facteurs $3/4$ ou $3/2$ ont été conservés dans les expressions du vecteur polarisation, pour rester cohérent avec les expressions de la polarisation introduites par le tableau 1.1 et éviter de confondre les facteurs introduits par le mélange des trois champs impliqués et ceux éventuellement introduits par les symétries du tenseur de susceptibilité.

Configuration expérimentale	$\chi^{(3)}$	$\vec{P}^{(3)}$
effet Kerr optique à un seul faisceau polarisé rectilignement	$2 \times \chi_{xxyy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)}$	$\frac{3}{4}\epsilon_0 \times \chi^{(3)} E ^2 \vec{E}$
configuration pompe-sonde, champs polarisés rectilignement parallèlement	$\chi_{xxyy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)} + \chi_{xyxy}^{(3)}$	$\frac{3}{2}\epsilon_0 \times \chi^{(3)} E_p ^2 \vec{E}_s$
configuration pompe-sonde, champs polarisés rectilignement perpendiculairement	$\chi_{xyxy}^{(3)}$	$\frac{3}{2}\epsilon_0 \times \chi^{(3)} E_p ^2 \vec{E}_s$

TAB. 1.3 – Expressions de $\chi^{(3)}$ dans différents cas particuliers

Dans le cas de l'effet Kerr à un seul faisceau polarisé rectilignement, la polarisation non-linéaire est colinéaire au champ électrique. Un coefficient appelé susceptibilité non-linéaire effective $\chi^{(3)}$ est donc introduit, de façon à avoir simplement :

$$\vec{P}^{(3)}(\omega) = \frac{3}{4}\epsilon_0 \times \chi^{(3)}(\omega) \times |E(\omega)|^2 \vec{E}(\omega) \quad (1.40)$$

De la même façon que l'indice de réfraction linéaire avait été défini, l'indice de réfraction se généralise maintenant dans notre cas à :

$$n^2 = 1 + \chi^{(1)} + \frac{3\chi^{(3)}(\omega)}{4\epsilon_0} |E(\omega)|^2 = n_0^2 \left(1 + \frac{3\chi^{(3)}(\omega)}{4n_0^2\epsilon_0} |E(\omega)|^2 \right) \quad (1.41)$$

où n_0 représente l'indice de réfraction dans le cas linéaire.

L'amplitude de l'effet non-linéaire, caractérisée par le rapport $\chi^{(3)}|E(\omega)|^2/(n_0^2\epsilon_0)$ est, en général, très faible. Un développement limité au premier ordre de l'expression précédente permet d'obtenir la relation suivante :

$$n = n_0 + \frac{3\chi^{(3)}(\omega)}{8n_0\epsilon_0} |E(\omega)|^2 \quad (1.42)$$

Par ailleurs, l'indice de réfraction non-linéaire n_2 peut être défini par rapport à la moyenne temporelle de l'amplitude du champ électrique réel, c'est à dire :

$$n = n_0 + n_2 \langle \mathcal{E}^2(t) \rangle \quad (1.43)$$

où $\langle \dots \rangle$ désigne une moyenne temporelle. Dans le cas d'une seule vibration monochromatique de pulsation ω , la convention adoptée à la relation 1.36 nous indique que :

$$\mathcal{E}(t) = \frac{1}{2} [E(\omega) \exp(-i\omega t) + E^*(\omega) \exp(i\omega t)] \quad (1.44)$$

La relation 1.43 devient alors :

$$n = n_0 + \frac{n_2}{2} |E(\omega)|^2 \quad (1.45)$$

Identifiant les relations 1.42 et 1.45, le lien entre l'indice de réfraction non-linéaire n_2 et la susceptibilité $\chi^{(3)}$ se fait par la relation :

$$n_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{4n_0\epsilon_0} \quad (1.46)$$

Remarques sur les unités : Notons que tous ces calculs ont été faits avec le système d'unité S.I.. Le champ est alors exprimé en V/m. Par conséquent, l'indice de réfraction non-linéaire n_2 est en m^2/V^2 . Enfin, vu notre définition de $\chi^{(3)}$, son unité est le $C \times m/V^3$.

Une autre définition de l'indice de réfraction non-linéaire est couramment utilisée. Cette définition fait intervenir, non plus la moyenne temporelle du module carré du

champ électrique, mais la puissance lumineuse traversant une unité de surface perpendiculairement à la direction de propagation du faisceau, couramment désignée sous le terme d'intensité I , exprimée en W/m^2 (il faudrait en toute rigueur utiliser le terme de luminance). Il est plus commode d'utiliser cette valeur qui se déduit directement des mesures expérimentales d'énergie, de répartition spatiale et de durée d'impulsion du faisceau incident. L'indice de réfraction non-linéaire γ , exprimé en m^2/W est maintenant défini par la relation :

$$n = n_0 + \gamma I \quad (1.47)$$

L'intensité telle qu'elle a été définie et telle qu'elle sera déduite des mesures expérimentales des paramètres du faisceau, peut être assimilée à la moyenne temporelle de l'amplitude du vecteur de Poynting réel $\langle \mathcal{S}(t) \rangle$ [22]. Pour une onde plane transverse monochromatique se propageant dans un milieu d'indice linéaire réel n_0 , nous savons que :

$$\langle \mathcal{S}(t) \rangle = \frac{\langle \mathcal{E}^2(t) \rangle}{\eta} \quad \text{avec} \quad \eta = \frac{1}{n_0} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \quad (1.48)$$

où η représente l'impédance du milieu d'indice réel n_0 . Avec notre définition du champ complexe, l'intensité est donc définie dans ce cas par la relation :

$$I = \frac{1}{\eta} \times \frac{|E|^2}{2} \quad (1.49)$$

De cette manière, en système d'unité S.I., la correspondance entre γ et n_2 est donnée simplement par la relation :

$$\gamma = \eta \times n_2 = \frac{1}{n_0} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \times n_2 \approx \frac{120\pi}{n_0} \times n_2 \quad (1.50)$$

L'annexe B rappelle les liens entre $\chi^{(3)}$, n_2 et γ , ainsi que les lois de conversions entre les systèmes S.I. et CGS.

Nous venons donc de définir l'indice de réfraction non-linéaire à partir de la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre dans le cas d'un faisceau monochromatique polarisé rectilignement dans un milieu isotrope. L'analyse de cette susceptibilité non-linéaire nous a montré qu'en toute rigueur, la susceptibilité effective est la combinaison de 1, 2 ou 3 termes indépendants suivant la configuration expérimentale adoptée. Dans le cas d'une

polarisation rectiligne, par exemple, et supposant les trois termes indépendants du tenseur de susceptibilité égaux à une constante χ , les définitions introduites au tableau 1.3 nous indique que la susceptibilité non-linéaire effective vaut 3χ dans le cas d'un seul faisceau, 3χ dans le cas de l'interaction entre un faisceau pompe et un faisceau sonde polarisés parallèlement et χ si leurs polarisations sont perpendiculaires.

Toutefois, les trois termes qui composent la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre dans le cas isotrope sont a priori différents. D'éventuelles relations supplémentaires pouvant les relier peuvent être introduites et dépendent du mécanisme du phénomène non-linéaire. Dans le cas où il est impossible de négliger un mécanisme devant un autre, la mesure de l'indice de réfraction donne un paramètre global, intégrant toutes les contributions, combinées suivant leur mécanisme d'origine.

En effet, si par exemple l'indice de réfraction non-linéaire est mesuré en configuration pompe-sonde avec deux faisceaux polarisés parallèlement, le tableau 1.3 nous informe que la susceptibilité non-linéaire effective mesurée vaut exactement : $\chi_{xxyy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)} + \chi_{xyxy}^{(3)}$. En revanche, lorsqu'un seul faisceau est utilisé, celle-ci vaut : $2 \times \chi_{xxyy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)}$. Or, seule la connaissance du mécanisme microscopique qui est à l'origine de la non-linéarité du troisième ordre permet de connaître les liens entre les trois différents termes $\chi_{xxyy}^{(3)}$, $\chi_{xyyx}^{(3)}$ et $\chi_{xyxy}^{(3)}$. Si plusieurs mécanismes microscopiques entrent en jeu simultanément, mais dans des proportions inconnues, il devient impossible, avec une seule mesure de la variation d'indice dans une configuration donnée, de remonter aux différentes composantes. Dans ces conditions, une mesure effectuée en configuration pompe-sonde, par exemple, ne permet pas de remonter avec précision à la valeur correspondante dans le cas d'un effet Kerr à un seul faisceau. Ainsi le meilleur moyen d'avoir une mesure précise de l'indice de réfraction non-linéaire menant à une autofocalisation est justement de le mesurer à l'aide d'un montage basée sur l'étude de l'autofocalisation.

Remarque : *Tout comme dans le cas de l'approximation monochromatique introduite précédemment, il est également possible de décomposer le faisceau en une superposition d'ondes planes, solutions de l'équation de Helmholtz. La notion de spectre d'ondes planes est introduite et ce spectre est centré autour du nombre d'onde $\sigma_0 = 1/\lambda$. L'étendue spatiale du faisceau et l'étendue de son spectre d'onde plane sont liés par la relation $\Delta x \Delta \sigma \approx 1$. Le rapport $\Delta \sigma / \sigma_0$ est alors égal à $\lambda / \Delta x$. Ainsi, si l'étendue spatiale*

du faisceau est très grande devant la longueur d’onde, il sera possible de faire une approximation dite “paraxiale”. Dans le cadre de cette approximation, sur laquelle nous reviendrons dans le paragraphe sur l’étude du faisceau incident, la même définition de l’intensité est adoptée, mais cette fois-ci, I et E sont considérés comme des fonctions d’espace qui varient peu sur des distances de l’ordre de la longueur d’onde du faisceau.

1.5 Processus non-linéaires du troisième ordre “effectifs”

Dans ce travail les non-linéarités étudiées sont l’effet Kerr optique et l’absorption non-linéaire. Dans le premier cas la réponse non-linéaire se traduit par une variation photo-induite de l’indice de réfraction selon $n = n_0 + \gamma I$ et dans l’autre par une variation photo-induite de l’absorption selon $\alpha = \alpha_0 + \alpha_2 I$. Nous rappelons ici que l’origine de cette réponse non-linéaire provient de la polarisation et est donc liée aux niveaux d’énergie du système. On peut distinguer deux contributions à cette polarisation. La première, dite électronique, est très rapide (temps de réponse de quelques femtosecondes) et correspond à des transitions impliquant des vibrations d’électrons périphériques. La seconde, dite vibrationnelle, est plus lente (temps de réponse de l’ordre d’une centaine de femtosecondes) et correspondant à des transitions impliquant des vibrations de la matrice d’atomes.

Ce type de non-linéarité est intrinsèque au type de matériau choisi. Pour la silice amorphe, la contribution de ce mécanisme à l’indice de réfraction non-linéaire γ est estimée grossièrement entre 3 et $4 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ dans le visible [33, 28].

Cependant il existe d’autres processus conduisant aux mêmes types de variation photo-induite de l’indice de réfraction ou de l’absorption et conduisant à définir un indice de réfraction non-linéaire effectif. Ces processus, listés et évalués ci-après dans le cas des verres, ont des temps de réponse différents et leurs contributions à l’indice non-linéaire peuvent être très importantes comparées à la polarisation d’origine purement électronique.

1.5.1 Réorientation moléculaire

Dans le cas des liquides ou des gaz, la réorientation moléculaire est un mécanisme possible de variation d’indice de réfraction photo-induite. Sous l’effet d’un champ élec-

trique, des molécules polaires ont tendance à aligner leur moment dipolaire sur les lignes de champ, provoquant une légère variation d'indice de réfraction. Ce mécanisme peut donner lieu à de très fortes non-linéarités, comme dans le cas de la molécule de CS_2 . Ce liquide est d'ailleurs beaucoup utilisé en optique non-linéaire expérimentale et sert souvent de matériau non-linéaire de référence. Son indice de réfraction non-linéaire en régime picoseconde est d'environ $3 \times 10^{-18} m^2/W$ à $1064 nm$ [34], soit 100 fois plus que la silice amorphe. De manière générale, un grand nombre de liquides organiques possèdent un fort indice de réfraction non-linéaire, provenant majoritairement de ce type de mécanisme. Par ailleurs, le temps de réponse des mécanismes de réorientation moléculaire est de l'ordre de $10^{-12} s$.

1.5.2 Electrostriction

Sous l'effet d'un champ électrique, tout matériau diélectrique a tendance à se comprimer. Ce phénomène est connu sous le nom d'électrostriction. Le champ électrique a pour effet de polariser les molécules du diélectrique qui vont avoir tendance à s'attirer entre elles et ainsi comprimer le matériau. Une compression du matériau va induire une variation d'indice de réfraction. Ce phénomène est donc une origine possible de variation d'indice photo-induite et apporte ainsi une contribution supplémentaire à l'indice de réfraction non-linéaire.

La variation de l'indice de réfraction est reliée à la variation de la densité par la relation :

$$\Delta n = \left(\frac{\partial n}{\partial \rho} \right)_T \Delta \rho$$

En y introduisant la constante électrostrictive $\gamma_e = \rho_0 (\partial \epsilon / \partial \rho)_{\rho=\rho_0}$, il vient :

$$\Delta n \approx \frac{\gamma_e}{2 \rho_0 n_0} \Delta \rho \quad (1.51)$$

ρ_0 et n_0 représentent respectivement la densité et l'indice linéaire du matériau non perturbé. Δn représente alors la variation d'indice de réfraction provoquée par la variation de densité $\Delta \rho$. La constante électrostrictive peut être évaluée à l'aide de la formule de Lorentz-Lorenz [28] :

$$\gamma_e = \frac{(n_0^2 - 1)(n_0^2 + 2)}{3} \quad (1.52)$$

Il reste maintenant à évaluer la variation de densité induite par électrostriction. La perturbation (en terme de déplacement $\vec{u}(\vec{r}, t)$) induite par un ensemble de contraintes va générer une onde acoustique dans le matériau. Dans le cas d’un solide élastique quelconque, la description de la propagation de cette onde acoustique est un problème complexe [35]. Par exemple, contrairement au cas d’un fluide, deux sortes d’ondes acoustiques peuvent se propager : une onde de compression (onde longitudinale) et une onde de cisaillement (onde transverse). Par nature, ce dernier type d’onde ne provoquera pas de compression du matériau, il est alors raisonnable d’ignorer son effet sur la variation d’indice. Dans le cas de milieux solides, isotropes et élastiques et en négligeant les ondes de cisaillement, une équation de propagation similaire à celle obtenue dans le cas des liquides peut être établie [36]. Dans ce cas, la variation de densité $\rho(\vec{r}, t)$, induite par électrostriction peut être décrite par l’équation aux dérivées partielles :

$$\Delta_{\perp}\rho - \frac{1}{v^2} \frac{\partial^2 \rho}{\partial t^2} = \frac{\gamma_e}{2 n_0 c v^2} \Delta_{\perp} I \quad (1.53)$$

v représente la vitesse du son dans le milieu, c la vitesse de la lumière dans le vide, $\Delta_{\perp}$ le laplacien et I représente la répartition spatio-temporelle d’intensité dans le matériau. Le terme source issu de la dilatation thermique a été volontairement omis, car dans notre cas (milieu solide), le coefficient de dilatation thermique et la variation de température sont faibles (voir paragraphe suivant).

Le but ici n’est pas de résoudre le problème de la propagation de l’onde acoustique photo-induite décrite par l’équation 1.53. Si I_0 représente l’intensité du faisceau sur l’axe optique, nous pouvons néanmoins constater que le terme source induit une excitation maximale sur l’axe optique égale à :

$$\Delta\rho_{MAX} = \frac{\gamma_e I_0}{2 n_0 c v^2} \quad (1.54)$$

A l’aide de la relation 1.51, cette variation de densité correspond à une variation d’indice de la forme :

$$\Delta n = \frac{\gamma_e^2}{4 n_0^2 c \rho_0 v^2} \times I_0 \quad (1.55)$$

Ceci correspond à un indice de réfraction non-linéaire γ de $1,2 \times 10^{-20} m^2/W$ à $1064 nm$ avec, pour la silice amorphe, $v \approx 5970 m/s$.

Par ailleurs, la lentille d'indice induite par un faisceau gaussien de rayon $w_0 = 10 \mu m$ s'établit en un temps $\tau \approx w_0/v$, c'est à dire $\approx 2 ns$.

Dans la silice, les contributions issues des mécanismes électroniques et de l'électrostriction sont donc du même ordre de grandeur. La contribution de l'électrostriction à l'indice de réfraction non-linéaire de la silice amorphe n'est donc pas négligeable en toute rigueur. Par ailleurs, le temps de réponse de l'électrostriction est nettement plus grand que celui des mécanismes électroniques mais reste suffisamment faible pour être excité au moins partiellement par des impulsions de quelques nanosecondes voir quelques centaines de picosecondes. La contribution à la variation d'indice et à l'autofocalisation de l'électrostriction est donc a priori dépendante de la largeur temporelle des impulsions et de l'étendue spatiale du faisceau incident. Enfin, il faut rappeler que pour un matériau absorbant, il serait également nécessaire de considérer, en plus de l'électrostriction, une variation de densité induite thermiquement dans le matériau.

Un fluide est moins dense et beaucoup plus compressible. Ceci a pour effet de réduire considérablement le produit $\rho_0 v^2$ dans l'expression 1.55. La variation d'indice induite par électrostriction est alors beaucoup plus importante. En revanche, pour la plupart des solides, la contribution de l'électrostriction évaluée ici reste sensiblement la même. Ainsi, dans la plupart des solides qui ont des réponses non-linéaires importantes, dues à des propriétés électroniques particulières, l'influence de l'électrostriction est négligeable. Dans notre cas précis, celui de la silice et, plus généralement, des solides possédant un faible indice de réfraction non-linéaire, l'électrostriction doit être prise en compte parce que sa contribution est du même ordre de grandeur que les contributions électroniques. Enfin, on peut noter qu'un tel mécanisme mène à une valeur nulle du terme $\chi_{xyyx}^{(3)}$, c'est à dire que l'électrostriction est un mécanisme isotrope qui n'a pas d'effet sur la polarisation du champ électrique.

1.5.3 Effets thermiques

Dès lors qu'un matériau est absorbant, une partie de la puissance du faisceau est dissipée sous forme de chaleur. En pratique ceci concerne tous les matériaux. L'élévation de température provoque une variation d'indice de réfraction. Lorsqu'un milieu absorbant est perturbé par une impulsion lumineuse de forte puissance, il faut, en toute rigueur, résoudre le problème thermodynamique à l'aide des équations hydrodynamiques linéaires.

risées qui relient les perturbations de vitesse, de pression, de température et de densité du matériau [37]. Ces équations sont alors analysées avec deux sources de perturbations photo-induites : l’une décrivant l’effet de compression photo-induite par électrostriction et l’autre l’apport énergétique dû à l’absorption de l’énergie lumineuse. Dans ce cas, il faut considérer que la variation d’indice s’exprime sous la forme [38] :

$$\Delta n = \left(\frac{\partial n}{\partial T} \right)_\rho \Delta T + \left(\frac{\partial n}{\partial \rho} \right)_T \Delta \rho \quad (1.56)$$

Dans le cas d’un fluide, la variation de température induit également une variation de densité. Dans un fluide, l’indice de réfraction est généralement plus sensible à une variation de densité qu’à une variation de température. Le premier terme de l’équation précédente pourrait alors être négligé. Il reste alors à déterminer la variation de densité induite par deux termes sources différents, l’un décrivant l’effet d’électrostriction et l’autre l’effet de compression thermo-induite [37, 39, 40]. Oubliant pour l’instant le phénomène d’électrostriction qui a été traité dans le paragraphe précédent, nous allons estimer l’élévation de température dans un solide peu absorbant.

La répartition spatio-temporelle de température $T(\vec{r}, t)$ dans le matériau est régie par l’équation de la chaleur (équation de conservation de l’énergie) avec un terme source provenant de la conversion en chaleur d’une partie de l’énergie lumineuse :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} - \kappa \Delta_T T = \alpha I \quad (1.57)$$

où ρ désigne la densité du milieu, C_p la capacité thermique à pression constante, κ la conductivité thermique, α l’absorption linéique du matériau et $I(\vec{r}, t)$ la répartition spatio-temporelle d’intensité.

Généralement, un terme supplémentaire vient s’ajouter à cette équation pour décrire les effets de la dilatation. Ce terme est abandonné car dans le cas d’un solide, le coefficient de dilatation thermique est de l’ordre de $5 \times 10^{-7} K^{-1}$ [41]. Dans l’équation précédente, le terme source αI représente ici la fraction de puissance du faisceau qui est transformée en chaleur par unité de volume. Le terme $\Delta_T T$ représente le terme de diffusion thermique. Le temps de relaxation du phénomène de diffusion thermique est déterminé par la constante de diffusivité thermique $D = \kappa / \rho C_p$. Pour un faisceau de rayon w_0 induisant une lentille

d'indice thermique, la chaleur s'évacuera par diffusion de la zone d'autofocalisation en un temps τ_D de l'ordre de [39] :

$$\tau_D \approx \frac{w_0^2}{4D} \quad (1.58)$$

Dans le cas de la silice amorphe, $D \approx 0,85 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$. Pour un faisceau de $10 \mu\text{m}$ de rayon, ceci correspond à $\tau_D \approx 30 \mu\text{s}$. Ainsi, il est d'ores et déjà possible de constater qu'il est peu probable d'observer un effet d'accumulation impulsion après impulsion de l'effet thermique si le taux de répétition du laser n'est pas trop élevé (typiquement inférieur à une dizaine de kHz). Dans le cas d'une source laser à fort taux de répétition, comme c'est le cas d'un oscillateur femtoseconde, la présence d'une contribution thermique à l'indice non-linéaire devrait donc se traduire par une dépendance de l'indice en fonction du taux de répétition du fait de cet effet d'accumulation. Dans le cadre de nos études picoseconde et sub-picoseconde, le taux de répétition de la source étant accordable entre 50MHz et quelques Hz , il nous est possible de discriminer cette contribution en se plaçant dans un régime où l'accumulation est absente.

Dans notre cas, lors des études en régime nanoseconde les impulsions les plus longues étaient d'environ 20 ns . Le phénomène de diffusion thermique n'a alors pas d'influence significative si seuls les effets du faisceau sur lui-même nous intéressent. Le terme de diffusion thermique $\kappa \Delta_T T$ dans l'équation 1.57 peut être abandonné. La répartition spatiale de température suit alors approximativement la répartition d'intensité du faisceau durant le passage de l'impulsion. L'équation 1.57 peut alors être intégrée pour nous fournir l'évolution temporelle de l'élévation de température sur l'axe optique et au point de focalisation, provoquée par le faisceau incident. Il vient :

$$\Delta T(t) = T(t) - T(-\infty) = \frac{\alpha}{\rho C_p} \int_{-\infty}^t I(\vec{0}, t') dt' \quad (1.59)$$

Cette relation permet de voir clairement que les effets thermiques sont cumulatifs et de ce fait, l'élévation de température est, bien entendu, très dépendante de la durée d'impulsion utilisée.

La variation d'indice de réfraction associée à l'élévation de température est déterminée simplement à l'aide du coefficient thermo-optique à densité constante $(\partial n / \partial T)_\rho$ [38], c'est

à dire :

$$\Delta n_{thermique} = \left(\frac{\partial n}{\partial T} \right)_{\rho} \Delta T \quad (1.60)$$

Pour estimer l’influence potentielle des effets thermiques dans le cadre de ce travail, les caractéristiques suivantes de la silice amorphe ont été recueillies [42] :

densité $\rho \approx 2,2 \text{ g/cm}^3$
capacité thermique à pression constante ... $C_p \approx 0,703 \text{ J/(g} \cdot \text{K)}$
coefficient thermo-optique à $589,3 \text{ nm}$ $\partial n / \partial T \approx 10^{-5} \text{ K}^{-1}$

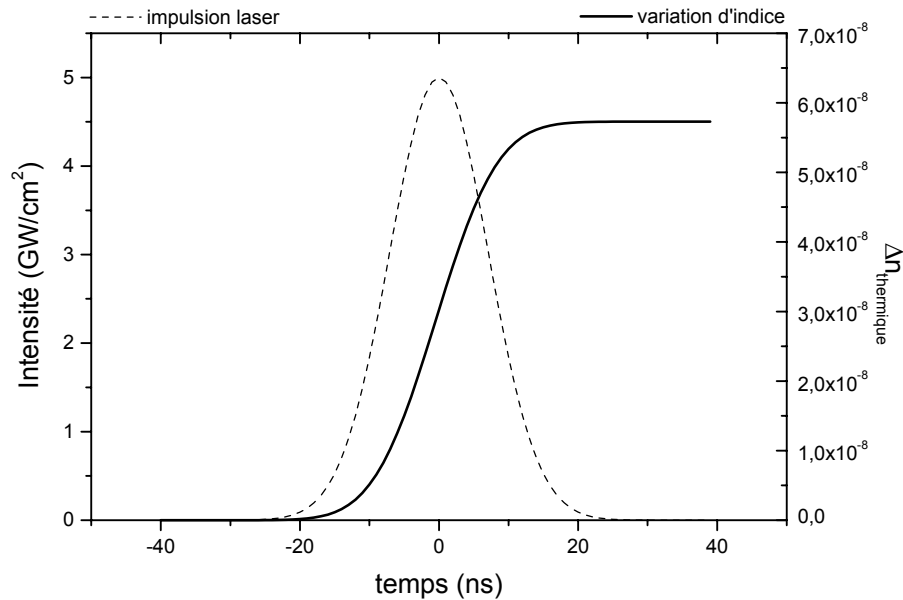


FIG. 1.1 – Variation d’indice thermique sur l’axe optique provoquée par une impulsion nanoseconde

Supposant être affranchi des effets d’accumulation d’une impulsion à la suivante par l’utilisation d’un taux de répétition de la source suffisamment faible, l’énergie absorbée est d’autant plus grande que l’impulsion est longue : la contribution des effets thermiques est donc maximale en régime nanoseconde, contribution que nous cherchons à estimer. Pour la silice amorphe, la fluence maximale qui peut être utilisée en pratique est de l’ordre de 100 J/cm^2 , c’est à dire quasiment la fluence d’endommagement laser du matériau. Dans le cas de silice amorphe de très bonne qualité optique, comme celle testée,

le coefficient d'absorption linéique peut atteindre des valeurs aussi faibles que 10^{-5} cm^{-1} dans le proche infrarouge. Pour être plus raisonnable, prenons un coefficient d'absorption de 10^{-4} cm^{-1} . Dans ces conditions et à l'aide des équations 1.59 et 1.60, l'élévation d'indice sur l'axe optique du faisceau provoquée par le phénomène thermique a été représentée sur la figure 1.1 pour une impulsion à profil temporel gaussien de demi-largeur à $1/e$ égale à 10 ns et d'intensité crête égale à 5 GW/cm^2 .

A titre de comparaison, la variation d'indice engendrée par les effets électroniques avec une intensité crête de 5 GW/cm^2 est d'environ $1,5 \times 10^{-6}$. Ainsi, il est peu probable d'observer une contribution notable des effets thermiques dans le cadre de cette étude. Il convient cependant d'être prudent car une absorption de 10^{-3} à 10^{-1} cm^{-1} n'est pas rare dans certains verres (voir annexe C), surtout dès que l'on s'intéresse à des verres non exclusivement composés de silice. Ce coefficient d'absorption peut même rapidement atteindre des valeurs de l'ordre de 1 cm^{-1} dans le proche ultraviolet. Dans ce cas, il n'est pas évident de pouvoir négliger la contribution des effets thermiques.

1.6 Conclusion

A partir des relations constitutives classiques de la matière, l'indice de réfraction non-linéaire a été introduit et relié à la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre. En toute rigueur, pour tenir compte de tous les processus pouvant conduire à l'autofocalisation d'un faisceau laser ou l'automodulation de phase d'une impulsion courte, il faut définir l'indice de réfraction non-linéaire à partir de la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre effective. Cette dernière est issue d'une combinaison des termes indépendants du tenseur de susceptibilité non-linéaire du troisième ordre et d'autre mécanismes comme les effets thermiques ou l'électrostiction et dépend de la configuration expérimentale adoptée.

Chapitre 2

Méetrologie de l'indice non-linéaire

2.1 Introduction

Le premier chapitre nous a permis de définir l'indice de réfraction non-linéaire et d'introduire l'origine physique des différentes contributions. Ainsi nous avons vu que la réponse non-linéaire du milieu comporte des mécanismes intrinsèques et rapides. Ces mécanismes se divisent encore en deux classes. La première est liée à la contribution des électrons périphériques de temps de réponse inférieur à quelques femtosecondes. La seconde est liée à la contribution de la matrice et répond en quelques dizaines de femtosecondes. A cela s'ajoute éventuellement des contributions électrostrictives et thermiques menant au même type de variation d'indice photo-induite. Ces mécanismes sont plus lents et ne sont pas nécessairement excités par des impulsions courtes.

Dans ce chapitre, nous faisons un rapide récapitulatif des méthodes où des techniques de mesures existantes permettant la détermination des non-linéarités du troisième ordre. Le but de cette étude est de mesurer avec le plus de précision possible la valeur absolue de faibles indices de réfraction non-linéaire tenant compte de tous les mécanismes issus d'une action du faisceau sur lui-même afin de le lier éventuellement à l'endommagement laser. L'utilisation d'une méthode basée sur la déformation photo-induite d'un faisceau unique semble être l'une des plus adaptées à cela, ce qui a orienté notre choix sur la méthode de Z-scan.

Nous présentons donc ensuite le principe de cette méthode de mesure, pour avoir une bonne connaissance de son principe de fonctionnement, de ses avantages, mais aussi, de ses limites. Nous présentons également les modélisations existantes du signal obtenu dans certaines configurations expérimentales. Ce chapitre se terminera par une analyse de la

littérature, concernant l'indice non-linéaire des verres.

2.2 Effet de l'indice non-linéaire

2.2.1 Autofocalisation

Si un matériau diélectrique est soumis à une répartition d'intensité lumineuse non uniforme $I(\vec{r})$ suffisamment élevée, l'indice de réfraction n du matériau n'est plus uniformément égal à l'indice de réfraction linéaire n_0 mais dépend de la position $\vec{r}$ de la manière suivante :

$$n(\vec{r}) = n_0 + \gamma I(\vec{r}) \quad (2.1)$$

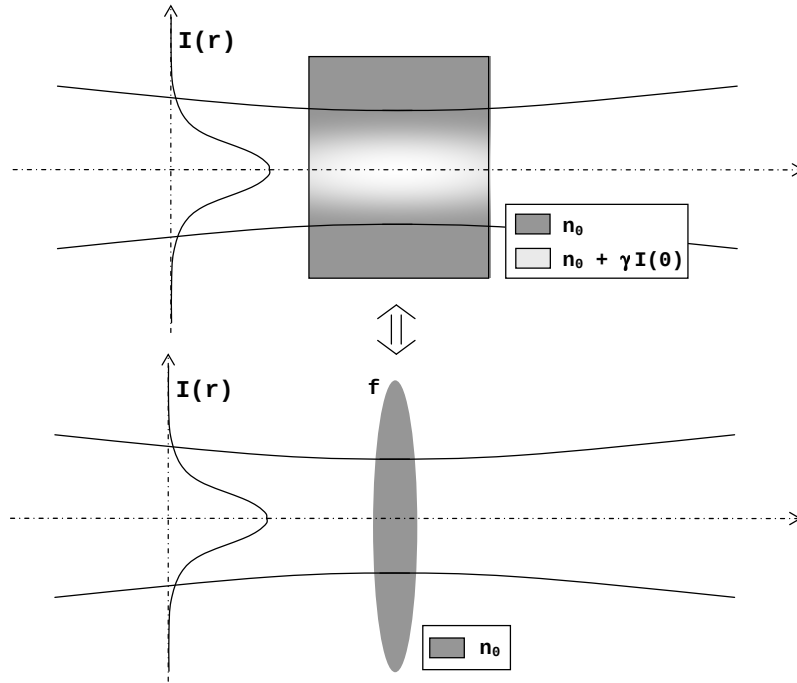


FIG. 2.1 – *Lame de phase produite par variation d'indice photo-induite dans un échantillon non-linéaire illuminé par un faisceau non uniforme et lentille convergente placée dans le même faisceau : deux situations équivalentes en terme de chemin optique*

Considérant une répartition d'intensité gaussienne, par exemple, on constate l'apparition d'une lentille d'indice photo-induite dans l'échantillon non-linéaire. Ce phénomène est illustré à la figure 2.1 dans le cas où $\gamma > 0$. L'échantillon non-linéaire se comporte comme une lame de phase non uniforme présentant un maximum au centre. Le chemin

optique est alors plus important sur l'axe optique, ce qui peut être vu comme si l'échantillon se comportait comme une lentille convergente.

Cette lentille d'indice va focaliser le faisceau un peu plus, concentrant sa puissance sur une zone plus réduite autour de l'axe optique. La lentille d'indice photo-induite par cette nouvelle répartition de puissance sera un peu plus “convergente” et ainsi de suite tant que l'onde se propage dans le milieu non-linéaire et ce jusqu'à exciter des non-linéarités d'ordres supérieurs ou endommager le matériau. Ce phénomène est connu sous le nom d'autofocalisation. Si l'indice non-linéaire est négatif, on observe une défocalisation qui est à la base de certains limiteurs optiques [43, 44, 45, 38].

Dans le cas général, la répartition d'indice non-uniforme engendrée par un faisceau laser intense dans un matériau perturbe la propagation du faisceau, provoquant une autofocalisation du faisceau (ou encore une défocalisation). Traditionnellement, deux types d'autofocalisation sont distingués. D'une part l'autofocalisation globale du faisceau comme représentée sur la figure 2.2, engendrant une déformation du faisceau tout entier et concentrant toute sa puissance sur une surface de plus en plus petite sur laquelle repose la méthode de Z-scan. Et d'autre part l'autofocalisation dite “à petite échelle”, qui amplifie les éventuelles sur-intensités locales du faisceau jusqu'à l'éclater en plusieurs filaments. Ces deux phénomènes peuvent perturber plus ou moins le front d'onde du faisceau, voir amorcer un endommagement du matériau.

La diffraction est tout naturellement un processus s'opposant à l'autofocalisation. Considérant un faisceau gaussien de longueur d'onde λ et de puissance totale P se propageant dans un matériau d'indice linéaire n_0 et d'indice non-linéaire γ , on montre que le phénomène d'autofocalisation compense exactement la diffraction du faisceau pour une puissance critique P_c donnée par :

$$P_c = 0,273 \times \frac{\pi (1,22\lambda)^2}{8 n_0 \gamma} \quad (2.2)$$

Au-delà de cette puissance critique, le faisceau a tendance à se focaliser de plus en plus. Si la distance parcourue dans le matériau est assez longue, l'intensité au centre du faisceau peut atteindre des valeurs suffisamment élevées pour amorcer l'endommagement du matériau. Dans la silice, où l'indice de réfraction non-linéaire est estimé à $\approx 3 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ la puissance critique est de l'ordre de 2 à 5 MW pour des longueurs d'onde du visible et du proche infrarouge.

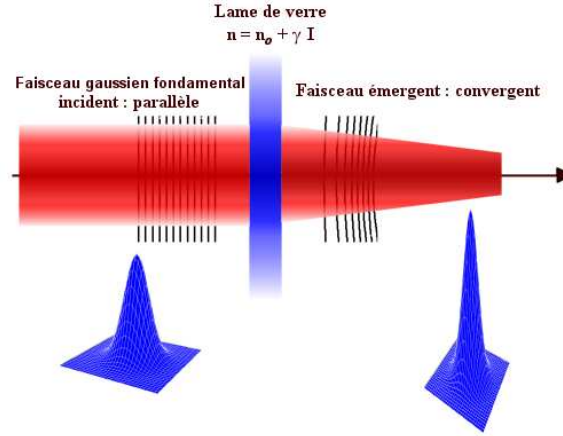


FIG. 2.2 – Autofocalisation de la lumière dans le verre (γ positif). Le front d'onde plan devient sphérique, l'intensité au centre augmente, le faisceau devient de plus en plus convergent.

2.2.2 L'automodulation de phase.

L'automodulation de phase est l'analogue temporel de l'autofocalisation et s'observe dans la silice surtout lorsque le spectre de l'impulsion utilisée est large ou que la distance de propagation dans le milieu non linéaire est grande comme cela est le cas dans les fibres optiques. Du fait de la variation temporelle de l'intensité optique d'une impulsion laser, l'indice de réfraction du milieu non-linéaire dans lequel elle se propage est lui aussi fonction du temps. La phase accumulée au cours de la propagation est donc dépendante du temps.

Quantitativement pour des faibles régime d'automodulation de phase, la propagation sur une petite distance L d'un matériau non-linéaire présentant un indice de réfraction non-linéaire se traduit par la multiplication de l'amplitude complexe du champ par un facteur de phase $e^{i\phi}$. La phase ϕ acquise lors de la traversée de cet échantillon fin s'écrit alors $\phi = kL - \omega_0 t$ (où ω_0 est la pulsation centrale des impulsions). En explicitant la constante de propagation k dans le cas d'un milieu présentant l'effet Kerr optique, cela donne $\phi(t) = \frac{\omega_0 L}{c} (n_0 + \gamma I(t)) - \omega_0 t$. En définissant la pulsation instantanée $\omega(t)$ comme l'opposée de la dérivée de la phase par rapport au temps on obtient :

$$\omega(t) = \omega_0 - \frac{\gamma \omega_0 L}{c} \frac{dI(t)}{dt}$$

Cela signifie que les différentes longueurs d'onde qui composent l'impulsion se séparent

temporellement (cf fig. 2.3) comme à la traversée d'un milieu dispersif. Cet effet s'ajoute à la dispersion chromatique des matériaux et peut le contrebalancer dans certains cas, ce qui permet la propagation de solitons dans les fibres optiques [46].

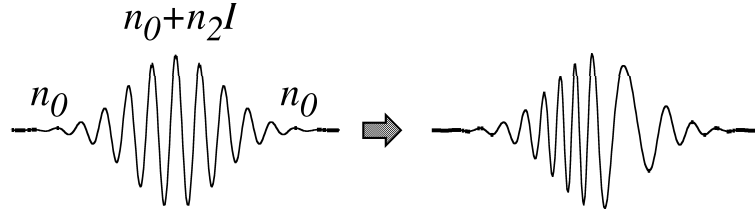


FIG. 2.3 – *Separation des fréquences au cours de la propagation d'une impulsion ultra-courte*

Pour des régimes de plus grande automodulation de phase ou pour de longues distances de propagation, l'impulsion se déforme, et s'étire. Ce phénomène est connu sous le nom de “self-steepening” illustré sur la figure 2.4). Ce phénomène peut être vu dans un premier temps de manière imagée et très approximative en terme de vitesse de propagation. On sait que la vitesse de groupe d'une onde optique se propageant dans un milieu est au premier ordre inversement proportionnelle à l'indice du matériau. Or les pieds d'une impulsion correspondent par définition à une faible intensité lumineuse, et se propagent donc à la vitesse $V_{\text{pied}} = \frac{K}{n_0}$. Le centre correspondant à une très forte intensité se propage, quant à lui, à la vitesse $V_{\text{centre}} = \frac{K}{n_0 + \gamma I}$, plus faible que V_{pied} dans le cas du verre. Ainsi l'impulsion se déforme, il se forme une marche à l'arrière de l'impulsion [28]. L'automodulation de phase, peut-être aussi à l'origine de mécanismes très complexes comme la génération de nouvelles fréquences, ce qui peut conduire à la création d'un “continuum” [47, 48] (lumière blanche) mis à profit par exemple dans le projet “teramobile” notamment pour sonder l'atmosphère [49, 50].

L'autofocalisation et l'automodulation de phase sont deux phénomènes présents simultanément. Cependant, dans certaines configurations l'un des aspects est nettement prépondérant sur le second : dans le cas d'impulsions courtes se propageant dans une fibre optique les aspects spatiaux ont peu d'importance et en espace libre la déformation temporelle de l'impulsion peut être négligée en première approximation tant que les distances parcourues sont faibles.

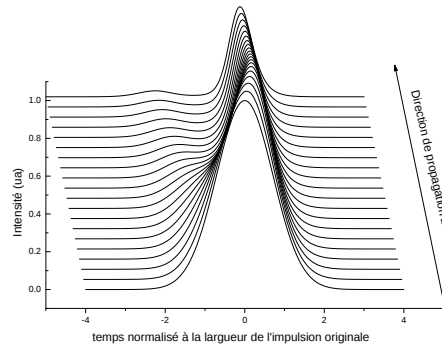


FIG. 2.4 – *Au cours de la propagation les impulsions ultracourtes se déforment ce qui peut conduire à la création d'une onde de choc.*

2.3 Principales méthodes de mesure

Il existe un grand nombre de méthodes pour déterminer les caractéristiques des tenseurs de susceptibilité non-linéaires des matériaux massifs. En effet la diversité des interactions qui peuvent avoir lieu au sein d'un matériau montrant des non-linéarités cubiques (voir partie 1.2) offre un très grand nombre de méthodes de mesure possibles a priori. Cependant, il faut être prudent car chaque méthode permet de mesurer une ou plusieurs composantes du tenseur de susceptibilité et n'est pas forcément sensible aux mêmes mécanismes. Parmi les méthodes adaptées à la mesure des non-linéarités induisant une variation d'indice de réfraction, nous allons décrire les principales approches de mesure :

- ✓ Mélange à quatre ondes
- ✓ Méthodes interférométriques
- ✓ Etude de distorsion de faisceau
- ✓ Etudes spectrales et temporelles

2.3.1 Mélange à quatre ondes

Le mélange à quatre ondes fut la première méthode utilisée pour estimer l'indice de réfraction non-linéaire avec précision. C'est la méthode la plus directe, et la seule disponible pour étudier avec précision tous les termes du tenseur de susceptibilité non-linéaire du troisième ordre. Cette méthode est basée sur l'étude de l'interaction entre plusieurs faisceaux au sein d'un matériau possédant une non-linéarité cubique. Les effets non-linéaires décrits par la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre ont été étudiés expérimenta-

lement pour la première fois par Maker et Terhune dans plusieurs cristaux et à l'aide de plusieurs configurations de mesures [51]. Les configurations de mesures employées reposaient sur le mélange de trois faisceaux au sein d'un cristal non-linéaire, puis sur une étude spectrale de la fraction de lumière convertie dans une autre longueur d'onde par effet non-linéaire du troisième ordre. En effet, nous avons vu, dans la partie 1.2, que dans le cas d'une interaction entre trois ondes incidentes de pulsations différentes ω_1 , ω_2 et ω_3 , il est possible d'obtenir au sein de la polarisation électrique non-linéaire du troisième ordre toutes les combinaisons possibles entre les trois champs et leurs conjugués, ce qui permet la génération d'ondes aux pulsations $\omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3$, qu'il est alors possible d'isoler à l'aide d'un monochromateur. En outre, la connaissance des symétries du cristal permet d'éliminer certains termes du tenseur de susceptibilité et de trouver éventuellement des relations entre les termes restants. Par exemple, pour un cristal à symétrie cubique, le tenseur de susceptibilité du troisième ordre possède 21 éléments non-nuls sur les 81 qui composent le tenseur, dont au moins 7 sont indépendants [21]. Dans ces conditions, une étude spectrométrique de la lumière générée par les interactions au sein du cristal dans plusieurs configurations différentes permet de déterminer plusieurs, voire tous les éléments du tenseur de susceptibilité [51].

En particulier, dans le cas de l'étude de variation d'indice de réfraction dans une configuration à un seul faisceau, le terme de susceptibilité qui nous intéresse est le terme :

$$\chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega, -\omega)$$

Dans ce cas, la méthode de mélange à quatre ondes la plus adaptée à l'étude de ce terme de susceptibilité est une méthode de mélange dégénéré à quatre ondes, c'est à dire un mélange à quatre ondes dans lequel deux des ondes impliquées ont la même pulsation [52]. Dans une telle configuration (la configuration expérimentale la plus simple est schématisée à la figure 2.5), deux faisceaux de pulsation ω_1 viennent interagir avec un troisième faisceau de fréquence $\omega_2 = \omega_1 + \Delta$. Parmi les termes de la polarisation du troisième ordre, se trouve en particulier un terme de la forme :

$$P^{(3)}(2\omega_1 - \omega_2) = 3\chi^{(3)}(2\omega_1 - \omega_2, \omega_1, \omega_1, -\omega_2) E^2(\omega_1)[E(\omega_2)]^* \quad (2.3)$$

Ce terme source donne naissance à une vibration de pulsation $2\omega_1 - \omega_2$ qui peut être étudiée séparément à l'aide d'un monochromateur. L'intensité I_3 de l'onde émise à cette pulsation est alors de la forme :

$$I_3 = K \times |\chi^{(3)}(2\omega_1 - \omega_2)|^2 \times I_1^2 I_2 l^2$$

I_1 et I_2 représentent les intensités des faisceaux à ω_1 et ω_2 , et l l'épaisseur de l'échantillon. Malheureusement, il est difficile de connaître avec précision la valeur du coefficient K qui dépend des conditions expérimentales. Il est alors indispensable d'utiliser une voie de référence identique, comportant un matériau non-linéaire connu pour se débarrasser de ce coefficient. L'inconvénient majeur de cette méthode est donc la nécessité d'utiliser un matériau de référence et elle ne permet donc pas une mesure absolue directe. En revanche, cette méthode permet une mesure relative précise. En outre, il faut noter que les méthodes de mélange à quatre ondes ne sont sensibles qu'aux non-linéarités répondant à des excitations temporelles très rapides ($< 10^{-13}$ s).

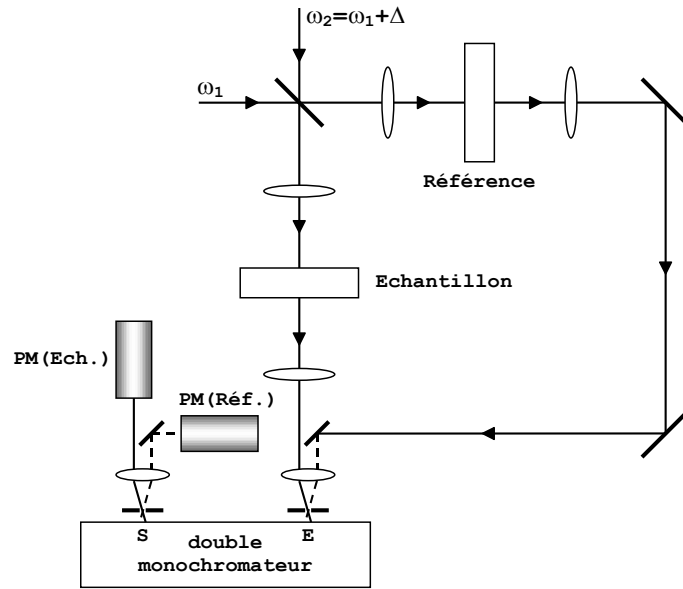


FIG. 2.5 – Configuration expérimentale de mélange dégénéré à 4 ondes [53]. Notons que dans cette configuration particulière, un seul faisceau à la pulsation ω_1 est utilisé. Le champ électrique à la pulsation ω_1 interviendra deux fois au sein de la susceptibilité non-linéaire. Deux vibrations de pulsations très proches ω_1 et $\omega_2 = \omega_1 + \Delta$ sont donc superposées à l'aide d'une lame séparatrice. Ces deux ondes viennent interagir au sein de l'échantillon et d'un matériau de référence. Un monochromateur permet d'isoler l'onde générée à la pulsation $\omega_1 - \Delta$ par effet non-linéaire.

D'autre part, pour une estimation plus exacte de la susceptibilité $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_1, \omega_1, -\omega_1)$, il faudrait utiliser des pulsations très proches. Or, lorsque $|\Delta|/(2\pi c) = |\omega_2 - \omega_1|/(2\pi c) < 1000 \text{ cm}^{-1}$, la susceptibilité du matériau de référence peut dévier considérablement car

des contributions supplémentaires induites par phonons peuvent intervenir [52]. En effet, lorsque les pulsations ω_1 et ω_2 sont strictement identiques, la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_1, \omega_1, -\omega_1)$ provient majoritairement de mécanismes électroniques. En revanche, lorsque deux ondes de pulsations légèrement différentes interagissent au sein du matériau non-linéaire, il est possible d'exciter des résonances Raman, c'est à dire des transitions vibrationnelles du matériau testé. Cette contribution du réseau vient s'ajouter alors à la contribution électronique. Or, le décalage en fréquence induit par la diffusion Raman est, par exemple, d'environ 500 cm^{-1} pour un solide tel que la silice, et d'environ 1000 cm^{-1} pour un liquide tel que le toluène [28].

Il est alors essentiel de bien choisir et de bien connaître le matériau à tester, ainsi que le matériau de référence. Des travaux [53] ont malgré tout pu être effectués avec $|\Delta|/(2\pi c) \approx 60 \text{ cm}^{-1}$ grâce à une estimation quantitative critique de ce phénomène, qui, dans ce cas précis, induisait une contribution négligeable.

Au niveau expérimental, il faut noter que la mise en place de ce type de méthode est assez complexe. En effet, sa réalisation nécessite l'alignement précis d'au moins deux faisceaux par voie de mesure (voie principale et voie de référence), ainsi que l'utilisation d'un, voire de deux monochromateurs de grande résolution. L'obtention de deux faisceaux de pulsations légèrement différentes n'est pas non plus aisée. En outre, comme nous l'avons vu, ce type de méthode ne permet pas de mesurer exactement le terme de susceptibilité décrivant l'effet Kerr à un seul faisceau.

2.3.2 Méthodes interférométriques

Une autre classe de méthodes pour mesurer plus directement la variation d'indice photo-induite dans un échantillon non-linéaire repose sur l'interférométrie. Ce type de méthode implique de diviser le faisceau incident en deux faisceaux afin de les faire interférer dans une configuration de type Michelson [54, 55] ou Mach-Zender [56], par exemple. Ce type de méthode est, par nature, sensible à toute variation d'indice photo-induite, contrairement aux méthodes basées sur le mélange à 4 ondes. Par ailleurs, une détermination absolue de l'indice de réfraction est possible, si les caractéristiques spatio-temporelles du faisceau incident sont étudiées.

Configuration à un faisceau

Une configuration de type Michelson à un seul faisceau est représentée à la figure 2.6. Dans une telle configuration, les franges d'interférences sont imagées sur une caméra CCD. Il est ensuite nécessaire d'augmenter graduellement l'intensité du faisceau incident jusqu'à observer un déplacement des franges d'interférence dû à la variation d'indice photo-induite dans le matériau. Cette méthode permet de détecter des variations de chemin optique de l'ordre du millième de la longueur d'onde. Pour déterminer sans ambiguïté le signe de l'indice de réfraction non-linéaire, il est nécessaire de calibrer le montage, afin de relier le sens de déplacement des franges avec le signe de la variation d'indice [55].

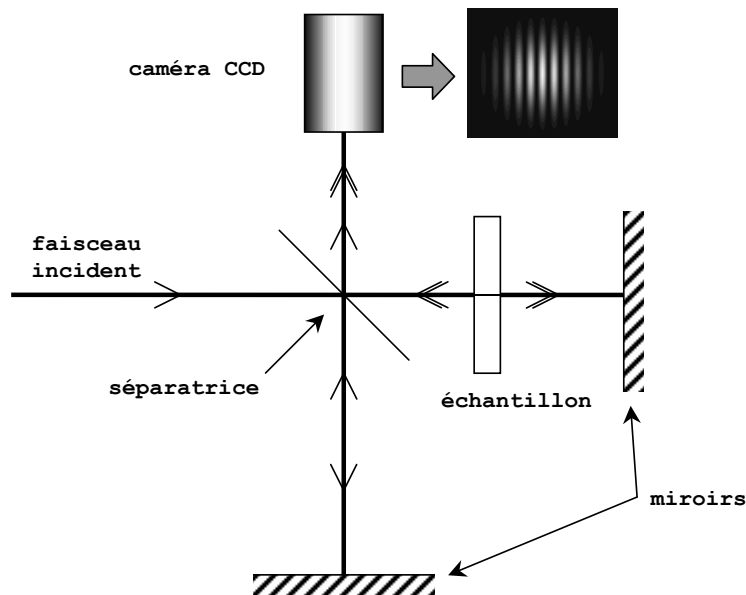


FIG. 2.6 – Montage interférométrique de type Michelson réglé en franges parallèles

Cette configuration à un faisceau est assez difficile à mettre en œuvre. Le pointé du laser doit notamment être particulièrement stable impulsions après impulsion, ce qui n'est pas toujours le cas pour un laser nanoseconde Q-switch commercial. De plus, afin d'exciter les processus non-linéaires, l'intensité du faisceau utilisé doit être relativement importante ce qui signifie que les fluences utilisées peuvent être très élevées, notamment en régime nanoseconde, ce qui pose le problème de la résistance au flux des miroirs et des séparatrices utilisés. Notre étude portant sur l'étude comparative de l'indice non-linéaire dans le régime nanoseconde, picoseconde et femtoseconde, il est préférable d'utiliser la même technique dans les trois cas, ce qui ne fait pas des méthodes interférométriques à

un seul faisceau des méthodes de choix. Une configuration pompe-sonde peut être plus commode et apporte de nombreuses autres possibilités. Plusieurs cas de figures peuvent alors être envisagés.

Cas de deux faisceaux distincts

Dans ce cas, le faisceau pompe issu d'un laser impulsif induit la variation d'indice dans l'échantillon. L'échantillon est alors placé sur un des bras d'un montage interférométrique mis en place à l'aide d'un autre laser de longueur d'onde différente (un laser continu, par exemple, pour simplifier la mise en place du montage et en assurer la stabilité). Il est alors nécessaire de superposer et de séparer les deux faisceaux à l'aide de dichroïques si leurs longueurs d'ondes sont différentes, ou d'attaquer l'échantillon sous des angles différents. Toutefois, dans ce cas de figure, la susceptibilité non-linéaire mesurée caractérise l'effet d'un faisceau pompe à une pulsation ω_1 sur un faisceau sonde à une pulsation ω_2 . Le terme de susceptibilité non-linéaire n'est pas celui qui décrit l'effet Kerr à un faisceau.

Cas d'un seul faisceau séparé en un faisceau sonde et un faisceau pompe

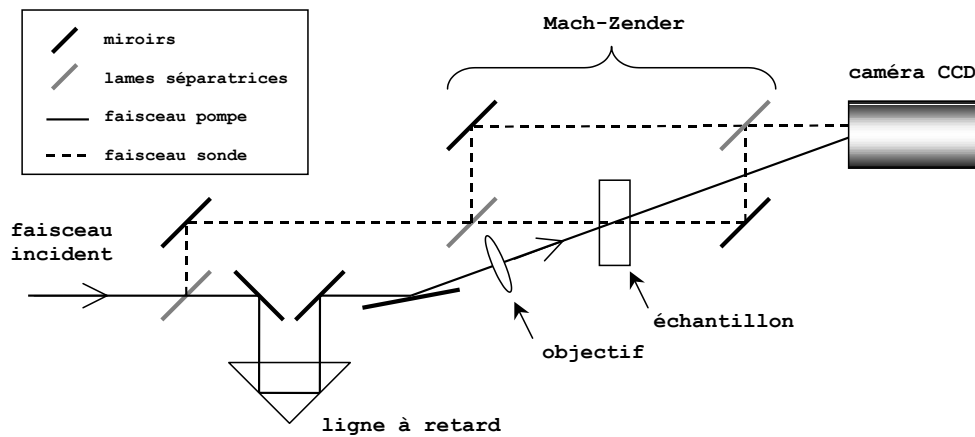


FIG. 2.7 – Montage interférométrique de type Mach-Zender en configuration pompe-sonde

Pour éviter le problème sus-mentionné, il est préférable d'utiliser un seul laser impulsif dont on prélève une partie pour constituer le faisceau sonde. Ce cas de figure a été représenté à la figure 2.7 en s'inspirant du montage de la référence [57]. Le faisceau sonde, de faible intensité, permet de constituer un montage interférométrique (de

type Mach-Zender dans l'exemple choisi). L'échantillon est placé sur un des bras du montage interférométrique. Le faisceau pompe est focalisé dans l'échantillon, permettant ainsi d'induire la variation d'indice. La séparation des deux faisceaux se fait grâce à un angle d'attaque différent sur l'échantillon. Si l'on choisit de les séparer en croisant leur polarisation le terme de susceptibilité mesuré est uniquement lié à $\chi_{xyxy}^{(3)}$ (d'après le tableau 1.3).

La configuration expérimentale décrite à la figure 2.7 possède deux particularités intéressantes que la configuration pompe-sonde permet. D'une part, le profil spatial du faisceau pompe peut être imagé sur la caméra (à l'aide d'une lentille, non représentée). Ainsi, ceci permet de corrélérer la répartition spatiale du faisceau pompe et la répartition spatiale de la variation d'indice. Une telle résolution spatiale de la variation d'indice est intéressante, par exemple, pour étudier un éventuel élargissement spatial de la variation d'indice, dû à un phénomène de diffusion thermique. D'autre part, si la durée d'impulsion est inférieure à quelques centaines de picosecondes, l'impulsion pompe peut être avancée ou retardée par rapport à l'impulsion sonde, à l'aide de la ligne à retard représentée sur la figure 2.7. Ceci permet d'avoir une mesure résolue en temps, grâce à laquelle l'évolution temporelle de la réponse peut être étudiée.

En résumé, les méthodes interférométriques sont donc particulièrement intéressantes pour leur sensibilité et la possibilité d'une mesure de l'indice de réfraction non-linéaire absolue et incluant tous les mécanismes. La possibilité d'une mesure résolue en temps et spatialement est également très intéressante [58, 59]. En revanche, ce type de montage interférométrique reste assez complexe à mettre en place dans sa configuration pompe-sonde. En outre, ces méthodes nécessitent un dispositif d'imagerie suffisamment performant [60, 61]. La caméra doit avoir une grande résolution et peu de bruit de fond. Dans ces conditions, et à l'aide d'un traitement d'image très fin de la déformation des franges d'interférence, ce genre de méthode permet de déceler des variations de chemin optique bien inférieures à la longueur d'onde ($\lambda/10^3$). La détectivité de telles méthodes tient à la résolution de la caméra, à la stabilité en pointé du laser et surtout la stabilité du montage interférométrique.

2.3.3 Etude de distorsion de faisceau

Ce type de mesure de l'indice de réfraction non-linéaire regroupe en fait plusieurs méthodes dont l'approche est identique : étudier la déformation d'un faisceau de forte

puissance après son passage dans un milieu non-linéaire. Seule la façon d'analyser cette déformation change d'une méthode à l'autre. Ce type de méthode est la façon la plus simple et la plus directe d'étudier le phénomène d'autofocalisation mais nécessite une bonne connaissance du faisceau incident, une analyse précise du phénomène d'autofocalisation et ne présente pas toujours une sensibilité aussi bonne que les méthodes précédemment décrites.

Estimation de l'indice de réfraction non-linéaire à partir de la puissance critique

Parmi les toutes premières méthodes utilisées pour estimer l'indice de réfraction non-linéaire, l'étude du seuil d'endommagement peut permettre d'estimer la puissance critique [62, 63] et donc la valeur de l'indice de réfraction non-linéaire. Ce genre de mesure permet d'avoir une estimation globale de l'indice de réfraction non-linéaire si le processus d'endommagement est majoritairement amorcé par le phénomène d'autofocalisation (ceci est une bonne approximation pour des impulsions de durée inférieure à quelques dizaines de picosecondes ou des faisceaux particulièrement larges et donc de puissance totale très importante). En revanche, cette méthode a comme défaut d'être destructrice et elle n'a pas une grande sensibilité, a priori. Cette méthode est encore utilisée aujourd'hui à des fins métrologiques [64]. Pour être sensible, cette méthode nécessite alors une analyse fine du phénomène d'autofocalisation et une métrologie précise et contrôlée de l'endommagement laser.

Limitation optique et étude de la réfraction non-linéaire par distorsion de faisceau

Pour des régimes de puissance au dessous de la puissance critique, le phénomène d'autofocalisation a suscité l'intérêt pour la réalisation de systèmes permettant de limiter automatiquement la puissance d'un faisceau laser, afin, par exemple, de protéger des optiques fragiles. Ce genre de dispositif limiteur possède un grand intérêt également dans la conception de lasers à impulsions ultra-courtes, pour éliminer automatiquement certains modes dans la cavité laser. Plusieurs configurations permettent la limitation optique. La première et la plus intuitive est d'utiliser un matériau absorbant non-linéairement, la puissance est alors directement réduite lors du passage dans l'échantillon et ce d'autant plus que l'intensité est importante. La seconde configuration consiste à utiliser un milieu

ayant un indice non-linéaire positif. Placé juste avant le point de focalisation du faisceau à limiter, l'autofocalisation dans le milieu agit comme une lentille convergente qui focalise encore plus le faisceau et par conséquent provoque un élargissement du faisceau en champ lointain. En plaçant un diaphragme la fraction de puissance superflue peut être stoppée. Enfin la dernière configuration est l'équivalent de la seconde avec un milieu ayant un indice non-linéaire négatif. Ce dernier placé juste après le point de focalisation provoque aussi un élargissement de faisceau en champ lointain via la lentille divergente photo-induite.

Une étude poussée de ces systèmes a permis de mettre en place les premières méthodes de mesure d'indice de réfraction non-linéaire par distorsion de faisceau. Une telle configuration expérimentale est particulièrement simple et la principale difficulté est d'utiliser des modélisations adaptées au phénomène d'autofocalisation et d'absorption non-linéaire dans cette configuration expérimentale [65, 66, 67].

Dans ces conditions, l'indice de réfraction d'un échantillon fin de matériau fortement non-linéaire (InSb) a pu être estimé [65] en prédisant l'allure du faisceau perturbé en champ lointain. Cette méthode ne présentait pourtant pas encore de sensibilité suffisante pour mesurer de faibles déphasages non-linéaires avec précision. Des travaux similaires [66] ont été menés pour le CS_2 .

C'est toujours dans ce contexte que Sheik-Bahae et ses collaborateurs [34] ont mis en place la méthode de Z-scan, qui sera largement décrite dans cette thèse. Cette méthode est également basée sur l'étude de la déformation du faisceau. Plus particulièrement, la méthode de Z-scan consiste à déplacer un échantillon le long de l'axe optique autour du point de focalisation et d'observer en champ lointain l'évolution de la déformation du faisceau. Cette méthode permet d'obtenir une sensibilité sur la variation de chemin optique bien inférieure à λ ($\lambda/300$ dans l'étude de Sheik-Bahae). Ce qui en fait une des méthodes les plus simples et les plus sensibles de mesure de l'indice de réfraction non-linéaire.

2.3.4 Etudes spectrales et temporelles

Les impulsions femtosecondes possèdent un spectre large qui peut être utilisé pour déterminer l'indice non-linéaire dans ce régime. Nous avons vu qu'une impulsion se dé-

forme temporellement étant multipliée par un terme de phase dépendant du temps au cours de la propagation. Cela signifie que dans le domaine spectral, conjugué du domaine temporel, l'analyse de ce spectre après propagation peut permettre de remonter à l'indice non-linéaire. Nibbering et al.[68] ont proposé une méthode pour y parvenir en 1995 et l'ont appliquée pour l'étude de l'indice non-linéaire de verres et de liquides tels que le CS_2 ou le benzène à partir d'impulsions de 150 femtosecondes, de spectre large s'étalant de 790 nm à 810 nm.

Dans le domaine temporel, pour des milieu excités en dehors des bandes de résonance, l'approximation classique de Born-Oppenheimer, conduit à décrire la polarisation électronique de la façon suivante[69] :

$$P_i^{(3)}(t) = \bar{\sigma}_{ijkl} E_j(t) E_k(t) E_l(t) + E_j(t) \int_0^{+\infty} \bar{d}_{ijkl}(t - \tau) E_k(\tau) E_l(\tau) d\tau \quad (2.4)$$

où $\bar{\sigma}$ et $\bar{d}$ sont des tenseurs, le premier représentant la réponse "instantanée" (contribution du nuage électronique) et le second étant relatif à la réponse du noyau. Ce dernier tenseur répond en plusieurs centaines de femtosecondes et doit donc être convolué avec l'impulsion.

L'action d'un faisceau pompe d'intensité I_p sur un faisceau sonde E_s retardé de τ_0 et interagissant sur une longueur L se traduit par la multiplication du champ électrique du faisceau sonde par le terme de phase suivant [70] :

$$\phi_{nl}(t - \tau_0) = \frac{2\pi L}{\lambda} \left[n_{2, isnt} I_p(t - \tau_0) + \int_0^{+\infty} R(\tau) I_p(t - \tau_0 - \tau) d\tau \right] \quad (2.5)$$

où $n_{2, isnt}$ est la contribution du nuage électronique à l'indice non-linéaire et R la contribution du noyau.

Le spectre de la sonde peut être mesuré expérimentalement en fonction du délai τ_0 entre la pompe et la sonde. En connaissant la forme temporelle des impulsions et la forme de la fonction $R(t)$ (en bonne approximation $R(t) = \frac{A_1}{T_1} e^{-t/T_1} + \frac{A_2}{T_2} e^{-t/T_2}$ avec $T_1 = 100 fs$ et $T_2 = 1.5 ps$ pour le CS_2 par exemple), une simulation du signal obtenu permet de remonter à l'indice non-linéaire. Ripoche et al. [70, 71] ont appliqué cette méthode à la mesure de l'indice non-linéaire de l'air en 1997. De même Santran et al. [72] ont proposé récemment un montage pompe-sonde résolu en temps similaire leur ayant permis de mesurer un indice non-linéaire instantané effectif des différentes silices en régime sub-picoseconde

(impulsions d'environ 100 fs) en tenant compte des effets spatiaux du faisceau supposé gaussien.

Comme pour les méthodes interférométriques résolues en temps, ce type de méthode n'est clairement pas adaptée à notre étude, où nous nous proposons de comparer l'indice non-linéaire de quelques verres pour différents régimes temporels en particulier nanoseconde. Pour des impulsions de durée supérieure à quelques nanosecondes, on comprend que ces méthodes sont techniquement difficiles à mettre en place de façon stable, demandant des variations de chemin optique trop importantes. Il faut par exemple allonger la ligne à retard de 30 cm pour décaler les impulsions d'une seule nanoseconde.

2.4 La méthode de Z-scan

La méthode de "Z-scan", développée pour la première fois par M. Sheik-Bahae et al. en 1990 [34] a été depuis très utilisée pour la mesure de l'indice de réfraction et de l'absorption non-linéaires. Dans le contexte de l'étude de systèmes limiteurs optiques, nous avons vu dans le paragraphe précédent que l'utilisation d'un seul faisceau pour étudier la réfraction non-linéaire s'est montrée concluante, ce qui simplifie considérablement le montage expérimental par rapport aux autres méthodes de mesure de l'indice de réfraction non-linéaire (voir paragraphe 2.3.3).

Cependant, une mesure directe de la déformation du faisceau reste peu sensible et nécessite de connaître le profil spatial complet du faisceau en champ lointain, ceci en présence et en l'absence d'effets non-linéaires. L'idée de la méthode de Z-scan est d'utiliser un faisceau focalisé et de ne s'intéresser qu'à l'évolution en champ lointain de l'intensité du faisceau sur l'axe optique, lorsque l'échantillon se déplace le long de celui-ci. Au voisinage du point de focalisation, l'intensité du faisceau sur l'axe optique évolue rapidement, induisant une lentille d'indice plus ou moins prononcée. Ce balayage longitudinal permet donc implicitement de faire varier l'intensité dans l'échantillon. Ceci permet d'induire une variation d'indice dépendante de la position longitudinale de l'échantillon.

2.4.1 Principe

Le principe de base de la méthode de Z-scan est donc de déplacer longitudinalement un échantillon à faces parallèles le long de l'axe optique d'un faisceau focalisé. Ce balayage

va induire un changement d'indice dépendant de la position, et donc une défocalisation du faisceau dépendante de la position de l'échantillon. Il reste alors à mesurer cette défocalisation du faisceau. L'idée de la méthode de Z-scan, qui est la plus simple pour mesurer une défocalisation, est de mesurer la puissance transmise par un diaphragme centré sur l'axe optique du faisceau en champ lointain. En effet, une augmentation ou une diminution de la divergence du faisceau se traduira, dans un plan fixe, par une diminution ou une augmentation d'intensité sur l'axe optique.

La figure 2.8 illustre l'évolution de la puissance transmise par le diaphragme lors du balayage longitudinal de l'échantillon. La lentille d'indice photo-induite dans l'échantillon (voir paragraphe 2.3.3) devient de plus en plus prononcée lorsque celui-ci s'approche du point de focalisation, provoquant une défocalisation du faisceau de plus en plus visible. En revanche, aucune déformation du faisceau n'est observée lorsque l'échantillon se trouve dans une zone où l'intensité maximale du faisceau est trop faible pour engendrer une variation d'indice notable.

La figure 2.8 représente le cas d'une variation d'indice positive ($\gamma > 0$), sans phénomène d'absorption linéaire ou non-linéaire. Lorsque l'échantillon est placé avant le point de focalisation, la lentille d'indice a pour effet d'accroître légèrement la divergence du faisceau, ce qui provoque une diminution du flux traversant le diaphragme placé devant le détecteur. En revanche, un échantillon placé après le point de focalisation a tendance à réduire la divergence du faisceau, ce qui provoque alors une augmentation du flux. Lorsque l'échantillon se trouve au point de focalisation, l'intensité est maximum : c'est le point de mesure pour lequel la variation d'indice dans l'échantillon est la plus élevée. En revanche, pour ce point de mesure, aucune déformation n'est observée en champ lointain, la puissance transmise retrouve son niveau original.

Notons que dans le cas d'une variation d'indice négative ($\gamma < 0$), la puissance transmise représentée à la figure 2.8 croît puis décroît lorsque l'échantillon s'éloigne de l'objectif. Ainsi, par une simple observation de la variation de puissance transmise, cette méthode permet de déterminer sans aucune ambiguïté le signe de l'indice de réfraction non-linéaire.

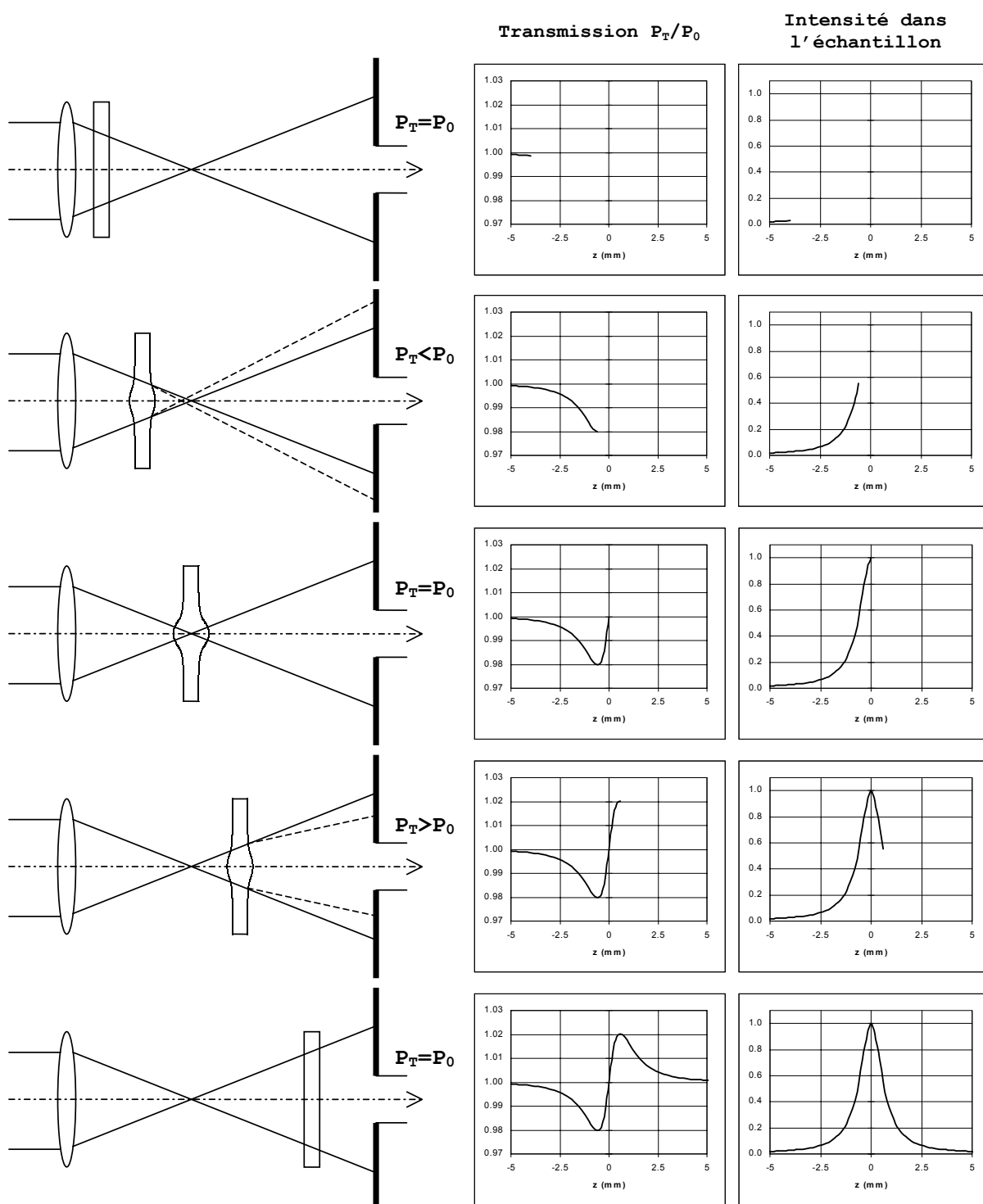


FIG. 2.8 – Principe de base de la méthode de Z-scan. Les courbes représentent la puissance normalisée transmise par le diaphragme et l'intensité sur l'axe optique du faisceau en fonction de la position longitudinale de l'échantillon. Pour simplifier l'illustration, la variation d'indice dans l'échantillon a été illustrée par une déformation géométrique de l'échantillon.

2.4.2 Transmission normalisée

Un des intérêts principaux de cette configuration par rapport à l'étude directe de la déformation du faisceau est de faire varier implicitement l'intensité dans l'échantillon. Ainsi, lorsque l'échantillon est très éloigné du point de focalisation, la puissance transmise P_0 peut servir de puissance de référence car elle représente la puissance transmise lorsque l'intensité dans l'échantillon est trop faible pour engendrer une variation d'indice significative. Cette puissance transmise P_0 permet d'introduire la notion de transmission normalisée, définie comme le rapport entre la puissance transmise par le diaphragme pour une position quelconque de l'échantillon, divisée par cette puissance de référence P_0 .

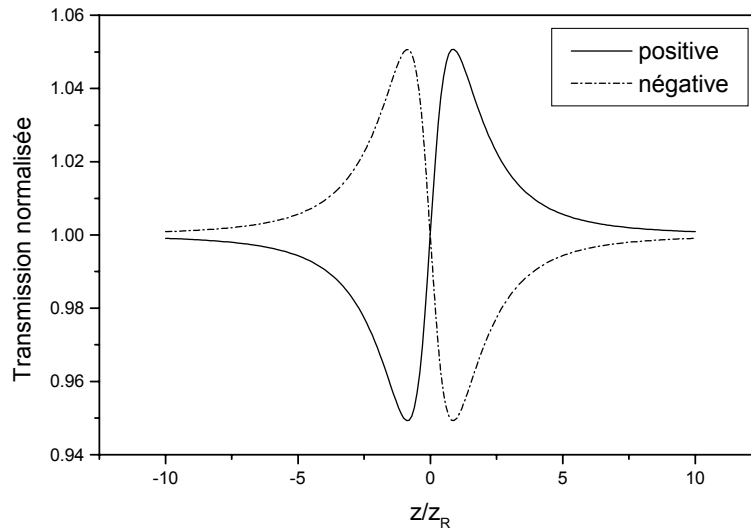


FIG. 2.9 – Allure des courbes de transmission normalisée dans le cas d'une variation d'indice positive ou négative dans l'échantillon (cas d'un faisceau gaussien et d'un échantillon fin devant la longueur de Rayleigh z_R du faisceau qui sera définie plus loin)

En l'absence d'effets non-linéaires dans l'échantillon, le signal transmis resterait constant égal à P_0 . En présence d'effets non-linéaires, on s'intéresse alors à l'évolution de la transmission normalisée en fonction de la position longitudinale de l'échantillon sur l'axe optique du faisceau. L'allure des courbes de transmission normalisée est représentée à la figure 2.9 suivant que l'indice de réfraction non-linéaire est positif ou négatif. Cette figure montre la signature caractéristique du signal de Z-scan comportant un maximum et un minimum de part et d'autre du point de focalisation. Le paramètre ΔT est défini comme la différence de transmission normalisée entre ces deux extrema. Nous verrons que sous

certaines conditions ce paramètre est proportionnel à l'indice de réfraction non-linéaire.

2.4.3 Défectivité

A ce stade, quelques remarques peuvent d'ores et déjà être faites sur quelques limitations inhérentes à ce principe de mesure.

Tout d'abord, l'obtention d'une courbe de transmission normalisée demande, au minimum, l'utilisation d'autant d'impulsions laser que de points de mesure nécessaires à résoudre les variations en z de la transmission normalisée. Ceci n'est pas forcément nécessaire avec les autres méthodes de mesure décrites au chapitre précédent. Nous allons voir que la répétabilité des impulsions laser va ainsi avoir un impact déterminant sur la défectivité de la méthode.

Le signal recherché ici correspond à une faible variation de la puissance transmise par le diaphragme. En terme de détection, cette méthode n'est pas "centrée", c'est à dire qu'elle est basée sur la mesure de faibles variations d'une grandeur non nulle, et elle-même fluctuante. Ce type de mesure est donc particulièrement sensible aux fluctuations de puissance du faisceau, ce qui limite sa défectivité.

Dans le but d'améliorer la défectivité de la méthode en se rapprochant d'une méthode "centrée", une configuration alternative peut être utilisée en observant non plus la puissance sur l'axe optique du faisceau en champ lointain, mais les variations de la puissance contenue dans sa périphérie. Cette méthode est connue sous le terme anglo-saxon de "eclipsing Z-scan" ou "EZ-scan" [73]. Pour ce faire, le diaphragme est remplacé par un écran circulaire opaque ne laissant passer que 1% de la puissance totale du faisceau. Si le rapport signal sur bruit est considérablement amélioré par ce principe, il s'avère que cette méthode fournit des valeurs de l'indice de réfraction assez peu sûres. En effet, ce genre de méthode nécessite une modélisation parfaitement adaptée au type de faisceau utilisé. Tout écart au modèle choisi peut conduire à des erreurs importantes sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire et il est fortement recommandé d'utiliser la méthode de Z-scan, si possible, dans sa configuration initiale [73].

Par ailleurs, les fluctuations en puissance du faisceau induisent une fluctuation, au mieux identique, de la puissance transmise, et donc de la transmission normalisée im-

pulsions après impulsions. Dans l'approximation d'une puissance transmise proportionnelle à la puissance totale du faisceau, la puissance transmise est entachée d'un bruit multiplicatif. Ainsi, il n'est pas possible de détecter de variation de transmission normalisée inférieure à l'amplitude des fluctuations du laser impulsion après impulsion. Pour se débarrasser d'un tel bruit multiplicatif, il est néanmoins possible d'utiliser une voie de référence et de diviser la puissance transmise par la voie principale, par la puissance mesurée sur cette voie de référence. Pour des matériaux possédant de très fortes non-linéarités ou lorsque des lasers à impulsions ultra-courtes (ps-fs) sont utilisés, il n'est souvent pas nécessaire d'utiliser de voie de référence, tant la variation de transmission normalisée est importante et bien supérieure aux fluctuations du laser. Lorsque l'amplitude du phénomène non-linéaire est plus faible, une simple réflexion du faisceau sur un pyromètre est utilisée comme voie de référence. Ce type de procédé suppose que l'énergie totale du faisceau est corrélée à la puissance transmise par la voie de mesure principale. Ceci peut suffire à améliorer la sensibilité de la méthode, mais la configuration la plus sûre consiste à constituer une voie de référence parfaitement identique à la voie de mesure.

Le signal le plus faible qu'il sera alors possible de détecter à l'aide de cette méthode sera donc limité par la stabilité du laser et la bonne corrélation entre les voies de mesure.

2.4.4 Influence du diamètre du diaphragme et mesure de l'absorption non-linéaire

La transmission en puissance du diaphragme placé devant le détecteur vaut, dans le cas d'un faisceau à profil gaussien :

$$S = 1 - e^{-2r_a^2/w_a^2}$$

où r_a et w_a représentent respectivement le rayon du diaphragme et le rayon en intensité à $1/e^2$ du faisceau dans le plan du diaphragme.

A partir d'une étude numérique du signal de Z-scan, M. Sheik-Bahae et ses collaborateurs ont montré que la sensibilité de la méthode pour la mesure de l'indice de réfraction non-linéaire décroît en $(1 - S)^{0,25}$, si $S < 0,7$. Retenons surtout que le maximum de sensibilité est atteint lorsque $S \ll 1$, c'est à dire lorsque le diamètre du diaphragme est faible devant le diamètre du faisceau. On parle alors de configuration de Z-scan "fermée" (closed Z-scan).

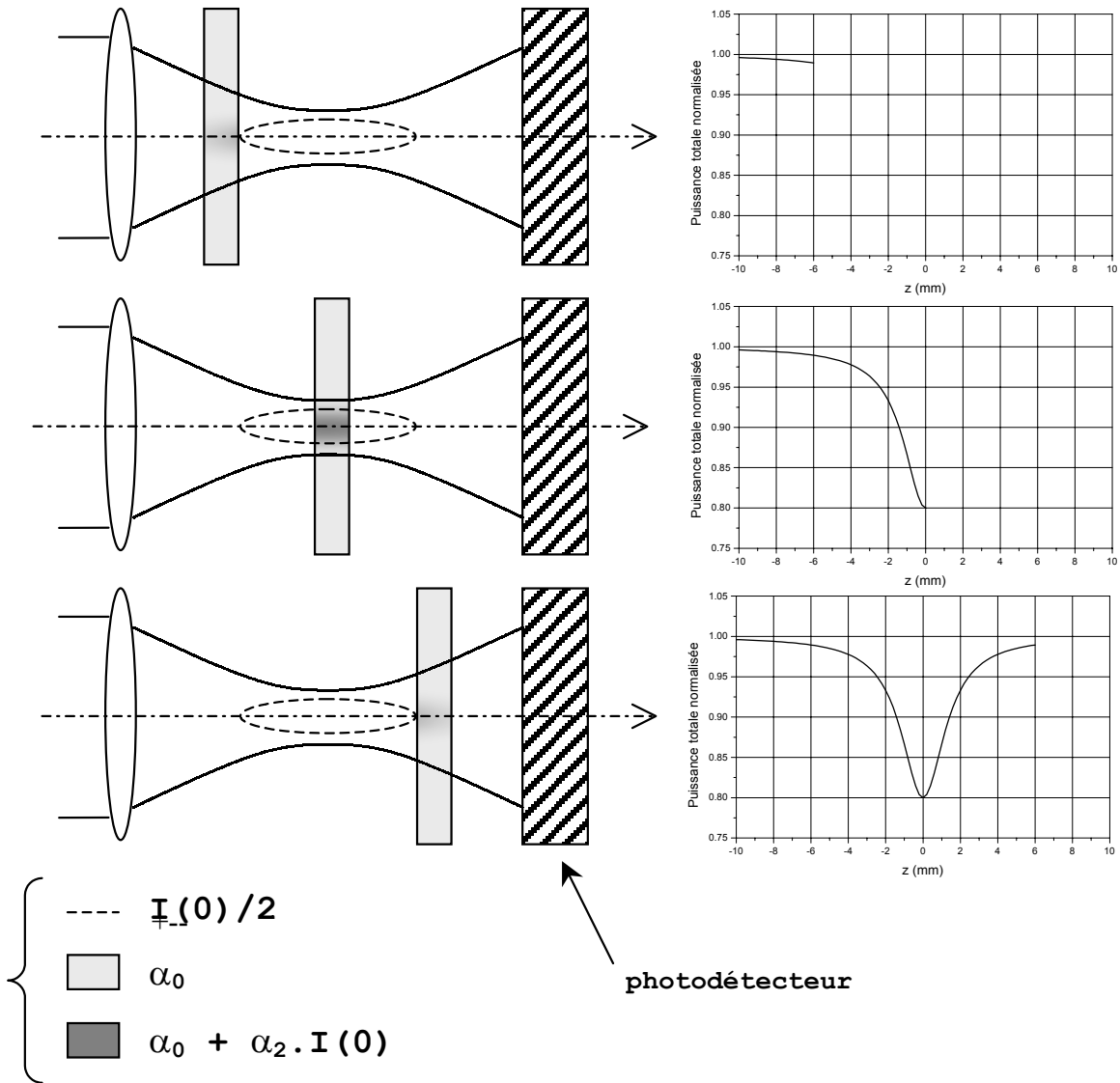


FIG. 2.10 – Mesure de l'absorption non-linéaire en configuration de Z-scan “ouverte”

Par ailleurs, pour $S = 1$, désigné comme la configuration de Z-scan “ouverte” (open Z-scan), la méthode n'est plus sensible à la réfraction non-linéaire. En revanche, elle reste sensible à l'absorption non-linéaire de l'échantillon. Tout comme dans le cas de la réfraction non-linéaire, il est possible d'observer de l'absorption photo-induite dans certains matériaux. Un coefficient d'absorption non-linéaire α_2 est introduit de la même façon que l'indice de réfraction non-linéaire a été introduit. Si α_0 désigne le coefficient d'absorption linéaire du matériau à faible intensité (exprimé couramment en cm^{-1}), le

coefficient d'absorption linéique global α dépend de l'intensité I de la manière suivante ¹ :

$$\alpha(I) = \alpha_0 + \alpha_2 I \quad (2.6)$$

α_2 est alors exprimé en cm/W , si l'intensité est exprimée en W/cm^2 .

En configuration de Z-scan “ouvert”, c’est à dire pour $S = 1$, la déformation du faisceau provoquée par le phénomène de réfraction n’est plus visible puisque c’est la puissance totale du faisceau transmis qui est mesurée. En revanche, l’absorption photo-induite engendre une perte de puissance dépendant de l’intensité incidente, et donc de la position de l’échantillon dans le faisceau focalisé incident. La figure 2.10 illustre le principe de mesure de l’absorption en configuration “ouverte”.

Dans le cas d’un faisceau gaussien et d’un échantillon fin devant la profondeur de champ du faisceau, l’allure de la courbe de transmission normalisée obtenue en configuration “ouverte” est représentée à la figure 2.11.

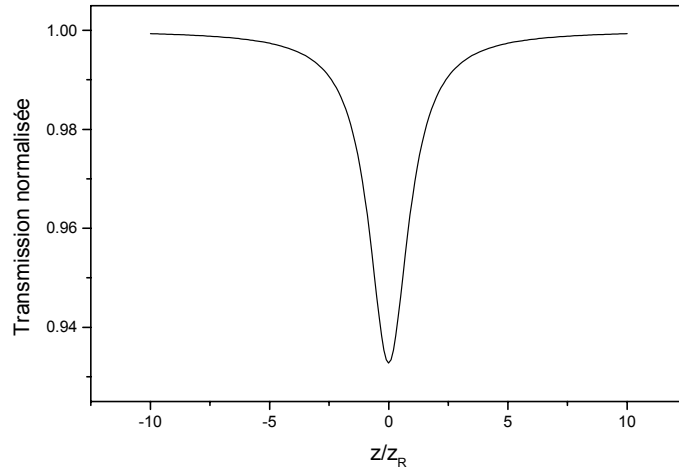


FIG. 2.11 – Allure de la courbe de transmission normalisée dans le cas $S = 1$ pour la mesure de l’absorption non-linéaire (cas d’un faisceau gaussien et d’un échantillon fin devant la longueur de Rayleigh z_R du faisceau qui sera définie plus loin)

Si la mesure en configuration “ouverte” est insensible au phénomène de réfraction non-linéaire, il est important de noter que l’absorption non-linéaire intervient, quant à

¹Ceci n’est vrai que dans le cas d’un mécanisme d’absorption à deux photons, car c’est un mécanisme du troisième ordre.

elle, lors de la mesure pour $S \ll 1$ et déforme les courbes de Z-scan. En effet, pour s'en convaincre, il suffit de se souvenir, par exemple, que lorsque l'échantillon est placé exactement au point de focalisation ($z = 0$), la transmission normalisée retrouve son niveau initial obtenu loin du point de focalisation ($T = 1$). Or, si l'échantillon présente de l'absorption non-linéaire, une partie de la puissance du faisceau est absorbée à cette position, et la puissance transmise P_T est inférieure à la puissance initiale P_0 loin du point de focalisation. Ainsi, la transmission normalisée est inférieure à 1 en $z = 0$.

Afin de déterminer sans ambiguïté l'indice de réfraction non-linéaire et le coefficient d'absorption non-linéaire, il convient d'abord de réaliser une acquisition pour $S = 1$ qui permet de déduire la valeur du coefficient d'absorption non-linéaire seul. Cette valeur doit être ensuite utilisée dans les modèles pour déduire l'indice de réfraction non-linéaire à partir des mesures faites pour $S \ll 1$.

2.5 Modélisations existantes

2.5.1 Modélisation : cas d'échantillons fins

Dans le cas d'échantillons fins, c'est à dire d'épaisseur faible devant la longueur de Rayleigh du faisceau incident, on peut trouver une solution analytique simple décrivant l'évolution de la transmission normalisée en configuration de Z-scan [34]. Dans le cas de faibles variations d'indice induites par effet non-linéaire, on peut considérer que le faisceau incident induit une variation d'indice dans le matériau égale à $\Delta n(r, z) = \gamma I(r, z)$. Si l'épaisseur de l'échantillon est, par ailleurs, faible devant la longueur de Rayleigh du faisceau incident, on peut considérer que la répartition de champ électrique sur la face d'entrée de l'échantillon est à peu près la même que sur la face de sortie, ceci dans le cas linéaire. Dans le cas non-linéaire, on considère que le champ électrique incident a simplement été déphasé de $\Delta\phi$, déphasage provoqué par la variation d'indice non-linéaire. Ce déphasage est une fonction d'espace $\Delta\phi(r, z)$ proportionnelle à la répartition d'intensité dans l'échantillon. Dans le cas d'un faisceau gaussien, il prend la forme suivante² :

$$\Delta\phi(r, z) = \frac{\Delta\phi_0}{1 + z^2/z_R^2} \exp\left(-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right) \quad (2.7)$$

avec $\Delta\phi_0 = k\Delta n_0 L_{eff}$, $w(z)$ le rayon à $1/e^2$ du faisceau et z_R la distance de Rayleigh

²Le lecteur est renvoyé au chapitre 3 pour quelques rappels sur les faisceaux gaussiens.

du faisceau. Le déphasage est donc bien maximum sur l'axe optique du faisceau, et $\Delta\phi_0$ est la valeur maximale de ce déphasage, obtenue au foyer ($z=0$).

Δn_0 représente la variation d'indice sur l'axe optique en $z = 0$, à savoir γI_0 où I_0 est l'intensité sur l'axe optique au point de focalisation (i.e. en $(r, z) = (0, 0)$). $L_{eff} = (1 - e^{-\alpha L})/\alpha$ représente l'épaisseur effective de l'échantillon compte tenu de l'absorption linéaire de l'échantillon α , L étant l'épaisseur réelle de l'échantillon.

En tenant compte de l'absorption linéaire, le champ électrique sur la face de sortie de l'échantillon est alors finalement égal au champ électrique incident multiplié par le terme $\exp(-\alpha L/2) \exp(i\Delta\phi(r, z))$. Utilisant une méthode de décomposition en faisceaux gaussiens de ce terme, on montre finalement que, pour de faibles déphasages non-linéaires (i.e. $|\Delta\phi_0| \ll 1$) et pour une observation en champ lointain, la transmission normalisée s'exprime de la manière suivante³ :

$$T(\zeta, \Delta\phi_0) = 1 + \frac{4\Delta\phi_0\zeta}{(\zeta^2 + 9)(\zeta^2 + 1)} \quad (2.8)$$

où $\zeta = z/z_R$.

Dans le cas d'un faisceau gaussien, d'un échantillon fin, de faibles non-linéarités et d'une observation en champ lointain avec une ouverture de diaphragme faible devant le diamètre du faisceau sur l'ouverture, la différence ΔT entre transmission normalisée maximale et minimale est proportionnelle au déphasage non-linéaire et donc à l'indice de réfraction non-linéaire. ΔT vaut alors :

$$\Delta T \approx 0,406 \times \Delta\phi_0 = 0,406 \times k\Delta n_0 L_{eff} \quad (2.9)$$

Dans ce cas de figure, la sensibilité de la méthode est définie comme le rapport entre ΔT et le déphasage non-linéaire introduit dans l'échantillon. Cette sensibilité est ici fixe, égale à 0,406. Par ailleurs, la distance Δz entre les extrema de la courbe est proportionnelle à la longueur de Rayleigh du faisceau [34] :

$$\Delta z = 1,717 \times z_R \quad (2.10)$$

³Notons que nous ne nous intéressons ici qu'au cas d'une absorption non-linéaire nulle. Les modèles analytiques permettant de décrire la présence d'absorption non-linéaire [34, 74] ne seront pas décrits dans ce document.

Dans ces conditions, l'allure des courbes de transmission normalisée est bien déterminée et dépend de peu de paramètres. Pour un faisceau gaussien différent et un déphasage non-linéaire différent, la courbe de transmission normalisée standard, décrite par la relation 2.8, est simplement "dilatée" en ordonnée et en abscisse.

La relation 2.9 nous informe que pour une variation non-linéaire du chemin optique de seulement $\lambda/100$, la variation de transmission normalisée théorique associée sera de 2,5%. Cette méthode est donc particulièrement sensible. Pourtant, dans notre cadre d'étude et avec la configuration expérimentale qui sera adoptée, nous verrons que cette sensibilité ne suffit pas à la mesure d'indice de réfraction non-linéaire aussi faible que celui de la silice en régime nanoseconde.

2.5.2 Modélisation : cas d'échantillons épais

Le cas d'une épaisseur d'échantillon faible devant la longueur de Rayleigh du faisceau est beaucoup trop limitatif dans notre cadre d'étude. Pour augmenter la sensibilité de la méthode de Z-scan, il est possible de travailler dans une configuration où l'épaisseur de l'échantillon et la longueur de Rayleigh sont du même ordre de grandeur. Le modèle présenté précédemment n'est alors plus valable. La modélisation se complique fortement puisque maintenant, le faisceau évolue notablement dans l'échantillon et provoque une variation d'indice dépendant non seulement de la position transversale, mais aussi de la position longitudinale dans l'échantillon. Hermann et McDuff [74] ont développé un modèle adapté à ce cas de figure menant à une expression analytique simple, toujours dans le cas de faisceaux gaussiens et de faibles déphasages non-linéaires.

Le principe de base du modèle développé par Hermann et McDuff a été de chercher des solutions analytiques à l'équation de propagation scalaire paraxiale non-linéaire, mieux connue sous le nom d'équation de Schrödinger non-linéaire à conditions initiales en z . Par applications successives de transformations de Laplace, il est possible de déterminer une solution de cette équation de propagation à l'aide d'une superposition linéaire de modes de Laguerre-Gauss dans le cas où l'absorption linéaire est négligeable. Dans le cas d'un faisceau gaussien et d'un faible déphasage non-linéaire, la répartition de champ électrique sur la face de sortie a été calculée analytiquement. Enfin, utilisant le principe de Huygens-Fresnel, il est possible de calculer la répartition de champ électrique sur le plan du diaphragme. La configuration adoptée et les notations associées au calcul de Hermann

et McDuff sont décrits à la figure 2.12.

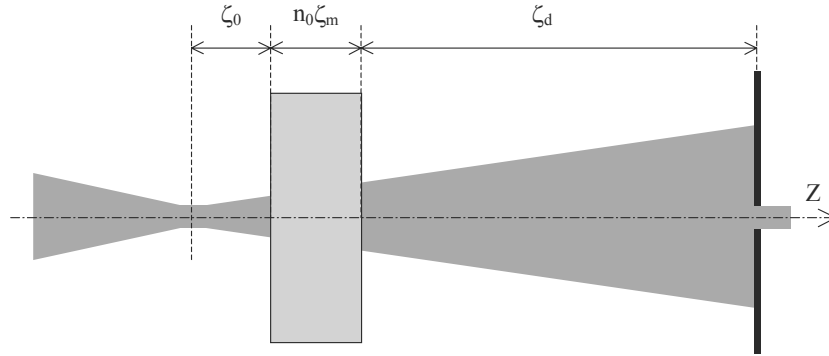


FIG. 2.12 – Configuration et notations dans le cas du modèle d'Hermann et McDuff

Dans le cas d'une observation en champ lointain ($\zeta_d \gg 1$) et d'une réfraction non-linéaire pure (pas d'absorption non-linéaire), la transmission normalisée prend la forme suivante :

$$T(z, \beta) = 1 - \frac{1}{8} \beta \ln \left(\frac{9 + v_b^2}{1 + v_b^2} \times \frac{1 + v_a^2}{9 + v_a^2} \right) \quad (2.11)$$

avec $v_a = \zeta_0$ et $v_b = \zeta_0 - \zeta_m$.

ζ_0 et ζ_m sont des paramètres de distance normalisée par rapport à la longueur de Rayleigh du faisceau incident respectivement dans le vide et dans le milieu. Si z est la position de la face d'entrée de l'échantillon par rapport au plan de focalisation, on a :

$$\zeta_0 = -\frac{z}{z_R} \quad \text{et} \quad \zeta_m = \frac{L}{n_0 z_R}$$

où n_0 est l'indice linéaire du milieu et L l'épaisseur de l'échantillon.

Par ailleurs, le paramètre β représente ici un déphasage non-linéaire effectif maximum dans le milieu et s'exprime de la manière suivante :

$$\beta = 2k\gamma I_0 n_0 z_R \quad (2.12)$$

Dans le cas d'échantillons épais, d'épaisseur supérieure à la longueur de Rayleigh du faisceau incident, il est en effet plus commode de définir un déphasage non-linéaire proportionnel à la longueur de Rayleigh et non plus proportionnel à L . Dans ce cas de figure,

c'est bien sur une distance égale à deux fois la longueur de Rayleigh que les interactions non-linéaires vont être significatives. Ce déphasage est qualifié de "maximal" car si l'épaisseur L de l'échantillon est inférieure à $2z_R$, le déphasage non-linéaire effectif dans l'échantillon sera inférieur à cette valeur.

La figure 2.13 représente l'évolution des courbes de transmission normalisée en fonction du paramètre $\zeta_m = \frac{L}{n_0 z_R}$. Lorsque le paramètre ζ_m est petit devant 1, les courbes convergent vers le modèle obtenu précédemment dans le cas d'échantillons fins. Pour un déphasage non-linéaire β constant, la sensibilité de la méthode de Z-scan croît rapidement avec l'épaisseur de l'échantillon pour atteindre une valeur limite, lorsque $L \gg z_R$. En effet, dans ce cas, la distance d'interaction non-linéaire est limitée uniquement par la longueur de Rayleigh. D'autre part, l'évolution de la distance normalisée $\Delta z/z_r$ entre les extrema de transmission normalisée est représentée à la figure 2.14. Pour un échantillon d'épaisseur très inférieure à z_R , l'écartement normalisé entre les deux extrema tend vers la valeur 1,717 obtenue dans le cas d'échantillons fins, puis augmente avec ζ_m et tend finalement vers $\zeta_m = \frac{L}{n_0 z_R}$.

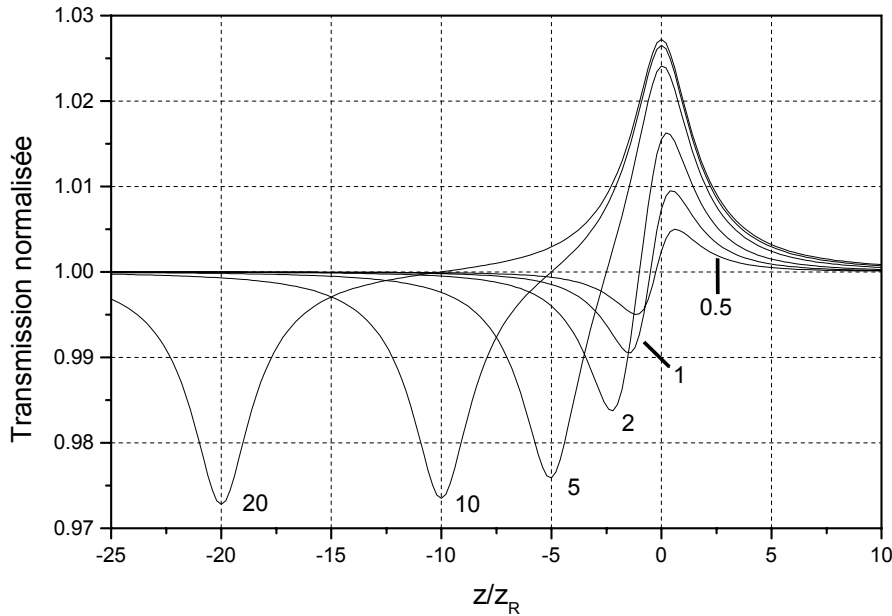


FIG. 2.13 – Allure des courbes de transmission normalisée dans le cas d'échantillons épais ($\beta = 0, 1$ et $\zeta_m = \frac{1}{2}, 1, 2, 5, 10$ et 20)

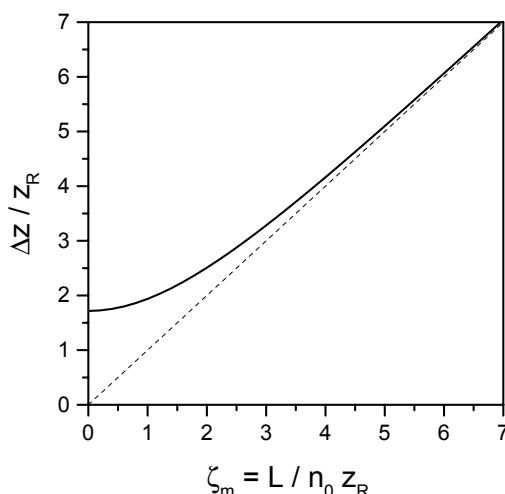


FIG. 2.14 – Evolution de la distance entre les extrema de transmission normalisée en fonction du rapport ζ_m

En dérivant l'expression 2.11 par rapport à ζ_0 , on peut exprimer la valeur de ΔT en fonction du paramètre ζ_m et du déphasage non-linéaire β . La figure 2.15 représente la “sensibilité”⁴ de Z-scan $\Delta T/\beta$ en fonction de ζ_m , dans le cas d'un échantillon épais. Le même rapport de sensibilité a également été représenté à l'aide de la relation 2.9 pour le cas d'échantillons fins, afin de montrer la limite de validité de ce modèle.

D'après le modèle de Hermann et McDuff, la sensibilité de la méthode de Z-scan tend vers $\frac{\ln 3}{2}$ quand $\zeta_m \gg 1$. Ainsi, dans le cas d'échantillon de l'ordre de grandeur de la longueur de Rayleigh du faisceau, la forme des courbes de transmission normalisée n'est plus aussi simple que dans le cas d'échantillons fins. Sensibilité et écartement entre les extrema sont liés au paramètre ζ_m qui caractérise le rapport de dimension entre l'épaisseur de l'échantillon et la profondeur de champ du faisceau. Par ailleurs, dans le cas limite d'un échantillon très supérieur à la longueur de Rayleigh, nous avons vu que la sensibilité

⁴Dans le cas d'échantillon fins, la notion de sensibilité est clairement définie comme le rapport ΔT sur le déphasage non-linéaire $\Delta\phi_0$ qui correspond à une variation d'indice constante obtenue sur une distance fixée par l'épaisseur de l'échantillon. Dans le cas d'un échantillon épais, il est important de remarquer que le déphasage effectif dans l'échantillon (et non β) dépend du rapport L/z_R . On parlera ici de “sensibilité” pour le rapport $\Delta T/\beta$, mais cette définition pourrait être affinée, par exemple en divisant plutôt ΔT par la traditionnelle intégrale B [75]. La courbe de “sensibilité” représentée ici permet tout de même de constater que pour des conditions expérimentales fixées (faisceau, échantillon), il est préférable de choisir une épaisseur d'échantillon de l'ordre de la longueur de Rayleigh du faisceau.

de la méthode sature. De plus, lorsqu'on travaille dans le cas d'échantillon épais, il est préférable de se placer dans le cas où la sensibilité est proche de son maximum, pour avoir un signal, d'une part plus élevé et d'autre part moins sensible au paramètre ζ_m .

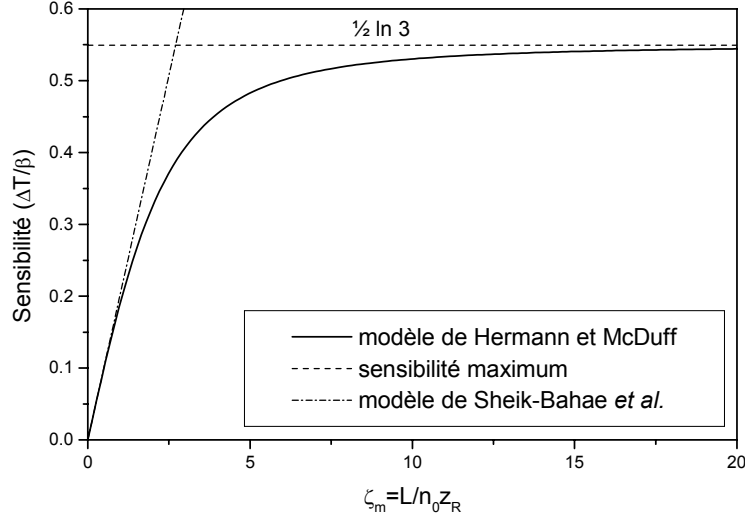


FIG. 2.15 – Sensibilité $\Delta T/\beta$ en fonction de ζ_m

2.5.3 Modélisation : cas des fortes non-linéarités

Les deux modèles présentés précédemment font une même hypothèse de faible valeur du déphasage non-linéaire. Pour savoir dans quelle mesure les modèles précédents sont valides, il est intéressant de connaître les conséquences d'un fort déphasage non-linéaire sur les courbes de transmission normalisée. Samad et Vieira ont élaboré une théorie valable pour des déphasages non-linéaires importants, mais ceci seulement dans le cas d'échantillons fins et d'un faisceau incident gaussien [76].

Reprenant l'expression de Sheik-Bahae du champ électrique sur la face de sortie de l'échantillon, ils ont utilisé, non plus une décomposition gaussienne du champ, mais le principe d'Huygens-Fresnel pour calculer le champ sur l'axe optique au niveau du diaphragme. La seule hypothèse introduite est une hypothèse de paraxialité du faisceau. Le calcul rigoureux de l'intégrale de Fresnel introduit dans ce cas la fonction gamma incomplète. Utilisant enfin une décomposition en série de cette fonction intégrale, il est possible de calculer numériquement la transmission normalisée en fonction de la cote normalisée z/z_R . Pour une distance de $1000 \times z_R$ entre point de focalisation et diaphragme et en

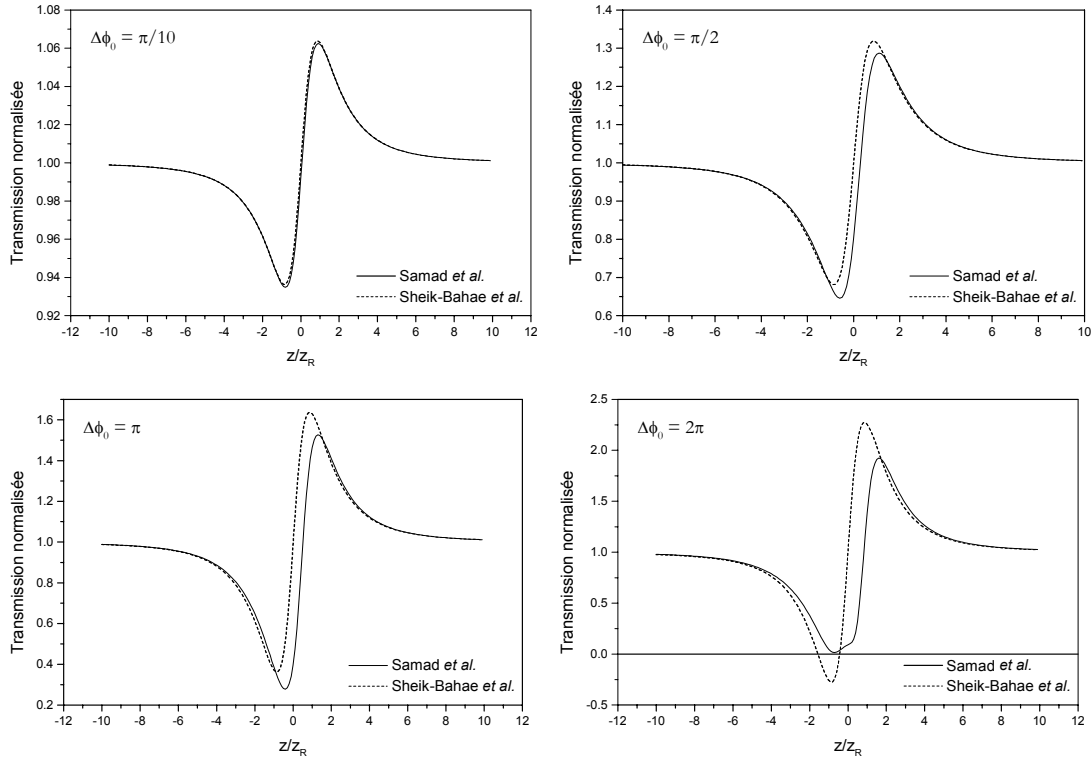


FIG. 2.16 – Transmission normalisée calculée à l'aide du modèle de Samad et Vieira pour des déphasages de $\pi/10$, $\pi/2$, π et 2π

utilisant 100 termes dans la décomposition en série de la fonction gamma, nous avons calculé et représenté à la figure 2.16 les courbes de transmission normalisée pour différentes valeurs du déphasage non-linéaire $\Delta\phi_0$.

D'après ces courbes, le modèle de Sheik-Bahae n'est plus acceptable, pour des valeurs de déphasage supérieures à $\pi/2$. L'erreur commise par le modèle de Sheik-Bahae sur la transmission normalisée des extrema, calculée comme $\frac{T[\text{Sheik-Bahae}] - T[\text{Samad}]}{\Delta T[\text{Samad}]}$, est de +5,6% sur le minimum et de +4,9% sur le maximum, pour un déphasage égal à $\pi/2$. Ceci induit finalement une erreur sur ΔT supérieure à 10%, et la perte de symétrie de la courbe de transmission normalisée devient évidente, ce qui pose problème pour faire concorder les simulations aux données expérimentales. Le modèle de Sheik-Bahae devient d'ailleurs faux de manière évidente puisqu'il prévoit des valeurs négatives de la transmission normalisée pour des déphasages non-linéaires plus grands. Pour des déphasages inférieurs à $\pi/10$, les deux modèles concordent clairement.

2.6 Etat de l'art de la méthode de Z-scan

2.6.1 Etudes de l'indice de réfraction non-linéaire

Expérimentalement, la méthode de Z-scan a largement été utilisée dans le cas de matériaux d'indice non-linéaire élevé, comme par exemple le CS_2 . Ce liquide possède un indice de réfraction non-linéaire particulièrement élevé, d'environ $3 \times 10^{-18} m^2/W$, et a été étudié par beaucoup d'autres techniques. Dans ce liquide, le comportement non-linéaire provient principalement du mécanisme de réorientation moléculaire, la molécule de CS_2 étant particulièrement polaire. Un grand nombre des études menées utilisent ce liquide, soit pour vérifier la validité d'un nouveau modèle plus général ou adapté à un cas particulier [77], soit pour tester de nouvelles configurations de mesure originales (faisceaux particuliers [78, 79, 80], Z-scan à deux faisceaux et/ou résolu en temps [81, 82, 83, 84, 85]). On recense également des études dans d'autres liquides composés de molécules aromatiques, comme le toluène, dont le comportement non-linéaire rappelle celui du CS_2 .

D'une manière générale, le milieu liquide est souvent utilisé, soit pour l'étude de molécules organiques complexes qui montrent des comportements non-linéaires importants [86, 87, 88], soit pour l'étude du comportement non-linéaire de nanoparticules ou d'agrégats en solution [89, 90, 91, 92]. Ainsi, la méthode de Z-scan a trouvé des applications en chimie, pour suivre l'évolution de réactions chimiques [93, 94, 95] par exemple, ou encore en pétrochimie, pour la mise en évidence de l'aggrégation d'asphalte dans des solutions de toluène [96].

En ce qui concerne les solides, de nombreuses études ont été menées dans le $ZnSe$, mais également dans d'autres semiconducteurs comme $AsGa$, $CdTe$ ou $ZnTe$ [34, 81, 97, 83, 98, 99, 100, 101, 102]. La forte non-linéarité de ce type de matériau (de l'ordre de $10^{-17} m^2/W$) est principalement due à leurs propriétés électroniques particulières. Par ailleurs, l'absorption non-linéaire de ces matériaux est remarquablement élevée et provient principalement d'un mécanisme d'absorption à deux photons [21], mécanisme au cours duquel les atomes ou molécules sont excités par l'absorption simultanée de deux photons. Ce mécanisme est un mécanisme non-linéaire du troisième ordre d'origine électronique et suit par conséquent la loi 2.6 indiquée au paragraphe 2.4.4. Ce type de mécanisme électronique est très rapide, donc indépendant du régime temporel utilisé (largeur des impulsions). Dans les verres optiques, et pour la plupart des matériaux diélectriques

courants et non dopés, ce type de phénomène a beaucoup plus de chances d'avoir lieu pour des longueurs d'onde courtes, c'est à dire au-dessous de 500 nm pour atteindre les bandes d'absorption situées dans l'ultraviolet. Dans le cas de semiconducteurs comme le ZnSe il existe, en plus des processus électroniques rapides, d'autres mécanismes qui induisent une absorption non-linéaire. La description de l'absorption non-linéaire est alors complexe et fait intervenir notamment la génération de porteurs libres, ainsi que leur recombinaison. Ces mécanismes sont plus lents que les processus électroniques présents dans les matériaux diélectriques, et leur temps de réponse de l'ordre de la nanoseconde. Ce type d'absorption dépend donc fortement du régime temporel utilisé et peut mener, sous certaines conditions, à des comportements non-linéaires d'ordre supérieur à celui décrit par la relation 2.6. Dans ce type de matériau assez particulier, l'indice de réfraction et l'absorption non-linéaires sont donc très dépendants des conditions expérimentales (gamme d'intensité, durée d'impulsion, longueur d'onde), ce qui rend leur étude plus délicate. L'étude des différentes contributions électroniques dans les semiconducteurs a fait l'objet de plusieurs études parmi celles qui ont été citées précédemment.

Quelques études ont également concerné des matériaux très particuliers comme des matériaux photoréfractifs [103, 100, 104, 105, 106] ou plus généralement des matériaux montrant de très fortes non-linéarités comme le chalcogénure As_2S_3 dont l'indice de réfraction non-linéaire a été estimé de l'ordre de $10^{-8}\text{ m}^2/\text{W}$ à 633 nm [107]. Il est à remarquer que cette mesure est réalisée en régime continu, proche du bad gap du matériau, ce qui implique une très forte absorption. La valeur importante trouvée traduit donc essentiellement un effet thermique.

L'étude de verres dopés présente également beaucoup d'intérêt dans la mesure où ils sont très utilisés en physique des lasers ou en optique guidée. D'autre part, leur comportement non-linéaire peut être contrôlé par la concentration de dopants. Ainsi, plusieurs études ont été menées dans ce sens [108, 109, 110, 111, 112, 113, 114, 115, 116, 117, 118], montrant par exemple que le comportement non-linéaire de verres ou de couches minces dopés par des nanoparticules métalliques où des nanocristaux peut atteindre de très grandes valeurs et dépend de la concentration et de la forme des nanoparticules.

Toutefois, ce genre d'étude doit être menée avec la plus grande prudence. En effet, certains travaux ont montré que l'irradiation laser peut modifier la taille et la répartition spatiale de nano-agrégats métalliques implantés dans du verre [119, 120]. Ces modifications produisent des variations d'indice et d'absorption linéaire irréversibles qui, en configuration de Z-scan, produisent des courbes de transmission normalisée similaires à

celles obtenues habituellement, mais indépendantes de l'intensité du faisceau incident.

En outre, un autre phénomène est connu pour modifier l'absorption des verres non exclusivement constitués de silice, c'est la solarisation [41]. La solarisation désigne l'induction durable d'absorption dans un matériau par illumination. Ce type de phénomène a été observé lors de l'illumination de verres dans l'ultraviolet à l'aide de lasers de forte puissance. Les verres ainsi illuminés se “colorent” et cette coloration se conserve après illumination. Cette modification du matériau peut être réversible en le soumettant à un traitement thermique. Ce genre de comportement a également été observé dans le visible, à 532 nm dans des verres borosilicates tels que le BK7. Ce type de solarisation provient alors d'un mécanisme d'absorption à deux photons qui permet alors, par absorption simultanée de deux photons visibles, d'atteindre les bandes d'absorption situées dans l'ultraviolet. Il faut être avisé d'un tel comportement lorsque l'on veut mener une étude de Z-scan dans des verres dopés et que l'on constate de l'absorption à deux photons.

2.6.2 Etudes de l'absorption non-linéaire

Pour la réalisation de systèmes limiteurs optiques à absorption ou pour la recherche d'absorbants saturables, la méthode de Z-scan est également employée pour étudier surtout l'absorption non-linéaire. Dans le cas d'un mécanisme d'absorption à deux photons, l'évolution de l'absorption non-linéaire peut être décrite par une loi affine en intensité. Dans les matériaux dits “absorbants saturables”, l'absorption peut décroître lorsque l'intensité augmente. Leur coefficient d'absorption est couramment décrit à l'aide de deux paramètres : α_0 , le coefficient d'absorption à faible intensité et I_s , l'intensité de saturation. A l'aide d'un modèle à deux niveaux, on montre que le coefficient d'absorption s'exprime alors :

$$\alpha(I) = \frac{\alpha_0}{1 + I/I_s} \quad (2.13)$$

Ce type de comportement s'observe, par exemple dans des milieux organiques [121]. Un tel comportement induit un renversement des courbes de transmission normalisée obtenues habituellement. En effet, dans un absorbant saturable, l'absorption diminue lorsque l'échantillon se rapproche du point de focalisation, induisant une augmentation de la puissance transmise par l'échantillon.

L'utilisation d'un modèle à quatre niveaux peut être nécessaire pour expliquer d'autres

comportements complexes. Un tel modèle à quatre niveaux mène à la relation suivante :

$$\alpha(I) = \frac{\alpha_0 I_s + \beta_0 I}{I + I_s} \quad (2.14)$$

où un troisième paramètre β_0 a été introduit. Un tel modèle peut donc mener à une fonction $\alpha(I)$ monotone croissante ou décroissante suivant les valeurs relatives des paramètres α_0 et β_0 . Ainsi, il a été observé dans des couches minces sol-gel dopées avec un colorant, des comportements d'absorption saturable et d'absorption saturable inverse suivant la longueur d'onde utilisée, menant à des courbes de transmission normalisée d'allure, respectivement, renversée et classique [122].

Enfin, dans un colorant comme la rhodamine B, un modèle à cinq niveaux est nécessaire pour décrire le renversement progressif des courbes de transmission normalisée d'un type de comportement à son inverse lorsqu'on fait varier l'intensité maximale utilisée [123].

Lors des études de Z-scan, tous ces mécanismes d'absorption non-linéaire mènent donc à des comportements complexes de l'absorption non-linéaire et donc à des comportements variés des courbes de transmission normalisée. Il faut donc garder à l'esprit que le comportement de la transmission normalisée décrite au paragraphe 2.4.4 n'est valable, d'une manière générale, que dans le cas du mécanisme d'absorption à deux photons à des intensités relativement faibles.

2.7 Indice non-linéaire des verres

La mesure des effets non-linéaires suscite un grand intérêt et cela depuis la première observation d'un effet non linéaire en optique datée de 1961 lorsque Franken réalisa la génération de second harmonique dans le quartz. L'étude de l'indice de réfraction non-linéaire des verres optiques est en particulier un domaine très actif étant donné que ces matériaux composent la majeure partie des systèmes optiques. Il a été initié, notamment, par l'éventualité d'y faire propager des ondes solitaires et par la recherche des processus conduisant à l'endommagement laser.

Boling, Glass et Owyong [33] ont établi une relation empirique pour prévoir la contribution électronique à l'indice de réfraction non-linéaire dans les solides. Cette relation donne une valeur moyenne de l'indice non-linéaire en régime picoseconde et sub-

picoseconde, ne tenant pas compte de la dispersion et est de la forme :

$$\gamma = \frac{K(n_d - 1)(n_d^2 + 2)^2}{n_d \nu_d \sqrt{1,517 + \frac{(n_d^2 + 2)(n_d + 1)}{6n_d}} \nu_d} \quad (2.15)$$

Où n_d est l'indice linéaire du milieu et ν_d le nombre d'Abbe à la longueur d'onde 587,6 nm, caractéristiques linéaires. La constante K est un facteur empirique qui est sensiblement constant pour un même groupe de matériau et est égale à $2.8 \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$ [124, 33]. Adair et al. [125, 53] ont vérifié avec succès cette relation dans le cas de cristaux ainsi que dans quelques verres, travail confirmé par celui de Milam et al. [54, 124]. La figure 2.17 extraite de ces références donne l'indice non-linéaire de quelques matériaux dans le plan (n_d, ν_d) obtenu en régime picoseconde. On notera que les mécanismes purement électroniques conduisent à une valeur relativement faible de l'indice de réfraction non-linéaire, variant de 1 à $20 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$.

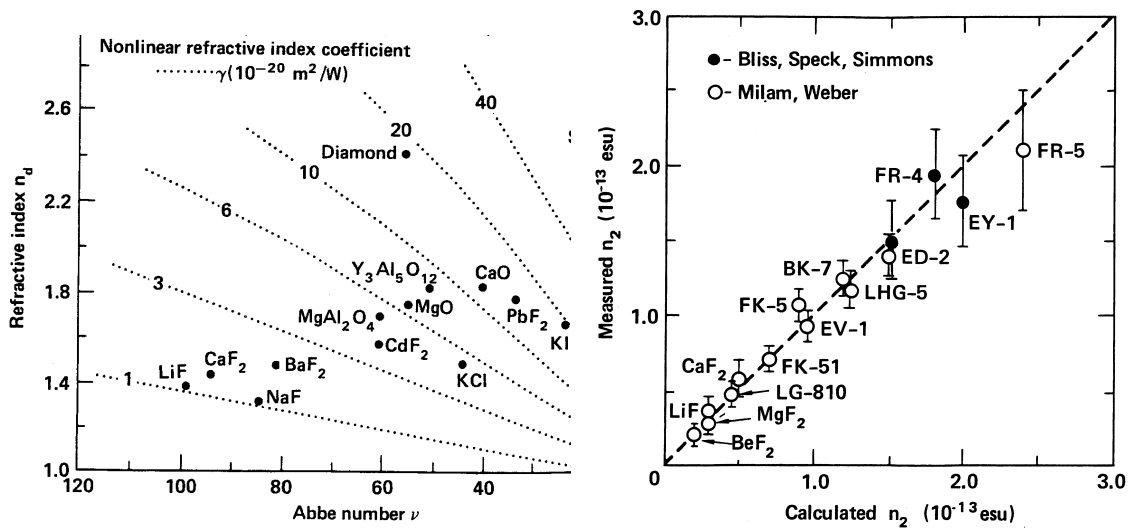


FIG. 2.17 – Indice de réfraction non-linéaire prévu par l'équation empirique de Boling, Glass et Owyong représenté dans le plan (ν_d, n_d) et confrontation à des mesures interférométriques réalisées avec des impulsions d'une centaines de picosecondes (source : réf. [124]).

Nous avons représenté sur la figure 2.17, l'indice non-linéaire prévu par Boling, Glass et Owyong dans le diagramme d'Abbe fourni par Schott pour ses verres silicates dont la composition chimique est explicités dans le tableau 2.1. Les verres de type crown, peu dispersifs et d'indice linéaire faible ont un indice non-linéaire d'origine électronique faible,

de 1 à $5 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ alors que les verres de type flint, plus dispersifs et d'indice linéaire plus élevé, contenant une grande quantité d'oxyde de plomb ont un indice de réfraction non-linéaire d'origine électronique plus élevé, de 5 à $20 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$.

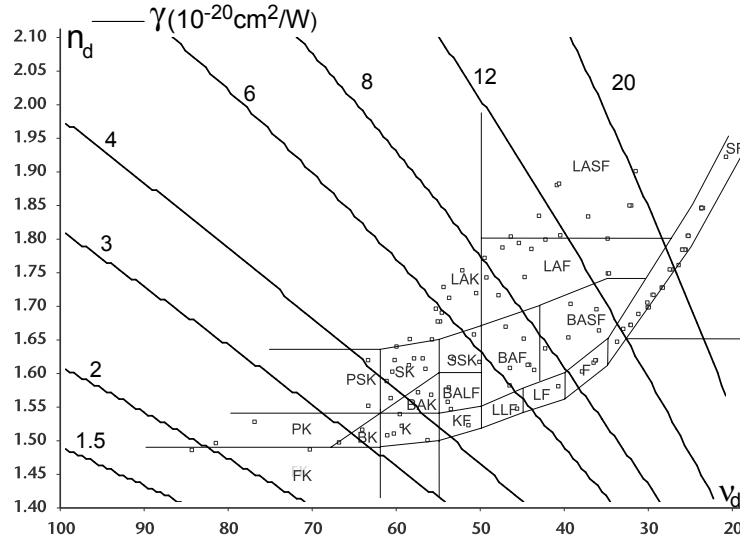


FIG. 2.18 – Diagramme d'Abbe fourni pour les verres SCHOTT (<http://www.schott.com/>) sur lequel nous avons superposé quelques iso- γ de l'indice de réfraction non-linéaire estimé à l'aide de l'équation empirique de Boling, Glass et Owyong.

Type	Nom	Composition
FK	crown fluor	verre phosphate ou borosilicate à haute teneur en fluor
BK	boro-crown	verre borosilicate
LaK	crown lanthane	verre silico-borate aux oxydes de terres rares
LLF	flint extra-light	verre silicate alcalin avec 20 à 27% de PbO
F	flint	verre silicate alcalin avec 39 à 47% de PbO
LaSF	flint lanthane dense	verre borate ou silicate alcalin aux oxydes de terres rares
SF	flint dense	verre silicate alcalin avec plus de 47% de PbO

TAB. 2.1 – Nomenclature et description des verres Schott présentés (source : réf. [41])

Une étude systématique récente [126], concernant 14 verres silicates du type flint a montré un assez bon accord avec l'équation empirique de Boling, Glass et Owyong, particulièrement dans le cas des verres à haute teneur en oxyde de plomb. L'étude concernait

donc des verres d'indice de réfraction non-linéaire de 10 à $40 \times 10^{-20} m^2/W$. Ces mesures ont été réalisées à l'aide d'une méthode d'interférométrie résolue en temps en régime femtoseconde.

La seule étude systématique recensée utilisant la méthode de Z-scan pour caractériser des verres optiques a été réalisée en 1995 par Kang et al. [127]. Cette étude a concerné des verres spéciaux particulièrement non-linéaires (verres sulfures ou dopés avec des oxydes de métaux lourds). Suivant la longueur d'onde utilisée, l'indice de réfraction non-linéaire des matériaux ainsi testés peut s'étendre de 40 à $13000 \times 10^{-20} m^2/W$. C'est également le régime femtoseconde qui a été utilisé dans le cadre de cette étude, afin d'observer uniquement les effets non-linéaires d'origine purement électronique. En outre, les échantillons étudiés dans ce travail présentent un fort indice non-linéaire et la différence de transmission normalisée des courbes présentées indique un fort déphasage non-linéaire. Or, le modèle utilisé pour simuler les courbes de transmission normalisée est celui de Sheik-Bahae, valable dans le cas d'échantillons fins et surtout, d'un déphasage non-linéaire faible (nous verrons plus tard l'effet de mauvaises approximations sur la détermination de l'indice non-linéaire).

La dispersion de l'indice non linéaire électronique peut être estimée en connaissant l'absorption à deux photons à partir des relations de Kramers-Kronig. Pour un milieu décrit par un système à deux niveaux séparés par la différence d'énergie E_g M. Sheik-Bahae et al. [26] ont montré que l'absorption non-linéaire pouvait s'écrire :

$$\alpha_2(\omega)(m/W) = \frac{B}{n_0^2 E_g^3} \bar{F}_2 \left(\frac{\hbar\omega}{E_g} \right) \quad (2.16)$$

avec $\bar{F}_2(x) = 2(2x - 1)^{3/2}/x^5$, E_g l'écart en énergie entre les deux niveaux en Joule, et B une constante dépendant du matériau. Cela conduit à la relation de dispersion de l'indice non-linéaire suivante :

$$\gamma(\omega) = \frac{K'}{2n_0^2 E_g^4} \bar{G}_2 \left(\frac{\hbar\omega}{E_g} \right) \quad (2.17)$$

Où $\bar{G}_2(x) = \frac{-2+6x-3x^2-x^3-\frac{3}{4}x^5+2(1-2x)^{3/2}\Theta(1-2x)}{64x^6}$ avec Θ la fonction de Heaviside et K' une autre constante dépendant du matériau. La fonction $\bar{G}_2$ est tracé sur la figure 2.19.

Ce model développé dans le cadre de l'étude des semiconducteurs conduit à une courbe de dispersion qui semble plus générale et en bon accord avec les mesures picosecondes pour beaucoup de milieu transparents tant que l'on reste loin de la bande d'absorption.

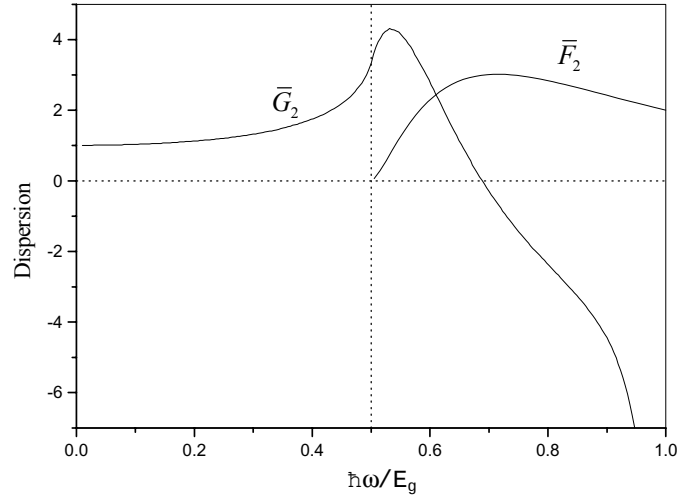


FIG. 2.19 – Fonction $\bar{G}_2$ intervenant dans la relation de dispersion de l'indice non-linéaire.

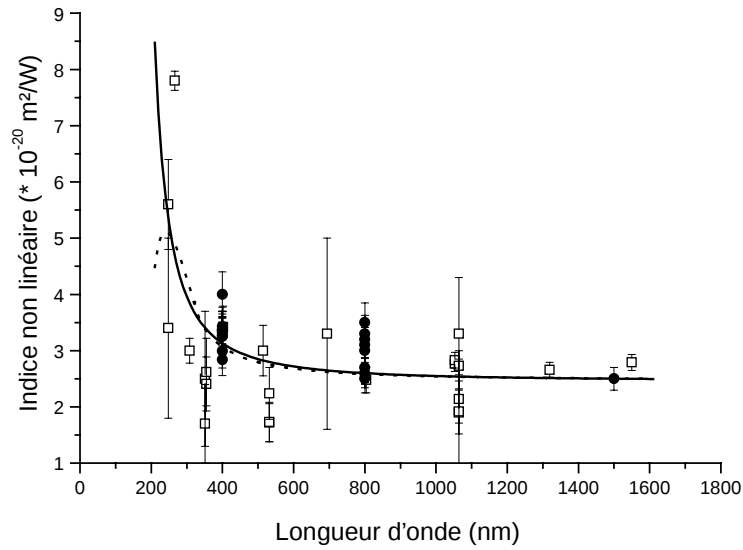


FIG. 2.20 – Différentes mesures de l'indice non-linéaire de la silice en régime femtoseconde en fonction de la longueur d'onde ainsi que les ajustements par l'équation 2.18 (trait plein) et Kramers-Kronig (pointillés) - source : [72].

En 1992 Adair et al. [128] ont montré par une étude perturbative une relation de

dispersion de l'indice non-linéaire des cristaux optiques qui prend la forme suivante :

$$\gamma(x) = \gamma(0) \frac{n(0)}{n(x)} \left[\frac{n(x)^2 + 2}{n(0)^2 + 2} \right]^4 \frac{1}{1 - x^2} \left[\frac{1 - x^2}{1 - 4x^2} + \frac{1}{2K} \times \left(\frac{1 - x^2}{1 - 4x^2} - \frac{1 + x^2/3}{1 - x^2} \right) \right] \quad (2.18)$$

Où K est une constante dépendant du matériau proche de 0.5 pour les milieux à grand gap et x est en cm^{-1} . La figure 2.20 montre que ces deux modèles sont équivalents sur le domaine du visible dans le cas de la silice.

Toutes ces études concernent des régimes temporels picosecondes ou femtoseconde où les contributions à l'indice non-linéaire sont essentiellement électroniques. La contribution des processus d'électrostriction et des effets thermiques à l'indice non-linéaire de verres est mal connue, mais est importante à quantifier pour décrire l'influence de la durée de l'impulsion laser sur l'effet d'autofocalisation dans les verres et éventuellement sur l'endommagement laser.

Chapitre 3

Modélisation du signal Z-scan en configuration arbitraire

3.1 Introduction

Les modélisations existantes du signal obtenu par la méthode de Z-scan supposent souvent que le faisceau d'analyse est de type gaussien. Or cette approximation n'est pas toujours réaliste expérimentalement. La qualité spatiale des faisceaux se caractérise traditionnellement par la donnée du facteur M^2 , unitaire quand le faisceau est gaussien TEM_{00} . Dans le cas des lasers impulsionnels de puissance commerciaux, les faisceaux délivrés sont multimodes, le facteur M^2 s'écarte très rapidement de un, des anneaux peuvent apparaître au cours de la propagation et le volume focal obtenu en focalisant un tel faisceau a une forme complexe. Afin de minimiser ces effets, et de s'approcher d'un faisceau gaussien TEM_{00} , un filtrage spatial intra-cavité et/ou extra-cavité est nécessaire. Cependant, la mise en place d'un filtrage spatial conventionnel n'est pas toujours aisée. En effet, en régime nanoseconde par exemple, la densité d'énergie sur le trou de filtrage conduit rapidement à sa dégradation s'il n'est pas réalisé sous vide. D'une part pour étudier la validité de l'hypothèse "faisceau gaussien" et d'autre part mesurer les répercussions du profil spatial du faisceau sur la courbe de Z-scan nous avons développé un modèle numérique général valable quelle que soit l'épaisseur de l'échantillon. Nous verrons par la suite que ce code nous permettra d'exploiter les courbes de Z-scan obtenues sur notre banc expérimental.

Ce chapitre débutera par la modélisation vectorielle d'un faisceau et le calcul des cartes de champ dans une lame d'indice sans effet non-linéaire. Nous verrons ainsi que le caractère vectoriel du champ peut être oublié pour de faibles focalisations comme c'est le

cas de la configuration Z-scan retenue expérimentalement. Le modèle scalaire ainsi développé s'attachera, dans un premier temps, à décrire le faisceau incident et ainsi calculer la carte du champ incident dans la zone balayée par l'échantillon non-linéaire, et cela pour différents types de faisceau. Ensuite nous verrons que la propagation de l'amplitude complexe du champ dans l'échantillon non-linéaire peut se faire par une méthode pas à pas. Ces deux codes nous permettront donc de simuler numériquement les courbes de transmission normalisée dans le cas d'un faisceau quelconque à symétrie circulaire, d'un échantillon d'épaisseur quelconque et même dans le cas de déphasages non-linéaires importants.

La fin de ce chapitre sera alors consacrée à la comparaison de notre modèle numérique avec ceux présentés au chapitre précédent. Nous verrons que l'utilisation d'un tel modèle numérique est nécessaire à une mesure absolue précise de l'indice de réfraction non-linéaire, étant donné la grande sensibilité de la méthode au faisceau utilisé expérimentalement.

3.2 Aspect vectoriel du problème

3.2.1 Introduction

Dans cette partie, nous allons étudier le champ électromagnétique diffracté par une lame diélectrique à faces parallèles que l'on déplace, en incidence normale, le long de l'axe optique d'un faisceau focalisé. Ce dernier sera supposé à symétrie cylindrique et de profil transverse quelconque. Le faisceau incident considéré frappe la lame en incidence normale. Pour rester en accord avec les équations de Maxwell et considérer ainsi les réflexions sur les faces avant et arrière de la lame, nous allons utiliser une décomposition du faisceau en ondes planes. Dans un premier temps nous verrons le cas d'une onde plane incidente dans le cas d'un milieu transparent linéaire, puis nous nous intéresserons au cas d'un faisceau à symétrie circulaire en incidence normale en utilisant la décomposition en ondes planes.

3.2.2 Cas d'une onde plane incidente et d'un milieu linéaire

On se place dans la configuration représentée à la figure 3.1. Dans le repère orthonormé (O, x, y, z) , nous considérons tout d'abord le cas d'une onde plane incidente dans le plan (yOz) de vecteur d'onde $\vec{k}_1$ faisant un angle θ avec l'axe z . La polarisation est supposée rectiligne mais quelconque. Le système étudié est constitué de deux dioptries plans

parallèles au plan (xOy) , distants de L et séparant trois milieux linéaires, homogènes, isotropes, de perméabilité magnétique μ_0 , indexés 1, 2 et 3. Les indices optiques complexes des milieux 1, 2, et 3 sont respectivement ν_1 , ν_2 et ν_3 . L'onde plane est incidente dans le milieu 1 (ν_1 reel).

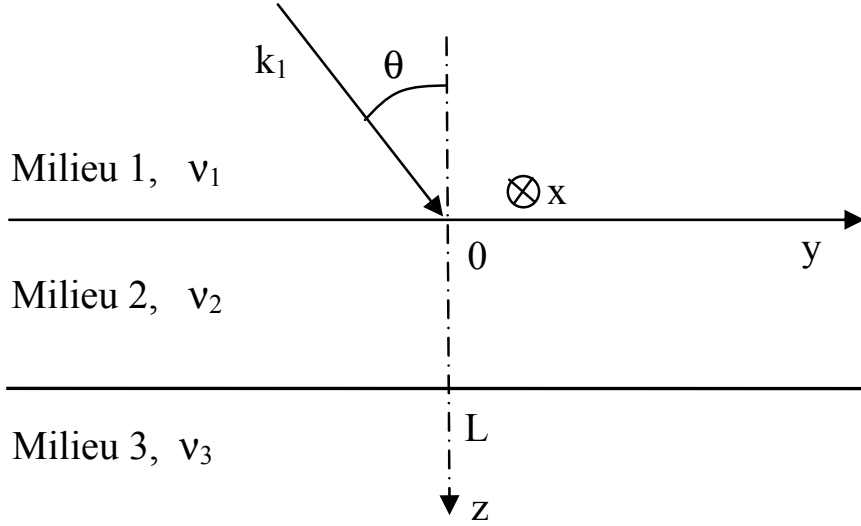


FIG. 3.1 – Onde plane de vecteur d'onde $\vec{k}_1$ incidente sur une lame à faces parallèles d'épaisseur L

Le vecteur d'onde incident a pour module $|\vec{k}_1| = k_1 = \frac{2\pi\nu_1}{\lambda}$, et on définit alors α et β_1 , tels que

$$\vec{k}_1 = \alpha \vec{e}_y + \beta_1 \vec{e}_z$$

avec $\alpha = k_1 \sin \theta$ et $\beta_1 = k_1 \cos \theta$.

Les équations de Maxwell conduisent à l'équation de Helmholtz classique en régime harmonique pour le champ électrique :

$$\Delta \vec{E} + k_j^2 \vec{E} = 0 \quad (3.1)$$

où l'on a introduit $k_j^2 = \omega^2 \mu_0 \epsilon_0 \epsilon_j$.

De façon analogue pour le champ magnétique on trouve :

$$\Delta \vec{H} + k_j^2 \vec{H} = 0 \quad (3.2)$$

On connaît une solution générale de l'équation de propagation 3.1, de type onde plane progressive qui s'écrit sous la forme :

$$\vec{E} = \vec{E}_0 \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}) \quad (3.3)$$

où $\vec{E}_0$ est un vecteur constant.

Notons qu'il suffit de résoudre le problème pour le champ électrique puisqu'on calcule aisément le champ magnétique associé à l'aide de la relation, obtenue en introduisant 3.3 dans 1.12 :

$$\vec{H} = \frac{\vec{u}_j \times \vec{E}}{\eta_j} \quad (3.4)$$

où $\eta_j = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_j}}$ est appelé l'impédance du milieu, et où $\vec{u}_j = \frac{\vec{k}_j}{|\vec{k}_j|}$

Inversement, on montre aisément que :

$$\vec{E} = -\eta_j (\vec{u}_j \times \vec{H}) \quad (3.5)$$

On définit le champ diffracté comme le champ total moins le champ incident dans le milieu incident et dans les autres milieux comme le champ total. Dans chaque milieu, le problème électromagnétique se pose donc ainsi : le champ électrique doit vérifier l'équation de Helmholtz et vérifier également les conditions aux limites sur les dioptries, ainsi que la condition d'onde sortante sur le champ diffracté (ce champ doit rester borné quand $z \rightarrow \pm\infty$ et s'éloigner de la lame). Dans ces conditions, on supposera que le problème électromagnétique admet une solution unique.

Ce problème de diffraction se résout en séparant polarisation TE et polarisation TM. On obtiendra la solution totale du problème en superposant les solutions du champ électrique obtenues dans le cas de la polarisation TE et dans le cas de la polarisation TM :

$$\vec{E} = \vec{E}_{TE} + \vec{E}_{TM}$$

On rappelle que dans le cas de la polarisation TE, le champ électrique incident (et par continuité le champ électrique total partout) est colinéaire à $\vec{e}_x$ et que dans le cas de la polarisation TM, c'est le champ magnétique qui est colinéaire à $\vec{e}_x$.

La solution de ces deux problèmes est bien connue et en tenant compte des conditions à l'infini du champ diffracté, la solution générale du problème électromagnétique dans le

cas de la polarisation TE est de la forme :

$$E_x(y, z) = E_{x,0} \exp(i\alpha y) \times \begin{cases} e^{i\beta_1 z} + R_{TE} e^{-i\beta_1 z} & \text{si } z < 0 \\ A_{TE}^+ e^{i\beta_2 z} + A_{TE}^- e^{-i\beta_2 z} & \text{si } 0 < z < L \\ T_{TE} e^{i\beta_3 z} & \text{si } z > L \end{cases} \quad (3.6)$$

$$\text{avec } \beta_j = \begin{cases} \sqrt{k_j^2 - \alpha^2} & \text{si } k_j^2 \geq \alpha^2 \\ i\sqrt{\alpha^2 - k_j^2} & \text{si } k_j^2 < \alpha^2 \end{cases}, \quad \text{pour } k_j \text{ réels}$$

où les constantes R_{TE} , A_{TE}^+ , A_{TE}^- et T_{TE} sont déterminées à partir des conditions aux limites sur les deux dioptries. Les conditions de continuité de E_x et H_y en $z = 0$ et en $z = L$ nous fournissent bien 4 équations. La solution est complètement déterminée.

Remarque : Il faut noter que si k_j et donc β_j sont complexes. La fonction racine complexe doit être définie en introduisant une coupure convenable dans le plan complexe. Dans ce cas on prendra la solution de telle sorte que $Re(\beta_j) + Im(\beta_j) > 0$.

On trouve également dans le cas de la polarisation TM :

$$H_x(y, z) = H_{x,0} \exp(i\alpha y) \times \begin{cases} e^{i\beta_1 z} + R_{TM} e^{-i\beta_1 z} & \text{si } z < 0 \\ A_{TM}^+ e^{i\beta_2 z} + A_{TM}^- e^{-i\beta_2 z} & \text{si } 0 < z < L \\ T_{TM} e^{i\beta_3 z} & \text{si } z > L \end{cases} \quad (3.7)$$

On peut dans ces conditions déterminer de façon unique les coefficients : R_{TM} , A_{TM}^+ , A_{TM}^- et T_{TM} . Ce sont en fait les mêmes expressions en remplaçant partout β_j par $\frac{\beta_j}{\nu_j^2}$ dans les expressions des coefficients TE.

Ainsi, on trouve le champ électrique total pour une polarisation quelconque dans les différents milieux :

Pour $z < 0$:

$$\vec{E} = \exp(i\alpha y) \times \begin{pmatrix} E_{TE,0}^{inc} [e^{i\beta_1 z} + R_{TE} e^{-i\beta_1 z}] \\ E_{TM,0}^{inc} \cos \theta [e^{i\beta_1 z} - R_{TM} e^{-i\beta_1 z}] \\ -E_{TM,0}^{inc} \sin \theta [e^{i\beta_1 z} + R_{TM} e^{-i\beta_1 z}] \end{pmatrix} \quad (3.8)$$

Pour $0 < z < L$:

$$\vec{E} = \exp(i\alpha y) \times \begin{cases} E_{TE,0}^{inc} [A_{TE}^+ e^{i\beta_2 z} + A_{TE}^- e^{-i\beta_2 z}] & \vec{e}_x \\ E_{TM,0}^{inc} \cos \theta \frac{\beta_2 \nu_1^2}{\beta_1 \nu_2^2} [A_{TM}^+ e^{i\beta_2 z} - A_{TM}^- e^{-i\beta_2 z}] & \vec{e}_y \\ -E_{TM,0}^{inc} \sin \theta \frac{\nu_1^2}{\nu_2^2} [A_{TM}^+ e^{i\beta_2 z} + A_{TM}^- e^{-i\beta_2 z}] & \vec{e}_z \end{cases} \quad (3.9)$$

Pour $z > L$:

$$\vec{E} = \exp(i\alpha y) \times \begin{cases} E_{TE,0}^{inc} T_{TE} e^{i\beta_3 z} & \vec{e}_x \\ E_{TM,0}^{inc} \cos \theta \frac{\beta_3 \nu_1^2}{\beta_1 \nu_3^2} T_{TM} e^{i\beta_3 z} & \vec{e}_y \\ -E_{TM,0}^{inc} \sin \theta \frac{\nu_1^2}{\nu_3^2} T_{TM} e^{i\beta_3 z} & \vec{e}_z \end{cases} \quad (3.10)$$

3.2.3 Cas d'un faisceau limité et d'un milieu linéaire

Nous cherchons ici la solution du problème linéaire dans le cas où le champ incident est un faisceau de profil transverse quelconque mais possédant une symétrie circulaire autour de l'axe optique. Nous allons également nous placer dans le cas où le faisceau est polarisé rectilignement selon l'axe x , comme c'est le cas expérimentalement. On entend par là que le champ incident ne possède pas de composante sur $\vec{e}_y$ (mais il comporte une composante sur $\vec{e}_z$ pour satisfaire $\text{div} \vec{\mathcal{D}}(\vec{r}, t) = 0$). Pour décrire ce faisceau, nous utilisons une superposition d'ondes planes qui prend la forme suivante :

$$\vec{E}^{inc}(\vec{r}) = \int_{\vec{k}} \vec{E}_0^{inc}(\vec{k}) e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} d\vec{k} \quad (3.11)$$

où $\vec{E}_0^{inc}(\vec{k}_1)$ représente alors le spectre d'onde plane du faisceau incident.

Considérons une onde plane incidente de ce faisceau. Dans le cas général le plan d'incidence associé est le plan $(Ox'z)$ obtenu par rotation d'un d'angle ψ du plan (Oxz) autour de l'axe z . Dans le repère (O, x, y, z) le vecteur d'onde de cette onde plane est égal à :

$$\vec{k}_1 = -\sin \psi \alpha \vec{e}_x + \cos \psi \alpha \vec{e}_y + \beta_1 \vec{e}_z$$

avec $\beta_1^2(\alpha) = k_1^2 - \alpha^2$ et $\text{Re}(\beta_1) + \text{Im}(\beta_1) > 0$

Dans ces conditions, avec les notations du paragraphe précédent, le champ électrique incident s'écrit :

$$\vec{E}^{inc} = \vec{E}_{TE}^{inc} + \vec{E}_{TM}^{inc} = E_{TE}^{inc} \vec{e}_x + E_{TM}^{inc} (\cos \theta \vec{e}_y - \sin \theta \vec{e}_z)$$

$$\vec{E}_0^{inc} = \begin{pmatrix} E_{TE,0}^{inc} \cos \psi - E_{TM,0}^{inc} \cos \theta \sin \psi \\ E_{TE,0}^{inc} \sin \psi + E_{TM,0}^{inc} \cos \theta \cos \psi \\ -E_{TM,0}^{inc} \sin \theta \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

L'hypothèse selon laquelle le faisceau est polarisé rectilignement selon (Ox) se traduit par :

$$E_{TE,0}^{inc} \sin \psi + E_{TM,0}^{inc} \cos \theta \cos \psi = 0$$

Cette condition est vérifiée en introduisant E_0^{inc} tel que :

$$\begin{cases} E_{TE,0}^{inc} = E_0^{inc} \cos \theta \cos \psi \\ E_{TM,0}^{inc} = -E_0^{inc} \sin \psi \end{cases}$$

La solution du problème se déduit des relations 3.8, 3.9 et 3.10 écrites dans le repère (O, x', y', z) , on obtient dans le repère (O, x, y, z) :

Pour $z < 0$:

$$\begin{aligned} \vec{E}(r, \varphi, z) &= E_0^{inc} e^{i\alpha r \sin(\varphi - \psi)} \\ &\times \begin{cases} \cos \theta [e^{i\beta_1 z} + (R_{TE} \cos^2 \psi - R_{TM} \sin^2 \psi) e^{-i\beta_1 z}] & \vec{e}_x \\ \frac{1}{2} \sin(2\psi) (R_{TE} + R_{TM}) e^{-i\beta_1 z} & \vec{e}_y \\ \sin \theta \sin \psi (e^{i\beta_1 z} + R_{TM} e^{-i\beta_1 z}) & \vec{e}_z \end{cases} \quad (3.13) \end{aligned}$$

Pour $0 < z < L$:

$$\begin{aligned} \vec{E}(r, \phi, z) &= E_0^{inc} e^{i\alpha r \sin(\varphi - \psi)} \\ &\times \begin{cases} \cos \theta \left(A_{TE}^+ \cos^2 \psi + \frac{\beta_2 \nu_1^2}{\beta_1 \nu_2^2} A_{TM}^+ \sin^2 \psi \right) e^{i\beta_2 z} + \\ \cos \theta \left(A_{TE}^- \cos^2 \psi - \frac{\beta_2 \nu_1^2}{\beta_1 \nu_2^2} A_{TM}^- \sin^2 \psi \right) e^{-i\beta_2 z} & \vec{e}_x \\ \frac{1}{2} \sin(2\psi) \left[\left(A_{TE}^+ - \frac{\beta_2 \nu_1^2}{\beta_1 \nu_2^2} A_{TM}^+ \right) e^{i\beta_2 z} + \left(A_{TE}^- + \frac{\beta_2 \nu_1^2}{\beta_1 \nu_2^2} A_{TM}^- \right) e^{-i\beta_2 z} \right] & \vec{e}_y \\ \sin \theta \sin \psi \frac{\nu_1^2}{\nu_2^2} (A_{TM}^+ e^{i\beta_2 z} + A_{TM}^- e^{-i\beta_2 z}) & \vec{e}_z \end{cases} \quad (3.14) \end{aligned}$$

Pour $z > L$:

$$\begin{aligned} \vec{E}(r, \varphi, z) &= E_0^{inc} e^{i\alpha r \sin(\varphi-\psi)} \\ &\times \begin{cases} \cos \theta \left(\cos^2 \psi T_{TE} + \sin^2 \psi \frac{\beta_3 \nu_1^2}{\beta_1 \nu_3^2} T_{TM} \right) e^{i\beta_3 z} & \vec{e}_x \\ \frac{1}{2} \sin(2\psi) \left(T_{TE} - \frac{\beta_3 \nu_1^2}{\beta_1 \nu_3^2} T_{TM} \right) e^{i\beta_3 z} & \vec{e}_y \\ \sin \theta \sin \psi \frac{\nu_1^2}{\nu_3^2} T_{TM} e^{i\beta_3 z} & \vec{e}_z \end{cases} \quad (3.15) \end{aligned}$$

Il est à noter que l'on a introduit le système de coordonnées cylindriques (r, φ, z) , plus adapté à traiter le cas de la symétrie circulaire du faisceau étudié. Dans ce système de coordonnées, notons que $\vec{r} = r \cos \varphi \vec{e}_x + r \sin \varphi \vec{e}_y + z \vec{e}_z$. De plus on peut remarquer que le champ diffracté possède une composante sur $\vec{e}_y$ dans les trois milieux, bien que le champ électrique incident n'en possède pas par hypothèse.

Par ailleurs, l'hypothèse de symétrie autour de (Oz) conduit à choisir un spectre d'onde plane E_0^{inc} indépendant de ψ . Ainsi, la relation 3.11 peut être développée sous la forme suivante :

$$E_x^{inc}(r, \varphi, z) = \frac{1}{k_1} \int_{\alpha=0}^{+\infty} \alpha \beta_1(\alpha) E_0^{inc}(\alpha) e^{i\beta_1(\alpha)z} \left(\int_{\psi=0}^{2\pi} e^{i\alpha r \sin(\varphi-\psi)} d\psi \right) d\alpha \quad (3.16)$$

$$E_z^{inc}(r, \varphi, z) = \frac{1}{k_1} \int_{\alpha=0}^{+\infty} \alpha^2 E_0^{inc}(\alpha) e^{i\beta_1(\alpha)z} \left(\int_{\psi=0}^{2\pi} \sin \psi e^{i\alpha r \sin(\varphi-\psi)} d\psi \right) d\alpha \quad (3.17)$$

Les intégrales sur ψ s'expriment à l'aide des fonctions de Bessel de la manière suivante :

$$E_x^{inc}(r, \varphi, z) = \frac{2\pi}{k_1} \int_{\alpha=0}^{+\infty} \alpha \beta_1(\alpha) E_0^{inc}(\alpha) e^{i\beta_1(\alpha)z} J_0(\alpha r) d\alpha \quad (3.18)$$

$$E_z^{inc}(r, \varphi, z) = -\frac{2i\pi}{k_1} \cos \varphi \int_{\alpha=0}^{+\infty} \alpha^2 E_0^{inc}(\alpha) e^{i\beta_1(\alpha)z} J_1(\alpha r) d\alpha \quad (3.19)$$

On peut alors exprimer le champ total dans les trois milieux en utilisant les expressions du champ 3.13, 3.14 et 3.15 et en intégrant sur ψ . On obtient ainsi (voir page suivante) les expressions du champ total pour un faisceau incident limité spatialement, polarisé rectilignement et symétrique autour de l'axe global de propagation (Oz) .

Pour $z < 0$:

$$E_x(r, \varphi, z) = \frac{\pi}{k_1} \int_{\alpha=0}^{+\infty} \alpha \beta_1(\alpha) E_0^{inc}(\alpha) \{ J_0(\alpha r) [2e^{i\beta_1 z} + (R_{TE} - R_{TM}) e^{-i\beta_1 z}] + J_2(\alpha r) \cos 2\varphi (R_{TE} + R_{TM}) e^{-i\beta_1 z} \} d\alpha \quad (3.20)$$

$$E_y(r, \varphi, z) = \frac{\pi}{k_1} \sin 2\varphi \int_{\alpha=0}^{+\infty} \alpha \beta_1(\alpha) E_0^{inc}(\alpha) (R_{TE} + R_{TM}) e^{-i\beta_1 z} J_2(\alpha r) d\alpha \quad (3.21)$$

$$E_z(r, \varphi, z) = -\frac{2i\pi}{k_1} \cos \varphi \int_{\alpha=0}^{+\infty} \alpha^2 E_0^{inc}(\alpha) (e^{i\beta_1 z} + R_{TM} e^{-i\beta_1 z}) J_1(\alpha r) d\alpha \quad (3.22)$$

Pour $0 < z < L$:

$$E_x(r, \varphi, z) = \frac{\pi}{k_1} \int_{\alpha=0}^{+\infty} \alpha E_0^{inc}(\alpha) \left\{ \left[\left(\beta_1 A_{TE}^+ + \beta_2 \frac{\nu_1^2}{\nu_2^2} A_{TM}^+ \right) e^{i\beta_2 z} + \left(\beta_1 A_{TE}^- + \beta_2 \frac{\nu_1^2}{\nu_2^2} A_{TM}^- \right) e^{-i\beta_2 z} \right] J_0(\alpha r) \right. \quad (3.23)$$

$$\left. + \cos 2\varphi \left[\left(\beta_1 A_{TE}^+ - \beta_2 \frac{\nu_1^2}{\nu_2^2} A_{TM}^+ \right) e^{i\beta_2 z} + \left(\beta_1 A_{TE}^- + \beta_2 \frac{\nu_1^2}{\nu_2^2} A_{TM}^- \right) e^{-i\beta_2 z} \right] J_2(\alpha r) \right\} d\alpha$$

$$E_y(r, \varphi, z) = \frac{\pi}{k_1} \sin 2\varphi \int_{\alpha=0}^{+\infty} \alpha E_0^{inc}(\alpha) \left[\left(\beta_1 A_{TE}^+ - \beta_2 \frac{\nu_1^2}{\nu_2^2} A_{TM}^+ \right) e^{i\beta_2 z} + \left(\beta_1 A_{TE}^- + \beta_2 \frac{\nu_1^2}{\nu_2^2} A_{TM}^- \right) e^{-i\beta_2 z} \right] J_2(\alpha r) d\alpha \quad (3.24)$$

$$E_z(r, \varphi, z) = -\frac{2i\pi}{k_1} \cos \varphi \frac{\nu_1^2}{\nu_2^2} \int_{\alpha=0}^{+\infty} \alpha^2 E_0^{inc}(\alpha) (A_{TM}^+ e^{i\beta_2 z} + A_{TM}^- e^{-i\beta_2 z}) J_1(\alpha r) d\alpha \quad (3.25)$$

Pour $z > L$:

$$E_x(r, \varphi, z) = \frac{\pi}{k_1} \int_{\alpha=0}^{+\infty} \alpha E_0^{inc}(\alpha) e^{i\beta_3 z} \left[\left(\beta_1 T_{TE} + \beta_3 \frac{\nu_1^2}{\nu_3^2} T_{TM} \right) J_0(\alpha r) + \cos 2\varphi \left(\beta_1 T_{TE} - \beta_3 \frac{\nu_1^2}{\nu_3^2} T_{TM} \right) J_2(\alpha r) \right] d\alpha \quad (3.26)$$

$$E_y(r, \varphi, z) = \frac{\pi}{k_1} \sin 2\varphi \int_{\alpha=0}^{+\infty} \alpha E_0^{inc}(\alpha) e^{i\beta_3 z} \left(\beta_1 T_{TE} - \beta_3 \frac{\nu_1^2}{\nu_3^2} T_{TM} \right) J_2(\alpha r) d\alpha \quad (3.27)$$

$$E_z(r, \varphi, z) = -\frac{2i\pi}{k_1} \cos \varphi \frac{\nu_1^2}{\nu_3^2} \int_{\alpha=0}^{+\infty} \alpha^2 E_0^{inc}(\alpha) e^{i\beta_3 z} T_{TM} J_1(\alpha r) d\alpha \quad (3.28)$$

3.2.4 Choix du spectre d'onde plane et cartes de champ

Raccordement au modèle paraxial des faisceaux gaussiens

Le modèle le plus couramment utilisé pour décrire la propagation des faisceaux lasers est le modèle paraxial qui donne lieu à des solutions appelées faisceaux gaussiens [75]. Il est intéressant par souci de vérification et de comparaison d'introduire l'hypothèse de paraxialité dans notre description afin de la raccorder, dans ce cas limite, avec la description en faisceau gaussien. Ceci nous permettra également d'avoir une idée du spectre d'ondes planes à choisir dans le cas d'un faisceau gaussien incident.

Dans l'hypothèse de paraxialité, la direction de propagation du faisceau est majoritairement selon l'axe (Oz). Par voie de conséquence, sa répartition d'amplitude dans le plan transverse à cette direction varie lentement en fonction de z , du moins comparée à la variation du terme de propagation $\exp(ikz)$ dont la période spatiale est égale à une longueur d'onde. Il convient alors de factoriser le terme de propagation $\exp(ikz)$ et d'exprimer le champ électrique sous la forme :

$$E(x, y, z) = U(x, y, z)e^{ikz}$$

où $U(x, y, z)$ est une fonction lentement variable de z par rapport au terme oscillant en $\exp(ikz)$ et appelée *enveloppe du faisceau*.

Une fois cette expression introduite dans l'équation de Helmholtz scalaire, l'hypothèse de variation lente est traduite mathématiquement par l'abandon de la dérivée seconde en z , négligeable devant les autres termes : on parle de *l'approximation de l'enveloppe lentement variable*. On obtient alors l'équation de propagation suivante appelée *équation paraxiale* :

$$\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} + 2ik \frac{\partial u}{\partial z} = 0 \quad (3.29)$$

Cette équation admet des solutions du type :

$$U(r, z) = \frac{1}{\tilde{q}(z)} \exp \left(-ik \frac{r^2}{2\tilde{q}(z)} \right) \quad (3.30)$$

où r est la coordonnée transverse ($r^2 = x^2 + y^2$) et $\tilde{q}(z)$ est une fonction complexe de z de dérivée égale à 1, soit de la forme : $\tilde{q}(z) = \tilde{q}_0 + z$.

Revenons maintenant à la description du champ incident établie au paragraphe 3.2.3 (équations 3.18 et 3.19). Nous choisissons de nous intéresser uniquement à la composante sur x du champ, la composante longitudinale devenant négligeable dans le cas d'une

approximation paraxiale. De plus, introduisons la variable réduite : $\eta = \alpha/k_1$. L'intégrale 3.18 devient :

$$E_x^{inc}(r, z) = 2\pi k_1 \int_{\eta=0}^{+\infty} \eta \beta_1(k_1 \eta) E_0^{inc}(k_1 \eta) e^{i\beta_1(k_1 \eta)z} J_0(k_1 \eta r) d\eta \quad (3.31)$$

L'hypothèse de paraxialité se traduit par une décroissance très rapide de la fonction $E_0^{inc}(\eta)$. Ainsi, le terme à l'intérieur de l'intégrale n'aura des valeurs significatives que pour η appartenant à un intervalle $[0, \epsilon]$ où $\epsilon \ll 1$. On peut alors réécrire la constante de propagation β_1 comme un développement limité au second ordre en η :

$$\beta_1(k_1 \eta) = k_1 \sqrt{1 - \eta^2} = k_1 \left(1 - \frac{\eta^2}{2} \right) + o(\eta^2)$$

Ainsi, l'intégrale 3.31 devient :

$$E_x^{inc}(r, z) \approx 2\pi k_1^2 e^{ik_1 z} \int_{\eta=0}^{+\infty} \eta E_0^{inc}(k_1 \eta) e^{-\frac{i}{2} k_1 \eta^2 z} J_0(k_1 \eta r) d\eta \quad (3.32)$$

On remarque que le terme $\exp(ik_1 z)$ apparaît en facteur et que l'intégrale s'identifie à la transformée de Hankel d'ordre 0 de la fonction $E_0^{inc}(k_1 \eta) \exp(-\frac{i}{2} k_1 \eta^2 z)$. Il semble donc que le spectre à choisir pour rejoindre la description en faisceau gaussien est de type gaussien lui aussi. On choisit donc :

$$E_0^{inc}(\alpha) = e^{-a\alpha^2} \quad (\text{avec } a \text{ réel positif})$$

En posant de plus : $\mu = k_1 (ak_1 + i\frac{z}{2})$, l'intégrale devient :

$$E_x^{inc}(r, z) \approx 2\pi k_1^2 e^{ik_1 z} \int_{\eta=0}^{+\infty} \eta e^{-\mu \eta^2} J_0(k_1 \eta r) d\eta \quad (3.33)$$

Le résultat de cette intégrale est connu et vaut :

$$\int_{\eta=0}^{+\infty} \eta e^{-\mu \eta^2} J_0(k_1 \eta r) d\eta = \frac{1}{2\mu} e^{-\frac{k_1^2 r^2}{4\mu}} \quad (3.34)$$

Si l'on rapproche cette expression de celle exprimant la forme des solutions de l'équation paraxiale 3.30, on remarque que ces deux descriptions sont identiques si l'on choisit :

$$\tilde{q}_0 = 2iak_1$$

Par ailleurs, lors de la description en faisceaux gaussiens, on introduit deux autres grandeurs très utiles expérimentalement : le *waist* w_0 et la longueur de Rayleigh z_R . Le *waist* représente le rayon minimum du faisceau à $1/e^2$, tandis que la longueur de Rayleigh

représente la distance qu'il faut parcourir depuis le *waist* le long de l'axe optique pour que le faisceau voie son intensité divisée par deux. On montre, dans le cas du mode gaussien fondamental TEM_{00} , que l'on a :

$$\tilde{q}_0 = iz_R = \frac{i}{2}k_1w_0^2$$

Ainsi, on peut exprimer le spectre d'ondes planes à utiliser dans notre décomposition pour décrire un faisceau de type gaussien TEM_{00} de waist w_0 . Ce spectre est alors de la forme :

$$E_0^{inc}(\alpha) = e^{-\frac{w_0^2\alpha^2}{4}} \quad (3.35)$$

Notons que la largeur en α de ce spectre est alors caractérisée par la grandeur $2/w_0$ qui représente l'étendue en fréquence spatiale du faisceau. Pour un faisceau gaussien de *waist* relativement faible, typiquement de l'ordre de $20\mu m$, et une longueur d'onde de $1\mu m$, on a :

$$\Delta\alpha = 2/w_0 \approx \frac{k_1}{60}$$

Ceci permet de constater que l'approximation paraxiale $\Delta\alpha \ll k_1$ est réaliste et assez couramment vérifiée.

Cartes de champ

Nous avons calculé numériquement (code développé en FORTRAN), point par point, la dépendance spatiale du champ incident et celle du champ diffracté par la lame grâce aux équations obtenues au paragraphe 3.2.3. Le spectre d'onde plane est choisi de façon à décrire correctement le profil au *waist* des faisceaux expérimentaux que nous utilisons. La composante transverse E_x du champ incident dans le cas d'un spectre d'ondes planes gaussien faiblement ouvert ainsi que l'intensité totale du faisceau sont tracées dans le plan (r,z) sur la figure 3.2. La composante transverse E_x du champ et l'intensité du faisceau obtenu présente bien la forme du mode TEM_{00} avec un volume focal bien défini et régulier en accord avec le raccordement au modèle paraxial.

Pour un faisceau monochromatique de longueur d'onde $\lambda = 1\mu m$ et de waist égal à $10\mu m$, la composante longitudinale du champ reste très faible devant la composante transverse E_x comme le montre la figure 3.3. Elle n'apporte qu'une très faible correction à l'intensité et elle est maximale dans le plan focal à la limite de la zone focale ($\tilde{10}\mu m$), où l'intensité est faible. Dans la zone où l'intensité du faisceau est significative, la composante longitudinale E_z ne dépasse pas 1% de la composante transverse E_x . Cependant, on

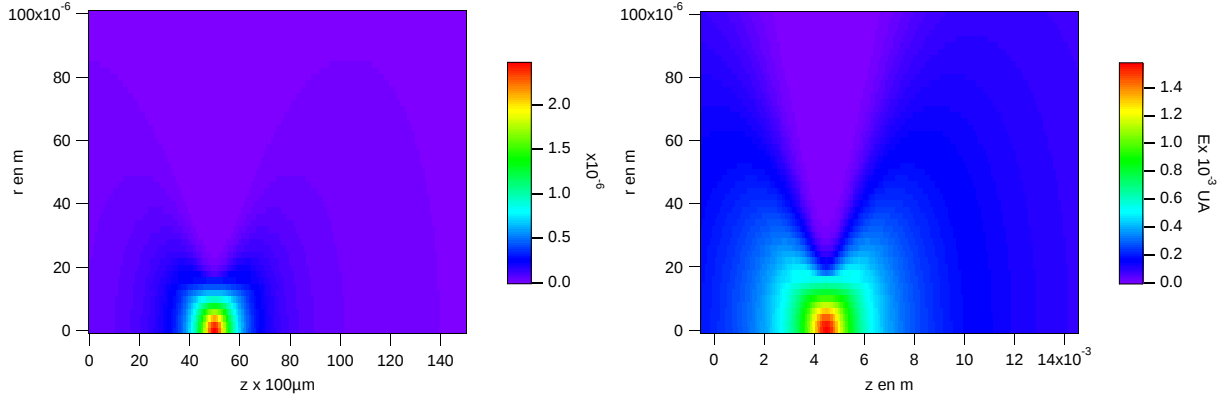


FIG. 3.2 – Carte en intensité du faisceau gaussien incident calculée à partir de la somme d'ondes planes vectorielle à droite et composante transverse du champ -suivant (Ox)- à gauche.

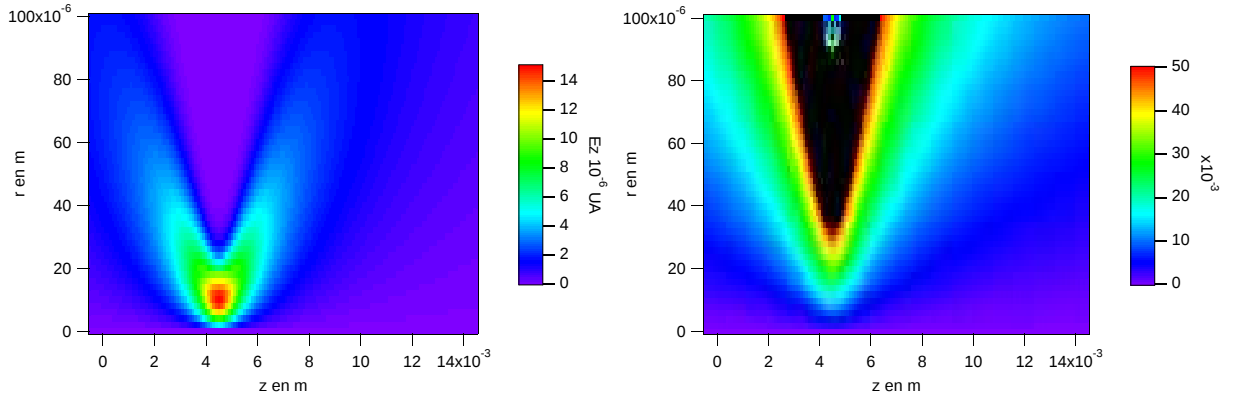


FIG. 3.3 – Gauche : composante longitudinale -suivant (Oz)- dans le cas d'un faisceau faiblement focalisé. Droite : rapport $\frac{E_z}{E_x}$ des composantes du champ incident.

voit apparaître des problèmes de convergence numérique, notamment dans le plan focal pour de grandes distances à l'axe, c'est-à-dire lorsque le champ calculé est très faible. L'évaluation directe des intégrales apparaissant dans les équations 3.18 et 3.19 nécessite un grand nombre de points d'intégration et pose donc le problème du temps de calcul.

Le champ diffracté par la lame à face parallèle est donné par les équations 3.20 à 3.28

et peut se mettre sous la forme :

$$E_x(r, \varphi, z) = \text{Int}J_0(r, z) + \cos(2\varphi) * \text{Int}J_2(r, z)$$

$$E_y(r, \varphi, z) = \sin(2\varphi) * \text{Int}J_2(r, z)$$

$$E_z(r, \varphi, z) = \cos(\varphi) * \text{Int}J_1(r, z)$$

où $\text{Int}J_0$, $\text{Int}J_1$ et $\text{Int}J_2$ sont les intégrales définies faisant intervenir respectivement les fonctions de Bessel J_0 , J_1 et J_2 et dépendant des indices des trois milieux, de l'épaisseur de la lame et du spectre d'ondes planes considéré.

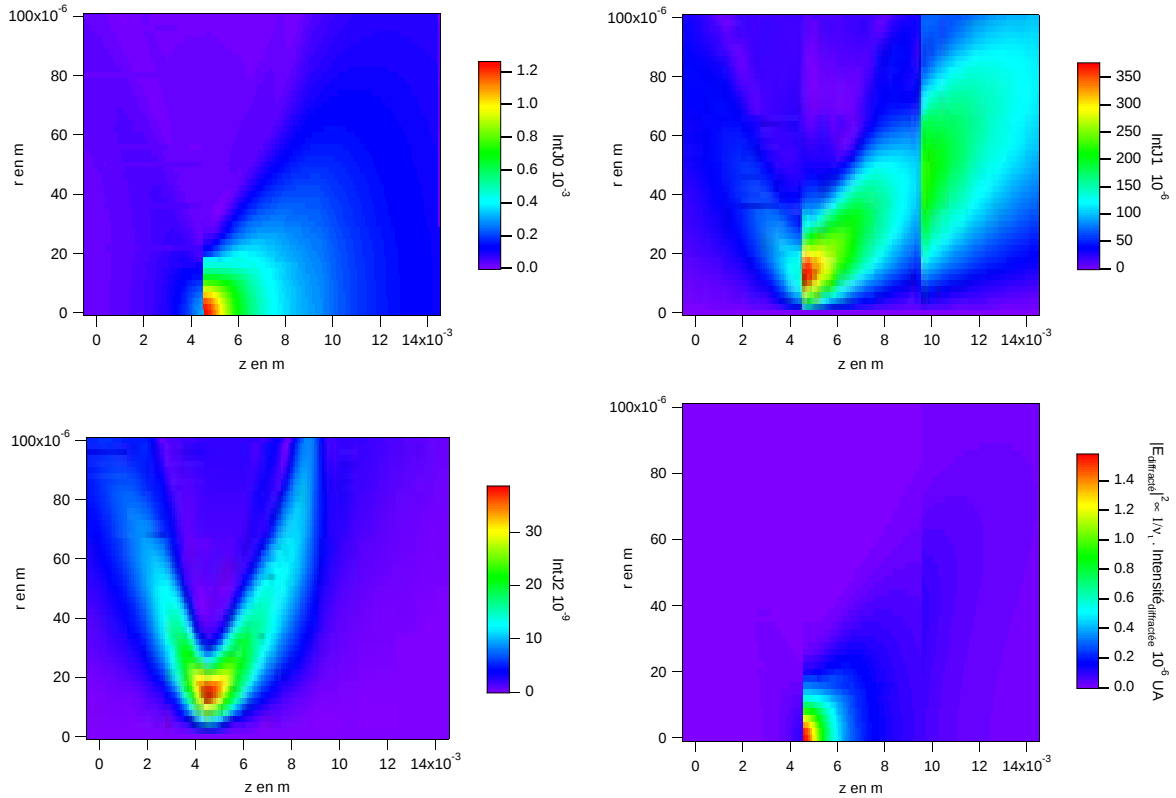


FIG. 3.4 – Termes intégraux $\text{Int}J_0$, $\text{Int}J_1$ et $\text{Int}J_2$ ainsi que $|E_{\text{diffracte}}|^2 \propto \frac{I_{\text{diffracte}}}{\nu_i}$ calculés dans le plan (Ox, z) pour une lame d'indice de réfraction 1.5 de 5 mm d'épaisseur placée dans l'air et dont la face avant est au waist du faisceau incident.

Dans le cas des faisceaux faiblement focalisés mis en œuvre dans notre configuration expérimentale, les composantes suivant Oy et Oz , font intervenir uniquement les termes $\text{Int}J_1$ et $\text{Int}J_2$ et restent faibles devant la composante Ox (figure 3.4). Le caractère vectoriel du problème posé n'est pas prédominant, seule la composante transverse E_x est significative. L'intensité diffractée dans le premier milieu est de quelques pourcents.

Dans le cas de la figure 3.4 correspondant au cas d'une lame de verre dans l'air placée en incidence normale l'intensité réfléchie vaut 4% de l'intensité incidente, et celle transmise par le premier dioptré vaut 96% : on retrouve les valeurs bien connues pour une onde plane en incidence normale sur un dioptré air-verre.

Les cartes de champ présentées ici possèdent une résolution spatiale relativement faible (150×50 points) bien qu'elles aient nécessitées un temps de calcul relativement long. De plus, comme nous l'avons vu, il subsiste quelques problèmes de convergence quand les intégrales à estimer sont faibles, ce qui rend cette méthode de calcul inadaptée à nos besoins.

Cartes de champ utilisant la transformée de Hankel

Les intégrales précédemment introduites sont en réalité des transformées de Hankel d'ordre 0, 1 et 2. Nous rappelons que la transformation de Hankel d'ordre n est définie comme suit :

$$FHT\{f(r)\} = \hat{f}_n(\alpha) = \int_0^\infty r f(r) J_n(\alpha r) dr$$

L'algorithme de "FFTLog" originalement décrit par Talman [129] et adapté par Hamilton [130] est une méthode numérique rapide pour calculer la transformation de Hankel. Nous l'avons adapté et programmé à notre tour en FORTRAN pour traiter des fonctions codées en complexe double précision afin d'augmenter la précision des calculs. Cette méthode suppose l'utilisation d'un échantillonnage logarithmique pour la coordonnée transverse r ainsi que pour sa variable conjuguée α du type :

$$r_i = \sqrt{r_N r_1} \left(\frac{r_N}{r_1} \right)^{\frac{i}{N} - \frac{1}{2}} \quad \alpha_i = \frac{C_{\alpha r}}{\sqrt{r_N r_1}} \left(\frac{r_N}{r_1} \right)^{\frac{i}{N} - \frac{1}{2}} \quad (3.36)$$

où r_1 est le premier point de l'échantillonnage en r , r_N le dernier et $C_{\alpha r}$ le produit $r_{N/2} \times \alpha_{N/2}$. Même si cette méthode nécessite un grand nombre de points pour échantillonner correctement les oscillations rapides du champ pour les grandes valeurs de r , et par conséquent nécessite de sur-échantillonner pour les faibles valeurs de r , elle permet de résoudre avec une très grande précision la répartition spatiale du faisceau autour de l'axe optique, c'est-à-dire la zone où les effets non-linéaires, ici l'autofocalisation, sont significatifs et où ils engendrent des modifications du champ. Nous verrons dans les parties suivantes que cet algorithme nous servira également à générer un faisceau incident arbitraire (non gaussien) décrivant parfaitement le faisceau expérimental et à étudier la propagation en milieu non-linéaire.

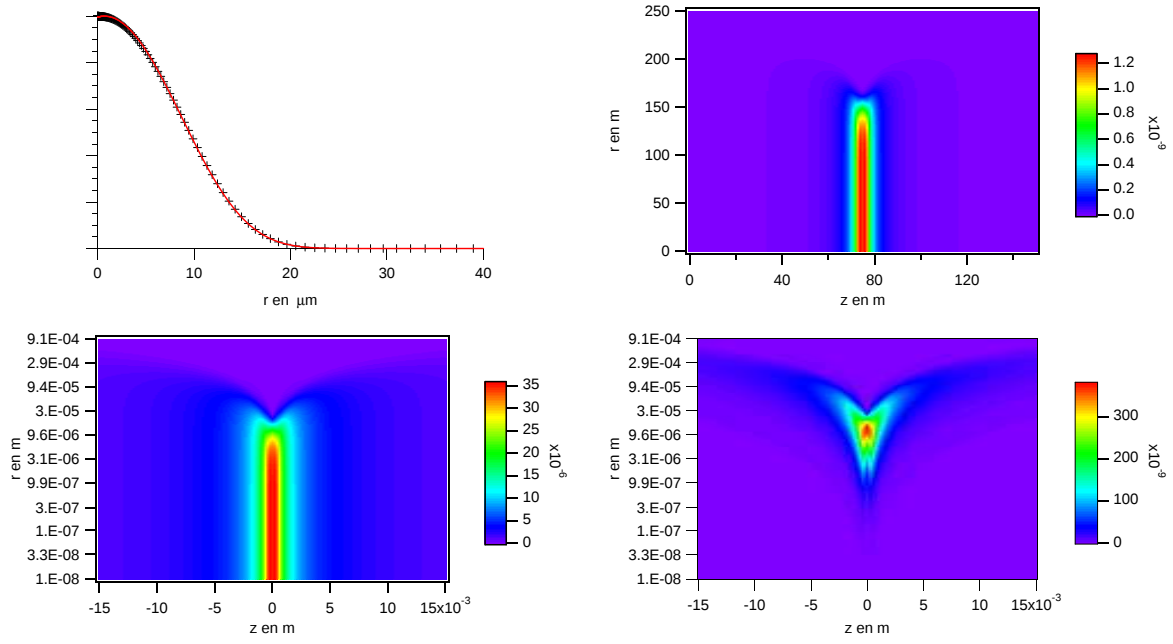


FIG. 3.5 – En haut : à gauche, profil spatial en intensité au waist d’un faisceau incident faiblement focalisé (proche de la configuration expérimentale), à droite intensité du faisceau incident dans le plan (Ox, z) . En bas : cartes de champs des composantes E_x et E_z dans le plan (Ox, z)

En reprenant l’équation 3.18, et pour les faisceaux faiblement focalisés ($\beta_1(\alpha) \approx k_1$), il apparaît clairement que le spectre d’onde plane E_0^{inc} s’identifie à la transformée de Hankel d’ordre 0 du profil du faisceau au waist. Afin de simuler un faisceau le plus proche possible des conditions expérimentales, nous pouvons donc pragmatiquement procéder de la façon suivante du choix du spectre d’onde plane : enregistrer le profil spatial du faisceau expérimental au waist, calculer un ajustement par une fonction, par exemple

$$f(r) = f_0 e^{C_1 \times r + C_2 \times r^2 + C_3 \times r^3 + C_4 \times r^4}$$

et enfin calculer la transformée de Hankel d’ordre 0 de cette fonction pour les points de l’échantillonnage choisi. La constante f_0 sert à normaliser la fonction f et le choix de cet ajustement peut être compris en remarquant qu’un faisceau gaussien est tel que $C_1 = C_3 = C_4 = 0$. La fonction d’ajustement retenue ici permet d’avoir une expression analytique, plus régulière qu’une simple interpolation et permet donc de minimiser le problème des oscillations de Gibbs lors du calcul de la transformée de Hankel via l’algorithme “fftlog”.

Dans la simulations présentées sur les figures 3.5 et 3.6, la fonction d’ajustement

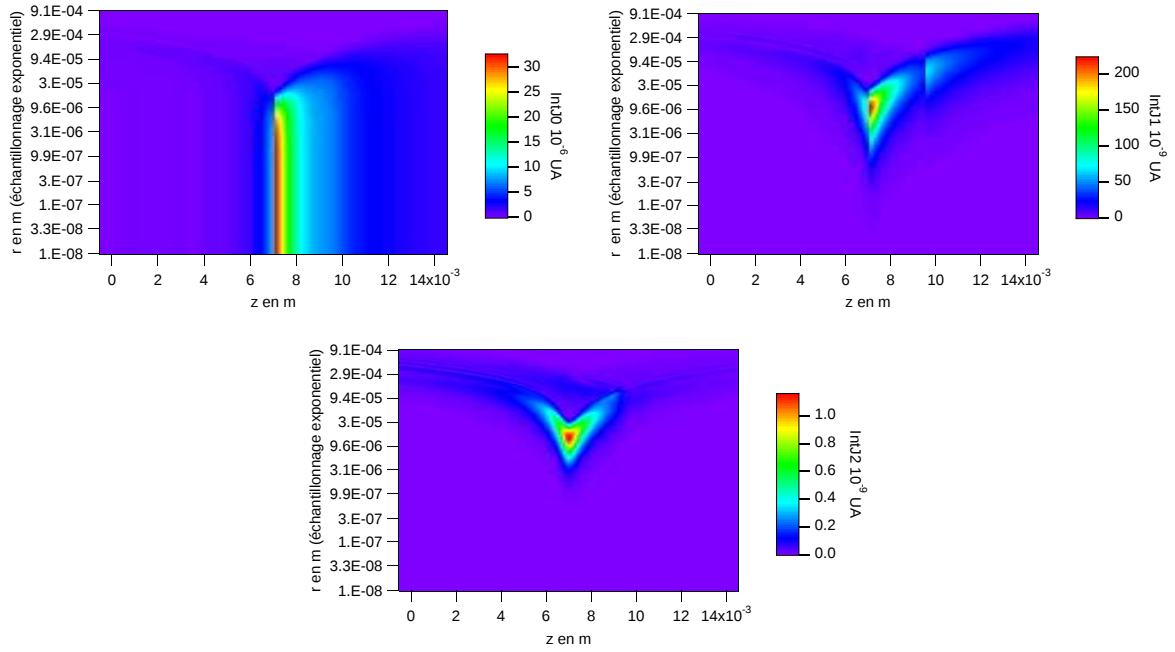


FIG. 3.6 – *Intégrales $IntJ_0$, $IntJ_1$ et $IntJ_2$ calculées grâce à la transformée de Hankel rapide pour une lame d'indice de réfraction 1.5 de 5mm d'épaisseur placée dans l'air et dont la face avant est au waist du faisceau incident.*

était $f(r) = f_0 e^{6.415 \times 10^{13} r - 8.69 \times 10^9 r^2 + 1.236 \times 10^4 r^3 - 3.96 \times 10^{-3} r^4}$, et se superposait parfaitement bien (courbe en trait plein) au profil reconstitué (croix). Les résultats obtenus par cette méthode de calcul sont comparables à ceux obtenus par l'estimation directe des termes intégraux $IntJ_0$, $IntJ_1$ et $IntJ_2$ avec un détail accru au voisinage de l'axe. La composante longitudinale du champ incident reste de deux ordres de grandeur inférieure à la composante transverse E_x dans la zone où l'intensité du faisceau est significative.

Pour accroître les effets des non-linéarités étudiées, une des solutions consiste à focaliser davantage le faisceau d'analyse. Il est intéressant de calculer ce que devient le champ dans ce cas. Les figures 3.7 et 3.8 montrent que dans le cas d'un faisceau monochromatique ($\lambda = 1 \mu\text{m}$) dont la tache focale est de $3 \mu\text{m}$ l'hypothèse de paraxialité n'est plus valide. La composante E_z du champ est du même ordre de grandeur que la composante E_x .

Dans le cas faiblement non paraxial où une lame de silice de 5mm d'épaisseur est placée au waist du faisceau de la figure 3.7, les composantes longitudinale E_z et de "dépolariation" E_y , liées à $IntJ_1$ et $IntJ_2$, ne sont plus négligeables. Dans ce cas le caractère vectoriel du champ électromagnétique doit être considéré. Bien qu'amélioré par l'utili-

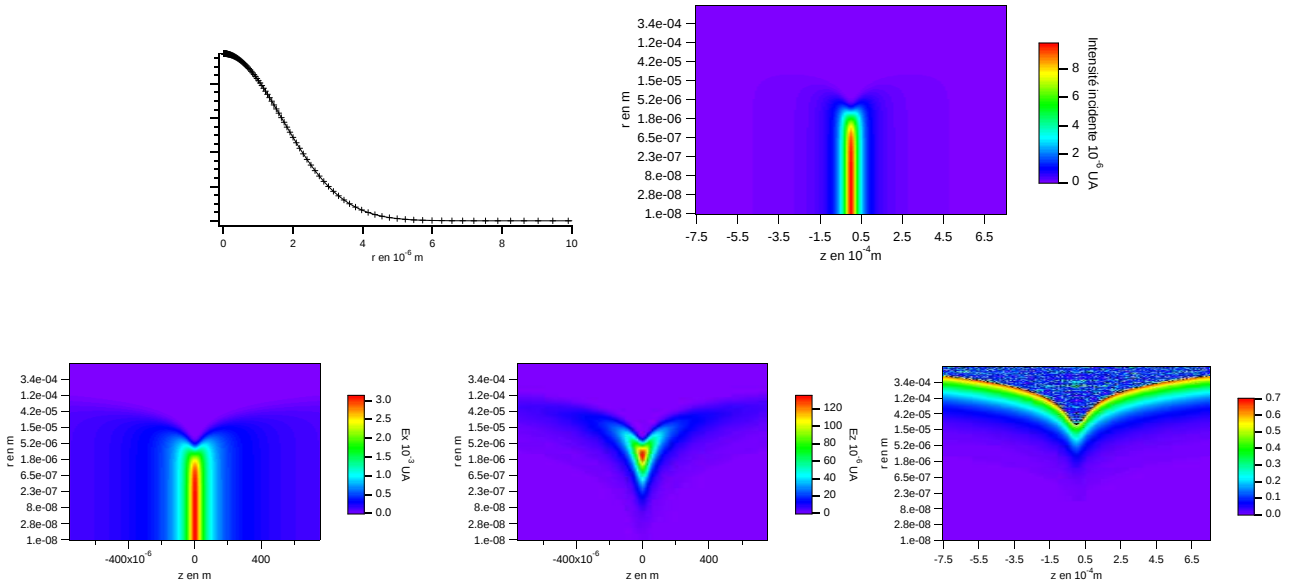


FIG. 3.7 – Première ligne : profil spatial au waist et carte d'intensité dans le plan (Ox, z) dans le cas d'un faisceau fortement focalisé. Dessous : Cartes des composantes du champ incident et leur rapport.

sation de la “fftlog”, le temps de calcul des cartes de champ avec une haute résolution reste relativement long ce qui rend lourd l'utilisation du formalisme vectoriel. En pratique les configurations expérimentales retenues sont telles que les faisceaux d'analyse restent faiblement focalisés et l'utilisation de la théorie scalaire de la diffraction sera suffisante pour décrire correctement le problème à l'extérieur de l'échantillon.

3.3 Théorie scalaire et approximation de Fresnel

3.3.1 Théorie scalaire de la diffraction

La théorie scalaire de la diffraction [20, 131] repose sur le principe de Huygens-Fresnel. La propagation de la lumière est alors décrite de la façon suivante : chaque point du front d'onde à un instant t est assimilé à une source ponctuelle secondaire rayonnant une onde sphérique. Le nouveau front d'onde à l'instant $t + dt$ est obtenu comme l'enveloppe des ondes sphériques s'étant propagées en espace libre pendant cet instant dt . Ce principe intuitif a été formalisé par Sommerfeld, sous la forme de l'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld. Cet outil permet de décrire convenablement la plupart des problèmes de diffraction par des écrans plans de transmission complexe (amplitude et phase) et de propagation de

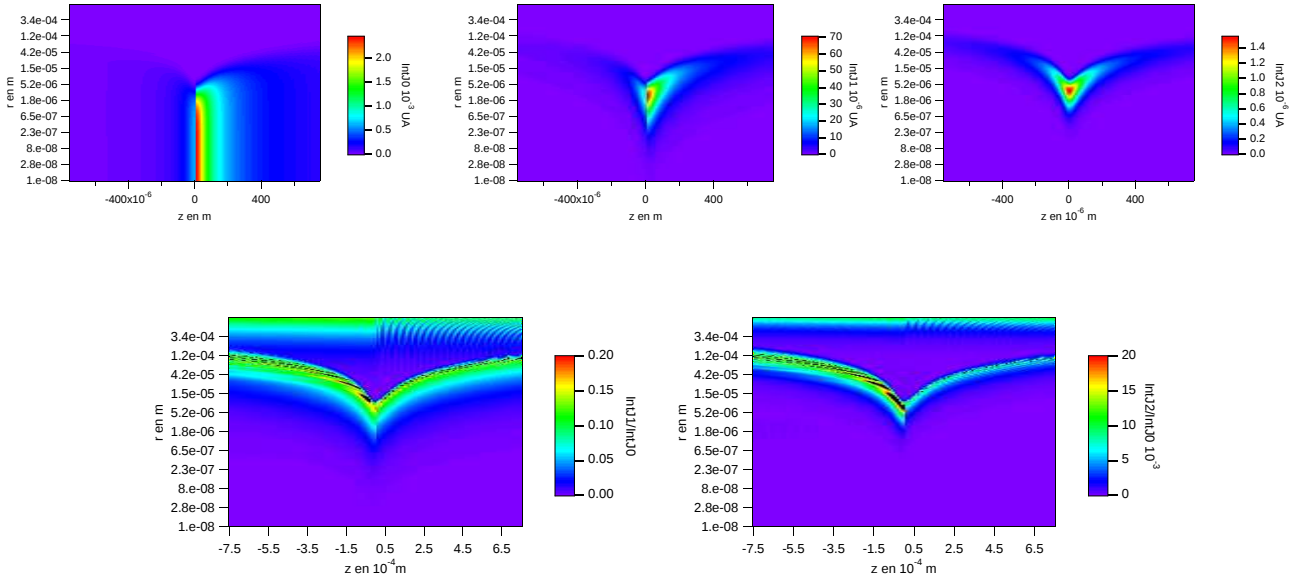


FIG. 3.8 – Termes intégraux $IntJ_0$, $IntJ_1$, $IntJ_2$ et les rapports $\frac{IntJ_1}{IntJ_0}$, $\frac{IntJ_2}{IntJ_0}$ calculés pour une lame d'indice 1.5 de 5mm d'épaisseur placée dans l'air et dont la face avant est au waist du faisceau incident dans le cas non paraxial.

faisceau en espace libre, pourvu que les dimensions des objets diffractants soient grandes devant la longueur d'onde et que l'on n'observe pas le champ trop près de ces mêmes objets.

3.3.2 Configuration et approximation de Fresnel

L'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld peut elle aussi être remplacée sans perdre en précision dans certaines conditions de façon à simplifier les expressions à manipuler, et on parle de *l'approximation de Fresnel*. Nous pouvons la décrire en considérant la configuration suivante : à partir de la répartition d'amplitude $U_1(x_1, y_1)$ dans un plan $(O_1x_1y_1)$, on désire connaître la répartition d'amplitude $U_2(x_2, y_2)$ dans un plan $(O_2x_2y_2)$ situé à une distance d . Ces deux plans sont perpendiculaires à l'axe de propagation de la lumière Oz .

Si la dimension transversale du faisceau au cours de sa propagation reste faible devant la distance d (approximation paraxiale), l'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld peut être réécrite comme :

$$U_2(x_2, y_2) = -\frac{i}{\lambda d} e^{ikd} \iint U_1(x_1, y_1) e^{\frac{ik}{2d} [(x_1-x_2)^2 + (y_1-y_2)^2]} dx_1 dy_1 \quad (3.37)$$

où $k = 2\pi/\lambda$ est le vecteur d'onde dans le milieu considéré (ici d'indice égal à 1).

On remarque au passage que l'intégrale de Fresnel correspond à un filtrage linéaire puisque l'amplitude dans le second plan se calcule comme le produit de convolution de l'amplitude dans le premier plan avec une réponse impulsionnelle $h(x_2, y_2)$, où :

$$h(x_2, y_2) = -\frac{i}{\lambda d} e^{ikd} e^{\frac{ik}{2d}(x_2^2 + y_2^2)} \quad (3.38)$$

Dans le cas d'une configuration à symétrie circulaire, l'amplitude U_1 ne dépend plus que de la coordonnée transverse $r_1 = \sqrt{x_1^2 + y_1^2}$. Dans un repère cylindrique avec le système de coordonnées cylindriques et en intégrant sur la coordonnée polaire θ_1 l'intégrale 3.37 devient :

$$U_2(r_2) = -\frac{ik}{d} e^{ikd} e^{\frac{ik}{2d}r_2^2} \int r_1 U_1(r_1) e^{\frac{ik}{2d}r_1^2} J_0\left(\frac{kr_1 r_2}{d}\right) dr_1 \quad (3.39)$$

3.3.3 Validité de l'approximation de Fresnel

Tout d'abord, pour que la théorie scalaire et l'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld soient valides il faut que les dimensions du faisceau soient grandes devant la longueur d'onde, ce qui est le cas dans notre configuration expérimentale, dans laquelle le diamètre du faisceau sera toujours supérieur à plusieurs dizaines de fois la longueur d'onde. Par ailleurs, pour écrire l'intégrale 3.37, il faut que, dans les plans $(O_1 x_1 y_1)$ et $(O_2 x_2 y_2)$, le faisceau garde des dimensions transversales faibles devant la distance de propagation d . Si le faisceau reste confiné à un diamètre typique de $2a$, le critère de validité de l'intégrale de Fresnel est : $d \gg 2a$.

En pratique, cette condition est encore moins contraignante [75, 132] et l'intégrale de Fresnel reste parfaitement valide pour de faibles valeurs de d , à condition toutefois que le faisceau diverge peu, c'est-à-dire qu'il ait lui-même un comportement paraxial. Southwell [132] a montré que l'approximation de Fresnel est encore valide sans erreur de phase significative pour des faisceaux de divergence inférieure à environ $\pi/75$ pour un nombre de Fresnel $N \approx 450$ ¹. En revanche, l'approximation de Fresnel n'est plus valable au voisinage immédiat d'objets diffractants à bord nets. Dans ce cas, l'approximation de paraxialité n'est plus valide.

¹Le nombre de Fresnel est défini comme : $N = a^2/(\lambda d)$

Dans notre configuration expérimentale, le diamètre du faisceau ne dépasse pas quelques millimètres, tandis que les éléments optiques du montage sont séparés de plusieurs dizaines de centimètres. La zone la plus critique se situe au niveau où le faisceau diverge le plus, c'est-à-dire après la lentille. La figure 3.9 représente une simulation de l'amplitude complexe du champ dans le plan principal image de cette lentille.

Les lentilles utilisées en pratique ont pour focale 100 mm ou 50 mm . D'après la figure 3.9, le faisceau possède un diamètre effectif d'environ 8 mm . Dans le pire des cas, nos simulations numériques seront faites avec une divergence d'environ $\pi/80$ et un nombre de Fresnel d'environ 150. L'approximation de Fresnel est alors parfaitement justifiée dans ce cas.

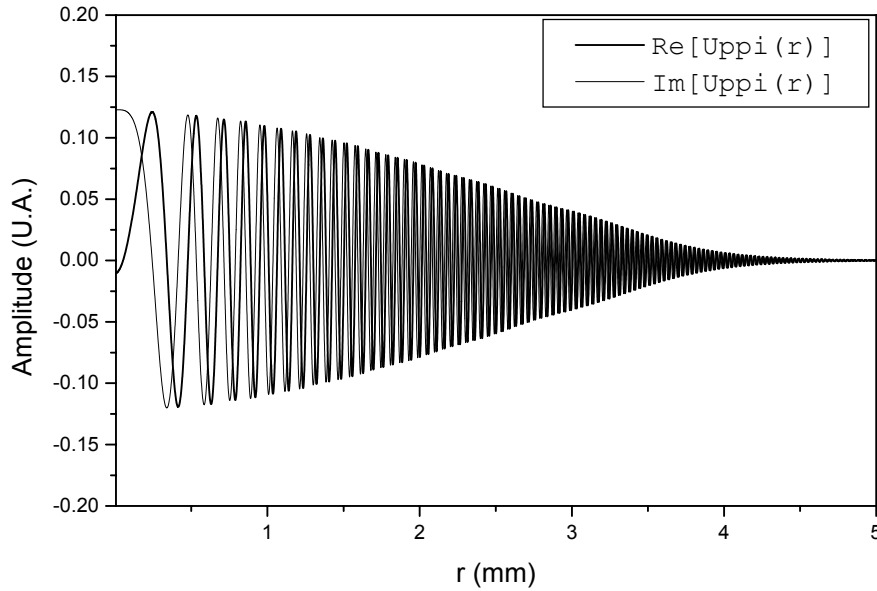


FIG. 3.9 – Simulation numérique de l'amplitude complexe dans le plan principal image d'une lentille de focale 100 mm à l'aide de l'approximation de Fresnel

Nous avons aussi vérifié la validité de l'approximation scalaire dans les conditions de focalisation expérimentales utilisées pour ce travail grâce aux équations établies au paragraphe précédent. Nous avons ainsi pu comparer l'intensité d'un faisceau gaussien TEM_{00} calculée à partir de la somme d'ondes planes vectorielle à l'intensité d'un faisceau gaussien TEM_{00} calculée à partir du modèle scalaire, c'est-à-dire à l'expression suivante :

$$I(r, z) = I_0 \frac{w_0^2}{w(z)^2} \exp \left(-\frac{2r^2}{w^2(z)} + \frac{2ikr^2}{2R(z)} \right) \quad (3.40)$$

où le paramètre w_0 représente le rayon à $1/e$ en amplitude ou à $1/e^2$ en intensité au waist ($z = 0$), $w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2}$ et $R(z) = z + \frac{z_R^2}{z}$ représentent respectivement le rayon du faisceau et la courbure de phase à la position z avec la longueur de Rayleigh du faisceau $z_R = kw_0^2/2$.

Pendant les expérimentations, la plus forte focalisation a été réalisée à $\lambda = 800nm$, et la tache focale au waist était de $10\mu m$ de rayon. Pour un faisceau deux fois plus focalisé ($10\mu m$ de diamètre) et polarisé selon la direction Oy , l'intensité du faisceau a bien une forme régulière (cf. figure 3.10). Les corrections dues au modèle vectoriel sont très faibles pour ce type de focalisation et se situent en périphérie du volume focal, zones contribuant très peu au déphasage non-linéaire car l'intensité ayant déjà très fortement diminué. La figure 3.11 résume les résultats. La première colonne correspond à l'évolution de l'intensité avant le waist et la troisième colonne après le waist (une image tous les $500\mu m$). Chaque image est normée à 100 et ainsi la décroissance en $1/\left(1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2\right)$ n'est pas prise en compte dans les niveaux des couleurs. A côté de chaque "image du faisceau" est juxtaposée la différence d'intensité entre les deux modèles (colonne 2 et 4). Dans ce cas, dans chaque plan transverse à une distance z du waist, l'écart des modèles est trois décades en dessous du maximum d'intensité de ce plan et peu donc bien être négligé.

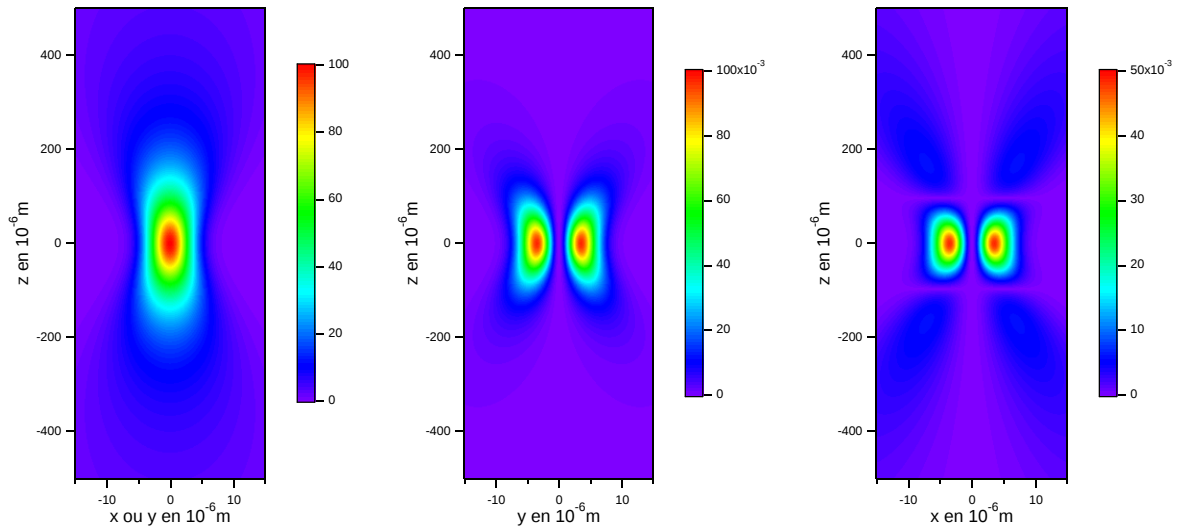


FIG. 3.10 – Intensité optique dans le plan Oyz d'un faisceau gaussien polarisé selon Oy normée à 100 sur l'axe au waist ainsi que la différences d'intensité entre le modèle scalaire et le modèle vectoriel dans les plan Oyz et Oxz calculée avec la même normalisation.

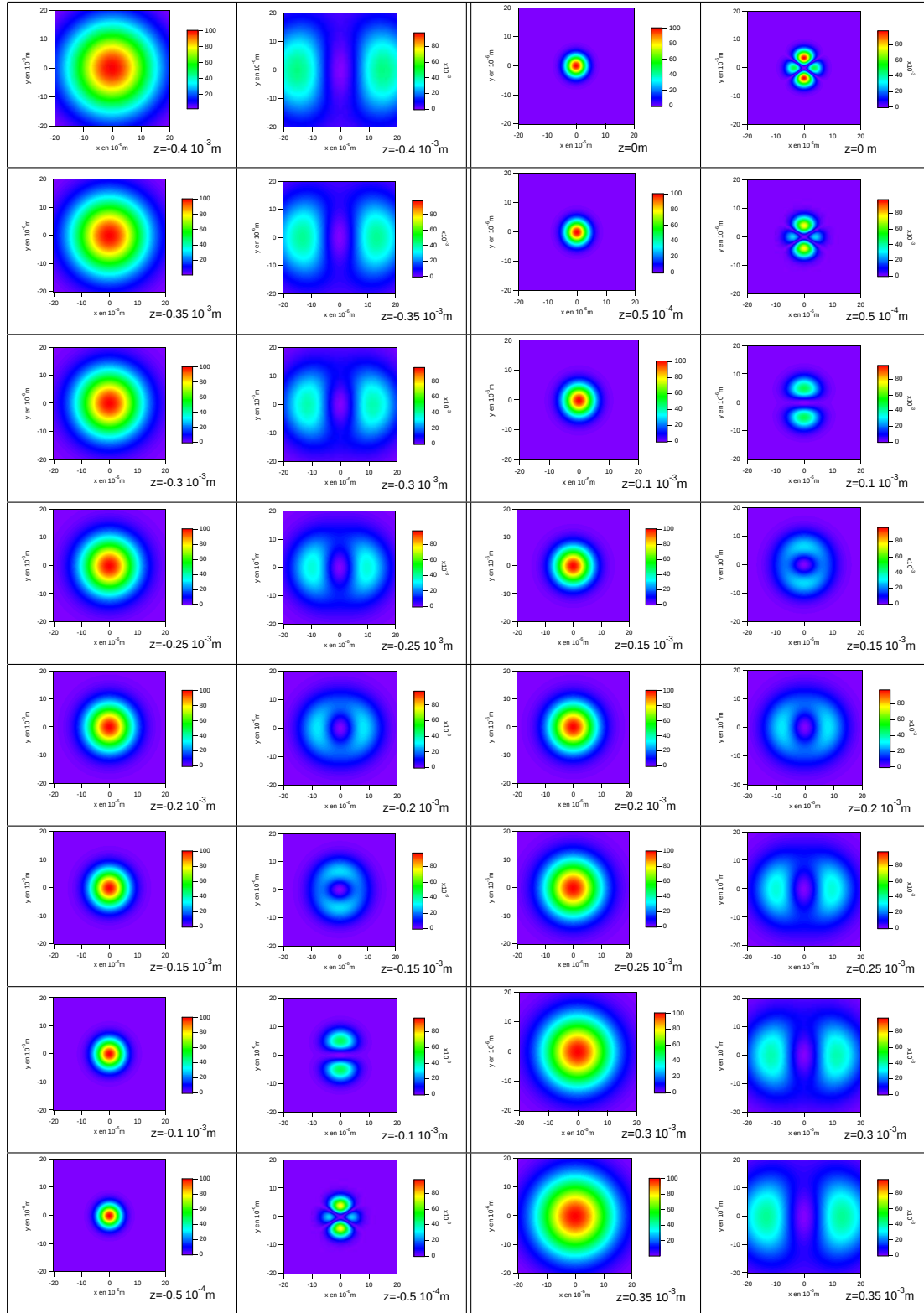


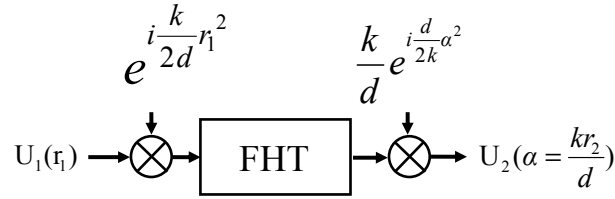
FIG. 3.11 – Colonnes 1 et 3 : intensité optique dans le plan transverse d'un faisceau gaussien polarisé selon Oy (horizontalement) pour différentes distances au waist z (calculée par le modèle vectoriel et normée à 100 dans chaque plan). Colonnes 2 et 4 : différences d'intensité (échelle unique de 0 à $10^{-2} \times I(x = y = 0, z)$) entre le modèle scalaire et le modèle vectoriel pour les mêmes " z ".

3.3.4 Calcul numérique rapide de l'intégrale de Fresnel

Dans l'expression de l'intégrale de Fresnel en géométrie cylindrique 3.39, on reconnaît clairement que le terme intégral n'est autre que la transformée de Hankel d'ordre 0 du terme $U_1(r_1) e^{\frac{ik}{2d}r_1^2}$ avec comme fréquence spatiale associée $\alpha = \frac{kr_2}{d}$.

Ainsi pour réaliser la propagation de l'amplitude complexe du champ d'un plan 1 (r_1, z_1) à un plan 2 ($r_2, z_2 = z_1 + d$) à partir d'un échantillonnage logarithmique $r_{1,i} = \sqrt{r_{1,N}r_{1,1}} \left(\frac{r_{1,N}}{r_{1,1}}\right)^{\frac{i}{N}-\frac{1}{2}}$ il suffit de multiplier l'amplitude complexe par le terme $e^{\frac{ik}{2d}r_1^2}$, de calculer numériquement la transformée de Hankel d'ordre 0 de ce produit et enfin de re-multiplier par le terme de phase $\frac{k}{d}e^{\frac{ik}{2d}r_2^2}$. Dans ce cas l'échantillonnage en r_2 est $r_{2,i} = \frac{d \times C_{\alpha r}}{k \sqrt{r_{1,N}r_{1,1}}} \left(\frac{r_{1,N}}{r_{1,1}}\right)^{\frac{i}{N}-\frac{1}{2}}$, c'est-à-dire dépendant de l'échantillonnage en r_1 , de la distance d et de la longueur d'onde. La constante $C_{\alpha r}$ est ajustable pour adapter cet échantillonnage au domaine d'intérêt choisi mais n'est pas totalement libre si l'on choisit de minimiser les artefacts de calcul dus à l'utilisation de la FFTLOG comme dans notre cas.

En oubliant les termes de déphasage constant, on peut représenter cette étape de calcul sous la forme du schéma bloc suivant :



3.4 Simulation du faisceau incident

Ici, il est question de décrire le faisceau incident sur la lame non-linéaire à caractériser par la technique de Z-scan. Pour cela le champ est calculé pour une succession de plans z compris entre z_{min} et z_{max} régulièrement espacés le long de l'axe optique et au voisinage du point de focalisation. Nous avons vu que la symétrie circulaire permettait de décomposer l'intégrale de Fresnel de façon simple comme la multiplication du champ par un premier terme de phase radial, suivie d'une transformée de Hankel d'ordre 0 et enfin par multiplication avec un autre terme de phase radial. Afin de disposer du même échantillonnage pour la coordonnée radiale r dans chacun de ces plans, nous avons vu d'après la remarque précédente que l'on devra adapter l'échantillonnage initial et refaire propager l'amplitude complexe du champ du plan de référence à chaque itération. Dans

le cas d'un laser parfaitement monomode le plan de référence est la sortie du laser et dans le cas où un filtrage spatial est réalisé le plan de référence est le plan du trou de filtrage.

3.4.1 Simulation d'un faisceau type “tache d'Airy tronquée” focalisé

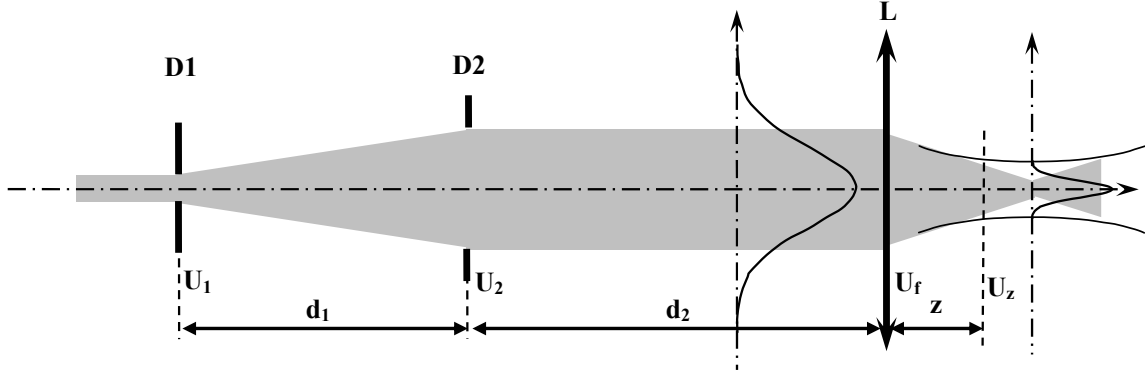


FIG. 3.12 – Mise en forme d'un faisceau type tache d'Airy tronquée.

Comme nous l'avons écrit en introduction de ce chapitre un filtrage spatial conventionnel n'est pas toujours simple à mettre en place. Un filtrage spatial alternatif, permettant de produire un faisceau ayant très peu de fréquences spatiales sans focalisation du faisceau initial est de produire un faisceau type “tache d'Airy tronquée”. Nous pouvons décrire sa mise en œuvre de la façon suivante (fig. 3.12) : le faisceau incident issu du laser est tronqué par un diaphragme $D1$ de rayon a_1 et diffracte sur une distance d_1 . Le centre de la tache d'Airy est alors prélevé à l'aide d'un diaphragme $D2$ de rayon a_2 correspondant à la première annulation de la tache d'Airy, c'est-à-dire : $a_2 = 1,22 \times \lambda d_1 / a_1$. Le faisceau de type “Airy tronqué” ainsi formé se propage sur une distance d_2 avant de traverser une lentille. Cette lentille sera considérée comme mince en bonne approximation compte tenu des focales utilisées.

Du fait des dimensions réduites du premier trou a_1 vis à vis du spot laser, le faisceau laser incident peut être considéré comme une “onde plane”, dont la phase et l'amplitude sont constantes sur le trou. L'amplitude complexe U_1 du champ juste après le premier diaphragme peut alors être décrite par :

$$U_1(r) = \begin{cases} 1 & \text{si } r \leq a_1 \\ 0 & \text{si } r > a_1 \end{cases} \quad (3.41)$$

Dans le cadre de l'approximation de la diffraction de Fresnel, et compte tenu que la distance d_1 est supérieur à $1,5m$ le champ est une tache d'Airy en module à laquelle s'ajoute une courbure sphérique due à la propagation de l'onde sur la distance d_1 . Dans le plan p_2 du second diaphragme l'amplitude complexe U_2 a donc l'expression analytique suivante :

$$U_2(r_2) = \begin{cases} \frac{a_1}{r_2} \times e^{\frac{ik}{2d_1}r_2^2} \times J_1(ka_1r_2/d_1) & \text{si } r_1 < a_2 = \frac{1.2196\lambda d_1}{2a_1} \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (3.42)$$

Cette expression est évaluée numériquement pour l'échantillonnage suivant :

$$r_{2,i} = \frac{d_2}{z} \sqrt{r_N r_1} \left(\frac{r_N}{r_1} \right)^{\frac{i}{N} - \frac{1}{2}}$$

.

Avant d'être focalisé, ce faisceau se propage du plan p_2 à la lentille de focalisation située à la distance d_2 . Le champ U_{f-} dans le plan de la lentille est donc :

$$U_{f-}(r_3) = -\frac{ik}{d_2} e^{\frac{ik}{2d_2}r_3^2} FHT \left(U_2(r_2) e^{\frac{ik}{2d_2}r_2^2} \right) \quad (3.43)$$

L'utilisation de la FFTLOG permet donc d'évaluer cette expression aux points :

$$r_{3,i} = \frac{z \times C_{\alpha r}}{k \sqrt{r_N r_{1,1}}} \left(\frac{r_N}{r_1} \right)^{\frac{i}{N} - \frac{1}{2}}$$

.

La lentille de focalisation de focale f peut se modéliser comme la multiplication du champ dans le plan de la lentille par un terme de phase radial, le champ U_{f+} juste après la lentille est donc :

$$U_{f+}(r_3) = U_{f-}(r_3) e^{\frac{-ik}{2f}r_3^2} \quad (3.44)$$

De même que pour le passage du plan p_2 au plan de la lentille, le champ dans le plan z s'écrit :

$$U_z(r_4) = -\frac{ik}{z} e^{\frac{ik}{2z}r_4^2} FHT \left(U_{f+}(r_3) e^{\frac{ik}{2z}r_3^2} \right) \quad (3.45)$$

Cette quantité est obtenue aux points $r_{4,i} = \sqrt{r_N r_1} \left(\frac{r_N}{r_1} \right)^{\frac{i}{N} - \frac{1}{2}}$ qui est bien un échantillonnage indépendant de la distance z . Les valeurs de r_1 , r_N et N sont prises de façon à décrire correctement le champ dans la zone focale et dans le plan du second diaphragme (typiquement $r_1 = 10^{-12}m$ et $r_N = 10^2m$ et $N = 10000$) et l'ordre de grandeur de

C_{ar} de façon à décrire correctement le champ dans le plan de la lentille (typiquement $C_{ar} = 10^{-4}$).

Les paramètres z_{min} , z_{max} , a_1 , d_1 , d_2 , f et la longueur d'onde λ sont à ajuster pour décrire correctement le volume focal du faisceau expérimental, sa taille au *waist* ainsi que sa divergence.

3.4.2 Modélisation d'un faisceau gaussien incident

Pour vérifier la validité du modèle numérique développé et étudier les conséquences de l'hypothèse d'un faisceau incident gaussien, il est intéressant de simuler ce type de faisceau. Nous avons déjà vu au paragraphe 3.2.4 que l'approximation de l'enveloppe lentement variable pour décrire la propagation du faisceau selon la direction z conduit à l'équation de propagation paraxiale 3.29 que doit vérifier l'enveloppe du champ. Cette équation admet pour solutions les faisceaux dits "gaussiens" s'exprimant de la façon suivante en coordonnées cylindriques :

$$U_{nm}(r, \theta, z) = U_0 \frac{\omega_0}{\omega(z)} \times \left(\frac{\sqrt{2}r}{\omega(z)} \right)^m L_n^m \left(\frac{2r^2}{\omega^2(z)} \right) e^{ik \frac{r^2}{2R(z)}} e^{-i((2n+m+1) \arctan(\frac{z}{z_R}))} \quad (3.46)$$

où les paramètres $w(z)$ et $R(z)$ représentent respectivement le rayon du faisceau et la courbure de phase à la position z vérifiant les relations suivantes :

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R} \right)^2} \quad (3.47)$$

$$R(z) = z + \frac{z_R^2}{z} \quad (3.48)$$

$$z_R = kw_0^2/2 \quad (3.49)$$

et où les L_n^m sont des polynômes de Laguerre, s'exprimant de la façon suivante :

$$L_n^m(\xi) = \frac{1}{n!} \xi^{-m} e^\xi \frac{d^n}{d\xi^n} [\xi^{n+m} e^{-\xi}] \quad (3.50)$$

Lorsque l'on parle de faisceau gaussien sans préciser l'ordre du polynôme de Laguerre, il s'agit du mode fondamental gaussien TEM_{00} est réalisé pour $n = m = 0$. Ce mode est à symétrie circulaire, et son amplitude complexe est relativement simple. En coordonnées cylindrique ($r = \sqrt{x^2 + y^2}$), le mode TEM_{00} prend la forme :

$$U(r, z) = U_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp \left(-\frac{r^2}{w^2(z)} + \frac{ikr^2}{2R(z)} \right) \quad (3.51)$$

Le paramètre w_0 représente alors le rayon à $1/e$ en amplitude ou à $1/e^2$ en intensité à $z = 0$ et le paramètre z_r représente la longueur de Rayleigh du faisceau, et correspond à la distance au bout de laquelle l'intensité sur l'axe optique est divisée par 2.

Quand $z \rightarrow \infty$, l'évolution du rayon du faisceau prend l'expression asymptotique $w(z) \approx w_0 z / z_R$. On définit alors la demi-divergence θ du faisceau qui vérifie alors la relation $\tan \theta = \lambda / (\pi w_0)$.

La propagation d'un faisceau gaussien TEM_{00} est illustrée à la figure 3.13.

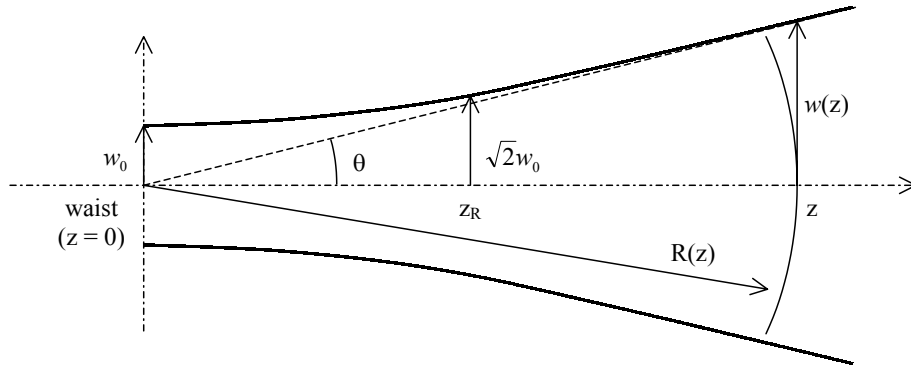


FIG. 3.13 – Divergence du mode fondamental gaussien à partir du plan de focalisation (plus connu sous le terme anglo-saxon de “waist”) : notations et paramètres géométriques (courbe d'intensité à $1/e^2$)

Pour simuler un tel faisceau on peut évaluer l'expression analytique donnée par l'équation 3.51. L'utilisation de l'échantillonnage logarithmique vu précédemment permet de comparer les résultats avec le faisceau type tache d'Airy tronquée. Une seconde façon d'y parvenir est de remplacer l'expression de l'amplitude complexe du champ U_2 dans le code numérique développé pour la modélisation d'un faisceau type tache d'Airy tronquée. Dans ce cas l'expression analytique utilisée est :

$$U(r_2) = \exp\left(-\frac{r_2^2}{w^2}\right) \quad (3.52)$$

De manière générale l'expression analytique de l'amplitude complexe du champ U_2 peut être prise de façon arbitraire pour simuler une grande variété de faisceaux ainsi que

la transmission normalisée Z-scan. Cependant pour éviter les problèmes numériques, les sauts de la fonction décrivant U_2 doivent être faibles, la mise en œuvre de tels faisceaux expérimentalement étant à étudier au cas par cas.

3.5 Propagation dans l'échantillon non-linéaire

3.5.1 Choix de l'algorithme de propagation

Une fois le champ incident sur l'échantillon calculé, la propagation dans l'échantillon non-linéaire doit être modélisée pour obtenir l'effet de la non-linéarité sur l'amplitude complexe du champ. La propagation dans un milieu présentant un effet Kerr est largement étudiée dans le cadre de l'autofocalisation des faisceaux de forte puissance et/ou dans le cadre de la déformation des impulsions ultra-courtes. Dans les deux cas c'est un problème électromagnétique extrêmement complexe qui nécessite de prendre en compte un grand nombre d'effets dès lors que la puissance du faisceau est très importante, et/ou que le faisceau est très fortement focalisé et/ou que le spectre de l'impulsion très large. Comme nous l'avons déjà vu au paragraphe 2.3.3, le phénomène d'autofocalisation donne lieu, de manière générale à une déformation du faisceau incident. Une simple description d'optique géométrique [133, 28], permet de prévoir qu'à une certaine puissance, dite critique, la diffraction du faisceau et le phénomène d'autofocalisation se compensent exactement. La puissance critique délimite trois régimes d'autofocalisation.

Lorsque la puissance du faisceau est très inférieure à la puissance critique, le faisceau diffracte normalement loin du point de focalisation et subit une très faible déformation au voisinage de son point de focalisation, là où la densité de puissance est la plus importante. Ce cas de figure est celui retenu pour mesurer l'indice de réfraction non-linéaire avec la méthode de Z-scan. Suivant le cas de figure, plusieurs modèles analytiques ont été développés pour décrire la faible distorsion du faisceau (voir le paragraphe 2.5).

Si la puissance du faisceau est voisine de la puissance critique, le faisceau peut se propager sans déformations (auto-guidage) ce qui donne naissance aux solitons spatiaux. L'étude électromagnétique de ce cas de figure utilise l'équation de Helmholtz non-linéaire.

Enfin, dans le cas où la puissance est supérieure à la puissance critique, le phénomène d'autofocalisation est prépondérant. Beaucoup d'études théoriques adoptent une description scalaire du problème et font l'hypothèse de paraxialité conduisant à l'équation de Schrödinger non-linéaire [134, 135, 136, 137]. Ces modèles permettent de décrire

correctement l'autofocalisation lorsque la puissance du faisceau reste relativement modérée (juste supérieure de quelques fractions à la puissance critique) et permet de déterminer approximativement la position du foyer d'autofocalisation, lieu où le faisceau atteint une intensité particulièrement élevée menant en pratique à un endommagement. En revanche, ce modèle n'est pas physique car il prédit une évolution d'intensité sur l'axe optique ayant une asymptote verticale. En effet, au voisinage du point de focalisation, l'approximation paraxiale devient abusive.

En abandonnant l'hypothèse de paraxialité, des études ont montré que l'intensité sur l'axe du faisceau ne diverge pas, mais qu'elle oscille au cours de sa propagation, pouvant atteindre des valeurs allant de 10 à plusieurs centaines de fois l'intensité initiale du faisceau. Parmi ces études citons celle de Feit et Fleck [138, 139, 140], récemment reprise et modifiée par Chamorro-Posada et al. [141] pour obtenir une méthode valide pour de plus grandes puissances mais deux fois moins rapide. Plus récemment, des travaux ont encore affiné la description de l'autofocalisation en abandonnant également l'hypothèse scalaire [142, 143], montrant par exemple qu'un faisceau incident polarisé circulairement adopte petit à petit une polarisation elliptique au cours de son autofocalisation et perd progressivement sa symétrie de révolution [142]. Pour des puissances bien supérieures à la puissance critique, il est nécessaire de considérer le problème vectoriel complet, complexe comme le montre les travaux de Yariv et al. [144, 145, 146] relatifs à la propagation d'un faisceau très fortement focalisé dans un milieu infini non-linéaire.

Tous ces modèles non-paraxiaux conduisent aux mêmes résultats pour des faibles autofocalisations. Ils prédisent également tous les oscillations de l'intensité du faisceau sur l'axe optique au cours de la propagation conduisant à la formation de plusieurs foyers intermédiaires atteignant de très grandes valeurs d'intensité sur l'axe optique. En revanche, les positions de ces maxima et leur amplitude varient d'un modèle à l'autre. La description du phénomène d'autofocalisation pour des puissances supérieures à la puissance critique n'est encore qu'un problème partiellement résolu.

Dans notre cas, la puissance utilisée pour les expériences de Z-scan reste bien inférieure à la puissance critique et le faisceau incident faiblement focalisé. Comme nous l'avons vu au début de ce chapitre, et confirmé par cette revue bibliographique de l'autofocalisation, l'hypothèse scalaire reste valable dans notre configuration. Pour décrire la propagation d'un faisceau quelconque dans un milieu non-linéaire, nous avons réalisé un algorithme de propagation, inspiré de la méthode de Feit et Fleck, adapté à la symétrie cylindrique que nous allons décrire ci-après. Cette méthode semble le meilleur compromis en terme

de précision et de temps de calcul.

3.5.2 Résolution pas à pas de l'équation d'Helmholtz non-paraxiale scalaire

La résolution du problème électromagnétique dans le milieu non-linéaire se fait à partir des équations de Maxwell vues au premier chapitre. À partir de ces équations, si l'on tient compte de la réponse non-linéaire du milieu, l'équation de propagation s'écrit :

$$\Delta \vec{\mathcal{E}} - \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{\mathcal{E}}) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{E}}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{P}}^{(1)}}{\partial t^2} + \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{P}}^{(3)}}{\partial t^2} \quad (3.53)$$

où la polarisation non-linéaire se réduit aux effets d'ordre 3. Comme cela est fait classiquement le terme $\vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{\mathcal{E}})$ sera négligé, du fait des très faibles variations d'indice mises en jeu. En régime harmonique, et dans le système de coordonnées cylindrique cette équation devient alors :

$$\frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial \vec{E}}{\partial r} + \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial z^2} + \frac{n_0^2 \omega^2}{c^2} \vec{E} = \frac{\omega^2}{\epsilon_0 c^2} \vec{P}^{(3)} \quad (3.54)$$

Dans cette expression nous avons supposé que le champ est indépendant de la coordonnée cylindrique θ c'est-à-dire qu'il était à symétrie de révolution. De plus nous avons vu que dans le cas de l'effet Kerr à un faisceau polarisé rectilignement la polarisation non-linéaire du troisième ordre est colinéaire au champ électrique, et se met sous la forme :

$$P^{(3)} = n_2 |E|^2 E \quad (3.55)$$

En reportant on trouve que l'amplitude complexe du champ électrique vérifie l'équation de Helmholtz non-linéaire scalaire en coordonnées cylindriques :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial E}{\partial r} + \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} + \frac{\omega^2}{c^2} n^2(r, z) E = 0 \quad (3.56)$$

où $n^2(r, z) = n_0 + n_2 |E(r, z)|^2$ est l'indice du "effectif" du milieu au point de coordonnées (r, z) . On pose à ce stade $k = \omega n_0 / c$ qui est la norme du vecteur d'onde en l'absence de non-linéarités, et on choisit de décrire l'amplitude complexe du champ sous la forme :

$$E(r, z) = A(r, z) e^{-ikz} \quad (3.57)$$

Avec ces nouvelles notations, l'équation 3.56 devient :

$$\frac{\partial^2 A}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial A}{\partial r} - 2ik \frac{\partial A}{\partial z} + \frac{\partial^2 A}{\partial z^2} + \left(\frac{\omega^2}{c^2} n^2(r, z) - k^2 \right) A = 0 \quad (3.58)$$

ou encore

$$-\frac{1}{2k} \frac{\partial^2 A}{\partial z^2} + i \frac{\partial A}{\partial z} = \frac{1}{2k} \left(\frac{\partial^2 A}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial A}{\partial r} \right) + \frac{k}{2} \left(\frac{n^2(r, z)}{n_0^2} - 1 \right) A \quad (3.59)$$

Remarque : Sous cette forme il apparaît clairement que si la dérivé seconde en z est négligée dans le premier membre, l'équation s'identifie à l'équation paraxiale et A est appelée "enveloppe lentement variable".

L'équation 3.59 peut s'écrire sous la forme factorisée suivante :

$$\begin{aligned} \left[\frac{\partial}{\partial z} - ik - ik(1 + 2H/k)^{1/2} \right] \left[\frac{\partial}{\partial z} - ik + ik(1 + 2H/k)^{1/2} \right] A \\ = ik \left[\frac{\partial}{\partial z} (1 + 2H/k)^{1/2} - (1 + 2H/k)^{1/2} \frac{\partial}{\partial z} \right] A \end{aligned} \quad (3.60)$$

Où l'on a posé $H = \frac{1}{2k} \left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{k}{2} \left(\frac{n^2(r, z)}{n_0^2} - 1 \right)$.

Tout ceci peut être compris en terme des opérateurs

$$P = \frac{\partial}{\partial z} \quad \text{et} \quad Q = \left(\Delta_T^2 + \frac{\omega^2}{c^2} n^2 \right)^{\frac{1}{2}}$$

où Δ_T^2 représente le laplacien transverse $\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}$.

En effet l'équation d'Helmholtz 3.56 peut alors se réécrire sous la forme :

$$(P^2 + Q^2) E = 0 \quad (3.61)$$

Cette équation peut se mettre sous la forme factorisée suivante :

$$[(P + iQ)(P - iQ) + i[P, Q]] E = 0 \quad (3.62)$$

Où $[P, Q]$ est le commutateur des opérateurs P et Q défini tel que $[P, Q] = PQ - QP$. Se rappelant que $E = Ae^{-ikz}$ l'application de P sur E est équivalente à celle de $\frac{\partial}{\partial z} - ik$ sur A et l'application de Q sur E est équivalente à celle de $k(1 + 2H/k)^{1/2} = k \left(\frac{1}{2k} \left(\Delta_T + \frac{k^2 n^2}{n_0} \right) \right)^{1/2}$ sur A , ce qui conduit bien à l'équation 3.60.

De plus, pour des variations transverses lentes de l'indice n , Feit et Fleck ont montré que le commutateur $[P, Q]$ peut en bonne approximation être considéré comme nul, ce qui revient à découpler les ondes se propageant vers les z positifs et celles se propageant vers les z négatifs.

L'équation correspondant à l'onde se propageant vers les z positifs est alors :

$$(P + iQ)E = 0 \Leftrightarrow \left[\frac{\partial}{\partial z} - ik + ik(1 + 2H/k)^{1/2} \right] A = 0 \quad (3.63)$$

La solution de cette équation peut s'écrire formellement de la manière suivante :

$$E(r, z) = \exp \left(i \int_0^z Q dz \right) E(r, 0) \Leftrightarrow A(r, z) = \exp \left(ik \int_0^z 1 - (1 + 2H/k)^{1/2} dz \right) A(r, 0) \quad (3.64)$$

Pour une variation d'indice lente dans la direction z ou pour un incrément Δz suffisamment petit, l'équation précédente vaut approximativement

$$E(r, \Delta z) = \exp(i\Delta z Q) E(r, 0) \Leftrightarrow A(r, \Delta z) = \exp \left(ik\Delta z \left[1 - (1 + 2H/k)^{1/2} \right] \right) A(r, 0) \quad (3.65)$$

Par ailleurs dans leurs premiers travaux sur la propagation d'onde dans des fibres à gradient d'indice [147], Feit et Fleck ont montré que pour des variations transverses lentes de l'indice n l'opérateur Q peut s'exprimer sous la forme suivante :

$$Q = \left(\Delta_T + \frac{\omega^2}{c^2} n^2 \right)^{\frac{1}{2}} \sim \frac{\Delta_T}{(\Delta_T + k^2)^{\frac{1}{2}} + k} + k + k \left[\left(\frac{n}{n_0} \right) - 1 \right] \quad (3.66)$$

Ce qui donne pour l'enveloppe A :

$$A(r, \Delta z) = \exp \left[i\Delta z \left(\frac{\Delta_T}{(\Delta_T + k^2)^{\frac{1}{2}} + k} + k[(n/n_0) - 1] \right) \right] A(r, 0) \quad (3.67)$$

Au second ordre en Δz , cette expression peut être éclatée en la forme symétrique suivante :

$$\begin{aligned} A(r, \Delta z) = \exp \left[i\frac{\Delta z}{2} \left(\frac{\Delta_T}{(\Delta_T + k^2)^{\frac{1}{2}} + k} \right) \right] \exp(ik\Delta z[(n/n_0) - 1]) \\ \times \exp \left[i\frac{\Delta z}{2} \left(\frac{\Delta_T}{(\Delta_T + k^2)^{\frac{1}{2}} + k} \right) \right] A(r, 0) + o(\Delta z^3) \end{aligned} \quad (3.68)$$

Nous pouvons écrire cette relation sous la forme condensée suivante :

$$A(r, z + \Delta z) = PLP A(r, z) \quad (3.69)$$

avec

$$P = \exp \left[i\frac{\Delta z}{2} \left(\frac{\Delta_T}{(\Delta_T + k^2)^{\frac{1}{2}} + k} \right) \right] \quad \text{et} \quad L = \exp(ik\Delta z[(n/n_0) - 1])$$

Cette équation peut être vue comme un schéma de propagation en trois étapes : Une première étape de propagation sur une petite distance $\Delta z/2$ (opérateur P), l'introduction d'un déphasage non-uniforme induit $\exp[ik\Delta z(n/n_0 - 1)]$ (opérateur L) et une nouvelle propagation sur $\Delta z/2$.

Reprenons le terme de phase L relatif à la variation photo-induite dans l'échantillon². Ce terme s'exprime simplement en fonction de la variation d'indice $\Delta n = \gamma I(0, 0)$ sur l'axe dans le point de focalisation ($r = 0, z = 0$) et de l'amplitude complexe du champ sous la forme :

$$L = \exp \left[\frac{2\pi}{\lambda} \Delta n \left| \frac{A(r, z)}{A(0, 0)} \right|^2 \right] \quad (3.70)$$

Introduisons maintenant la symétrie cylindrique pour effectuer les propagations décrites par les deux opérateurs extrêmes de l'expression 3.68. En effet nous avons déjà vu que la transformation de Hankel d'ordre 0 permet de passer dans l'espace de Fourier très facilement, espace où l'opérateur de propagation se résume en une multiplication par le terme de phase.

En effet, l'application du laplacien transverse revient à multiplier dans l'espace réciproque par $-\alpha^2$ du fait des propriétés de la fonction de Bessel J_0 . L'opérateur de propagation décrit par les deux termes extrêmes de la relation 3.68 devient simplement, dans l'espace réciproque :

$$\hat{P} = \exp \left[i \frac{\Delta z}{2} \left(\frac{-\alpha^2}{(-\alpha^2 + k^2)^{\frac{1}{2}} + k} \right) \right] \quad (3.71)$$

En résumé nous venons de trouver un algorithme de propagation pas à pas dans le milieu non-linéaire, étant donné que l'équation 3.68 rend possible l'évaluation de l'amplitude complexe du champ à la position $z + \Delta z$ à partir de l'amplitude à la position z à l'aide d'une multiplication par le terme de phase $\hat{P}$ dans l'espace réciproque, d'une multiplication dans l'espace réel par $\exp(ik\Delta z[(n/n_0) - 1])$ puis d'une nouvelle multiplication par le terme de phase $\hat{P}$ dans l'espace réciproque. Ce principe de propagation pas à pas en milieu non-linéaire est connu sous le nom anglo-saxon de “split-step propagation method”.

²Notons que l'on peut modifier ce terme pour tenir compte de l'absorption, ou tout autre effet spatialement variable (à symétrie circulaire).

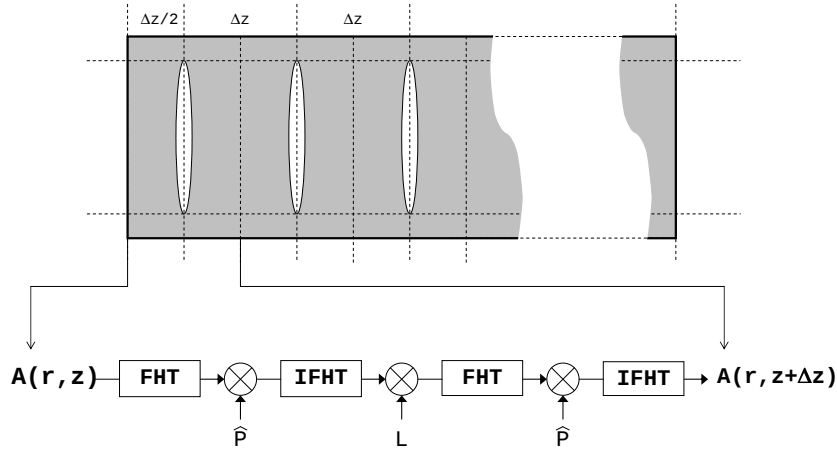


FIG. 3.14 – Représentation schématique d’une propagation sur une petite distance Δz à l’aide de notre algorithme

Ce schéma de propagation est illustré à la figure 3.14 de manière explicite sous forme de schéma bloc comme nous l’avons fait pour l’intégrale de Fresnel. Le symbole $\otimes$ désigne une multiplication par les facteurs de phases $\hat{P}$ ou L . Les acronymes FHT et IFHT désignent les transformées de Hankel direct et inverse (“Fast Hankel Transform” et “Inverse Fast Hankel Transform”) qui sont calculées numériquement via la “FFTLog” déjà vue permettant un temps de calcul raisonnable pour les simulations. En effet, pour propager l’amplitude complexe du champ dans l’échantillon non-linéaire il faut découper celui-ci en de nombreuses tranches et pour chaque tranche il est nécessaire d’effectuer 4 transformations de Hankel. Et cela doit être fait pour autant de positions de l’échantillon nécessaires pour décrire correctement une courbe de Z-scan, c’est-à-dire une centaine de points. L’approximation d’une symétrie circulaire et l’utilisation de la transformation de Hankel rapide est donc indispensable pour éviter des simulations numériques de plusieurs heures par courbe de Z-scan. Typiquement nous utilisons dans nos simulations un échantillonnage logarithmique transversal de 10000 points, et pour un échantillon de 5 mm et un pas Δz de 50 μm , la simulation d’une unique courbe de transmission normalisée de 100 points nécessite un quart d’heure. Notons que chaque propagations élémentaires se font sur la même distance $\Delta z/2$ ce qui permet d’avoir le même échantillonnage radial dans tous les plans.

Les courbes de transmission normalisée en configuration de Z-scan sont alors simple-

ment obtenues en propageant, à l'aide de cet algorithme, l'amplitude complexe du faisceau obtenue pour une position z avec l'algorithme simulant le faisceau incident. La propagation est effectuée avec des pas Δz sur toute l'épaisseur de l'échantillon. L'intégrale de Fresnel de l'amplitude complexe du champ à la sortie de l'échantillon est évaluée ensuite numériquement en $r = 0$ afin d'obtenir le signal de Z-scan en configuration "close aperture" (configuration sensible à l'indice non-linéaire). Ceci correspond à une propagation sur la distance séparant la face arrière de l'échantillon du plan du diaphragme du détecteur. Pour le signal Z-scan dit "open aperture" (configuration sensible à l'absorption non linéaire) la puissance du faisceau en face arrière de l'échantillon est calculée comme l'intégrale du module de l'amplitude complexe du champ par rapport à la coordonnée radiale r .

Il faut noter que la condition principale de validité de ce modèle est de conserver un incrément Δz faible comparée à la vitesse d'évolution en z du faisceau dans l'échantillon. Dans ce but, le profil spatial du faisceau lors d'une simulation d'une courbe de transmission normalisée en configuration de Z-scan est sauvegardé pour vérifier que le régime d'autofocalisation n'introduit pas de variations trop rapides devant la valeur de l'incrément Δz choisie.

3.6 Résultats numériques

3.6.1 Raccordement au modèle Gaussien

Ici, nous souhaitons valider notre modèle en retrouvant les résultats des différents modèles analytiques présentés au chapitre 2.5. Ceci permettra, d'une part, de vérifier l'exactitude de nos simulations dans ces cas particuliers et d'autre part, d'avoir une idée plus claire des limites de validité de chaque modèle analytique.

Cas d'un faible déphasage non-linéaire

Commençons par le cas d'un faible déphasage non-linéaire induit par un faisceau gaussien. Le modèle décrivant ce cas de figure est celui d'Hermann et McDuff vu au paragraphe 2.5. Ce modèle se simplifie en celui de Sheik-Bahae et al. lorsqu'en plus l'hypothèse d'échantillon fin peut être faite.

Les simulations du signal Z-scan en configuration "close aperture" présentées sur la figure 3.15 ont été obtenues par notre modèle avec des paramètres de simulation que nous allons maintenant détailler. La longueur d'onde du faisceau incident est de $\lambda = 1064 \text{ nm}$ et

son rayon à $1/e^2$ en intensité au point de focalisation égal à $\omega_0 = 15 \mu m$ ce qui correspond à une distance de Rayleigh z_R de $6,64 \cdot 10^{-4} m$. L'échantillon non-linéaire est de la silice d'indice linéaire $n_0 = 1.456$. La variation d'indice sur l'axe optique et dans le plan focal a été choisie égale à $\Delta n = \gamma I(0,0) = 5 \cdot 10^{-6}$ ce qui donne pour le paramètre β défini dans le modèle de Hermann et McDuff $\beta = 4 (\pi \omega_0 / \lambda)^2 \frac{\Delta n}{n_0} = 5,687 \cdot 10^{-2}$. L'évolution de la courbe de transmission normalisée a été tracée sur la figure 3.15 en fonction de l'épaisseur de la lame de silice entre $L = 0.5 mm$ et $L = 5 cm$.

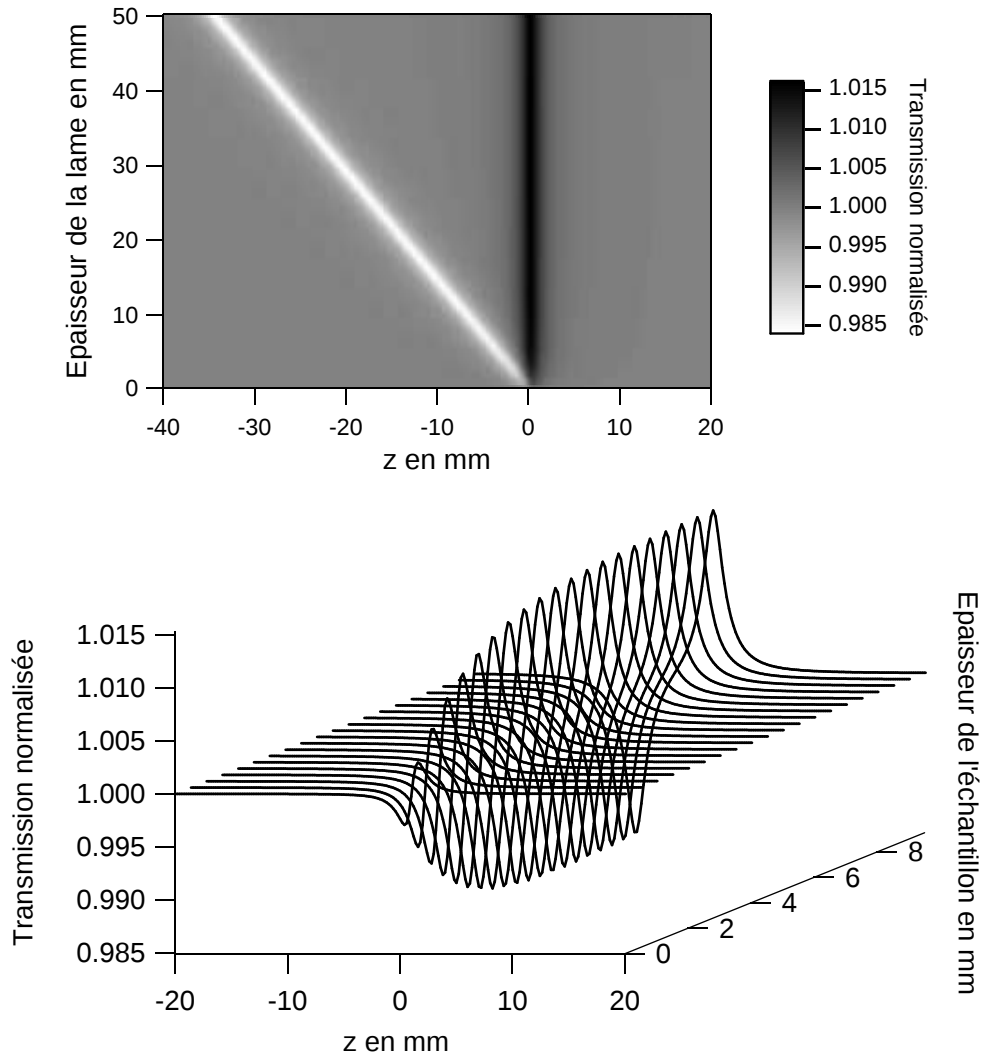


FIG. 3.15 – *Haut : Transmission normalisée (en niveau de gris) en fonction de la distance z séparant la face avant du waist du faisceau incident et de l'épaisseur de l'échantillon. Bas : zoom correspondant aux échantillons de moins de 10 mm d'épaisseur.*

On constate bien pour les faibles épaisseurs que l'amplitude de la courbe de transmission normalisée augmente puis arrive à saturation pour des épaisseurs d'une dizaine de fois la distance de Rayleigh du faisceau. La courbe reste bien symétrique autour de la transmission normalisée unitaire. De plus la position des minima et des maxima évolue linéairement avec l'épaisseur de l'échantillon lorsque celle-ci est grande devant la longueur de Rayleigh.

De façon plus quantitative, le modèle d'Hermann et McDuff prévoit que la sensibilité de la méthode de Z-scan définit comme $s = \Delta T / \beta$ a comme expression analytique :

$$s = \frac{1}{4} \ln \left(\frac{(9 + \Omega - \Gamma)(1 + \Omega + \Gamma)}{(1 + \Omega - \Gamma)(9 + \Omega + \Gamma)} \right) \quad (3.72)$$

avec

$$\Omega = \eta + \frac{1}{3}\chi_m^2, \quad \Gamma = \chi_m \sqrt{\eta + \frac{1}{12}\chi_m^2}, \quad \eta = -\frac{5}{3} + \sqrt{3 + \frac{1}{9}\left(5 + \frac{1}{2}\chi_m^2\right)^2} \quad \text{et} \quad \chi_m = \frac{L}{n_0 z_R}$$

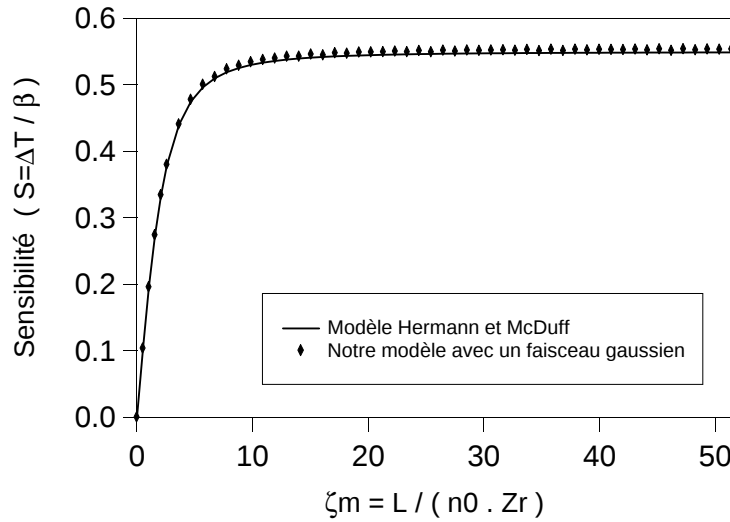


FIG. 3.16 – Sensibilité de la méthode de Z-scan en fonction des paramètres réduits introduit par Hermann et McDuff (ref. [74]).

La figure 3.16 montre le parfait accord entre cette expression analytique et la courbe extraite de nos simulations. La sensibilité croît bien linéairement tant que χ_m est inférieur à 3 et puis sature à $\ln 3$ pour les échantillons très épais. De plus nous avons tracé sur la figure 3.17 la transmission normalisée dans le cas de lame de silice de 0.5mm, 1mm, 5mm,

10mm et 20mm. A chaque fois la courbe obtenue par le modèle analytique (courbe en trait plain) se superpose parfaitement en forme et en amplitude à la courbe extraite de nos simulations (croix, triangles, points). Ainsi nous retrouvons parfaitement les résultats du modèle d'Hermann et McDuff dans le cas d'un faible déphasage photo-induit par un faisceau gaussien.

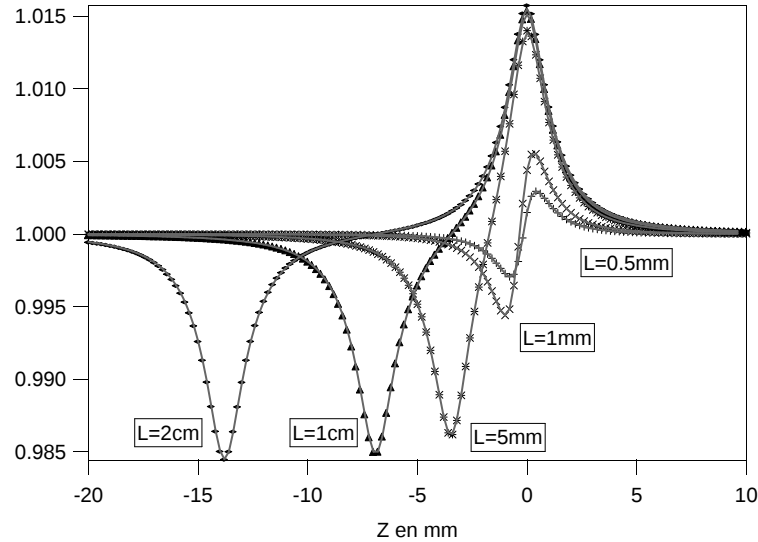


FIG. 3.17 – Transmission normalisée pour une lame d'indice 1.456, éclairée par un faisceau gaussien de $15\mu\text{m}$ de rayon au waist et une différence d'indice maximum de $\Delta n = 5 \cdot 10^{-6}$ pour 6 épaisseurs différentes.

Cas d'un fort déphasage non-linéaire

Un deuxième cas important à étudier est celui des forts déphasages non-linéaires induits dans un échantillon fin. Ce cas de figure a été étudié par Samad et al. qui ont développé un modèle analytique adapté. Nous avons déjà montré dans le chapitre 2.5 que le modèle de Samad et al. n'est plus équivalent à celui de Sheik-Bahae et al. pour des déphasages non-linéaires supérieurs à $\pi/2$. Pour de tels déphasages le modèle de Samad et al. rend compte de la forte dissymétrie des courbes de transmission normalisée contrairement au modèle de Sheik-Bahae et al. ou de Hermann et McDuff. La comparaison de nos résultats numériques avec ce modèle pour de tels déphasages semble pertinente pour valider notre modèle. Cependant le Modèle de Samad et al. n'est valide que pour des échantillons fins. L'hypothèse d'échantillons fins consiste à supposer le déphasage constant le long de

l'axe optique dans l'échantillon. Celui-ci est évalué par le paramètre $\Delta\phi_0 = \frac{2\pi}{\lambda} \Delta n L$. Les figures 3.18 et 3.19 représentent des simulations effectuées pour un fort déphasage de π obtenu sur une épaisseur d'échantillon de $0,2\text{ mm}$ et 2 mm avec notre algorithme et le modèle analytique de Samad et al. Sur ces figures, l'évolution de l'intensité sur l'axe optique dans l'échantillon a également été représentée dans le cas où le point de focalisation est sur la face d'entrée de l'échantillon, ceci dans le but de surveiller les limites de validité de nos simulations dans chacun des cas.

La figure 3.18 montre un très bon accord des deux modèles pour une lame de silice d'épaisseur 0.2 mm sondée avec un faisceau gaussien de waist de $15\mu\text{m}$, malgré le fait que l'intensité sur l'axe optique dans l'échantillon croît d'un peu moins de 15%. En effet, le modèle de Samad et al. ne prend pas en compte les éventuelles variations d'intensité dans l'échantillon, mais considère simplement que le faisceau incident est fortement déphasé lors de son passage dans l'échantillon. Cependant, il est raisonnable de penser que cet effet n'a que peu d'influence sur le comportement du faisceau en champ lointain devant l'effet déterminant du déphasage, toujours plus pénalisant en terme de perturbation de la propagation. Dans le cas où l'échantillon est réellement fin devant la distance de Rayleigh les deux modèles sont donc équivalents.

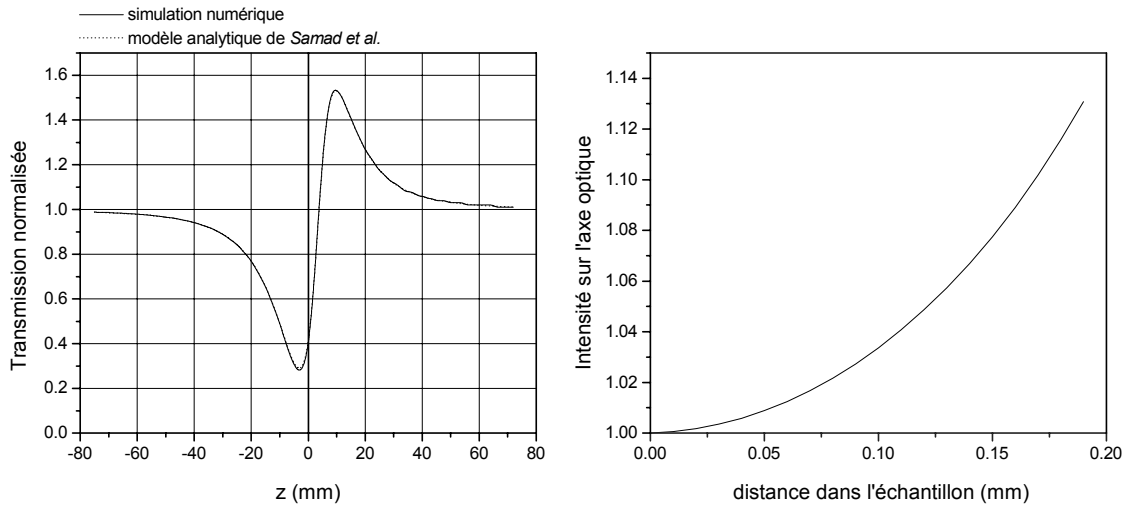


FIG. 3.18 – Comparaison de notre modèle numérique avec celui de Samad et al. pour un déphasage $\Delta\phi_0 = \pi$ et $L = 0,2\text{ mm}$

La figure 3.19 représente une simulation où ce même déphasage $\Delta\phi_0 = \pi$ est obtenu

pour une lame de 2 mm , c'est-à-dire dans le cas où l'hypothèse d'échantillon fin n'est plus valide. Le modèle de Samad et al. ne tient évidemment pas compte de la distance sur laquelle s'est accumulé le déphasage non-linéaire, et il prédit donc la même courbe de transmission normalisée. En revanche, nos simulations numériques montrent un léger creusement du minimum de la courbe de transmission normalisée. Par ailleurs, il faut rester très critique dans ce cas sur la validité des deux modèles. En effet, d'après nos simulations, dans le cas de la figure 3.19 l'intensité dans l'échantillon passe par une surintensité valant plus de 200 fois l'intensité initiale et un foyer intermédiaire apparaît dans l'échantillon. La puissance critique d'autofocalisation est donc largement dépassée et nous avons vu que dans ce cas, notre modèle tout comme celui de Feit et Fleck est insuffisant pour décrire avec précision ce qui se passe dans l'échantillon. En outre, d'un aspect purement pratique, ce genre de sur-intensité provoquerait sans aucun doute un endommagement de l'échantillon, rendant toute étude expérimentale de Z-scan impossible pour ce régime.

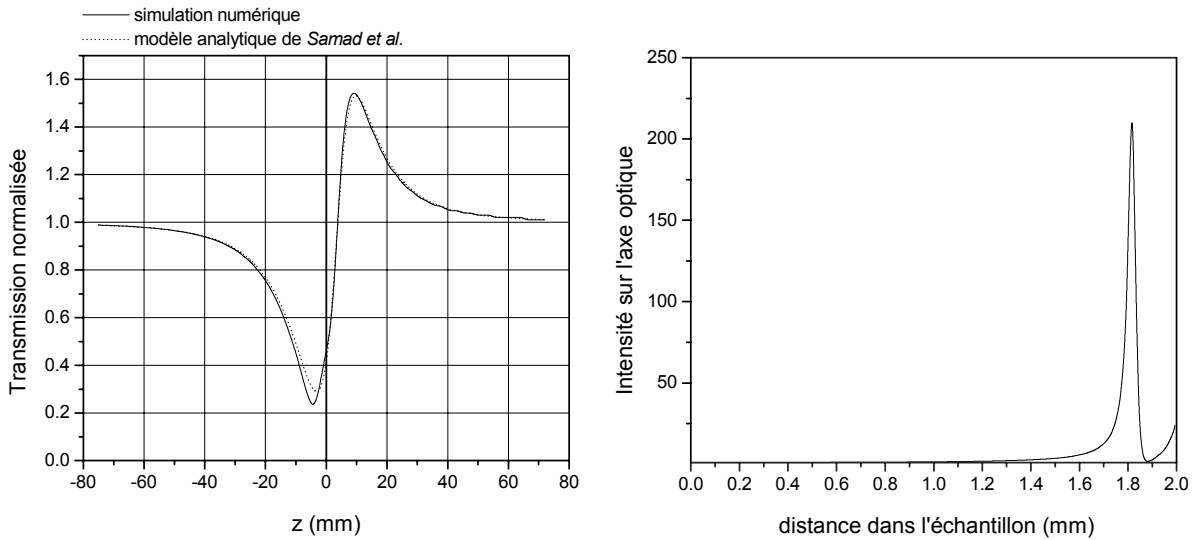


FIG. 3.19 – Comparaison de notre modèle numérique avec celui de Samad et al. pour un déphasage $\Delta\phi_0 = \pi$ et $L = 2\text{ mm}$

Notre algorithme permet donc de décrire tous les cas de figure de propagation en configuration de Z-scan et rejoint les différents modèles analytiques obtenus pour un faisceau incident gaussien. En outre, même si sa validité devient discutable dans le cas de forts déphasages non-linéaires, cette méthode numérique permet de surveiller l'évolution du faisceau dans l'échantillon et ainsi de mieux prévoir les risques de mauvaises

interprétations et d'erreur de modèle.

3.6.2 Importance du type de faisceau

Ici nous souhaitons mesurer les conséquences de l'hypothèse selon laquelle le faisceau est gaussien. En effet le modèle Sheik-Bahae et al. ou celui de Hermann et MacDuff sont très souvent utilisés pour exploiter les données expérimentales, alors que le faisceau n'est pas toujours gaussien TEM_{00} . En particulier pour des raisons de densité d'énergie sur l'élément de filtrage, il est moins contraignant de mettre en place un filtrage type “tache d'Airy tronquée” qu'un filtrage conventionnel. Or le faisceau ainsi mis en forme ne se comporte pas comme un faisceau gaussien comme nous allons le voir.

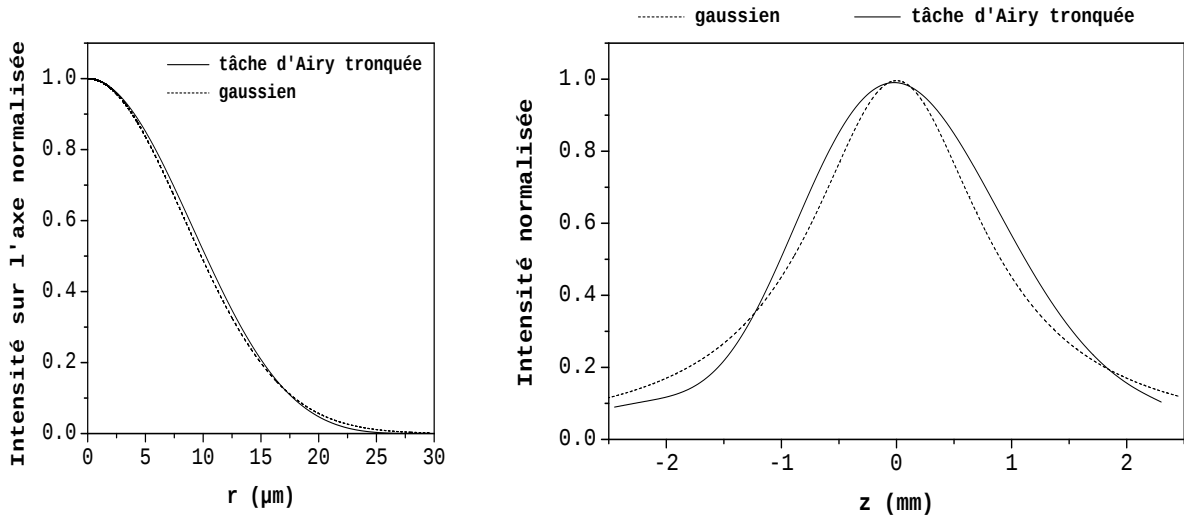


FIG. 3.20 – Faisceau gaussien et faisceau de type “tache d'Airy tronquée” de même “surface effective” au point de focalisation.

Soit les deux faisceaux représentés sur la figure 3.20. Le premier est un faisceau gaussien de rayon w_0 à $1/e^2$ de $12\mu\text{m}$ et le second est un faisceau de type “tache d'Airy tronquée” dont les paramètres de simulation ont été choisis de façon à ce qu'ils possèdent la même “surface effective” au waist, égale à : $\pi w_0^2/2$. C'est-à-dire qu'ils se superposent très bien dans le plan de focalisation (un tel écart de profil n'est pas mesurable par exemple sur un faisceau expérimental). Ainsi, pour la même puissance de faisceau, ils auront également une intensité sur l'axe optique identique. En revanche, on constate une profondeur de champ plus importante dans le cas du faisceau de type “tache d'Airy tron-

quée”. C’est-à-dire que le faisceau de type “tache d’Airy tronquée” diverge moins vite, et que son volume focal est plus allongée dans la direction de l’axe optique.

Tout d’abord, considérons le signal Z-scan obtenu grâce à notre modèle numérique avec un faisceau de type “tache d’Airy tronquée” pour un échantillon fin devant la longueur de Rayleigh du faisceau. Cette simulation est à comparer au modèle Sheik-Bahae et al. valide dans le cas d’un faisceau gaussien. Les courbes de transmission normalisée obtenues sont représentées à la figure 3.21. On y voit que, clairement une différence de transmission normalisée. L’amplitude de cette courbe est environ 1,4 fois supérieure pour le faisceau de type “tache d’Airy tronquée”, ce qui rejoint les résultats de Rhee et al. [79] qui avaient déjà prévu un tel gain de signal pour un faisceau de type “tache d’Airy tronquée” et un échantillon fin. On montre donc à quel point ce type de méthode est extrêmement sensible à la répartition spatiale transverse et longitudinale du faisceau. Ce genre de considération est rarement abordée dans la littérature, alors que le modèle gaussien est presque systématiquement adopté laissant un doute quant à la valeur quantitative des mesures effectuées. Rares sont les études qui présentent des mesures du profil transverse au point de focalisation et encore plus rares sont les études qui présentent l’évolution du profil spatial le long de l’axe optique.

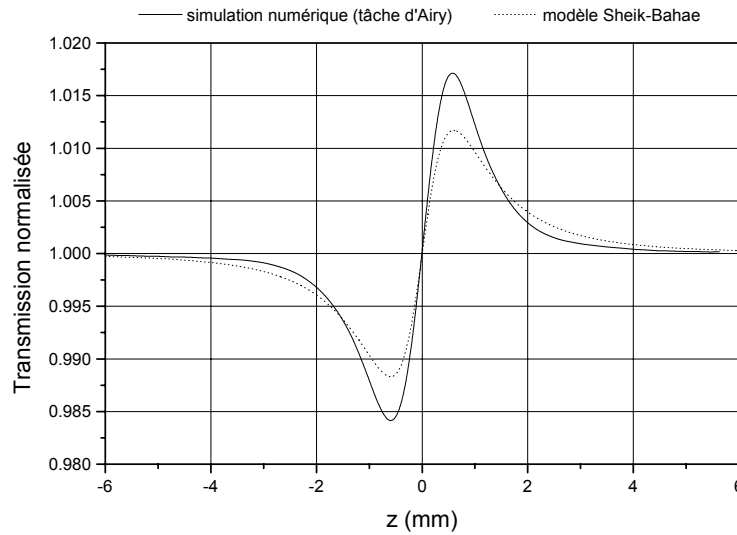


FIG. 3.21 – Transmission normalisée dans le cas d’un faisceau gaussien et d’un faisceau de type “tache d’Airy tronquée” de même “surface effective” au point de focalisation.

Maintenant intéressons nous à ce qu’il en est dans le cas d’un échantillon épais. Notre

algorithme nous a permis de calculer la transmission normalisée pour une succession d'épaisseurs croissantes d'échantillon toujours pour les deux faisceaux présentés au début de ce paragraphe. Ces simulations sont à comparer au modèle de Hermann et McDuff. La figure 3.22 donne la sensibilité de la méthode de Z-scan dans le cas du modèle gaussien de Hermann et McDuff et dans le cas d'un faisceau de type "tache d'Airy tronquée" de même section effective au waist.

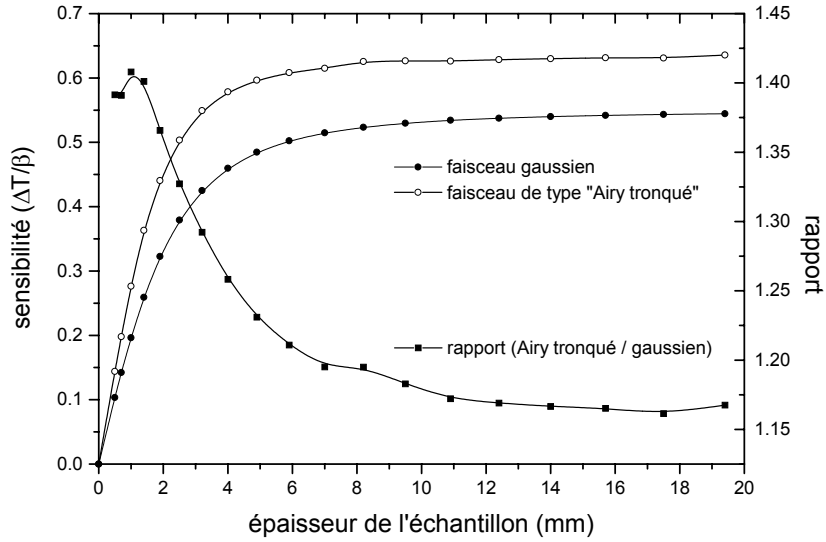


FIG. 3.22 – Sensibilité de la méthode pour un faisceau gaussien et un faisceau de type "tache d'Airy tronquée" (rayon à $1/e^2$ au point de focalisation : $15 \mu\text{m}$).

Il apparaît clairement que l'utilisation d'un faisceau de type "tache d'Airy tronquée" permet bien d'avoir une meilleure sensibilité, 1,4 fois supérieure dans le cas d'échantillons fins. En revanche, ce gain de sensibilité tend vers 1,16 lorsque l'échantillon devient très grand devant la profondeur de champ du faisceau. Cette étude de la sensibilité de la méthode permet de constater que, même dans le cas d'un faisceau non-gaussien contenant peu de modes, faire une approximation gaussienne peut induire une erreur de 40% sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire. En outre, cette erreur tend vers 16% lorsque l'épaisseur de l'échantillon est très supérieure à la profondeur de champ du faisceau. Dans le cas intermédiaire d'une épaisseur de l'ordre de la profondeur de champ du faisceau, l'erreur commise varie entre ces deux valeurs. On comprend alors qu'il est nécessaire d'utiliser un modèle adapté, comme le nôtre, qui tient compte de la vraie nature du faisceau pour éviter des erreurs pouvant aller jusqu'à 40%. En outre, dans le cas d'un faisceau possédant encore plus de modes, cette erreur risque d'être encore plus élevée,

tout comme le prévoit Rhee, avec un faisceau de type “top-hat” dans le cas d’échantillons fins (l’erreur peut atteindre ainsi 250%).

3.6.3 Utilisation de la méthode de Z-scan dans son domaine de linéarité

Nous souhaitons ici savoir quelle configuration expérimentale choisir. Nous avons vu que lorsque le déphasage non-linéaire dans l’échantillon devient trop important, les courbes de transmission normalisée perdent leur symétrie. Le minimum et le maximum de la transmission normalisée évoluent différemment lorsque la variation d’indice maximale Δn ($\Delta n = \gamma I(0, 0)$) devient trop importante comme le montre la figure 3.23. De plus, l’évolution des extrema de transmission normalisée n’est plus linéaire par rapport à Δn .

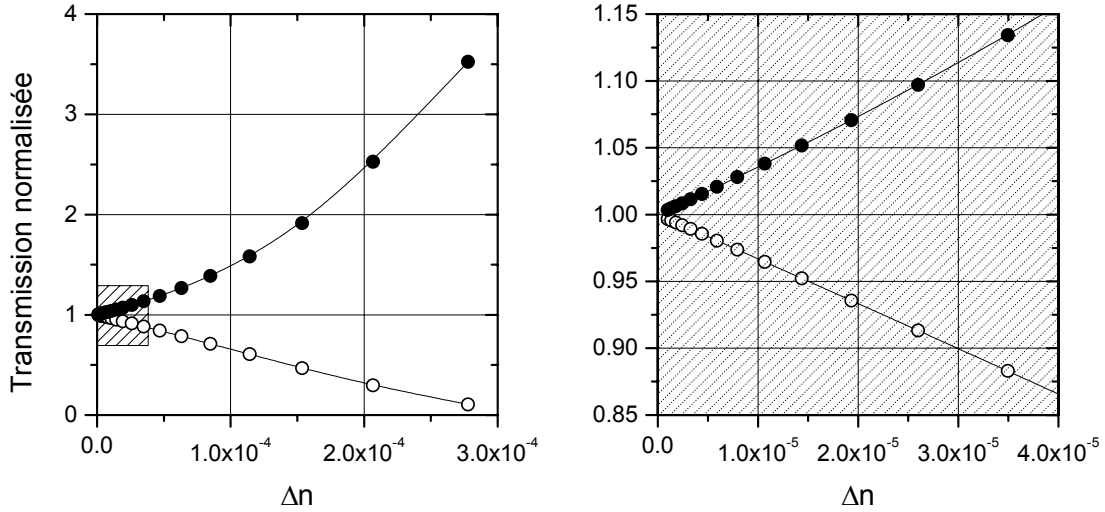


FIG. 3.23 – Evolution des extrema de transmission normalisée en fonction de la variation d’indice Δn dans le cas d’un faisceau de type “tache d’Airy tronquée” et d’un échantillon de 5 mm

A l’inverse, pour de faibles déphasages, c’est-à-dire pour une variation d’indice maximale Δn inférieure à 10^{-5} , la courbe est symétrique et l’amplitude pic-vallée de la transmission normalisée T_{pv} évolue de proportionnellement à Δn . En outre, pour cet ordre de grandeur de la variation d’indice Δn , nous remarquons que le rapport $(T(z) - 1)/\Delta n$ ne dépend pas de Δn , les courbes ainsi normées se superposent exactement. Ainsi, lorsque la variation d’indice Δn reste inférieure à 10^{-5} , une seule simulation suffit et la valeur de Δn

peut être ajustée de la manière suivante pour concorder avec les résultats expérimentaux :

$$T(z, \Delta n_{exp}) = 1 + \frac{\Delta n_{exp}}{\Delta n_{simu}} (T(z, \Delta n_{simu}) - 1) \quad (3.73)$$

Les résultats précédents obtenus pour un faisceau de type “tache d’Airy tronquée” sont également confirmés pour un faisceau gaussien. En effet pour un échantillon de $5mm$ d’indice 1,456 la figure 3.24 montre bien que le signal de Z-scan reste linéaire quel que soit le waist du faisceau incident entre $5\mu m$ (configuration échantillon très épais) et $25\mu m$ (configuration échantillon fin) et cela pour des valeurs du paramètre $\Delta n = \gamma I(0,0) < 1.4 \cdot 10^{-5}$.

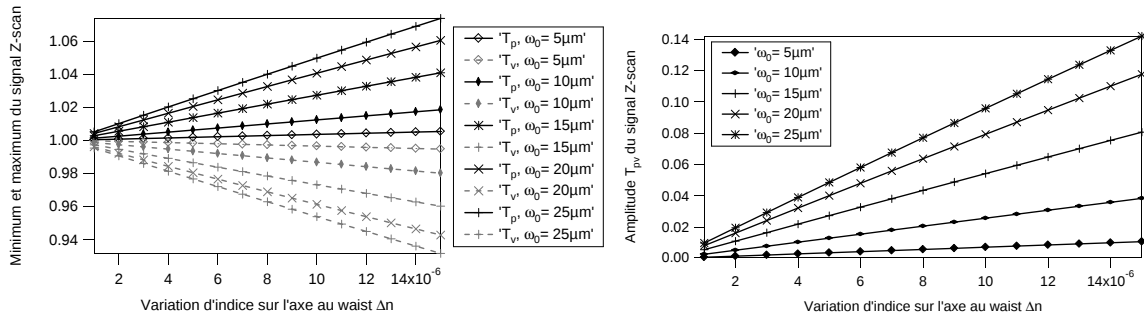


FIG. 3.24 – Symétrie des minima T_v et maxima T_p de la courbe de transmission normalisée et linéarité de la méthode de Z-scan dans le cas d’un faisceau gaussien de waist supérieur à $5\mu m$ et une variation d’indice au waist sur l’axe optique inférieur à $\Delta n = 1.4 \cdot 10^{-5}$.

A l’inverse, dans le cas de forts déphasages, il est nécessaire d’effectuer de nouvelles simulations tant que l’ajustement avec les résultats expérimentaux n’est pas parfait. Ce qui rend l’interprétation des mesures plus longue, il est donc préférable de se placer dans le premier cas de figure pour raccourcir cette étape de calculs.

3.6.4 Effet de la diffusion et de l’absorption

Diffusion lumineuse

La qualité de l’échantillon est un paramètre très important dans les expériences Z-scan. En effet si l’état de surface n’est pas parfait ou s’il existe des inhomogénéités dans le volume, l’échantillon va diffuser la lumière selon une indicatrice dont l’ouverture angulaire est fonction de la taille du faisceau. Ces pertes par diffusion sont donc à l’origine d’une

variation de transmission normalisée qui s'ajoute à la variation due au phénomène non-linéaire, et la déformation peut être considérable, rendant la métrologie Z-scan impossible. Une interprétation intuitive de ces variations peut être envisagée dans certains cas simples, mais elle admet vite des limites. C'est pour cela que nous avons cherché à simuler à l'aide de notre algorithme l'influence de la diffusion dans plusieurs cas de figures.

La diffusion des faces de l'échantillon a été modélisée dans notre code numérique par la multiplication de l'amplitude complexe du champ par un terme de phase et/ou d'amplitude aléatoire. L'échantillonnage étant logarithmique et très serré, nous avons supposé que les valeurs prises par ce facteur de phase ou d'amplitude en des points de l'échantillonnage distants de moins de L_s étaient corrélées. Cette distance L_s définit donc la "taille" des défauts présents sur l'échantillon diffusant et est un paramètre des simulations que nous avons fait varier d'une courbe à l'autre.

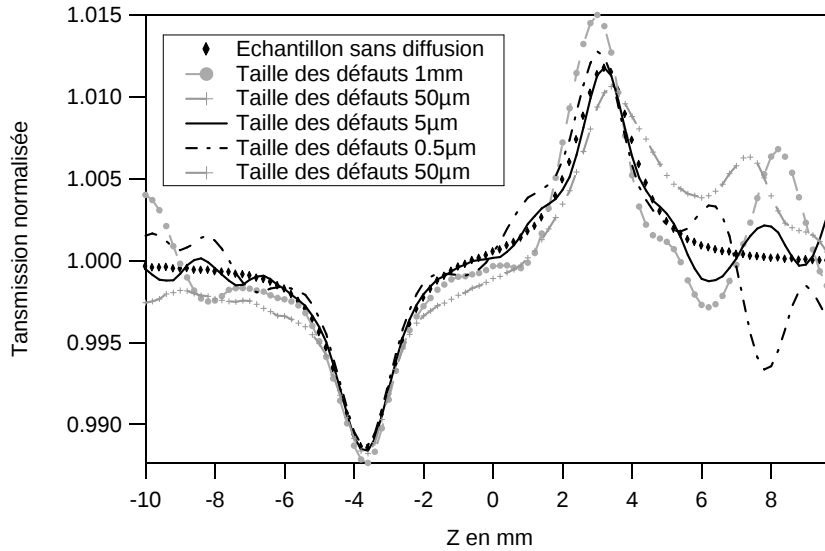


FIG. 3.25 – *Transmission normalisée en présence de défaut aléatoirement distribués partiellement opaques (Transmission minimum de 99%) sur la face avant de l'échantillon (indice 1.45, épaisseur 1cm). Simulation faite pour différentes taille de "poussières" et pour un faisceau incident de type "tache d'Airy tronquée" (rayon à $1/e^2$ au point de focalisation : $15\mu m$).*

Nous avons simulé la présence de poussières sur l'échantillon comme un facteur d'amplitude aléatoirement réparti sur les faces de l'échantillon. La présence de rayures ou de défauts de polissage est modélisée comme un défaut de phase aussi aléatoirement réparti.

Dans le cas des simulations présentées sur les figures 3.25 et 3.26, l'échantillon est en silice et son épaisseur est de 1cm , le faisceau d'analyse est de type "tache d'Airy tronquée" de $15\mu\text{m}$ de rayon à $1/e^2$ au waist. Ces figures montrent que les faibles défauts envisagés perturbent fortement la courbe de transmission normalisée, surtout loin du waist, lorsque le faisceau est plus grand et intercepte plus de défauts.

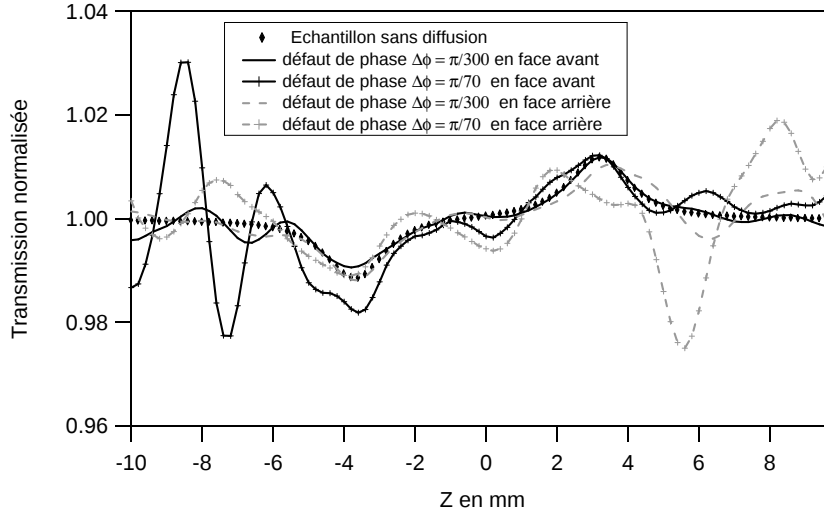


FIG. 3.26 – *Transmission normalisée en présence de défaut de phase de $50\mu\text{m}$ aléatoirement distribués sur l'une des faces de l'échantillon (indice 1.45, épaisseur 1cm). Simulation faite pour différents écarts-types $\Delta\phi$ de la distribution du défaut de phase et pour un faisceau incident de type "tache d'Airy tronquée" (rayon à $1/e^2$ au point de focalisation : $15\mu\text{m}$).*

Ce problème a déjà été traité dans la littérature, et une méthode "permet de s'affranchir" de la diffusion. Elle consiste à enregistrer une première courbe de transmission normalisée C_1 à forte intensité, puis une seconde C_2 à faible intensité c'est-à-dire sans effets non-linéaires. C_1 contient l'information de la non-linéarité, perturbée par la présence de diffusion, information justement contenue dans la courbe C_2 . La courbe débruitée C_d est alors supposée être donnée par la relation $C_d = 1 + C_1 - C_2$. Nous avons cherché à valider ou infirmer cette opération à l'aide de notre modèle. La figure 3.27 montre que la courbe ainsi calculée (ligne continue noire) ressemble bien à la transmission normalisée théorique (losanges noirs) mais elles ne se superposent pas. La courbe calculée est en fait dilatée par rapport à la courbe théorique. Dans le cas particulier de la simulation présentée cette dilatation est de 40%. L'amplitude de la courbe de Z-scan ne peut donc plus

être reliée quantitativement à la non-linéarité. Ainsi une mesure quantitative de l'indice non-linéaire par la méthode de Z-scan n'est pas possible si l'échantillon diffuse.

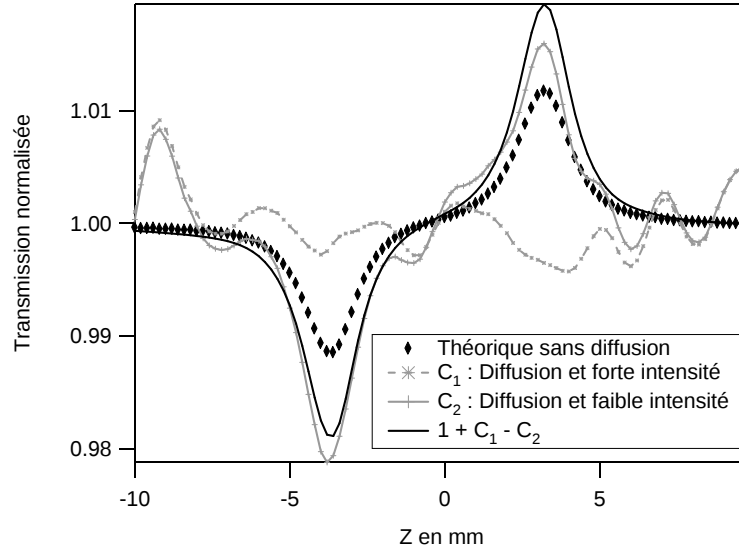


FIG. 3.27 – Tentative de suppression de la diffusion des courbes de transmission normalisée : la courbe obtenue est dilatée par rapport à la courbe théorique rendant impossibles les mesures quantitatives.

Absorption linéaire

Dans le développement de leur modèle analytique, Hermann et McDuff font l'hypothèse d'un coefficient d'absorption linéaire α_0 nul. Dans le cas d'une silice possédant une très faible quantité d'impuretés, cette condition est vérifiée car le coefficient d'absorption linéaire α_0 est de l'ordre de 10^{-5} cm^{-1} dans la zone de transparence, c'est-à-dire entre $0,2 \mu\text{m}$ et environ $2 \mu\text{m}$. Notons que vers $1,4 \mu\text{m}$, il est courant d'observer un pic d'absorption dans la silice, dû à la présence de liaisons -OH [41]. Pour la plupart des verres silicates le coefficient d'absorption reste inférieur à 10^{-2} cm^{-1} entre 500 et 1000 nm et inférieur à 10^{-1} cm^{-1} à 2000 nm, mais il peut atteindre quelques unités dans le très proche UV, voire, bien évidemment, de très grandes valeurs hors des zones de transparence du matériau. Pour des matériaux vitreux particuliers comme des chalcogénures, des verres dopés ou des verres lasers, l'absorption peut atteindre de très grandes valeurs et ces valeurs sont également très dépendantes de la longueur d'onde [41].

Notre modèle numérique peut intégrer l'effet de l'absorption linéaire sur les courbes de transmission normalisée comme nous l'avons rapidement évoqué. Par définition du coefficient d'absorption linéaire, il suffit de multiplier le terme de phase $L(r)$ de notre algorithme de résolution par le terme d'absorption : $\exp(-\alpha_0 \Delta z)$.

Des courbes de transmission normalisée obtenues sont tracées sur la figure 3.28 pour un faisceau gaussien de rayon à $1/e^2$ égal à $15 \mu m$, d'un échantillon épais de $5 mm$ et d'une variation d'indice $\Delta n = 10^{-5}$. La première courbe représente le cas où l'absorption est nulle (modèle d'Hermann et McDuff). Les deux autres courbes ont été simulées numériquement avec $\alpha_0 = 0,1 cm^{-1}$ et $\alpha_0 = 0,2 cm^{-1}$.

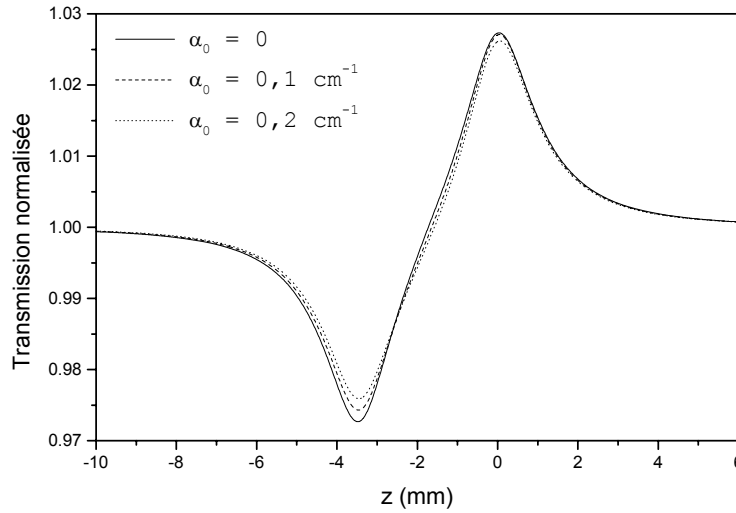


FIG. 3.28 – *Simulations numériques en présence d'absorption linéaire.*

L'absorption linéaire a tendance à réduire la profondeur du minimum de la courbe de transmission normalisée. Cet effet est tout à fait compréhensible puisque ce point est obtenu lorsque le faisceau est focalisé sur la face arrière de l'échantillon. Pour cette position, l'intensité du faisceau dans le volume focal est plus faible étant donné que le faisceau a parcouru la quasi totalité de l'échantillon absorbant, ce qui induit un déphasage non-linéaire plus faible que s'il n'y avait pas eu d'absorption. Cet effet reste faible puisqu'il ne change que d'environ 10% la valeur de la transmission normalisée pour une valeur de l'absorption environ 10 fois supérieure à celle de la plupart des verres optiques.

En revanche, il faudra être très prudent pour des longueurs d'ondes limites ou pour

des échantillons épais obtenus à partir de matériaux dopés comme des verres laser. Cet effet, pourtant linéaire, peut fortement déformer les courbes de transmission normalisée et en fausser l'interprétation. Par ailleurs, cet effet aura la même influence quelle que soit la valeur de l'indice non-linéaire et l'intensité incidente du faisceau, c'est-à-dire qu'un travail à forte intensité dans un échantillon très non-linéaire ne masquera pas l'influence de l'absorption linéaire. Dans le cas d'une forte absorption linéaire³, il est indispensable de tenir compte du phénomène puisque l'on ne peut pas s'en affranchir.

Absorption non-linéaire

Ce cas de figure est aussi très facilement intégrable à notre modèle. En effet pour tenir compte de l'absorption non-linéaire il suffit de multiplier le terme de phase $L(r)$ par un terme du type $\exp(-\Delta\alpha \Delta z |U(r, z)/U(0, 0)|^2)$, où $\Delta\alpha = \alpha_2 I(0, 0)$ est la variation d'absorption maximale induite dans l'échantillon au point $(r, z) = (0, 0)$. Comme pour extraire γ à partir du paramètre Δn , le coefficient d'absorption non-linéaire α_2 , exprimé en cm/W , pourra être déterminé en divisant $\Delta\alpha$ par l'intensité sur l'axe optique en $z = 0$, mesurable expérimentalement.

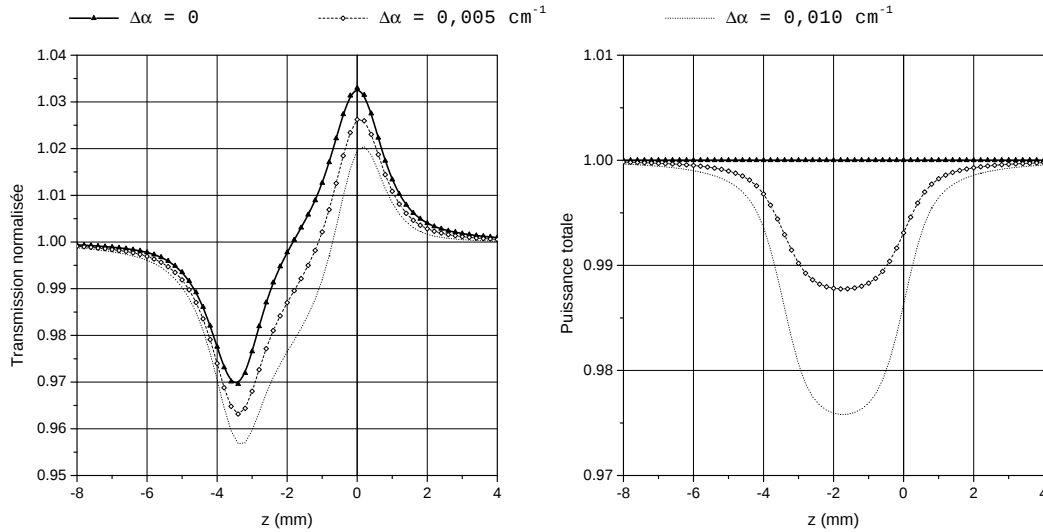


FIG. 3.29 – Simulations numériques en présence d'absorption non-linéaire (faisceau de type "tache d'Airy tronquée" de rayon $15\mu\text{m}$ à $1/e^2$, échantillon de 5mm).

La figure 3.29 représente des simulations numériques effectuées en présence d'absorption non-linéaire. L'indice de réfraction non-linéaire a été choisi égal à $\Delta n = 10^{-5}$. L'évo-

³typiquement supérieure à $0,2\text{cm}^{-1}$ pour un échantillon de 5mm . En effet, de telles conditions engendrent une réduction d'intensité dans l'échantillon égale à $1 - \exp(-0,2 \times 0,5) \approx 10\%$

lution de la puissance totale du faisceau à la sortie de l'échantillon a également été représentée.

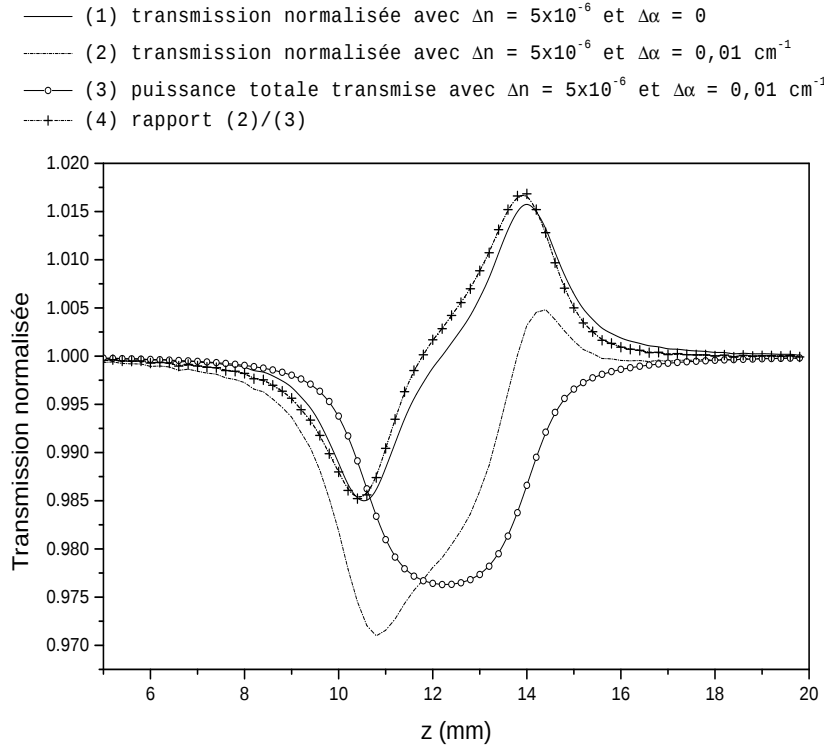


FIG. 3.30 – *Simulations numériques en présence ou non d'absorption non-linéaire, puissance transmise normalisée et rapport (faisceau de type "tache d'Airy tronquée" de rayon $15\ \mu\text{m}$ à $1/e^2$, échantillon de $5\ \text{mm}$).*

L'effet de l'absorption non-linéaire déforme fortement les courbes de transmission normalisée. Pour déterminer conjointement les paramètres Δn et $\Delta\alpha$, il est nécessaire de mesurer préalablement l'évolution de la puissance totale en sortie de l'échantillon, uniquement sensible à l'absorption non-linéaire, pour déterminer $\Delta\alpha$. Cette valeur peut être ensuite utilisée pour simuler les courbes de transmission normalisée et en déduire Δn .

La figure 3.30 montre qu'il est nécessaire de procéder ainsi pour déterminer conjointement les deux paramètres Δn et $\Delta\alpha$. Lorsque la courbe de transmission normalisée est trop déformée par le phénomène d'absorption non-linéaire, le rapport entre la transmission normalisée et la puissance totale ne permet pas de retrouver exactement la courbe de transmission en l'absence d'absorption non-linéaire. Ne pas procéder ainsi suppose que

l'absorption non-linéaire n'a aucune influence sur le déphasage induit par la réfraction non-linéaire. Or, cette approximation est abusive lorsque le phénomène d'absorption devient important et ce pour les mêmes raisons que dans le cas de l'absorption linéaire traité précédemment.

3.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons commencé par discuter du caractère vectoriel du champ électromagnétique. Dans le cas où le faisceau n'est pas trop focalisé comme c'est le cas en pratique sur notre banc de mesure, les effets vectoriels sont négligeables et un calcul scalaire est parfaitement valide. Nous avons ensuite détaillé le principe de notre modèle numérique servant à exploiter les mesures réalisées sur notre banc de mesure Z-scan.

Grâce à une simulation du faisceau incident utilisant l'intégrale de Fresnel, nous pouvons simuler la propagation de tout type de faisceau incident, et, notamment, d'un faisceau de type "tache d'Airy tronquée". Nous avons ainsi pu remarquer que le profil spatial transverse d'un tel faisceau est très proche de celui d'un faisceau gaussien de même waist mais qu'en revanche, les deux faisceaux ne divergent pas de la même façon. Le faisceau de type "tache d'Airy tronquée" diverge plus rapidement, mais à la sortie du laser, il présente un volume focal plus important, d'environ 20%. Ensuite la propagation de l'amplitude complexe est propagée par une méthode pas à pas dans l'échantillon non-linéaire, ce qui permet de simuler les courbes de transmission normalisée. Nous faisons l'hypothèse de la symétrie cylindrique, ce qui est relativement facile à obtenir expérimentalement à l'aide d'un filtrage spatial. Cette hypothèse permet l'utilisation d'un algorithme de transformation de Hankel rapide, parfaitement adapté à ce genre de problème et rendant les temps de simulation acceptable.

Le modèle numérique ainsi développé permet de propager un faisceau quelconque dans un matériau d'épaisseur quelconque⁴, éventuellement absorbant et possédant des non-linéarités complexes d'amplitude relativement importante, pouvant provoquer des variations d'indice de réfraction photo-induites dépendant de l'intensité suivant une loi

⁴A condition toutefois que les interférences entre les faces de l'échantillon soient négligeables. En effet la méthode de résolution pas à pas de la propagation non-linéaire dans l'échantillon interdit ce cas de figure, l'onde se propageant dans le sens rétrograde étant négligée. L'épaisseur de l'échantillon étudié ne doit donc pas être trop faible, ce qui ne nous permettra pas par exemple d'étudier l'indice non-linéaire des matériaux en couche mince.

arbitraire. Dans ces conditions, tout type de configuration de Z-scan peut être envisagé.

Nous avons dans un premier temps vérifié notre modèle dans les cas de figure déjà étudiés. Nous avons ensuite confronté les modèles existants à des cas de figures mettant en défaut une de leurs hypothèses afin de tester leur robustesse. Il en ressort notamment qu'un faisceau de type "tache d'Airy tronquée" ne donne pas du tout le même signal Z-scan qu'un faisceau gaussien, il permet un gain de sensibilité pour la méthode de Z-scan variant de 1,4 à 1,16 suivant que l'échantillon est fin ou épais devant la profondeur de champ du faisceau. Lorsque l'approximation gaussienne est employée abusivement, d'importantes erreurs peuvent être commises sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire. Ainsi, comme on pouvait s'y attendre avec une telle méthode, le profil spatial du faisceau incident a une grande influence sur les courbes de transmission normalisée, ce qui est, finalement, peu mis en avant dans la plupart des études de Z-scan.

Par ailleurs, l'influence d'autres paramètres comme la diffusion, l'absorption linéaire ou l'absorption non-linéaire a pu être étudiée, afin de mettre en garde sur leur influence et la manière d'exploiter les courbes de transmission normalisées dans ce cas. Par exemple, il est clair que la diffusion de l'échantillon doit être quasi-inexistante afin de faire des mesures quantitatives. La qualité optique des échantillons doit être assurée avant toute expérience. De même il apparaît, qu'une étude de Z-scan dans un échantillon très absorbant nécessite l'utilisation d'un modèle comme le nôtre, qui peut tenir compte de l'absorption linéaire ou non-linéaire.

Chapitre 4

Mise en place du dispositif expérimental

4.1 Introduction

Les chapitres précédents nous ont permis de nous familiariser avec le principe de la méthode de Z-scan en soulignant ses avantages et quelques unes de ses limites. Afin de réaliser une mesure absolue précise de l'indice de réfraction non-linéaire, il est indispensable d'avoir un banc de mesure dont chaque paramètre est connu et contrôlé avec précision. Nous venons de voir au chapitre précédent que cette méthode de mesure est particulièrement sensible à la répartition spatiale du faisceau incident dans toute la zone de focalisation et non uniquement dans le plan focal. De même, comme nous cherchons à différencier les différentes contributions de l'indice non-linéaire, le comportement temporel des impulsions doit être contrôlé avec soin.

Dans le chapitre 2, nous avons vu que l'indice de réfraction non-linéaire de la silice est estimé à environ $3 \times 10^{-20} m^2/W$ en régime femtoseconde. De manière générale l'indice non-linéaire des verres reste faible (quelques $10^{-20} m^2/W$). Dans une optique de métrologie précise de ces faibles indices de réfraction non-linéaires, nous allons rapidement constater qu'il est nécessaire de parfaitement maîtriser la mise en place du montage, d'une part afin d'avoir une sensibilité suffisante et d'autre part pour pouvoir éviter tout artefact de mesure ou mauvaise interprétation des résultats.

Nous commencerons ce chapitre par une revue des sources laser utilisées. Une bonne

connaissance de leur fonctionnement, de leurs qualités et de leurs points faibles est indispensable pour déterminer le montage à adopter et pour évaluer les erreurs commises sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire. Nous décrirons ensuite leur mise en forme et leur caractérisation spatio-temporelle, ce qui nous permettra de faire une présentation détaillée du banc de mesure développé à l'institut Fresnel pour répondre à toutes ces exigences.

4.2 Sources laser utilisées

Afin de réaliser l'étude de l'indice non-linéaire en fonction de la durée des impulsions, plusieurs lasers très différents ont dû être utilisés. Les caractéristiques d'un oscillateur femtoseconde et d'un laser nanoseconde Q-switch sont par exemple très différentes de par leur conception. Le premier repose sur la mise en phase d'un très grand nombre de modes décalés en longueur d'onde supportés par la cavité, alors que le second repose sur la modulation du gain où des pertes dans la cavité. Nous allons rappeler très brièvement le principe de fonctionnement des lasers utilisés avant de donner leurs caractéristiques.

4.2.1 Oscillateur sub-picoseconde

Tout d'abord, nous savons d'après les propriétés générales de la transformée de Fourier que pour produire une impulsion de durée Δt , il faudra disposer d'un spectre de largeur spectrale $\Delta\omega$ vérifiant l'inégalité $\Delta t \Delta\omega > K$ (avec K de l'ordre de l'unité et ces largeurs temporelle et spectrale étant des écarts quadratiques moyens). La première condition pour pouvoir obtenir des impulsions courtes est donc de disposer d'un milieu amplificateur dont la courbe de gain est large. Le matériau utilisé dans notre source sub-picoseconde est le saphir dopé au titane, qui présente une bande de gain s'étendant de 700 nm à plus de $1\mu m$. Ce matériau a été inventé en 1986 et est encore actuellement le plus couramment utilisé dans les oscillateurs ou les amplificateurs femtosecondes.

Une source laser émetant un large spectre possède nécessairement un grand nombre de modes longitudinaux. En effet dans le cas d'une cavité laser dont la longueur est de l'ordre de $1.5 m$, l'intervalle spectral libre $c/2L$ de la cavité vaut 100 MHz. Comme le spectre émis par le laser est le produit de la courbe de gain de largeur $\Delta\omega$ par le peigne de Dirac du filtre Fabry-Perot que forme la cavité, la lumière émise par le laser est composée de l'ensemble des fréquences résonantes du Fabry-Perot dont le gain est supérieur

aux pertes. Ces différentes fréquences correspondent aux modes longitudinaux de la cavité. La largeur $\Delta\omega$ de la courbe de gain du milieu amplificateur pouvant atteindre une centaine de THz, on aura donc jusqu'à un million de modes longitudinaux intervenant dans la production d'impulsions courtes. Dans le domaine temporel, cela signifie que le champ émis est le produit de convolution entre un champ de durée Δt faible et un peigne de Dirac de période $2L/c$, c'est-à-dire que le laser produit un train d'impulsions. Le temps entre deux impulsions correspond simplement au temps d'aller-retour des impulsions dans la cavité (le temps que met la lumière pour parcourir deux fois la longueur L de la cavité).

Cependant aucune relation de phase particulière entre ces modes n'est imposée a priori de façon naturelle. Le champ produit par la source laser est alors une somme de sinusoides de fréquences différentes et aléatoirement déphasées. Les interférences entre les très nombreux modes de la cavité ne sont donc jamais constructives au cours du temps. Le laser présente alors des fluctuations rapides d'intensité, sans que l'une d'elle ne domine et ne soit bien séparée temporellement des autres. La génération d'impulsions courtes repose sur la mise en phase des modes de la cavité laser, on parle de blocage de modes. En d'autres termes, il faut forcer le laser à fonctionner en régime impulsionnel. On distingue deux grands types de blocage de modes : les mécanismes actifs et les mécanismes passifs. Dans le cas du blocage de mode actif, le verrouillage des modes se fait grâce à un modulateur électro-optique ou accousto-optique qui est commandé par un signal périodique externe et dont la période est synchronisé sur le temps d'aller-retour de la lumière dans la cavité.

Dans notre cas, les modes sont "bloqués en phase" de façon passive en tirant parti de l'effet Kerr optique intervenant dans le cristal de saphir : cette technique est appelée blocage des modes par lentille de Kerr ou encore "Kerr lens modelocking". Nous avons vu, que la présence de l'effet Kerr dans un matériau conduit à l'autofocalisation du faisceau s'y propageant. Comme cet effet est proportionnel à la densité de puissance du faisceau, il est significatif seulement lorsque le laser fonctionne en régime impulsionnel puisque la puissance crête est alors suffisante. Si l'on place une fente à une distance appropriée du cristal de saphir, le faisceau correspondant au fonctionnement impulsionnel et donc focalisé par la lentille Kerr subit moins de pertes que le faisceau correspondant au fonctionnement continu. Le mode de fonctionnement impulsionnel est donc favorisé. Cette fente est notée "slit" sur la figure 4.1 et est placée juste devant le coupleur de sortie "OC" du laser. Le réglage du centrage et de l'ouverture de cette fente permet de se placer dans

une configuration où seul le mode de fonctionnement impulsionnel est associé à un gain de la cavité supérieur aux pertes. Le fonctionnement du laser en régime continu est rendu impossible et l'on obtient un train d'impulsions brèves.

Au cours de sa propagation une impulsion s'étale temporellement. En effet du fait de la dispersion chromatique des milieux traversés¹ les différentes longueurs d'ondes qui composent l'impulsion ne se propagent pas avec la même constante de propagation. Si on ne prend pas garde à ce phénomène peu de modes seront bloqués efficacement et les impulsions ainsi produites seront relativement larges temporellement. Les deux régimes de fonctionnement impulsionnels du laser Mira900 (COHERENT INC.) dont nous disposons se distinguent sur ce point. Le mode picoseconde ne met pas en œuvre de système permettant de compenser la dispersion de vitesse de groupe des impulsions. A l'opposé en mode de fonctionnement sub-picoseconde un système de deux prismes de silice tête-bêche permet d'introduire une dispersion négative et ainsi d'annuler la dispersion globale de la cavité laser. Le fonctionnement de ce compensateur a été montré par Fork et Martinez [148] en 1984. Il consiste à séparer géométriquement les différentes composantes spectrales de l'impulsion et d'en allonger le chemin optique des rapides. En ajustant correctement la distance entre les prismes on peut ainsi compenser la dispersion du reste de la cavité et éviter l'élargissement de l'impulsion. Notons qu'il existe une seconde technique qui consiste à utiliser des miroirs diélectriques spécialement conçus pour introduire une phase quadratique dont la courbure s'oppose à celle résultant de la propagation dans le reste de la cavité laser.

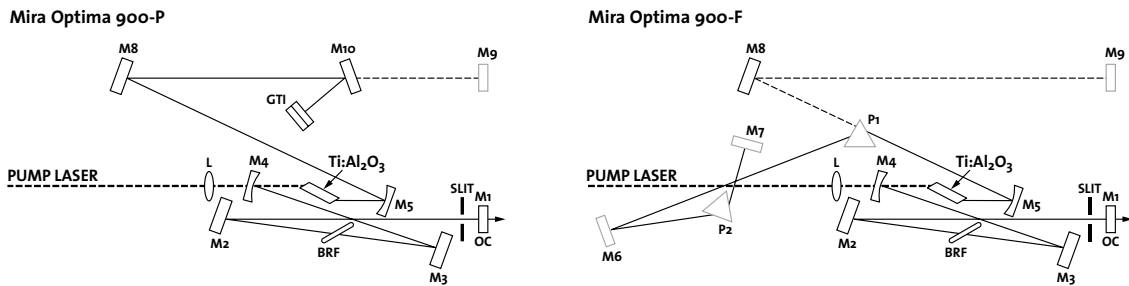


FIG. 4.1 – Oscillateur Saphir:Titane picoseconde et sub-picoseconde, Mira900 de COHERENT, INC.. Le blocage de mode est assuré par effet Kerr. De plus, en mode femtoseconde, la compensation de dispersion est assurée par l'ensemble des deux prismes, produisant une dispersion négative.

¹Il faut aussi tenir compte de la dispersion de mode due à la structure en optique guidée.

La figure 4.1 présente le laser Mira900, dont nous disposons pour réaliser les études en régime picoseconde et sub-picoseconde. Ce laser est accordable en longueur d'onde de 700 nm à 900 nm via le réglage d'un filtre biréfringent noté "*BRF*". L'énergie délivrée est d'environ 5 nJ par impulsion à 800 nm pour une puissance pompe de 5 W fournie par un laser VERDI (Yag continu doublé intra cavité et pompé par diodes). Une telle énergie n'est pas suffisante pour notre application. C'est pourquoi nous avons adjoint un "Cavity dumper" permettant d'amplifier les impulsions. Cette technique d'amplification a été introduite pour des lasers à colorants impulsionnels. On peut citer par exemple la génération d'impulsions de 48 fs et de 20 nJ en 1988 par un tel système [149]. Ramaswamy et al. [150] furent les premiers à produire des impulsions de 50 fs et une énergie de 100 nJ avec un laser Ti:saphir cavity-dumpé et cela pour un taux de répétition variable. Ils ont aussi montré que le blocage de mode restait stable malgré les fortes perturbations que produit par le processus d'extraction des impulsions (dumping en anglais).

La mise en place du "cavity dumper", débute par le remplacement du coupleur de sortie du laser par un miroir fortement réfléchissant. Cela a pour effet de diminuer les pertes et d'augmenter le facteur de qualité de la cavité. Les impulsions présentes dans cette nouvelle cavité sont d'autant plus intenses que l'augmentation du facteur de qualité de la cavité n'a été important. Le principe du "cavity dumper" est d'extraire efficacement l'une de ces impulsions grâce à un acousto-optique toutes les N impulsions, N étant un entier que l'on peut faire varier. L'amplificateur dont nous disposons est le système commercial PULSE SWITCH de la société APE, INC.. Il permet un gain qui atteint la valeur de 10 environ tant que le taux de répétition est inférieur à 100 kHz , au delà le gain est moindre. Ce système a aussi l'avantage de permettre l'ajustement du taux de répétition sur une plage allant d'environ 200 Hz à 10 MHz .

4.2.2 Lasers nanoseconde Q-switch

La forme la plus courante d'émission laser impulsienne s'obtient par la méthode du déclenchement dit Q-switch. Un système permettant de commuter en quelques nanosecondes le facteur de qualité Q est placé dans la cavité. Dans un premier cas les pertes sont très supérieures au gain de sorte qu'aucune émission laser n'est possible et dans un second cas le facteur de qualité de la cavité est à l'inverse très grand.

Supposons qu'au départ, que les pertes de la cavité soient très grandes de sorte qu'il n'y ait aucune contre-réaction positive de la part de la cavité. Le pompage du milieu amplificateur instaure progressivement une inversion de population très importante, c'est-

à-dire que beaucoup de molécules vont se trouver dans un état excité et peu dans l'état fondamental. Les pertes de la cavité étant très importantes, cette inversion de population est uniquement limitée par l'émission spontanée ou à la fluorescence. Son niveau est donc bien supérieur à celui du fonctionnement continu qui est tel que le gain global sur un aller-retour est égal à un.

Si l'on commute le système afin d'avoir un important facteur de qualité, les quelques photons de bruit dus à la fluorescence se trouvent piégés et amplifiés par émission stimulée. Ainsi le nombre de photons dans la cavité croît très rapidement jusqu'à ce que l'inversion de population s'annule et que l'énergie emmagasinée dans le milieu amplificateur pendant la première phase soit épuisée. Dans la mesure où la commutation du facteur de qualité de la cavité est rapide, les photons sont émis sous la forme d'une impulsion. Le système est de nouveau commuté dans un état de fortes pertes à la fin de cette impulsion pour en assurer l'unicité. Après un temps d'attente suffisamment long l'inversion de population retrouve un niveau important et la procédure peut être répétée.

La commutation du facteur de qualité peut se réaliser de plusieurs manières. La solution la plus simple consiste à faire tourner à haute vitesse l'un des miroirs de la cavité : les pertes de la cavité sont très importantes sauf lorsque les miroirs sont parallèles, moment où une impulsion se déclenche. Cette technique rend très difficile la synchronisation de l'émission laser avec d'autres phénomènes, ce qui en fait l'inconvénient.

Dans de nombreux cas, on lui préfère le déclenchement par commutation électro-optique. Le commutateur se compose alors d'un cristal électro-optique et d'un polariseur. L'état où l'émission laser est impossible est réalisé comme suit : la lumière polarisée linéairement par le polariseur est convertie en lumière polarisée circulairement par application d'une tension sur le cristal. Après réflexion sur l'un des miroirs de la cavité, la lumière polarisée circulairement est convertie à nouveau en lumière rectiligne, mais avec un plan de polarisation perpendiculairement au plan de polarisation initial, de sorte que le polariseur introduise beaucoup de pertes. On obtient de nouveau de très faibles pertes et un grand facteur de qualité de la cavité simplement en annulant sa tension de commande. Les temps de commutation des systèmes électro-optiques sont inférieurs à la nanoseconde. C'est le système utilisé dans notre cas. Notons que de nombreux autres types de techniques ont été mises en œuvre, fondées par exemple sur l'utilisation de miroirs vibrants ou d'absorbants saturables, de l'effet Faraday, ou de l'effet acousto-optique...

Pour réaliser l'étude dans le domaine nanoseconde nous avons utilisé deux lasers émet-

tant des impulsions de largeurs temporelles différentes, ce qui est intéressant pour constater ou non une éventuelle présence de mécanismes tels que l'électrostriction. Ces deux lasers sont tous les deux de type Nd:YAG Q-switch, pompés par lampe flash et cadencés à 20 Hz au maximum. Ils émettent tous les deux à une longueur d'onde de 1064 nm . De plus nous disposons d'un cristal doubleur de KTP qui nous permet de doubler la fréquence du faisceau laser. Nous pouvons donc travailler aux longueurs d'ondes de 1064 nm et 532 nm . Notons cependant que l'énergie maximum utilisable du second harmonique sera bien évidemment moindre du fait de la conversion. De même sa stabilité en énergie sera diminuée, théoriquement par deux, et la durée d'impulsion réduite, théoriquement d'un facteur $\sqrt{2}$, dans le cas d'un profil temporel gaussien du fait que le doublage de fréquence est un phénomène quadratique.

En outre ces deux lasers sont tous les deux multimodes longitudinaux, et ne présentent pas les mêmes avantages et défauts, ce qui va nous forcer à adapter le montage expérimentale dans chaque cas. Le premier laser (produit par LASER PHOTONICS, INC) est équipé d'un filtrage spatial intra-cavité qui lui confère une assez bonne qualité de faisceau au détriment de l'énergie disponible. Sans filtrage, ce laser peut fournir des impulsions de 200 mJ (donnée constructeur) et avec filtrage elles sont réduites à 10 mJ (mode de fonctionnement retenu). Sa bonne qualité de faisceau et son faible dépointé nous permettra une mise en forme de faisceau relativement simple et stable. En revanche, nous serons obligés de travailler assez proche de la fluence d'endommagement des matériaux, du fait de sa durée d'impulsion.

Le second laser (laser "ULTRA" produit par QUANTEL, INC) possède une très bonne symétrie cylindrique et est de type "top hat" au niveau du coupleur de sortie, c'est-à-dire que le champ est un disque "uniforme" juste après le coupleur de sortie. Ce type de profil et la grande énergie en sortie de laser sont souvent appréciés pour des applications industrielles. Dans notre cas, ce type de faisceau est plus délicat à mettre en forme et moins stable à cause du dépointé plus important et des modes transverses nombreux. En revanche, il offre la possibilité de travailler avec des énergies par impulsion moindres pour les mêmes densités de puissance que précédemment, ce qui nous permet de nous éloigner un peu plus de la fluence d'endommagement du matériau.

4.2.3 Résumé des caractéristiques des lasers utilisés

Système picoseconde et sub-picoseconde

Laser	MIRA900 + PULSE SWITCH
Longueur d'onde centrale	700 nm à 900 nm
Taux de répétition	10 MHz à 200 Hz
Energie maximum / pulse	≈ 50 nJ
Stabilité en énergie	$< \pm 5\%$
Diamètre du faisceau de sortie (à $1/e^2$)	2 mm
Divergence du faisceau	< 1.4 mrad
Qualité de faisceau	faiblement multimode
Durée d'impulsion	≈ 140 fs en mode femtoseconde ≈ 2 ps en mode picoseconde
Stabilité en dépointé	bonne

TAB. 4.1 – *Caractéristiques générales du système picoseconde et sub-picoseconde.*

Nous avons vu que la méthode de Z-scan était très sensible au profil du faisceau, il est donc impératif de contrôler la forme du faisceau. La donnée de la divergence du faisceau et du facteur M^2 n'est pas suffisante dans ce cas pour caractériser le faisceau issu du laser. En effet ce type d'analyse ne permet pas de connaître parfaitement l'allure et l'évolution du faisceau autour de son point de focalisation, c'est-à-dire dans la zone où les interactions non-linéaires sont significatives. Une observation plus précise du faisceau, à l'aide d'une caméra CCD nous a permis d'observer et de contrôler la qualité du faisceau au niveau du coupleur de sortie et en champ lointain.

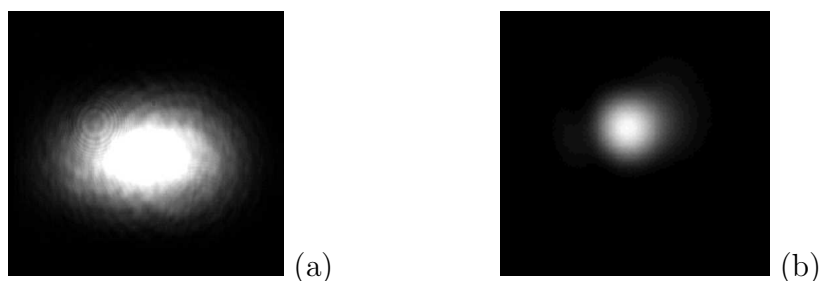


FIG. 4.2 – *Faisceau issu du système MIRA900 + PULSE SWITCH. Intensité du faisceau au niveau du coupleur de sortie (a) et champ lointain (après filtrage) dans le plan focal d'une lentille de focale 100 mm (b).*

Nous remarquons sur la figure 4.2(a) qu’il existe des hautes fréquences dans le faisceau au niveau du coupleur de sortie ainsi qu’un léger astigmatisme résiduel. Cela provient en majeure partie du mécanisme d’extraction des impulsions dans le cavity dumper. L’alignement de la cavité laser est donc refait régulièrement avec un très grand soin concernant la qualité du faisceau de sortie. Dans ces conditions, l’état du faisceau laser n’est pas satisfaisant pour mener une étude de Z-scan correcte. Il est donc indispensable d’effectuer un filtrage spatial ainsi qu’une correction de l’astigmatisme du faisceau laser incident, comme nous le présenterons par la suite, ce qui nous permettra ainsi d’obtenir le faisceau de la figure 4.2(b).

Systèmes nanoseconde

Laser	LASER PHOTONICS YQL	QANTEL ULTRA
Longueur d’onde	1064 <i>nm</i> et 532 <i>nm</i>	1064 <i>nm</i> et 532 <i>nm</i>
Taux de répétition	$< 20 \text{ Hz}$	$< 20 \text{ Hz}$
Energie maximum / pulse	$\approx 10 \text{ mJ}$	$\approx 50 \text{ mJ}$
Stabilité en énergie	$< \pm 2\%$	$< \pm 1\%$
Diamètre du faisceau de sortie (à $1/e^2$)	6.5 <i>mm</i>	2.8 <i>mm</i>
Divergence du faisceau	$< 3 \text{ mrad}$	$< 7 \text{ mrad}$
Qualité de faisceau	faiblement multimode	fortement multimode
Durée d’impulsion	$\approx 9 \text{ ns}$	$\approx 3 \text{ ns}$
Stabilité en dépointé	bonne	moyenne

TAB. 4.2 – *Caractéristiques générales des lasers nanosecondes.*

De même que pour le système précédent, nous présentons les profils spatiaux au niveau du coupleur de sortie du laser et en champ lointain des faisceaux issus des lasers nanoseconde utilisés sur la figure 4.3. Comme pour le système sub-picoseconde, le laser LASER PHOTONICS YQL présente un léger astigmatisme et des hautes fréquences qui risque de dégrader le volume focal : un filtrage spatial s’impose. Le laser QANTEL ULTRA quant à lui possède une très bonne symétrie cylindrique et est de type “top hat” au niveau du coupleur de sortie (figure 4.3 (c)). Du fait des propriétés de la transformée de Fourier ceci correspond à une répartition spatiale de type “tache d’Airy” en champ lointain. Ceci peut être observé clairement sur la figure 4.3 (d) où l’on a fait saturer la caméra au niveau

du pic central afin de distinguer les anneaux de la tache d’Airy. Le volume focal est donc mal connu et la mesure de l’énergie des impulsions englobe l’énergie des anneaux alors qu’ils ne participent pas à l’effet non-linéaire, ce qui empêche toute mesure réellement quantitative de l’indice non-linéaire. Là aussi, une mise en forme adaptée au faisceau s’impose.

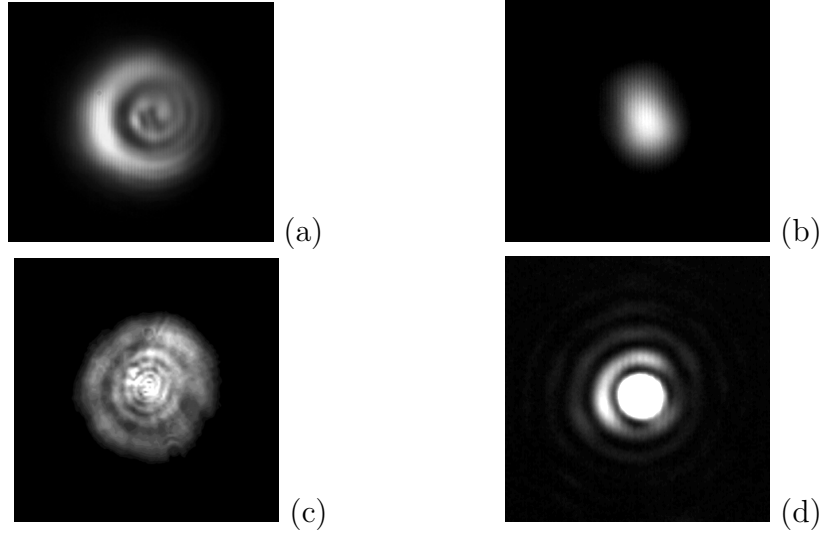


FIG. 4.3 – *Sur la première ligne : Intensité du faisceau issue du laser LASER PHOTONICS YQL au niveau du coupleur de sortie (a) et son intensité à 1 m du miroir de sortie (b). Dessous : Intensité du faisceau issue du laser QANTEL ULTRA au niveau du coupleur de sortie (c) et son intensité dans le plan focal d’une lentille de focale 500 mm (d).*

4.3 Mise en forme et caractérisation du faisceau

Nous venons de voir qu’il était nécessaire de filtrer spatialement dans tous les cas les faisceaux issus des différents lasers. Pour cela il est d’usage de mettre en place un filtrage spatial conventionnel constitué de deux lentilles convergentes positionnées en configuration afocale et d’un trou de filtrage placé au point focal commun des lentilles. Un tel montage permet de réaliser un faisceau gaussien TEM_{00} de grande qualité à condition que le diamètre du trou soit parfaitement adapté au faisceau. Cette solution n’a pas été retenue pour trois raisons principales. Tout d’abord, nous avons vu au chapitre 3.6.2 qu’il était préférable de faire une mise en forme de type “tache d’Airy tronquée”, afin d’augmenter la sensibilité de la méthode de Z-scan. De plus, en régime nanoseconde, la durée

de vie du trou de filtrage devient un facteur limitant. En effet, dans le cas d'un faisceau de forte puissance comme le nôtre ($\sim 700 \text{ kW}$), une faible focalisation, par exemple sur une zone de 0.5 mm de diamètre, engendre des maxima de puissance d'environ 700 MW/cm^2 et une fluence sur l'axe optique de 10 J/cm^2 qui détériore le trou de filtrage relativement rapidement dès lors que le filtrage n'est pas réalisé sous vide et d'autant plus que la qualité du faisceau initial et sa stabilité en pointé sont mauvaises. Enfin, l'adaptation et le positionnement du trou de filtrage étant très critique le changement de configuration, et notamment le changement de longueur d'onde, n'est pas très simple.

De son côté nous allons voir qu'une mise en forme de type "tache d'Airy tronquée" est simple et nécessite peu de matériel, qu'aucune focalisation n'intervient, et enfin, que lors du changement de longueur d'onde il suffit de réadapter le second diaphragme au nouveau diamètre du pic central de la tache d'Airy. La contrepartie majeure d'un tel filtrage est de réduire fortement la puissance du faisceau incident disponible pour les mesures.

4.3.1 Mise en forme "tache d'Airy tronquée"

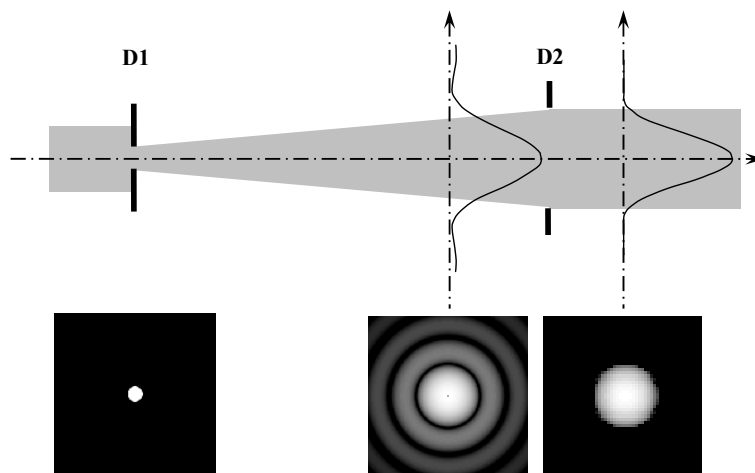


FIG. 4.4 – Mise en forme type "tache d'Airy tronquée" du faisceau incident.

Le principe du filtrage type "tache d'Airy tronquée" est représenté sur la figure 4.4. Un premier trou parfaitement circulaire de faible taille est placé dans le faisceau laser, de sorte que sur sa section les variations d'intensité soient faibles et que l'on puisse assimiler le champ à sa sortie à un disque uniforme. Nous laissons le faisceau diffracté se propager sur une longue distance $\approx 1.5 \text{ m}$. A cette distance la répartition transverse d'intensité du

faisceau prend la forme d'une tache d'Airy possédant une très bonne symétrie circulaire et des annulations bien marquées. Les pieds sont alors coupés à l'aide d'un second diaphragme dont le diamètre est ajusté à la première annulation de la tache de diffraction. Le faisceau est ensuite focalisé à l'aide d'une lentille pour les expérimentations Z-scan.

Ce principe à été mis en œuvre tel quel concernant le laser LASER PHOTONICS YQL et le système sub-picoseconde. Le faible dépointé de ces lasers étant particulièrement faible, aucune augmentation significative des fluctuations d'énergie après le second diaphragme n'a été constatée. De plus comme ces lasers sont relativement peu multimodes, les pertes d'énergie sont réduites lors de la mise en forme.

Dans le cas du laser QUANTEL ULTRA fortement multimode, il en est tout autrement. Le profil perturbé dans la zone où l'on place le premier trou ($\approx 1\text{ m}$ de la sortie du laser) et le fort dépointé engendrent d'énormes fluctuations d'énergie après le second diaphragme, parfois supérieures à $\pm 20\%$. De plus, il semble préférable d'utiliser le fait que le faisceau est de type "top hat" au niveau du coupeur de sortie du laser.

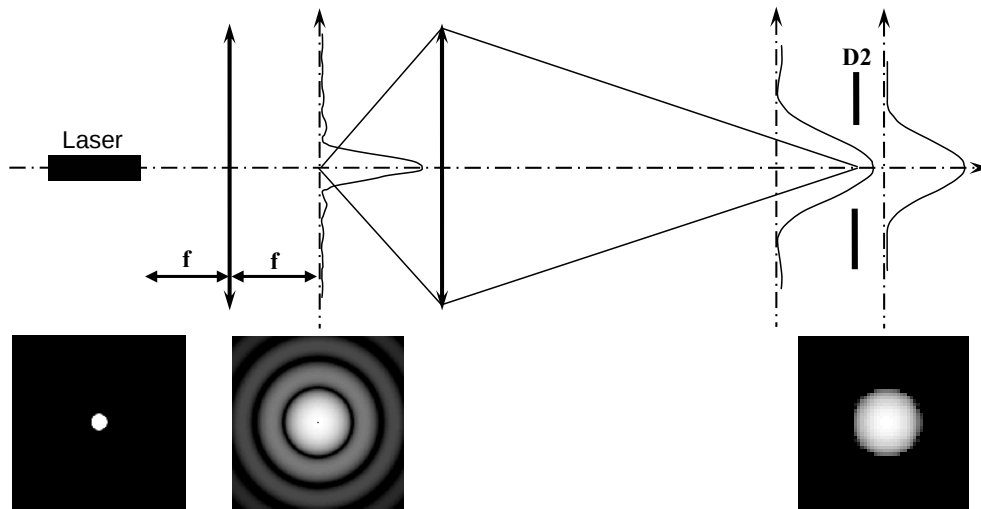


FIG. 4.5 – Mise en forme alternative du faisceau incident dans le cas du laser "top hat".

Pour mettre en forme le faisceau "top hat" nous plaçons le miroir de sortie du laser au foyer une lentille de grande focale (voir figure 4.5). D'après les propriétés de l'optique diffractive, on dispose alors dans le plan focal image d'une répartition d'amplitude proportionnelle à la transformée de Fourier de la répartition d'amplitude à la sortie du laser, c'est-à-dire une tache d'Airy. Afin d'éviter l'endommagement du diaphragme de filtrage,

nous agrandissons ensuite cette tache à l'aide d'une seconde lentille. Cet agrandissement permet par ailleurs d'augmenter la précision avec laquelle est tronquée la tache d'Airy.

Le faisceau obtenu par ce filtrage alternatif est très proche de celui d'un faisceau de type "tache d'Airy tronquée" comme nous allons le voir. De plus les pertes d'énergie et l'effet du dépointé sont moindres que dans le filtrage type "tache d'Airy" traditionnel.

Contrôle et caractérisation du profil spatial

Pour s'assurer que le filtrage est correctement réalisé, il est nécessaire de se munir d'un système d'imagerie adapté. Ce système doit de plus permettre également de mesurer le profil réel du faisceau incident afin d'en extraire les caractéristiques qui permettront sa simulation par le code que nous avons détaillé au paragraphe 3.4 ainsi que de prévoir la courbe de transmission normalisée associée.

Pour cela nous avons choisi une caméra CCD munie d'un objectif montée sur une platine de translation trois axes. La translation selon l'axe optique étant motorisée, nous avons pu automatiser l'acquisition et la piloter par ordinateur. Le programme d'acquisition que nous avons développé a été écrit en C++ et intègre l'acquisition à proprement parler des images, le déplacement de la caméra mais aussi le traitement numérique de ces images. Un code similaire a ensuite été développé à l'aide du logiciel de programmation LABVIEW sur le banc picoseconde et sub-picoseconde. Sur le banc de mesure nanoseconde, cette acquisition a posé quelques difficultés du fait du faible taux de répétition des lasers (10 Hz) et du fait que la caméra dont nous disposons ne possède pas d'option de synchronisation. Ce problème a été résolu en conservant un circuit électronique permettant de synchroniser le laser et la carte d'acquisition de l'ordinateur sur le quartz de la caméra. Tout ceci nous permet de vérifier la symétrie circulaire du faisceau et de mesurer la répartition spatiale d'énergie du faisceau dans la zone où l'intensité est élevée et où l'interaction non-linéaire sera significative. L'ensemble du dispositif a été étalonné à l'aide d'une mire graduée par pas de $10\text{ }\mu\text{m}$, et sa résolution de $0.7\text{ }\mu\text{m}$ par pixel est tout à fait adaptée à mesurer des faisceaux dont le diamètre à $1/e^2$ minimal d'environ $30\text{ }\mu\text{m}$.

La mesure ainsi réalisée consiste à enregistrer l'image du faisceau pour une vingtaine ou trentaine de positions autour du plan focal tous les 200 ou $250\text{ }\mu\text{m}$. Pour chaque position une cinquantaine d'images sont prises pour effectuer une statistique, et évaluer l'incertitude de la mesure. Chaque image obtenue est corrigée du bruit de fond électronique et de la lumière diffuse à l'aide d'une image de bruit enregistrée en début d'acquisition.

D'une part, la détection du barycentre de l'image et son recentrage permet d'extraire

le profil radial du faisceau pour la cote z correspondante. La figure 4.6 montre l'évolution du profil radial le long de l'axe optique obtenue avec le laser LASER PHOTONICS. Cette figure permet de constater que le volume focal est bien délimité et dépourvu de variations rapides. De plus, nous constatons un très bon accord avec la simulation. Les paramètres utilisés pour cette simulation proviennent simplement de la mesure précise des rayons des diaphragmes, des distances entre les différents éléments du montage et de la focale de la lentille de focalisation sans aucun paramètre ajustable. Ceci démontre la précision de notre mise en forme.

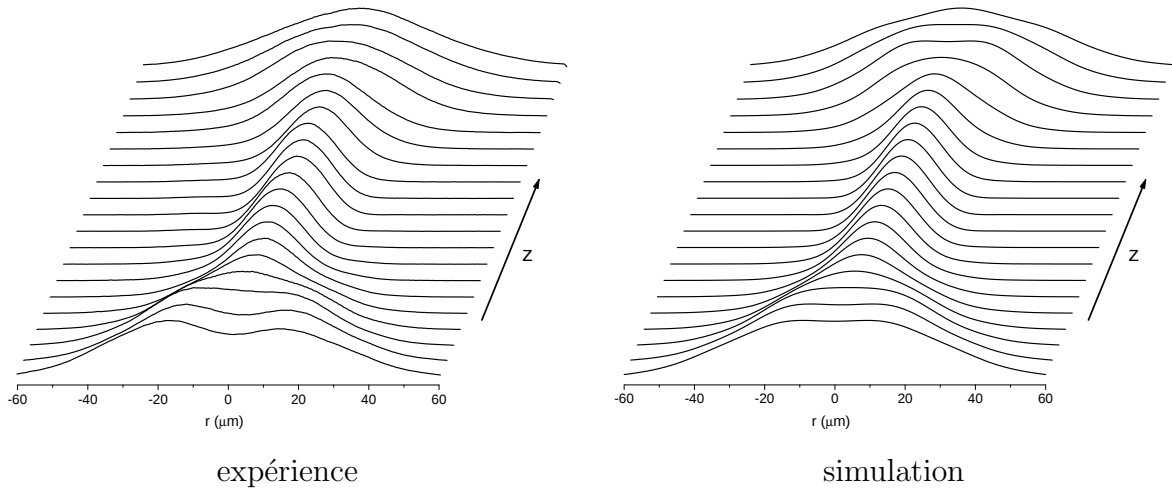


FIG. 4.6 – Evolution du profil spatial du faisceau issu du laser LASER PHOTONICS le long de l'axe optique, après une mise en forme type “tache d’Airy tronquée”. Ici les profils ont été recalés à 1 sur l'axe optique pour chaque position z afin de distinguer les variations loin du plan focal.

D'autre part, pour chaque image et à partir de l'intensité $I_{pixel}(i, j)$ reçue par chaque pixel de coordonnées (i, j) de la caméra il est possible de calculer la quantité suivante :

$$S_{eff} = S_{pixel} \cdot \sum_{pixels} I_{pixel}(i, j) / \text{Max}_{I_{pixels}} \quad (4.1)$$

Dans cette expression S_{pixel} est la surface d'un pixel dans le plan d'observation, c'est-à-dire $0.7 \times 0.7 \mu\text{m}^2$ et $\text{Max}_{I_{pixels}}$ l'intensité maximale des pixels de l'image. La quantité S_{eff} est homogène à une surface et sera désignée sous le terme de section effective. Dans le cas d'un faisceau “top hat”, il est clair que S_{eff} est la surface du disque lumineux, et dans le cas gaussien elle s'identifie à $\pi\omega^2(z)$ où $\omega(z)$ est le rayon à $1/e^2$ du faisceau dans le plan où l'image a été prise.

Au regard de l'expression 3.51 relative à l'amplitude complexe du mode gaussien TEM_{00} , l'intensité sur l'axe optique de ce mode est inversement proportionnelle à $\pi\omega^2(z)$ c'est-à-dire à S_{eff} . La mesure de la section effective et de sa statistique en différents points du volume focal permet de tracer l'évolution des maxima d'intensité le long de l'axe optique. Il est alors naturel d'utiliser ce critère simple pour caractériser notre faisceau expérimental, et vérifier son adéquation avec la simulation.

La figure 4.7 confirme effectivement un très bon accord entre la simulation et l'expérience pour la mise en forme du laser LASER PHOTONICS aussi bien à 1064 nm qu'à 532 nm . Le cas d'un faisceau gaussien de même rayon à $1/e^2$ dans le plan focal a été également représenté pour comparaison. Ces courbes permettent aussi de quantifier précisément la profondeur de champ du faisceau réel (définie comme la largeur à mi-hauteur). Dans le cas d'un faisceau gaussien, elle vaut deux fois la longueur de Rayleigh du faisceau, ce qui vaut théoriquement 1.3 mm à 1064 nm et 2.6 mm à 532 nm , pour un faisceau de même rayon au waist (ici $\sim 15\text{ }\mu\text{m}$ à $1/e^2$), soit une valeur légèrement inférieure à ce qui est observé réellement. Cela confirme bien que ces deux types de faisceau n'ont pas le même comportement au voisinage du plan focal, et donc des courbes de transmission normalisée différentes.

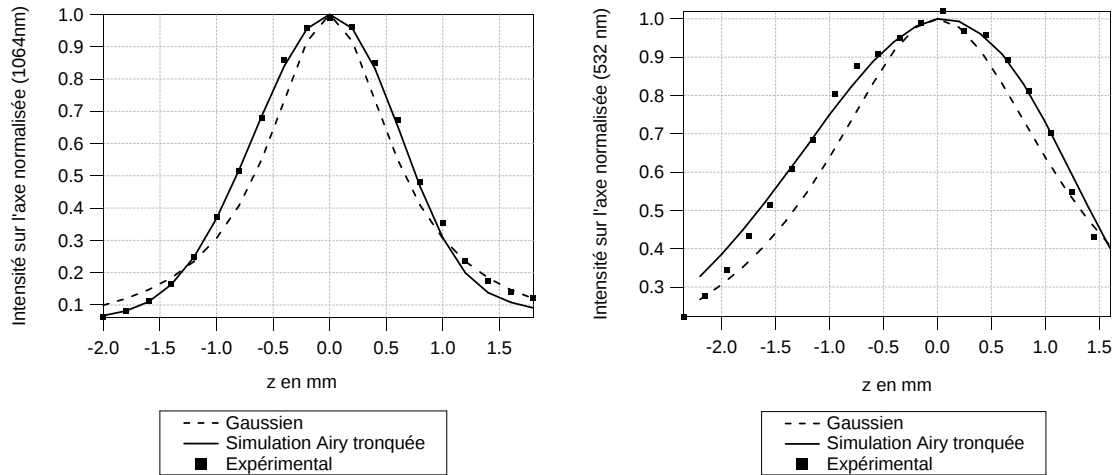


FIG. 4.7 – *Intensité sur l'axe optique après mise en forme du laser LASER PHOTONICS à 1064 nm (gauche) et à 532 nm (droite).*

Concernant la validation de la mise en forme type “tache d’Airy tronquée” du laser QUANTEL ULTRA, la vérification est un peu plus délicate vu que l’on ne dispose pas directement des paramètres géométriques intervenant dans la modélisation de mise en forme

du faisceau. On procède alors à un ajustement des paramètres pour faire coïncider simultanément la valeur de la section effective au waist et l'évolution des maxima d'intensité le long de l'axe optique entre la simulation et les résultats expérimentaux. La métrologie du profil spatial ayant été validée par les mesures avec le laser LASER PHOTONICS, il n'est pas gênant de procéder ainsi avec le deuxième laser.

Comme dans le cas du premier laser, le faisceau ainsi mis en forme a été caractérisé après la lentille de focalisation de focale 100 mm . La figure 4.8 montre quelques images du faisceau autour du point de focalisation qui permettent de constater la très bonne qualité du faisceau aux alentours de son point de focalisation et son accord avec la simulation du faisceau tache d'Airy tronquée.

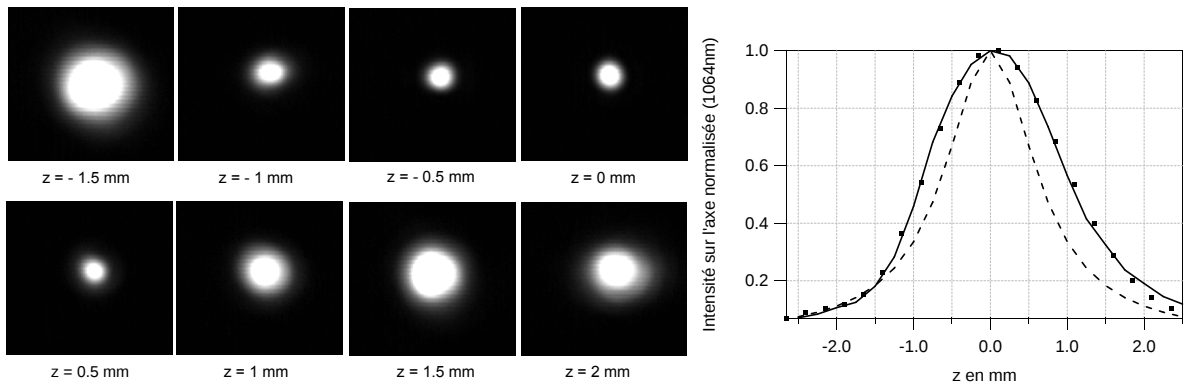


FIG. 4.8 – Allure du faisceau incident de part et d'autre du point de focalisation et évolution des maxima d'intensité le long de l'axe optique à 1064 nm ainsi que la simulation adaptée.

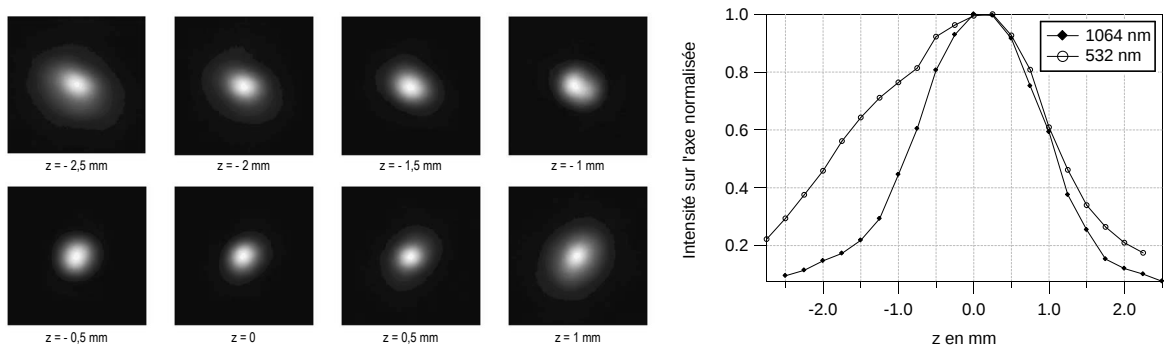


FIG. 4.9 – Allure du faisceau incident de part et d'autre du point de focalisation à 532 nm et évolution des maxima d'intensité le long de l'axe optique à 1064 nm et 532 nm (mesures effectuées l'une après l'autre avec et sans cristal doubleur).

De la même façon, la figure 4.9 montre quelques clichés du faisceau à 532 nm où un faible astigmatisme résiduel subsiste. Sur cette même figure, on constate que le profil à 532 nm semble un peu plus perturbé qu'à 1064 nm et il n'est pas toujours très évident de simuler correctement ce type d'évolution. Notons que dans le cas de ce laser, l'évolution du profil spatial n'est pas parfaitement répétable. Les dérives du laser fortement multimode nous obligent à réaligner légèrement le faisceau avant chaque mesure. L'évolution du faisceau doit donc être contrôlée pour chaque mesure et les paramètres de simulation doivent être retouchés à chaque fois pour simuler au mieux l'évolution du faisceau incident. Ce système de caractérisation du faisceau est donc aussi un très bon outil permettant le réglage du filtrage spatial.

Enfin le faisceau issu du système sub-picoseconde est mis en forme via le filtrage type tache d'Airy tronquée traditionnel et les figures 4.10 et 4.11 montrent son évolution le long de l'axe optique et le bon accord avec les simulations.

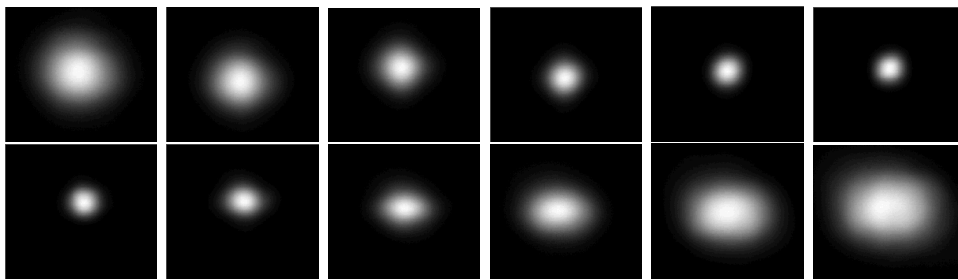


FIG. 4.10 – *Allure du faisceau incident de part et d'autre du point de focalisation du faisceau femtoseconde à 800 nm . (1 mm en z entre deux images)*

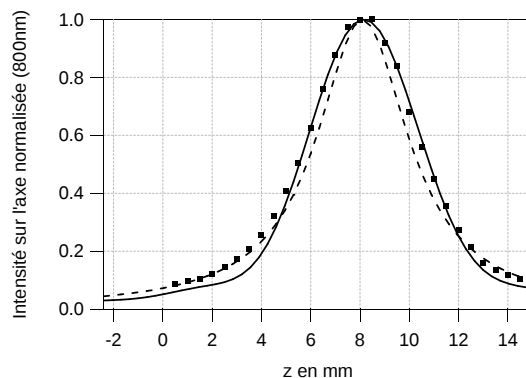


FIG. 4.11 – *Evolution des maxima d'intensité le long de l'axe optique à 800 nm du faisceau issu du système MIRA + PULSE SWITCH après filtrage spatial par deux diaphragmes.*

4.4 Caractérisation spectrale et temporelle des impulsions

4.4.1 Caractérisation spectrale

Les lasers nanosecondes utilisés émettent à la longueurs d'onde bien définies de 1064 nm qui correspond à la raie fondamental du Nd:YAG. Pour ce qui est du système sub-picoseconde, la courbe de gain du Ti:saphir est extrêmement large, et la longueur d'onde émise dépend fortement des réglages de la cavité et du filtre biréfringent, sélecteur de longueur d'onde interne au système. De plus en régime sub-picoseconde nous avons vu que le spectre de l'impulsion pouvait devenir large. Pour connaître précisément la longueur d'onde de travail et la largeur du spectre nous devons donc les mesurer régulièrement sur notre banc expérimental. Pour cela nous disposons d'un spectromètre à réseau d'environ 1.5 nm de résolution. Ce spectromètre est fibré, ce qui nous permet de réaliser des mesures en différents points du montage de façon très simple et rapide.

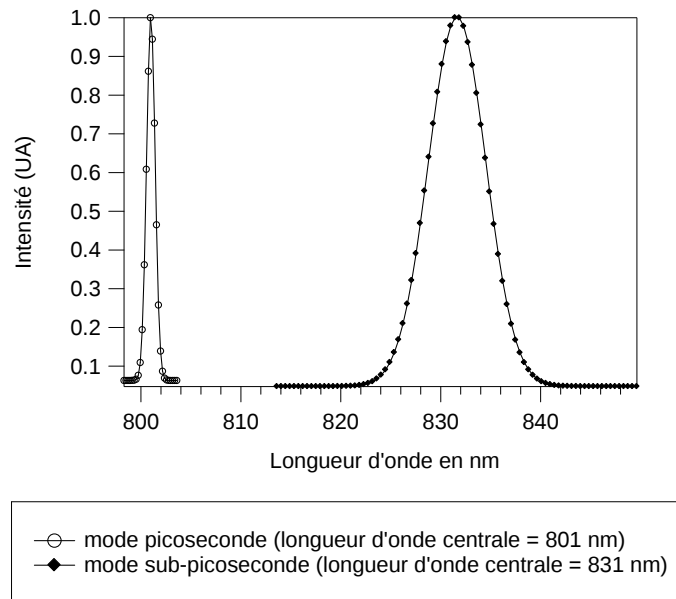


FIG. 4.12 – Spectre des impulsions émises par le système MIRA + PULSE SWITCH en mode picoseconde ($\approx 2\text{ ps}$ - ronds) et en mode sup-picoseconde ($\approx 155\text{ fs}$ - carrés).

La figure 4.12 montre deux mesures du spectre, l'une correspondant à des impulsions de 2 ps centrées sur 801 nm et la seconde correspondant à des impulsions de 155 fs cen-

trées sur 831 nm . Dans le premier cas la largeur à mi-hauteur est de 1 nm et dans le second de 6.7 nm ce qui fait moins d'un pourcent de la valeur centrale. De plus aucun changement mesurable du spectre des impulsions n'est détecté après avoir traversé les différents éléments du montage et notamment l'échantillon non-linéaire.

4.4.2 Mesure de la durée des impulsions courtes

Les détecteurs électroniques les plus rapides ont un temps de réponse de quelques picosecondes. Les impulsions lumineuses picosecondes et femtosecondes, ne sont donc pas résolues par de tels systèmes, et la mesure de leur durée est impossible. Pour faire cette mesure, nous devons avoir recours à un phénomène physique de plus courte, où au maximum de même durée. L'idée est ici d'utiliser l'impulsion elle-même, et l'on parle d'autocorrélation. La méthode d'autocorrélation interférométrique, présentée ci-dessous, est l'une des façons les plus simples et sensibles de mesurer la durée d'une impulsion courte en régime picoseconde et sub-picoseconde. En contre partie elle ne permet pas de reconstruire le profil temporel des impulsions. Par conséquent il reste une ambiguïté sur la mesure et il faut se donner la forme a priori de l'enveloppe temporelle. Dans notre cas, par la conception de l'oscillateur laser en régime femtoseconde, l'enveloppe temporelle des impulsions générées doit être de forme sécante hyperbolique et en régime picoseconde elle peut être supposée en bonne approximation comme gaussienne.

Comme son nom l'indique l'autocorrélation interférométrique consiste à enregistrer la fonction d'autocorrélation de l'impulsion. La fonction d'autocorrélation A_f d'une impulsion f est donnée par la relation suivante :

$$A_f(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t) f(t - \tau) dt$$

Afin de réaliser une autocorrélation, nous devons disposer de deux répliques identiques de l'impulsion. L'interféromètre de Michelson est une façon simple de les réaliser. Le retard τ entre ces deux répliques est alors proportionnel à la différence de marche δ entre les deux bras de l'interféromètre. Traditionnellement le produit des deux répliques est obtenu par faible conversion dans le second harmonique dans un cristal doubleur et l'intégration est réalisée par une photodiode linéaire dont le temps de réponse est grand devant la durée des impulsions. Cette méthode a l'inconvénient d'être dépendante de la polarisation. Nous avons choisi un autre effet non-linéaire pour obtenir un signal proportionnel au produit des

deux répliques : l'absorption à deux photons [151, 152]. La figure 4.13 donne le principe de l'autocorrélation à deux photons. Un interféromètre de Michelson génère deux répliques de même intensité et une photodiode en GaP (sensibilité spectrale 190 – 570 nm) fournit un signal intégré temporellement dépendant de l'absorption à deux photons. Le retard entre les deux impulsions est balayé périodiquement à quelques hertzs et le signal de la photodiode est envoyé sur un oscilloscope numérique, qui nous permet d'enregistrer sa trace.

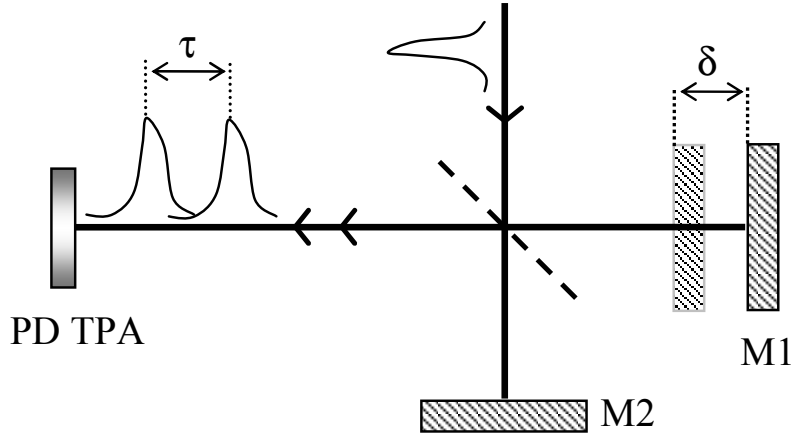


FIG. 4.13 – Autocorrélation interférométrique par absorption à deux photons (TPA).

Le signal obtenu sur l'oscilloscope est alors :

$$S(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} I_{\text{totale}}^2(t, \tau) dt \quad (4.2)$$

L'intensité totale I_{totale} peut s'écrire en fonction du profil des impulsions $p(t)$ et de la pulsation centrale de l'impulsion ω_0 . Le signal mesuré devient :

$$S(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} \left[|p(t)e^{i\omega_0 t} + p(t - \tau)e^{i\omega_0(t - \tau)}|^2 \right]^2 dt \quad (4.3)$$

Dans cette expression nous avons supposé comme c'est le cas expérimentalement, que les deux bras sont bien équilibrés, et que les deux répliques ont la même la puissance. Si maintenant on suppose que l'impulsion est de la forme $p(t) = \text{Sech}(t/\tau_0)$, où τ_0 est la largeur de l'impulsion à déterminée, le signal visualisé sur l'oscilloscope se réduit après

calcul à :

$$S(\tau) \propto S_1(\tau_0) + S_2(\tau, \tau_0) + 4S_3(\tau, \tau_0) \cos(\omega_0\tau) + 2S_2(\tau, \tau_0) \cos^2(\omega_0\tau) \quad (4.4)$$

avec

$$S_1(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} \text{Sech}^4\left(\frac{t}{\tau_0}\right) dt = \frac{4\tau_0}{3} \quad (4.5)$$

$$S_2(\tau, \tau_0) = \int_{-\infty}^{\infty} \text{Sech}^2\left(\frac{t}{\tau_0}\right) \text{Sech}^2\left(\frac{t-\tau}{\tau_0}\right) dt = \frac{16e^{2\tau/\tau_0} [(\tau - \tau_0)e^{2\tau/\tau_0} + \tau + \tau_0]}{(e^{2\tau/\tau_0} - 1)^3} \quad (4.6)$$

$$S_3(\tau, \tau_0) = \int_{-\infty}^{\infty} \text{Sech}^3\left(\frac{t}{\tau_0}\right) \text{Sech}\left(\frac{t-\tau}{\tau_0}\right) dt = \frac{4e^{\tau/\tau_0} [4\tau e^{2\tau/\tau_0} - \tau_0 e^{4\tau/\tau_0} + \tau_0]}{(e^{2\tau/\tau_0} - 1)^3} \quad (4.7)$$

Dans le cas où l'impulsion est une gaussienne $p(t) = e^{-\frac{t^2}{2\tau_0^2}}$, on trouve la même expression générale 4.4 pour le signal mesuré mais les fonctions S_1 , S_2 et S_3 deviennent :

$$S_1(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{t^2}{2\tau_0^2}} dt = \sqrt{\frac{\pi}{2}} \tau_0 \quad (4.8)$$

$$S_2(\tau, \tau_0) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{t^2 + (t-\tau)^2}{2\tau_0^2}} dt = \sqrt{\frac{\pi}{2}} \tau_0 e^{-\frac{\tau^2}{2\tau_0^2}} \quad (4.9)$$

$$S_3(\tau, \tau_0) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{3t^2 + (t-\tau)^2}{2\tau_0^2}} dt = \sqrt{\frac{\pi}{2}} \tau_0 e^{-\frac{3\tau^2}{8\tau_0^2}} \quad (4.10)$$

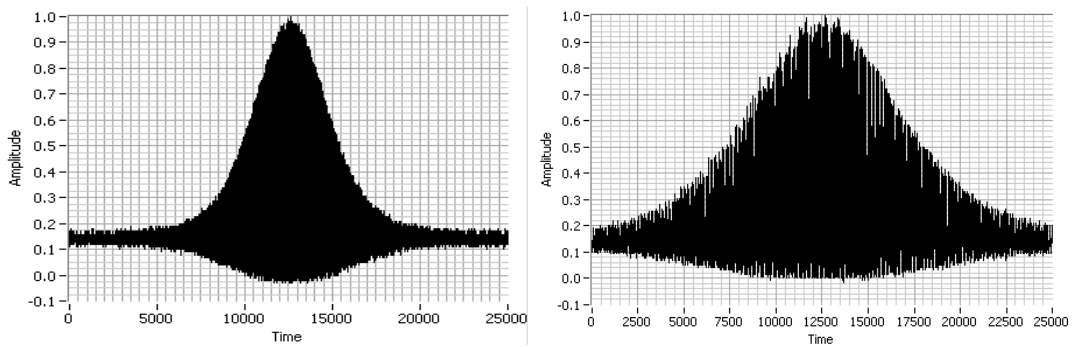


FIG. 4.14 – Signal obtenu en sortie de l'autocorrélateur pour des impulsions sub-picoseconde (gauche) et picoseconde (droite). Le décalage temporel τ entre les deux impulsions est ici donné en nombre de points d'échantillonnage.

En pratique le signal $S(\tau)$ est observé sur un oscilloscope numérique. La figure 4.14 présente la trace d'autocorrélation obtenue sur l'oscilloscope pour des impulsions sub-picosecondes (à gauche) et picosecondes (à droite). Ces images sont des copies d'écran d'une partie de la face avant du programme développé pour exploiter cette trace d'autocorrélation et mesurer la durée des impulsions. Le décalage temporel entre les deux répliques est donné sur ces figures en nombre de points et la correspondance dépend de la résolution de l'oscilloscope et de la vitesse de déplacement d'un des miroirs du Michelson.

L'oscilloscope possède une grande bande passante (en pratique on l'utilise sur 500 MHz) et permet d'échantillonner le signal d'entrée jusqu'en 16.10^6 points. Nous résolvons parfaitement les franges d'interférences. Nous faisons en sorte d'avoir en moyenne ≈ 20 points par franges. Cela nous permet d'envisager d'ajuster la courbe théorique donnée par l'expression 4.4 aux données expérimentales. Cette méthode semble en effet plus précise pour extraire la durée τ_0 des impulsions² que de mesurer la largeur à mi-hauteur de la trace d'autocorrélation. Nous avons donc développé à l'aide du logiciel LABVIEW un programme permettant de faire cet ajustement. La figure 4.15 montre le résultat de cet ajustement dans le cas sub-picoseconde. L'accord est très bon autant du point de vue de l'enveloppe que des franges d'interférences (les courbes au centre se distinguent à peine) à l'intérieur pour le modèle sécante hyperbolique, et un tout petit peu moins bien pour le modèle gaussien. Cela ne nous étonne pas car en régime sub-picoseconde les impulsions délivrées par un laser KLM et compensé de la dispersion sont sécantes hyperboliques.

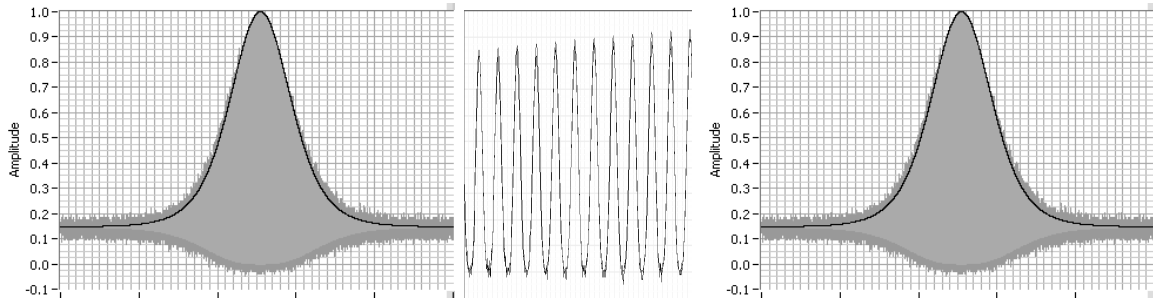


FIG. 4.15 – Ajustement du signal expérimental d'autocorrélation par le modèle sécante hyperbolique en régime sub-picoseconde avec au centre un agrandissement sur les franges d'interférence. À droite ajustement par le modèle gaussien.

²Nous rappelons que τ_0 est défini de telle sorte qu'un profil gaussien s'écrit $p(t) = e^{-\frac{t^2}{2\tau_0^2}}$ et qu'un profil sécante hyperbolique s'écrit $p(t) = \text{Sach}(t/\tau_0)$.

En régime picoseconde les déplacements du miroir mobile mis en jeu sont proches des limites permises par le système vibrant sur lequel il est monté. Le miroir a donc tendance à ralentir fortement aux extrémités ce qui déforme la courbe d'autocorrélation. Notre programme intègre pour cela une estimation de la vitesse instantanée du miroir et tient compte de ces variations pour ajuster la trace théorique d'autocorrélation à la courbe effectivement mesurée. L'estimation de ce paramètre supplémentaire est possible étant donné que les franges sont résolues et qu'elles correspondent toutes à une différence de marche égale à la longueur d'onde centrale. Nous obtenons alors la fonction non-linéaire qui relie le décalage temporel τ entre les deux répliques de l'impulsion et les points d'échantillonnage de l'oscilloscope comme montré sur la figure 4.16 ce qui permet un très bon ajustement des courbes théoriques. Pour ne pas surcharger la figure, seules les enveloppes supérieure et inférieure de la courbe théorique ont été tracées sur cette figure.

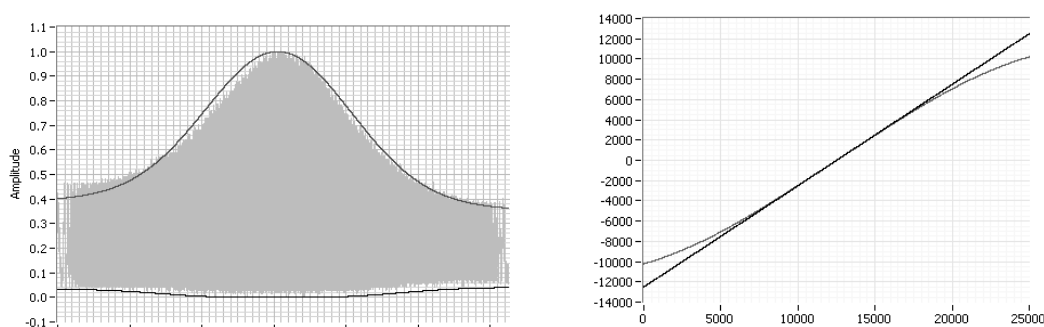


FIG. 4.16 – Ajustement du signal expérimental d'autocorrélation par le modèle sécante hyperbolique en régime picoseconde. A droite recalage des temps pour tenir compte des fluctuations de vitesse du miroir du Michelson.

A partir des définitions précédentes du paramètre τ_0 dans le cas gaussien et le cas sécante hyperbolique, la largeur à mi-hauteur (FWHM) des impulsions vaut $1.32 \tau_0$ dans le cas sécante hyperbolique et $1.18 \tau_0$ dans le cas gaussien. La largeur à mi-hauteur des impulsions sub-picosecondes a été trouvée en moyenne voisine de 155 fs dans le cas sécante et de 175 fs dans le cas gaussien. Ces mesures ont été confirmées par l'utilisation d'un second autocorrélateur fonctionnant par doublage de fréquence. L'erreur sur cette mesure est estimée à 13%, et aucune variation supérieure n'a été observée entre les différents points du montage expérimental. En régime picoseconde suivant le réglage du blocage de mode, la durées des impulsions peut légèrement être ajustée entre 1 ps et 3 ps .

4.4.3 Mesure temporelles des impulsions nanosecondes

Pour ces largeurs d'impulsion, de l'ordre de la dizaine de nanosecondes, il est encore possible d'utiliser des photodétecteurs suffisamment rapides, contrairement aux impulsions picosecondes et femtosecondes.

Dans le cas nanoseconde, une photodiode en *InGaAs* de $25\ \mu m$ de diamètre et de $25\ GHz$ de bande passante nous permet d'étudier le profil temporel des impulsions. Cette photodiode présente une réponse impulsionnelle de $17\ ps$ à mi-hauteur (voir figure 4.17). Un câblage approprié pour ce genre d'application haute-fréquence est utilisé et relié à un oscilloscope de $500\ MHz$ de bande passante. Dans ces conditions, le profil temporel des impulsions laser peut être contrôlé avec précision. Nous verrons plus tard quelle est l'information pertinente qu'il faut tirer de ces mesures de profil temporel dans le cas d'une étude de Z-scan.

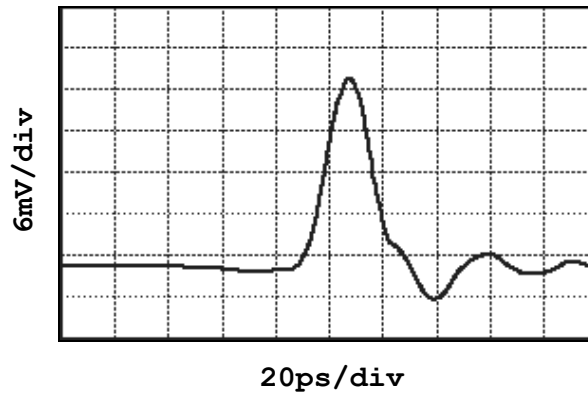


FIG. 4.17 – Réponse de la photodiode à une impulsion de $1\ ps$ à $532\ nm$

Source : <http://www.newfocus.com>

La figure 4.18 représente le profil temporel observé pour deux impulsions consécutives du laser LASER PHOTONICS. En effet le taux de répétition de $10\ Hz$ de ce laser comme celui du QUANTEL ULTRA nous permet d'isoler les impulsions temporellement. Ces mesures ont été obtenues sur l'axe optique, après mise en forme spatiale du faisceau. On y remarque que le profil est perturbé à cause des interférences entre les différents modes longitudinaux de la cavité laser. L'observation dans l'espace de Fourier permet de voir les différents modes longitudinaux de la cavité sont distants fréquemment de $0,2\ GHz$, ce qui correspond à une longueur de cavité de $75\ cm$.

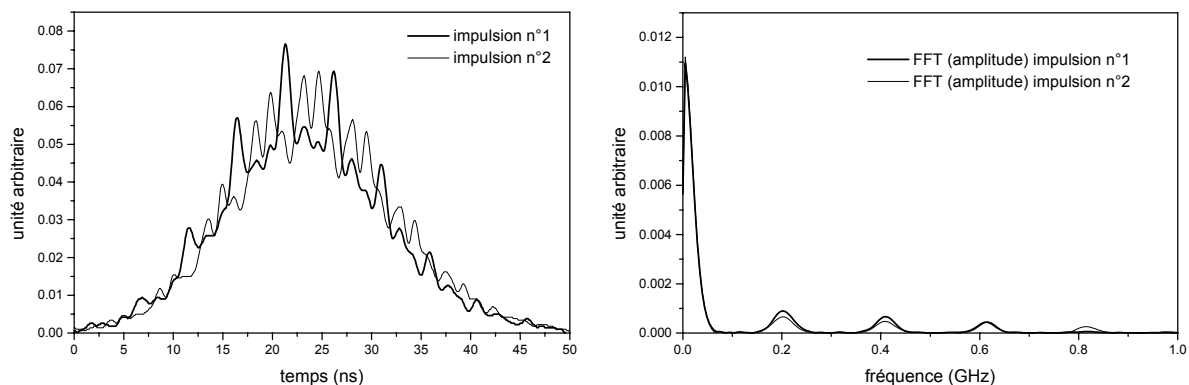


FIG. 4.18 – Exemples de profils temporels observés à 1064 nm pour le laser LASER PHOTONICS (à gauche) et leur transformée de Fourier (à droite).

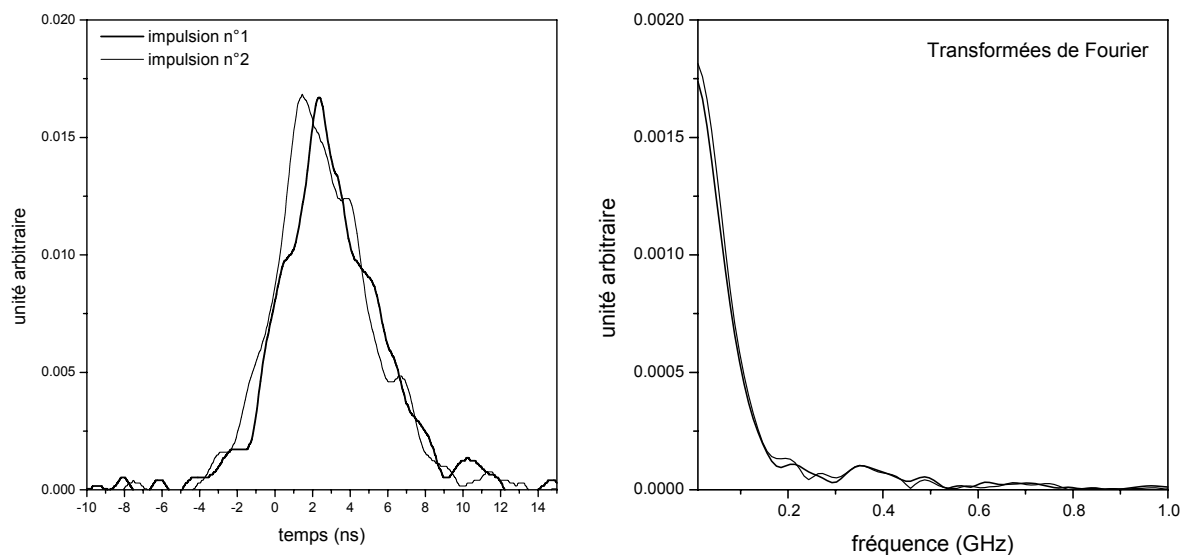


FIG. 4.19 – Exemples de profils temporels observés à 1064 nm pour le laser QUANTEL ULTRA (à gauche) et leur transformée de Fourier (à droite).

De la même façon les impulsions issues du laser QUANTEL ULTRA sont présentées sur la figure 4.19. La durée de ces impulsions est plus faible du fait du plus grand nombre de modes qui la composent. Les oscillations observées sur le profil temporel du laser QUANTEL ULTRA sont relativement bien résolues, et cela bien que l'oscilloscope limite, par sa bande passante de 500 MHz, la résolution de notre système d'acquisition. Avec ces deux sources Nd:Yag nous pouvons réaliser la mesure de l'indice non-linéaire pour

deux durées d'impulsions différentes, ce qui semble intéressant pour observer la présence de mécanismes répondant en quelques nanosecondes.

4.5 Considérations énergétiques et amélioration du rapport signal à bruit

4.5.1 Mesure d'énergie

Pour remonter à l'indice non-linéaire de l'échantillon mesuré, à partir de la variation d'indice sur l'axe au waist Δn issue de l'ajustement de la courbe expérimentale de la courbe simulée, nous devons connaître l'intensité crête des impulsions. La section du faisceau et la durée des impulsions étant déjà mesurées, il nous reste plus qu'à connaître l'énergie des impulsions.

Dans le cas nanoseconde, où le taux de répétition de la source est faible -10 *Hz*- et où l'énergie des impulsions est de l'ordre du milli-joule, nous pouvons la mesurer à l'aide d'un pyromètre. Ce dernier est conçu pour réaliser des mesures "absolues" aux longueurs d'onde du Nd:Yag. L'énergie minimale détectable est de $2\mu J$, le calibre maximum est de $10mJ$ et le constructeur donne une précision sur l'étalonnage à $1064nm$ de $\pm 3\%$.

Dans le cas de la source sub-picoseconde, le taux de répétition est très élevé, l'énergie des impulsions inférieure à la centaine de nano-Joules, et la longueur d'onde variable. Il n'est donc plus possible de procéder comme avant. La mesure de la puissance moyenne du faisceau est alors réalisée à l'aide d'une photodiode en silicium calibrée en longueur d'onde ou d'une tête thermique. Dans le premier cas il est possible de détecter quelques μW et dans le second quelques mW voir quelques W . L'oscilloscope de contrôle du laser nous fournit le taux de répétition du laser nécessaire au calcul de l'énergie des impulsions.

4.5.2 Stabilité des sources

Les mesures d'énergie sont réalisées devant l'échantillon à caractériser afin de prendre en compte toute les variations d'énergie qu'elles proviennent de la source elle-même ou du dépointé sur le filtrage spatial.

Cas du laser Laser Photonics Yql

Aucune dérive supérieure à 1% n'a été constatée sur l'étude de plusieurs milliers d'impulsions consécutives. Notons que nous prenons soin de toujours utiliser les lasers à pleine puissance afin éviter de changer les conditions de pompage du milieu amplificateur. En effet dans le cas contraire nous avons observé un changement de la largeur des impulsions et une plus forte instabilité (notamment dans la cas du laser fortement multimode QUANTEL ULTRA. L'énergie du faisceau est alors ajustée à l'aide d'une lame $\lambda/2$ suivie d'un polariseur.

Sur les 10 mJ disponibles au départ, le filtrage spatial adopté n'en laisse passer que 1 mJ à 1064 nm. Mais cette forte réduction n'est pas gênante vu que l'on se situe déjà proche de l'endommagement laser. La dispersion en énergie des impulsions nanosecondes du laser est représentée à la figure 4.20. L'énergie des impulsions est stable à $\pm 1,5\%$ près en écart-type à 1064 nm et $\pm 4,5\%$ à 532 nm. La conversion de fréquence dans le second harmonique est un phénomène quadratique qui, par conséquent, a tendance à multiplier par deux les fluctuations en énergie du faisceau. Ce phénomène est encore pire en pratique car la stabilité du phénomène de conversion de fréquence est également liée à la stabilité d'autres paramètres, comme la polarisation, par exemple. Ces fluctuations vont limiter le signal minimum qui pourra être détecté en terme de variation de transmission normalisée à 532 nm.

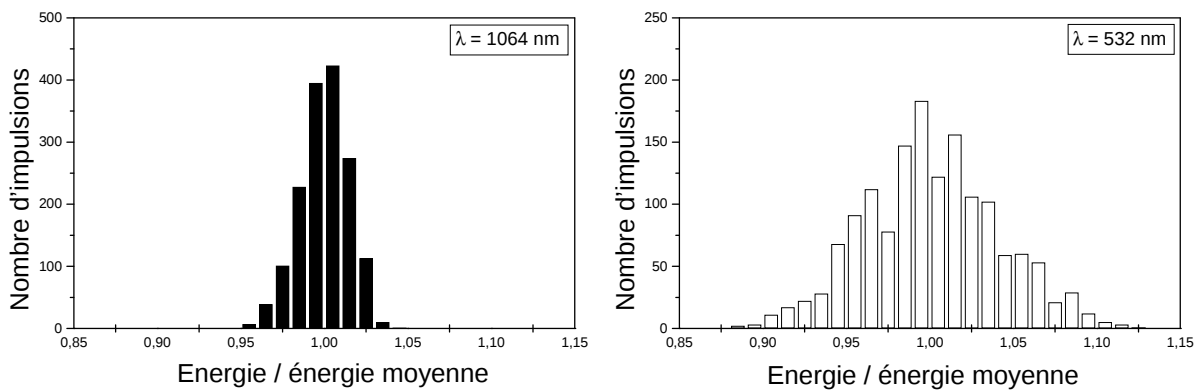


FIG. 4.20 – Dispersion en énergie à 1064 nm et 532 nm.

Cas du laser Quantel Ultra

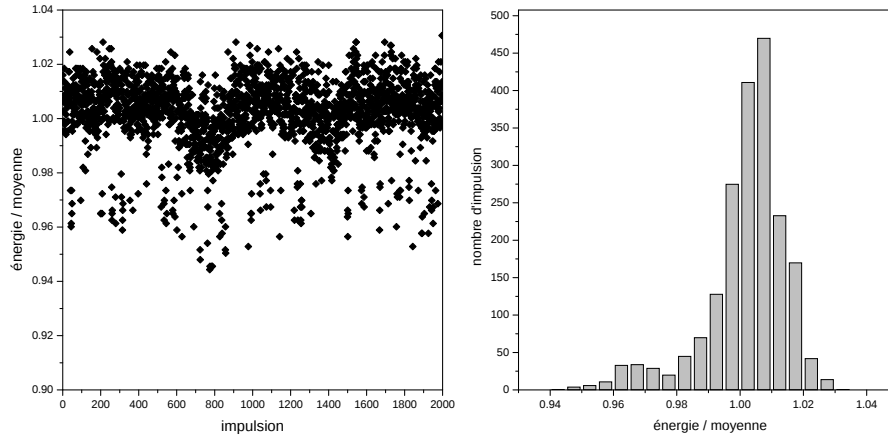


FIG. 4.21 – *Dispersion en énergie à 1064 nm et évolution de l'énergie des impulsions en fonction du temps (à 10 Hz). Le laser est utilisé à la puissance maximum.*

La figure 4.21 représente la dispersion en énergie des impulsions. Il est clair que ce laser fluctue beaucoup plus que le laser précédent. Cela doit provenir du fait qu'il est fortement multimode. Par ailleurs, ce laser semble adopter un comportement bi-stable. Son énergie oscille entre deux valeurs sur des plages d'une, voire plusieurs centaines d'impulsions, c'est-à-dire sur des durées de 5 à 10 s. Ce type de comportement est assez gênant, mais son amplitude ne dépasse pas $\pm 2\%$ en écart-type.

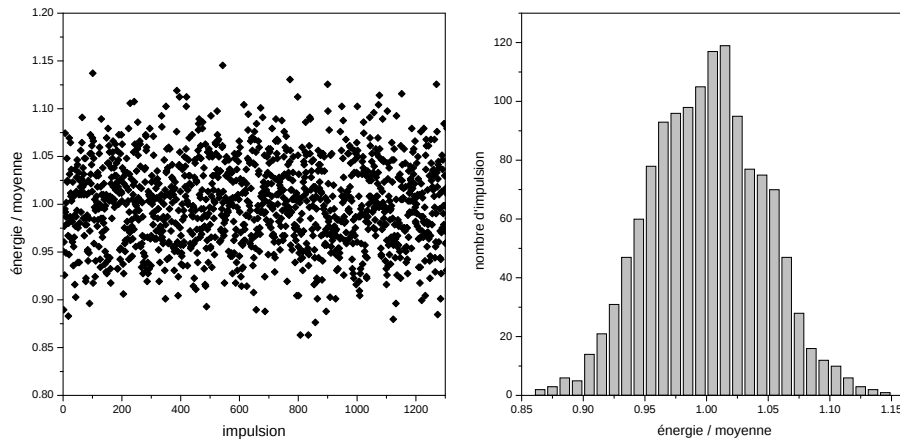


FIG. 4.22 – *Dispersion en énergie à 532 nm et évolution de l'énergie des impulsions en fonction du temps (à 10 Hz). Le laser est utilisé à la puissance maximum.*

A 532 nm , le caractère bi-stable disparaît complètement car il est noyé dans les fluctuations globales accentuées par la conversion de fréquence (figure 4.22). Pour ce laser, l'énergie des impulsions fluctue donc de $\pm 1,5\%$ en écart-type à 1064 nm et de $\pm 5\%$ à 532 nm .

Cas du système Mira + Pulse Switch

La stabilité de l'oscillateur femtoseconde est particulièrement bonne lorsqu'il est pompé par un laser parfaitement asservi comme c'est notre cas. L'ajout d'un Cavity Dumper dégrade légèrement les performances. En effet, l'efficacité de diffraction du cristal acousto-optique est très sensible aux contraintes mécaniques résiduelles et aux fluctuations thermiques qui peuvent subsister sur la table optique. La figure 4.23 donne la dispersion de la puissance moyenne obtenue pour une statistique de 500 mesures avant et après une mesure Z-zcan. Pour ce laser, la puissance moyenne des impulsions fluctue de $\pm 5\%$ sur une heure.

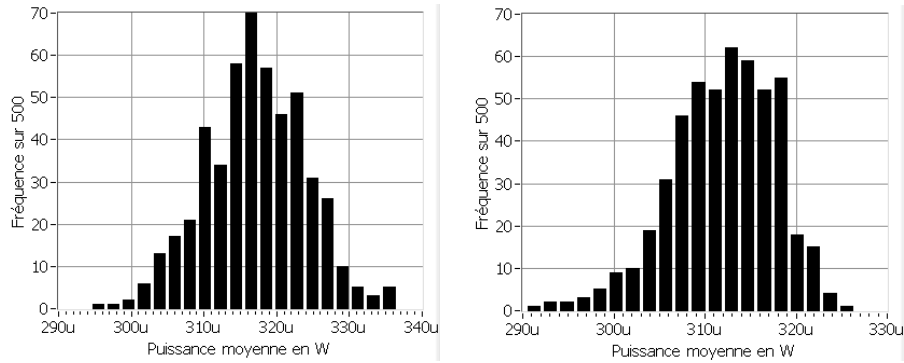


FIG. 4.23 – Dispersion de la puissance moyenne à 860 nm en régime sub-picoseconde avant et après une mesure Z-scan. (Taux de répétition de 10 kHz). Dans ce cas l'énergie par impulsion est de 32 nJ ce qui est proche du maximum délivré par le laser.

4.5.3 Amélioration du rapport signal à bruit

Nous avons vu que l'indice non-linéaire des verres et spécialement celui de la silice était faible et estimé au voisinage de $3 \cdot 10^{-20}\text{ m}^2/\text{W}$ en régime sub-picoseconde. De plus pour que les effets vectoriels soient négligeables la focalisation doit être modérée. Enfin pour éviter l'endommagement laser en régime nanoseconde et éviter de dépasser la puissance critique, la puissance des impulsions doit être limitée. Tout cela nous conduit à mesurer

de faibles variations de transmission normalisée de moins d’une dizaine de pourcents.

Cependant nous venons de le voir que les fluctuations en intensité des sources sont de cet ordre de grandeur. Il faut donc considérablement améliorer le rapport signal à bruit pour extraire l’information recherchée. Ce problème est résolu en mettant en place une voie de référence parfaitement corrélée avec la voie de signal (voie de mesure sur laquelle est placé l’échantillon testé). Cette voie est issue de la réflexion sur une lame prismatique placée juste avant la lentille de focalisation.

La corrélation des deux voies est déterminante pour l’obtention d’un signal stable d’une mesure à la suivante. Toutes les variations du signal issues de la photodiode de mesure autre que l’effet de la défocalisation dans l’échantillon non-linéaire doivent être prises en compte par la voie de référence.

Aussi pour s’affranchir de toutes les fluctuations parasites du signal, la voie de référence mise en place est “une copie conforme” de la voie de mesure, comme dans le dispositif “Eclipsing Z-scan” décrit par Xia[73] ou le “2-color Z-scan” décrit par Ma[153]. Les éléments optiques (lentilles de focalisation, photodiodes) et les paramètres géométrique sont rigoureusement les mêmes que pour la voie de signal. De plus, pour rétablir le même niveau de signal sur les deux voies sans utiliser de filtres supplémentaires et pour que les dérives angulaires du faisceau provoquent la même dérive de signal sur les deux détecteurs, une autre lame prismatique est introduite juste après l’échantillon non-linéaire. Ceci est particulièrement important dans le cas du laser QUANTEL ULTRA qui a tendance à beaucoup se dépointer. En effet nous rappelons que la défocalisation du faisceau est mesurée comme la variation du flux qui traverse un trou de taille millimétrique placé sur l’axe optique à environ 1.5 m du point de focalisation.

Enfin signalons qu’un effort tout particulier doit être fait sur la qualité de l’échantillon et la propreté des optiques et de l’environnement. Dans le cas contraire le faisceau est dégradé et de hautes fréquences spatiales introduites dans le faisceau. Lorsque la taille des grains de speckle sont de l’ordre de celle du trou de mesure cela conduit à des fluctuations très peu corrélées de l’ordre de $\pm 10\%$ sur les deux voies, rendant l’utilisation d’une voie de référence parfaitement inutile. Nous avons placé un diffuseur juste devant les photodiodes pour réduire la cohérence du faisceau et ainsi obtenir une répartition lumineuse uniforme sur la surface des détecteurs. Cela a pour but de diminuer la sensibilité du montage aux hautes fréquences résiduelles du faisceau.

Remarque : Notons également que cette configuration expérimentale, composée de deux

voies de mesure identiques, une avec, et l'autre sans échantillon, est la seule qui permet de mesurer exactement la transmission normalisée telle qu'elle est définie et simulée.

Le signal des photodiodes est ensuite envoyé sur un oscilloscope numérique qui en mesure la valeur moyenne sur quelques dizaines de nanoseconde afin de minimiser l'effet de la quantification. Le soin apporté à égaliser les longueurs des deux voies permet de mesurer et de parfaitement superposer les traces obtenues sur l'oscilloscope pour la même impulsion laser. La valeur transmise à l'ordinateur de pilotage et d'acquisition est une moyenne sur quelques impulsions, typiquement 50 ou 100 impulsions. La figure 4.24 représente le signal à vide ainsi obtenu pour 400 mesures consécutives, chacune de ces mesures étant une moyenne sur 50 impulsions. Les fluctuations des deux signaux sont d'environ $\pm 1\%$ autour de leur valeur moyenne, mais les deux voies semblent bien corrélées vu que les points de mesure s'alignent parfaitement sur la figure 4.24. Dans le cas présenté le rapport des deux voies ne fluctue que de $\pm 0.08\%$, soit une décade en dessous du signal espéré. Sur cette figure on peut noter que les deux voies dérivent. Cette mesure à été réalisée le matin, et nous n'avons probablement pas attendu suffisamment longtemps pour atteindre la stabilité thermique. Nous avons observé en effet que le système MIRA + PULSE SWITCH est particulièrement long à thermaliser.

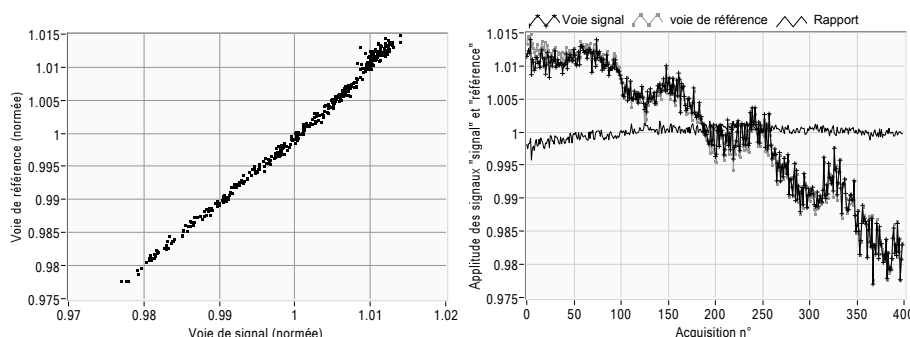


FIG. 4.24 – Niveaux de signal normalisé à vide, obtenus sur les voies signal et référence pour 400 mesures consécutives (moyenne sur 50 impulsions).

L'adjonction d'une voie de référence adaptée permet donc de réduire considérablement le bruit multiplicatif inhérent à la méthode de Z-scan. Dans ces conditions, le rapport de signal entre les deux voies de mesure nous permet de réduire les fluctuations du signal à vide à $\pm 0,5\%$. Ainsi, en effectuant par ailleurs des moyennes sur N points pour chaque position de l'échantillon, il est possible de réduire encore le bruit d'un facteur $\sqrt{N}$, c'est-à-

dire de descendre à une valeur de $\pm 0,08\%$ en moyennant sur 50 et $\pm 0,05\%$ en moyennant sur 100. Avec une variation de transmission normalisée de $\pm 1,5\%$, par exemple, une précision de l'ordre de 3% sur la détermination de ΔT peut être envisagée. Ceci correspond alors à une précision sur la variation de chemin optique dans l'échantillon de $\lambda/3000$, soit une amélioration de sensibilité d'un rapport 10 par rapport à l'étude de Sheik-Bahae. La figure 4.25 montre le très bon rapport signal à bruit auquel nous sommes parvenu, ainsi que la répabilité obtenue entre deux mesures consécutives et l'adéquation avec les simulations.

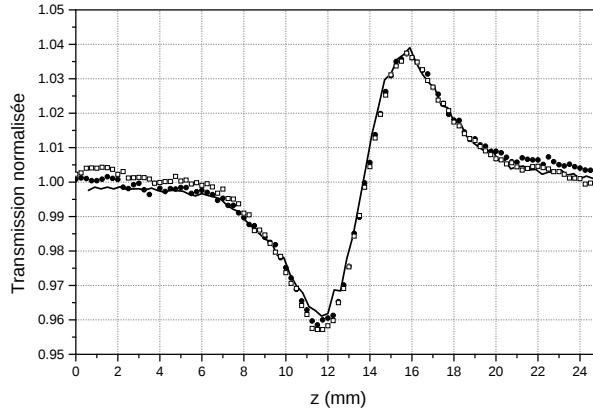


FIG. 4.25 – Courbe de transmission normalisée à 800 nm pour des impulsions de 155 fs (FWHM) pour un échantillon de silice suprasil de 5 mm (points expérimentaux et simulation en trait continu).

4.6 Mise en place du banc expérimental

En tenant compte de toutes ses considérations, le banc de métrologie automatisé de l'indice de réfraction non-linéaire en régime nanoseconde que nous avons développé à l'institut Fresnel, est représenté en haut de la figure 4.26. En régime sub-picoseconde et picoseconde, les moyens de caractérisation diffèrent légèrement et le banc de mesure correspondant est représenté figure 4.27.

Notre montage expérimental est constitué de l'une des sources lasers présentées précédemment. Concernant les lasers Nd:YAG à Q-switch un filtre doit être placé dans le faisceau pour couper la lumière issue des lampes flash. Le faisceau traverse ensuite une lame demi-onde et un polariseur de type Glan-Thompson possédant une haute tenue au

flux et permettant un taux d'extinction très élevé, ce qui permet un contrôle de l'énergie des impulsions. De plus le polariseur permet d'imposer la direction de polarisation du laser. Elle est choisie dans un plan perpendiculaire au plan de la figure 4.26. Ainsi, les réflexions sur les différents éléments du montage se feront en polarisation s (champ électrique perpendiculaire au plan d'incidence). Sur le banc nanoseconde, un cristal de KTP peut être placé dans le faisceau à ce stade, afin de convertir une partie de la puissance du faisceau à 532 nm . Un filtre permettant de couper l'infrarouge est alors utilisé pour éliminer la lumière incidente du laser dans le premier harmonique.

Le faisceau est ensuite mis en forme "tache d'Airy tronquée" suivant l'un des montages vus en début de chapitre. Sur la figure 4.26, relative au laser QUANTEL ULTRA, cette mise en forme est réalisée grâce à l'utilisation d'une première lentille L1 qui produit une tache d'Airy à partir du profil "top hat" du faisceau au niveau du coupeur de sortie du laser. Une seconde lentille L2 permet d'agrandir cette tache qui est coupée à la première annulation par un diaphragme D2. Sur la figure 4.27, la mise en forme est réalisée à l'aide de deux diaphragmes D1 et D2. Le faisceau est ensuite renvoyé à 90° à l'aide d'un prisme en réflexion totale où d'un miroir en argent protégé. La première solution est très nettement préférable dans le cas nanoseconde car elle présente une meilleure tenue au flux.

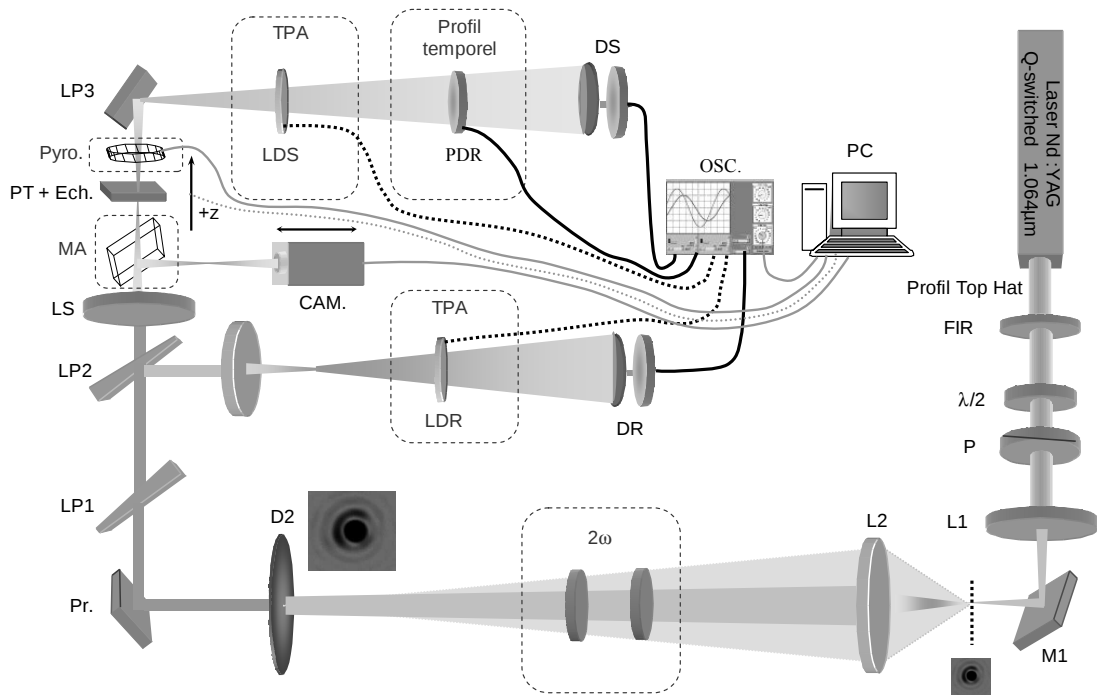


FIG. 4.26 – Montage expérimental à partir du laser QUANTEL ULTRA.

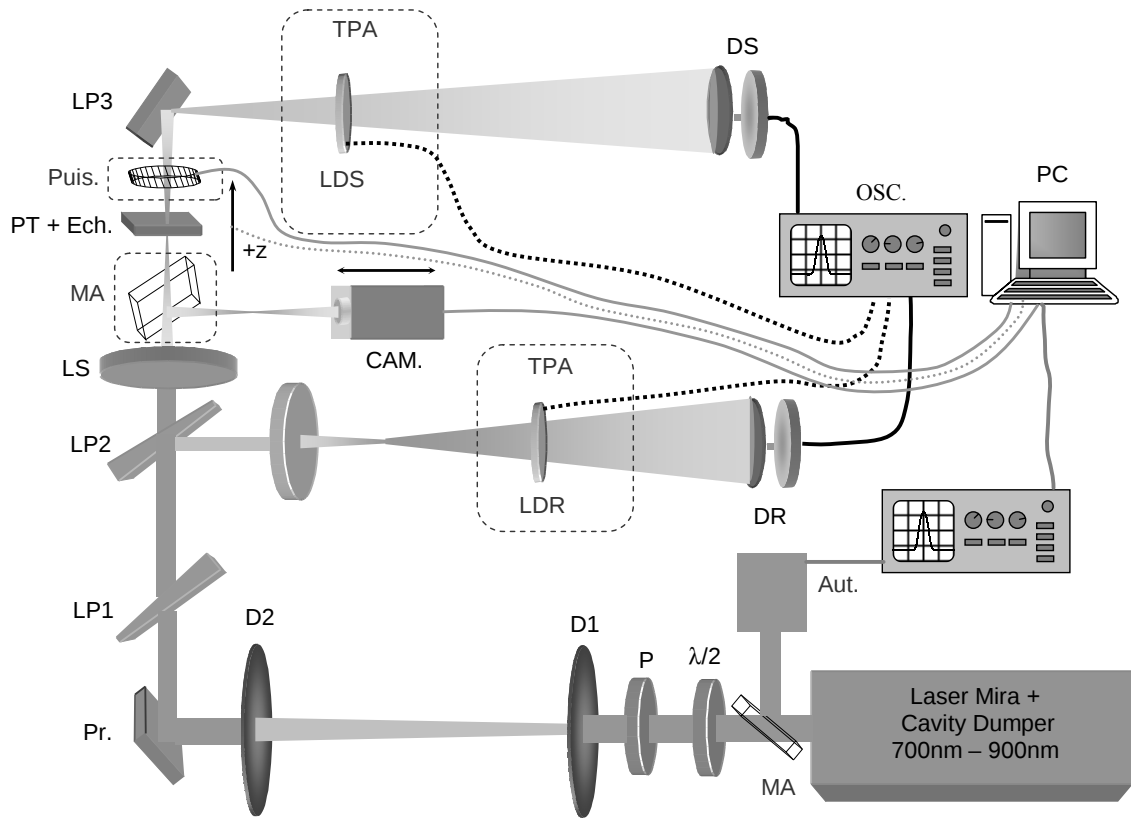


FIG. 4.27 – Montage expérimental dans le cas du système MIRA + PULSE SWITCH. Les éléments des montages sont : FIR : filtre coupe visible, $\lambda/2$: lame demi-onde à 1064 nm, P : polariseur, 2ω : cristal de KTP et filtre coupe IR (pour les mesures à 532), L1, L2, D1, D2 : lentilles et diaphragmes pour filtrage spatial, Pr. : prisme, LP1, LP2, LP3 : lames prismatiques, Pyro. : pyromètre, Puis. : mesureur de puissance, LR, LS : lentilles ($f' = 100$ mm) sur support X-Y à vis micrométriques, Aut. : autocorrélateur, MA : miroir amovible pour l'étude du faisceau où du profil temporel, CAM. : camera CCD et objectif sur platine de translation, PT : platine de translation motorisée commandée par PC, Ech. : échantillon mobile, DR, DS : photodiodes de la voie de référence et de la voie signal placées après un trou et un diffuseur, LDR, LDS : photodiodes larges de la voie de référence et de la voie signal pour la mesure d'absorption à deux photons, PDR : photodiode rapide pour la mesure du profil temporel, OSC. : oscilloscope, PC : ordinateur

Une première lame prismatique LP1 effectue un premier renvoi de faisceau où l'on peut placer un pyromètre où un mesureur de puissance afin de suivre l'énergie des impulsions pendant chaque expérience. Cette lame permet surtout de compenser la déflexion du fais-

ceau induite par la seconde lame prismatique LP2 qui permet de mettre en place la voie de référence. L'utilisation de lames prismatiques au lieu de simples lames à faces parallèles est nécessaire pour éviter tout problème d'interférence. En effet les interférences induites lors des renvois pourraient avoir un effet catastrophique sur le phénomène d'autofocalisation vu qu'elles induisent des hautes fréquences dans le faisceau. Or cette modulation spatiale du faisceau, aussi légère soit-elle, conduit à de l'autofocalisation à petite échelle ce qui perturbe l'interprétation des courbes de transmission normalisée.

Les deux voies (signal et référence) sont ensuite mises en place en utilisant deux lentilles de silice identiques LR et LS. Ces lentilles sont placés sur des supports réglables en X et en Y mais aussi en θ et ϕ par des vis micrométriques, afin de permettre un réglage très fin de l'alignement des faisceaux référence et signal. Cela est indispensable à l'obtention de la corrélation parfaite des voies signal et référence. Les deux voies sont, en outre, dotées de deux diaphragmes disposés en champ lointain et centrés sur l'axe optique du faisceau. Deux photodiodes au silicium identiques DR et DS sont disposées derrière ces diaphragmes. Le faible diamètre de la cellule en silicium de ces photodiodes permet d'avoir un temps de réponse assez rapide ($\sim 3\text{ ns}$). Ces photodiodes sont reliés à un oscilloscope numérique de grande bande passante (500 MHz). Le signal qui est mesuré et transmis au programme d'acquisition du PC correspond à l'aire des impulsions mesurée à l'oscilloscope. Ce signal est donc proportionnel à l'énergie transmise par les diaphragmes. L'utilisation de deux autres photodiodes LDR et LDS de large section, et interceptant tout le faisceau permettent d'étudier l'absorption à deux photons.

Un miroir amovible permet un renvoi du faisceau vers une caméra CCD munie d'un objectif et installée sur une platine de translation micrométrique. Ainsi, nous pouvons étudier le profil spatial du faisceau avec une bonne résolution en Z autour du point de focalisation. Ce dispositif permet également de contrôler le filtrage spatial.

L'échantillon est placé sur une platine de translation équipée d'un moteur pas-à-pas permettant d'avoir une résolution de $10\text{ }\mu\text{m}$ par pas en Z. Cette platine permet un déplacement de l'échantillon sur une étendue totale de 50 mm . Le moteur de la platine est commandé par le PC et l'oscilloscope numérique est relié, par un port IEEE au PC. Ainsi, l'acquisition des courbes de transmission normalisée est entièrement automatisée. Dans un premier temps les programmes de commande et d'acquisition ont été développés en langage C++ puis dans un second temps ils ont été réalisés en LABVIEW permettant un plus grand confort d'utilisation. Les mesures sont alors traitées et affichées pendant les mesures.

Le “mesureur de puissance” ou le pyromètre sont placés dans le faisceau juste après l’échantillon avant et après l’acquisition de la courbe de transmission normalisée, afin de mesurer l’énergie des impulsions sans décalibrations possibles. Une troisième lame prismatique LP3 est placée après l’échantillon pour renvoyer le faisceau sur le diaphragme et la photodiode de la voie signal. Ce point est important pour la corrélation des deux voies. Enfin, une photodiode rapide, de bande passante égale à 25 GHz est placée dans le faisceau de la voie de signal, afin d’étudier également le profil temporel des impulsions in-situ dans le cas nanoseconde. L’autocorrélateur ici représenté à la sortie du laser permet la mesure de la durée des impulsions issues du Mira. Le spectromètre à fibre n’a pas été représenté n’ayant pas de position bien définie.

Ces bancs de mesure ont été réalisés avec la volonté d’être les plus semblables possibles pour pouvoir comparer les mesures dans les différents régimes temporels et minimiser les sources d’erreurs. De plus l’originalité de tels bancs est de mettre systématiquement en forme un faisceau incident filtré spatialement, stable et de bonne symétrie circulaire, de ne surtout pas dégrader cette qualité de faisceau après, de le caractériser in situ spatialement, temporellement et en énergie de façon simple afin d’en extraire des paramètres utiles à la simulation de la courbe théorique et à l’exploitation des mesures. Tout cela pour mesurer de faibles variations de transmission normalisée donc de faibles indices non-linéaires.

4.7 Conclusion

Dans le contexte de l’étude de l’endommagement laser et des effets de l’autofocalisation dans ce processus, notre intérêt a porté sur les verres silicates et notamment la silice. Or ces matériaux possèdent un indice de réfraction non-linéaire dont l’ordre de grandeur est de $10^{-20}\text{ m}^2/\text{W}$ d’après l’équation de Boling, Glass et Owyong que nous avons vu au chapitre 2. Pour mesurer de tels indices non-linéaires nous devons chercher à augmenter la sensibilité de la méthode de Z-scan.

La focalisation doit être un compromis entre d’une part l’obtention d’un niveau de signal élevé à énergie faible, et ainsi rester loin de la puissance critique et de l’endommagement, et d’autre part éviter les effets vectoriels et les irrégularités du volume focal associées. Nous devons ainsi focaliser relativement fortement le faisceau sur un diamètre d’une dizaine de microns. L’augmentation la sensibilité de la méthode de Z-scan passe alors par l’utilisation d’échantillons de plusieurs millimètres, ce qui ne permet pas de conserver l’approximation d’échantillon fin.

L'utilisation d'un faisceau de type "tache d'Airy tronquée" permet encore d'augmenter la sensibilité de la méthode d'un facteur 1.16 au minimum par rapport au faisceau gaussien de même waist. Les lasers utilisés ont été caractérisés avec précision, afin de déterminer une mise en forme adaptée qui permet d'obtenir un tel faisceau de façon stable, sans trop de pertes d'énergie, et en conservant un bruit d'intensité de quelques pourcents seulement.

Les moyens de caractérisation du faisceau et des impulsions ont été présentés. Ceux-ci nous permettent de déterminer les paramètres spatio-temporels réels du faisceau incident avec une grande précision, ce qui permettra de tenir compte des caractéristiques réelles du faisceau lors des simulations numériques, de l'interprétation des mesures et de l'estimation des erreurs commises sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire.

Dans ces conditions, la mise en place du montage expérimental a été décrite en détails. Malgré le gain de sensibilité apporté par l'utilisation d'échantillon épais et d'un faisceau de type "tache d'Airy tronquée", les variations de transmission normalisée ne dépasseront pas quelques pourcents. Ainsi, un soin tout particulier a été apporté à la mise en place expérimentale pour améliorer le rapport signal sur bruit de la méthode. En installant une voie de référence parfaitement corrélée à la voie principale, les fluctuations de la transmission normalisée ont pu être divisées par 6. Ainsi, en moyennant la transmission normalisée sur des échantillons de 100 impulsions consécutives, notre configuration expérimentale permet de détecter des variations de transmission normalisée de 0,05%, ce qui correspond à des variations de chemin optique de $\lambda/3000$.

Chapitre 5

Resultats experimentaux

5.1 Introduction

L'évolution d'un faisceau focalisé au cours de sa propagation dans un échantillon non-linéaire à faces parallèles a fait l'objet du chapitre 3. Nous en avons déduit un modèle numérique développé en FORTRAN permettant de simuler les courbes de transmission normalisée dans une configuration de Z-scan arbitraire. Nous l'avons utilisé afin de mieux comprendre le comportement de ces courbes et en particulier d'étudier l'influence de plusieurs paramètres comme le profil spatial du faisceau incident et la présence de diffusion ou d'absorption linéaire ou d'absorption non-linéaire.

Le chapitre 4 a permis de présenter les bancs de mesure d'indices de réfraction non-linéaires qui ont été développés à l'institut Fresnel. En plus des moyens utiles à l'acquisition de la courbe de transmission normalisée, ils incluent tous les outils de caractérisation nécessaires à la mesure d'indices de réfraction particulièrement faibles comme ceux des verres et notamment de la silice. Nous les avons automatisés et nous avons conçu une interface avec l'ordinateur de contrôle regroupant les différents programmes d'acquisition des paramètres expérimentaux. De plus, nous avons pu vérifier que ces bancs permettent d'avoir une très grande sensibilité.

Nous devons maintenant faire le lien entre les courbes simulées et les courbes expérimentales. Pour ce faire une analyse plus fine du signal expérimental mesuré est nécessaire. Elle va permettre d'étudier l'influence du profil temporel des impulsions et de définir un paramètre temporel pertinent à mesurer tout comme on avait introduit la section effec-

tive. Après avoir vérifié que nous utilisons la méthode de Z-scan dans son domaine de linéarité, nous essayerons d'estimer l'erreur commise sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire. Enfin, nous pourrons présenter les résultats des études expérimentales qui ont été menées dans la silice et dans quelques verres dans les différents régimes temporels.

5.2 Signal expérimental effectivement mesuré

Ce paragraphe a pour but d'analyser la méthode de mesure d'un point de vue quantitatif, et de définir les grandeurs physiques nécessaires à la détermination de l'indice non-linéaire γ à partir des courbes de transmission normalisée obtenues expérimentalement. Ceci permettra ensuite d'estimer les erreurs sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire par la méthode de Z-scan.

Plusieurs utilisent pour réduire le bruit de la méthode de Z-scan une configuration expérimentale où la voie de référence est une simple réflexion du faisceau collimaté. Dans ce cas le signal effectivement mesuré est le rapport entre la puissance transmise par le diaphragme et la puissance totale du faisceau incident. Cependant cette configuration ne permet pas de s'affranchir de toutes les fluctuations d'intensité de la source lorsque celle-ci dépointe. En effet dans ce cas la puissance au centre du faisceau n'est pas totalement corrélée avec la puissance totale du faisceau et cela a été constaté expérimentalement. Aussi, seule la configuration expérimentale comportant deux voies de mesure parfaitement identiques permet réellement de mesurer la transmission normalisée telle qu'elle est définie théoriquement et permet de s'affranchir de toutes les fluctuations d'intensité parasites.

La linéarité de la méthode de Z-scan en fonction de la variation d'indice maximale dans l'échantillon Δn a été étudiée numériquement à la fin du chapitre 3. Si elle est évidente¹ dans le cas du modèle de Sheik-Bahae ou de celui d'Hermann et McDuff (voir le chapitre 2), elle devient en revanche fausse dans le cas de forts déphasages non-linéaires. Dans nos conditions expérimentales la fonction $F(z)$, désignant la transmission normalisée mesurée par la méthode de Z-scan, a été calculée numériquement pour des valeurs croissantes de ce paramètre Δn . Dans ce cas, l'amplitude de ces courbes peut être consi-

¹C'est même une hypothèse de ces modèles.

dérée comme proportionnelle à Δn avec une erreur maximale inférieure à $\pm 1\%$ lorsque le paramètre Δn est inférieur à 10^{-5} . Les courbes de transmission normalisée ne changent donc pas de forme et sont simplement dilatées proportionnellement à Δn tant que Δn est inférieur à cette valeur. Nous nous placerons désormais dans cette situation de linéarité de la méthode, ce qui permet une exploitation plus rapide des données expérimentales. Notons cependant qu'aucun élément théorique ne nous contraint fondamentalement à ce choix, et que notre modèle reste valide pour de plus grandes valeurs de Δn^2 .

La configuration expérimentale retenue met en œuvre un régime faiblement non-linéaire, de sorte que les variations d'indice sont également faibles et que la déformation temporelle des impulsions au cours de la propagation peut être négligée. Aussi, d'un point de vue théorique, la transmission normalisée instantanée peut s'écrire sous la forme linéarisée suivante :

$$T(z, t) = \frac{P_s(z, t)}{P_r(t)} = 1 + \Delta n(t) F(z) \quad (5.1)$$

où $F(z)$ désigne la fonction de z décrite au chapitre 3 et qui dépend également de l'indice de réfraction, de l'épaisseur de l'échantillon et des caractéristiques géométriques du faisceau incident.

D'autre part, contrairement aux techniques interférométriques pompe-sonde [72] ou de Z-scan à deux couleurs [81, 84], notre mesure n'est pas résolue en temps. Pour une méthode à un seul faisceau, même pour résoudre correctement les phénomènes lents (de temps de réponse de l'ordre de la nanoseconde), il faudrait disposer pour cela de deux photodiodes rapides possédant une réponse identique. De plus, le bruit électronique haute fréquence, la bande passante de 500 *MHz* de l'oscilloscope ainsi que la quantification sur 8 bits qu'il introduit ne permettent pas une résolution suffisante pour faire une mesure correcte des variations de puissance instantanée. Nous sommes donc contraints à mesurer un paramètre global γ . Supposer ce paramètre comme instantané, revient à définir un indice non-linéaire électronique effectif pour la durée de l'impulsion d'analyse qui inclut toutes les contributions. L'évolution de ce paramètre en fonction de la durée des impulsions nous fournira des renseignements sur les différentes contributions de l'indice non-linéaire.

²Dans la mesure toutefois où la description scalaire du phénomène d'autofocalisation mis en jeu lors de la mesure reste valide, où les propriétés du matériau ne sont pas modifiées au cours de celle-ci et où aucune non-linéarité d'ordres supérieurs est excitée.

En conséquence, la variation d'indice peut s'écrire $\Delta n(t) = \gamma I(t)$, où $I(t)$ représente l'intensité instantanée sur l'axe optique au point de focalisation. C'est-à-dire que la variation d'indice suit linéairement la variation d'intensité $I(t)$. Dans ce cas, la transmission normalisée instantanée prend la forme suivante :

$$T(z, t) = 1 + \gamma I_0 p(t) F(z) \quad (5.2)$$

où $p(t)$ représente le profil temporel de maximum égal à 1 d'une impulsion issue du laser et I_0 , l'intensité crête sur l'axe optique au point de focalisation.

Les puissances instantanées reçues par les photodiodes des voies signal et référence sont donc proportionnelles à :

$$P_s(z, t) \propto p(t) \times (1 + \gamma I_0 p(t) F(z)) \quad (5.3)$$

$$P_r(t) \propto p(t) \quad (5.4)$$

où $P_s(z, t)$ représente la puissance instantanée transmise par la voie signal (dépendant donc de la position z de l'échantillon non-linéaire) et $P_r(t)$ la puissance instantanée transmise par la voie de référence sans échantillon.

En gardant comme objectif de réduire le bruit, nous avons mentionné qu'expérimentalement le signal mesuré sur chaque une des deux voies est l'intégrale temporelle de la puissance transmise par un trou placé sur l'axe en champ lointain. Cette mesure est effectivement beaucoup moins bruitée que la mesure de la puissance crête des impulsions. L'énergie des impulsions est effectivement plus stable que leur valeur crête (les lasers utilisés sont multimodes). De plus le bruit de quantification de l'oscilloscope est moins important sur cette mesure. C'est donc une transmission normalisée intégrée temporellement qui est mesurée, c'est à dire :

$$\frac{\int P_s(z, t) dt}{\int P_r(t) dt} \quad (5.5)$$

Puisque la transmission normalisée mesurée est intégrée temporellement, le signal effectivement mesuré est donc proportionnel à :

$$T(z) = 1 + \gamma I_0 \frac{\int p^2(t) dt}{\int p(t) dt} \times F(z) \quad (5.6)$$

Par ailleurs, nous n'avons pas expérimentalement directement accès à l'intensité I_0 mais elle se calcule via les grandeurs mesurées que sont l'énergie E d'une impulsion, la

répartition spatiale du faisceau au point de focalisation et le profil temporel des impulsions. Ceci nous amène à définir deux paramètres d'intégration (un premier temporel et un second spatial) afin de réduire les erreurs sur la détermination de I_0 , et donc de γ . Nous avons déjà introduit la notion de surface effective de faisceau S_{eff} au point de focalisation. Il nous faut de plus définir une durée effective d'impulsion τ_{eff} , définie comme suit :

$$S_{eff} = \iint A_{sp}(x, y) dx dy \quad (5.7)$$

$$\tau_{eff} = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int p(t) dt \quad (5.8)$$

où $A_{sp}(x, y)$ représente la répartition spatiale d'énergie du faisceau incident dans le plan de focalisation (de maximum égal à 1). Notons que cette définition de τ_{eff} est telle que τ_{eff} représente la demi-largeur à $1/e$ dans le cas d'une impulsion temporellement gaussienne.

Dans ces conditions, l'énergie totale E , la fluence F_0 et l'intensité crête I_0 sur l'axe optique au point de focalisation et la puissance totale P du faisceau sont reliées par les relations suivantes :

$$E = F_0 \times S_{eff} \quad (5.9)$$

$$E = P \times \sqrt{\pi} \tau_{eff} \quad (5.10)$$

$$F_0 = I_0 \times \sqrt{\pi} \tau_{eff} \quad (5.11)$$

Ainsi, l'expression de la transmission normalisée devient :

$$T(z) = 1 + \frac{\gamma E}{S_{eff}} \frac{\int p^2(t) dt}{\pi \tau_{eff}^2} \times F(z) \quad (5.12)$$

En configuration de Z-scan et dans le cas général d'impulsions ayant un profil temporel perturbé (lasers multimodes), il est clair que le paramètre τ_{eff} n'est pas le paramètre le plus judicieux à déterminer expérimentalement puisqu'il reste à évaluer l'intégrale temporelle du profil au carré. Il est plus pertinent et plus juste d'introduire un nouveau paramètre τ'_{eff} défini par :

$$\tau'_{eff} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \frac{\left(\int p(t) dt \right)^2}{\int p^2(t) dt} \quad (5.13)$$

Notons que ce nouveau paramètre a été défini de telle sorte qu'il représente la demi-largeur à $1/e$ dans le cas d'une impulsion temporellement gaussienne. Dans le cas nanoseconde des mesures à l'oscilloscope sont possibles pour déterminer ce paramètre. Dans

les cas picoseconde et sub-picoseconde, la mesure par autocorrélation ne fournit pas le profil temporel de l'impulsion : l'estimation directe de ce paramètre n'est pas possible. Nous utiliserons donc les expressions théoriques trouvées dans le cas gaussien et sécante hyperbolique. Soit $\sqrt{2}\tau_0$ pour un profil temporel $e^{t^2/(2\tau_0^2)}$ et $\sqrt{8/\pi}\tau_0$ pour un profil temporel $Sec(t/\tau_0)$.

L'expression de la transmission normalisée en fonction des paramètres mesurés expérimentalement et de la fonction $F(z)$ s'écrit finalement :

$$T(z) = 1 + \frac{\gamma E}{\sqrt{2\pi} \tau'_{eff} S_{eff}} \times F(z) \quad (5.14)$$

Du fait de la linéarité supposée de la transmission normalisée avec la variation d'indice maximale Δn , cette expression est linéaire en fonction de l'énergie des impulsions incidentes. Cela nous donne donc un critère pouvant être testé expérimentalement, permettant de vérifier que nous utilisons la méthode de Z-scan dans son domaine de linéarité.

5.3 Linéarité effective de la méthode

Dans ce paragraphe, nous étudions expérimentalement la linéarité de l'amplitude pic-vallée de la courbe de transmission normalisée ΔT en fonction de l'énergie des impulsions. Pour s'affranchir de toutes autres variations des paramètres spatio-temporels, l'énergie des impulsions est réglée par rotation de la lame demi-onde. Deux études ont été réalisées pour cela, la première sur le banc nanoseconde et la seconde sur le banc sub-picoseconde.

La première étude a été menée sur un échantillon de silice amorphe de 11 *mm* d'épaisseur. Plusieurs acquisitions au même endroit ont été réalisées pour des énergies variant entre 220 et 800 μJ . Les caractérisations du faisceau à l'aide de la caméra CCD et de la photodiode rapide sur un échantillon de 100 impulsions ont donné les résultats suivants :

paramètre	moyenne	écart-type (%)
τ'_{eff}	3.63 <i>ns</i>	$\pm 2\%$
S_{eff}	$4.48 \times 10^{-6} \text{ cm}^2$	$\pm 1.6\%$

Les courbes de transmission obtenues dans ces conditions sont représentées sur la figure 5.1. A partir de ces courbes, la différence de transmission normalisée ΔT entre les extrema a été tracée en fonction de la variation d'indice Δn au point de focalisation et sur l'axe optique (voir figure 5.2). La variation d'indice Δn est telle que $\Delta n = \gamma I_e$ avec I_e l'intensité "effective" calculée comme suit :

$$I_e = \frac{E}{\sqrt{2\pi} \tau'_{eff} S_{eff}} \quad (5.15)$$

ΔT est alors comparée aux simulations numériques effectuées parallèlement pour différentes valeurs de Δn , choisies dans la zone explorée expérimentalement (figure 5.2). Le choix de γ permet alors d'obtenir les mêmes pentes pour l'expérience et la simulation. La valeur de γ obtenue dans ces conditions vaut : $\gamma \approx 4 \times 10^{-20} \text{ cm}^2/\text{W}$.

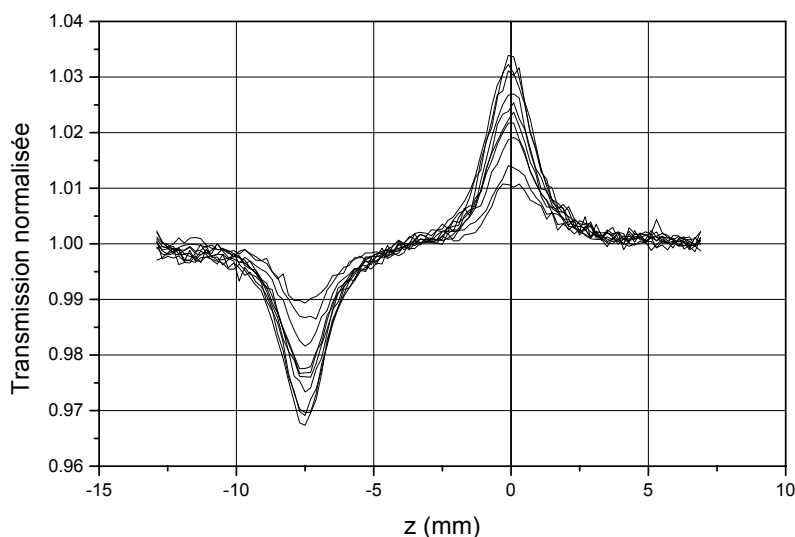


FIG. 5.1 – Courbes de transmission normalisée obtenues sur un échantillon de silice d'épaisseur 11 mm à 1064 nm.

En terme de différence de transmission normalisée ΔT , on constate une très bonne linéarité de la méthode tant sur le plan théorique qu'expérimental pour différentes valeurs de l'énergie incidente. Si l'on oublie, pour l'instant, les points extrêmes, un écart maximum d'environ 5% à la régression linéaire a été constaté, ce qui est particulièrement faible. Outre le fait que ce résultat témoigne d'une grande stabilité du montage, ceci permet de vérifier que nous utilisons la méthode de Z-scan dans son domaine de linéarité.

Pour les énergies les plus faibles, la valeur de ΔT commence à être trop faible devant les fluctuations du signal à vide. Les mesures sont alors moins précises. Toutefois, la stabilité du signal à vide nous indique que la variation de transmission normalisée la plus faible qui peut être mesurée est de $\pm 0.05\%$, ce qui, reporté sur la figure 5.2, correspond à une variation d'indice effective sur l'axe et dans le plan focal de 10^{-6} . D'après les courbes d'évolution de l'intensité sur l'axe optique du faisceau (chapitres 3 et 4), la longueur d'interaction dans l'échantillon est d'environ 2 mm à 1064 nm (largeur à mi-hauteur des courbes d'intensité sur l'axe optique). Ainsi, la détectivité de notre montage est de $\lambda/500$, en terme de variation de chemin optique dans l'échantillon.

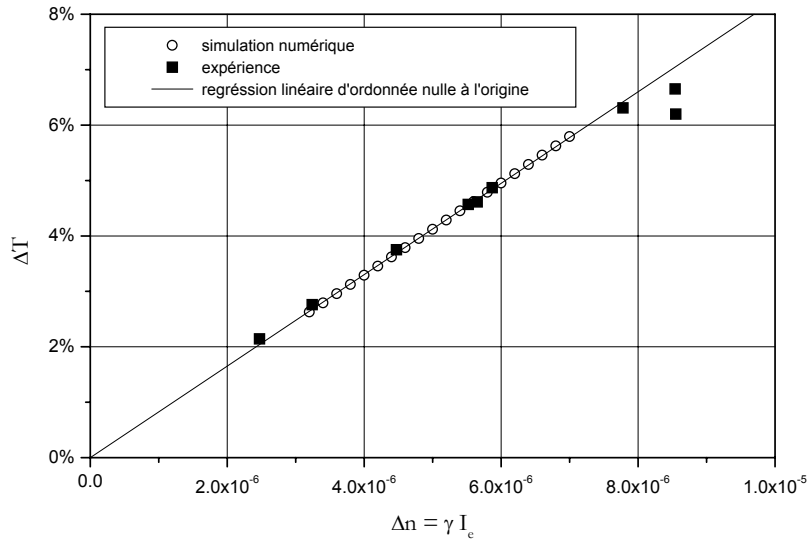


FIG. 5.2 – ΔT en fonction de la variation d'indice moyennée temporellement (expérience, simulation et régression linéaire).

Pour les valeurs d'énergie les plus élevées utilisées, une saturation de ΔT semble avoir lieu. Pourtant, la variation d'indice reste encore dans la plage de linéarité (environ 9×10^{-6}). Il ne s'agit donc pas, a priori, d'une erreur sur le modèle numérique utilisé qui reste encore largement valable pour des déphasages non-linéaires aussi faibles. En revanche, lors d'une des deux dernières acquisitions, l'échantillon s'est endommagé. En effet, pour de telles énergies (environ $800\text{ }\mu\text{J}$), la fluence du faisceau sur l'axe optique est égale à 180 J/cm^2 , soit très proche, voire au delà de la fluence typique d'endommagement du matériau. Ce genre de régime est donc particulièrement instable et certains mécanismes supplémentaires entrent très certainement en jeu.

A la lumière de cette étude de linéarité, il est clair que toute détermination précise de l'indice de réfraction non-linéaire dans la silice en régime nanoseconde nécessite de se placer dans un cas de figure optimal qui minimise les fluctuations (échantillon épais) et les risques d'endommagement, tout en conservant un rapport signal sur bruit suffisant, ce qui laisse une marge de manœuvre finalement assez étroite, mais dans laquelle nous avons constaté une excellente linéarité.

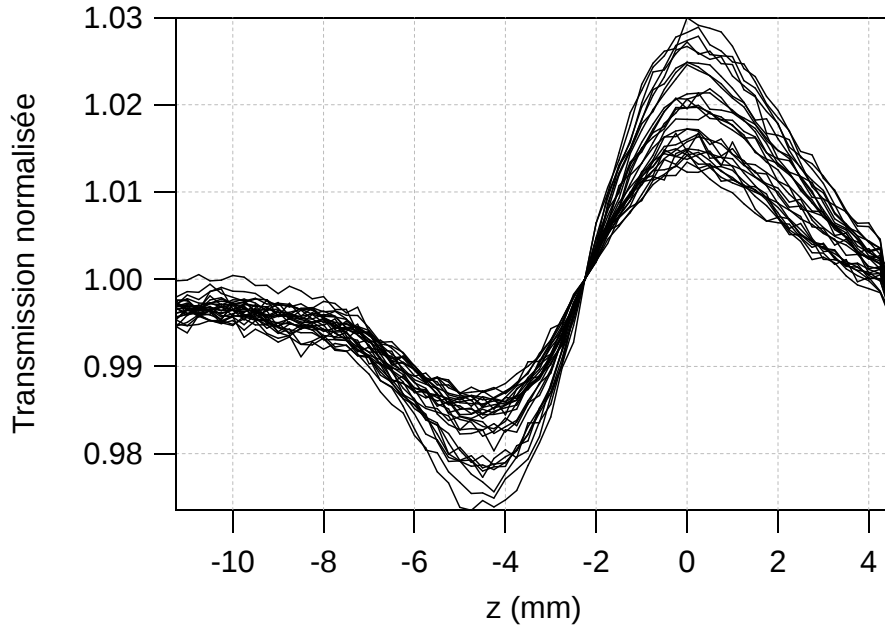


FIG. 5.3 – *Courbes de transmission normalisée obtenues sur un échantillon de Suprasil d'épaisseur 5 mm à 800 nm.*

De même la seconde étude de linéarité à été menée sur un échantillon de silice Suprasil en régime sub-picoseconde ($\text{FWHM} \approx 160 \text{ fs}$). Les trente courbes de transmission normalisée de la figure 5.3 ont été réalisées au même point, le même jour. Cette étude ayant été menée pendant la phase de validation du banc de mesure, nous ne disposons pas de la mesure absolue de l'énergie mais seulement d'un signal proportionnel issu d'une photodiode. L'énergie est alors donnée en unité arbitraire et nous ne pouvons pas en déduire une estimation de l'indice non-linéaire comme dans le cas nanoseconde.

La figure 5.4 représente l'amplitude des courbes de transmission normalisée ΔT tracée en fonction de l'énergie utilisée (en unité arbitraire). Comme dans le cas nanoseconde,

et malgré le bruit encore important des courbes de transmission normalisée on constate une très bonne linéarité expérimentale de la méthode pour différentes valeurs de l'énergie incidente.

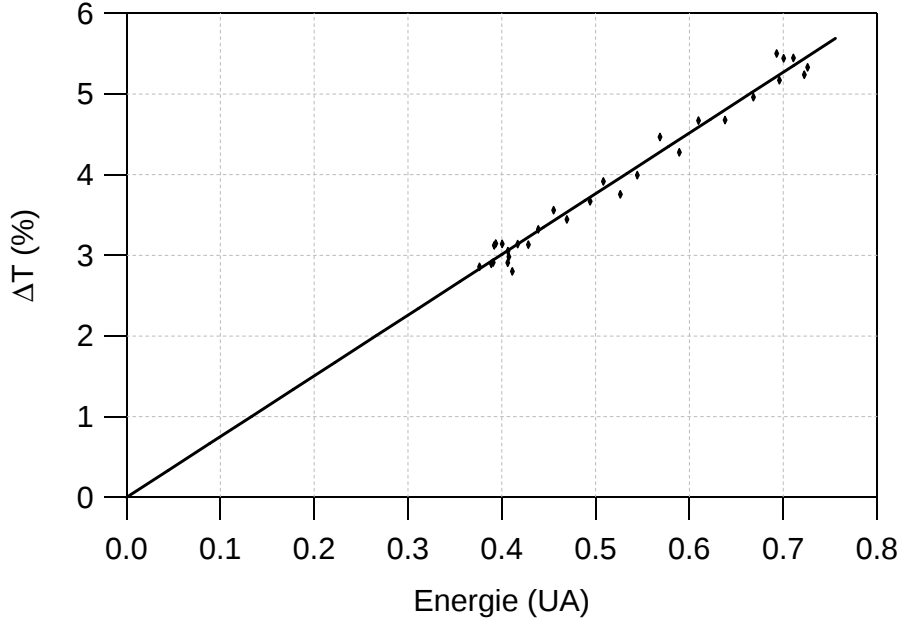


FIG. 5.4 – Amplitude pic-vallée ΔT en fonction de l'énergie des impulsions incidentes (points expérimentaux et droite de régression linéaire).

En conclusion de tout ceci, il faut retenir la bonne linéarité et la bonne répétabilité de la mesure. Par ailleurs, notons que si une trop grande dérive est constatée sur la voie de référence, l'acquisition est rejetée.

5.4 Calcul d'erreurs

Dans l'hypothèse où les fluctuations des différents paramètres restent faibles les fluctuations de transmission normalisée peuvent être estimées par différenciation de la relation 5.14. On trouve alors³ :

$$\frac{\delta\gamma}{\gamma} = \frac{\delta T}{T-1} + \frac{\delta E}{E} + \frac{\delta\tau'_{eff}}{\tau'_{eff}} + \frac{\delta S_{eff}}{S_{eff}} + \frac{\delta F(z)}{F(z)} \quad (5.16)$$

³Ici δX représente l'incertitude de la grandeur X .

Remarque : Cette relation conduit à une surestimation des erreurs sur la valeur de l'indice non-linéaire dans le cas où plusieurs paramètres sont corrélés.

L'erreur sur l'enregistrement de la transmission normalisée $\frac{\delta T}{T-1}$ peut être considérée comme négligeable devant les autres incertitudes. En effet les efforts que nous avons fait pour réduire le bruit, font que la courbe est toujours enregistrée avec un niveau de signal une à deux décades au dessus du bruit, permettant la normalisation des courbes sans problème. De plus lorsque le bruit est trop important nous rejetons la mesure.

Expérimentalement, sur un échantillon d'une centaine d'impulsions, l'énergie du faisceau après le filtrage spatial fluctue typiquement de $\pm 4\%$ (écart-type). Après avoir effectué une moyenne sur 100 impulsions, l'énergie ne dérive jamais plus de $\pm 2\%$ pendant le temps d'acquisition des courbes de transmission normalisée. De plus, l'étalonnage du pyromètre garantit une mesure de l'énergie à $\pm 3\%$ à 1064 nm et $\pm 7\%$ à 532 nm . Sur le banc picoseconde et sub-picoseconde l'incertitude sur la puissance moyenne des impulsions est de $\pm 5\%$.

L'erreur sur le paramètre temporel τ'_{eff} dépend du régime temporel considéré. Dans le cas nanoseconde la durée d'impulsion effective τ'_{eff} est calculée numériquement à l'aide de la relation 5.13 pour un échantillon de 100 profils temporels acquis séparément. Dans ces conditions, les fluctuations de τ'_{eff} sur 100 impulsions restent inférieures à $\pm 2\%$. Dans le cas picoseconde et sub-picoseconde, l'incertitude sur la durée des impulsions a été estimée via les fluctuations des mesures d'autocorrélation. Si l'on tient compte de l'erreur de modélisation du profil temporel des impulsions les fluctuations atteignent $\pm 13\%$. Cependant si l'on ne considère qu'un seul des deux modèles (soit sécante soit gaussien) ces erreurs se réduisent à $\pm 6\%$.

L'erreur sur la section effective est quant à elle corrélée à l'erreur sur l'estimation de la courbe théorique. En effet le calcul de la simulation adaptée utilise la mesure de section effective. L'ensemble peut alors se regrouper sous la forme d'une erreur des paramètres opto-géométriques du montage mesurée par l'adéquation de la simulation avec les données expérimentales. L'étalonnage de la caméra, à l'aide d'une mire graduée a permis de déterminer la correspondance entre la taille réelle dans le plan objet de l'objectif et les pixels de la caméra. La correspondance vaut : $0.7\text{ }\mu\text{m}/\text{pixel}$. L'erreur sur la détermination

de ce paramètre, c'est à dire l'erreur sur l'étalonnage de la caméra est estimée à $\pm 2\%$, ce qui correspond donc à une incertitude absolue de $\pm 4\%$ sur la détermination absolue de la surface effective du faisceau. L'erreur sur le meilleur ajustement entre la courbe théorique et la courbe expérimentale est estimée à $\pm 2\%$ tant que l'on reste dans le domaine de linéarité de la méthode.

Ainsi, les erreurs dues aux étalonnages des appareils de mesure et l'ajustement de la simulation avec les données expérimentales induisent une erreur relative sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire variant de 10 à 20 pourcents.

5.5 Mesures dans la silice

5.5.1 Régime nanoseconde

Le laser LASER PHOTONICS nous à permis de réaliser une première série de mesures pour une durée d'impulsions d'environ 20 ns à $1/e$. Pour cette étude nous avons surtout utilisé 4 échantillons de silice de natures différentes : Hérasil (quartz fondu) et Suprasil (silice synthétique) et de fabricants différents (Schott, Heraeus et Corning). Les 4 échantillons possèdent la même épaisseur de 5 mm , afin de se placer dans les mêmes conditions et faire une étude comparative. Chaque courbe de transmission normalisée présentée est issue d'une moyenne sur 5 balayages consécutifs exécutés au même point. Durant un balayage, chaque valeur de la transmission normalisée est issue d'une moyenne sur une centaine d'impulsions, afin de s'affranchir des fluctuations d'énergie impulsion après impulsion.

Le faisceau incident a été caractérisé spatialement et temporellement avant et après l'étude. L'énergie moyenne sur 500 impulsions a été mesurée avant et après chaque série de 5 balayages et corrigée de la réflexion sur la face avant de l'échantillon. Cette énergie moyenne n'a pas varié de plus de $\pm 2\%$ durant l'ensemble de l'étude. Les conditions expérimentales de l'étude sont résumées dans le tableau 5.1.

Le laser QUANTEL ULTRA nous à permis de faire une seconde série de mesures pour des impulsions d'environ 7 ns de durée effective totale à $1/e$. Cette fois-ci, cette étude a concerné plusieurs échantillons de silice d'épaisseurs différentes (11 mm , 9.2 mm et

Longueur d'onde	$\lambda [nm]$	1064	532
Energie	$E [mJ]$	0.74	0.29
Surface effective	$S_{eff} [cm^2]$	3.9×10^{-6}	3.9×10^{-6}
Fluence sur l'axe optique	$F [J/cm^2]$	190	74
Durée d'impulsion effective	$\tau'_{eff} [ns]$	11.1	6.8
Intensité effective sur l'axe optique	$I_e [GW/cm^2]$	6.8	4.3

TAB. 5.1 – *Conditions expérimentales moyennes de l'étude menée avec le laser LASER PHOTONICS.*

6.5 mm), pour vérifier également que le modèle permet de prendre correctement en compte l'influence de l'épaisseur de l'échantillon. L'utilisation de ce laser délivrant des impulsions de durée plus courte permet de déceler la présence de mécanismes lents comme l'électrostriction. De plus il est possible d'obtenir les mêmes intensités crêtes (donc obtenir la même sensibilité), pour des fluences moins élevées. Nous pouvons donc nous éloigner du seuil d'endommagement laser.

Tout comme dans l'étude avec le laser LASER PHOTONICS, le faisceau incident a été caractérisé spatialement et temporellement avant et après l'étude. L'énergie moyenne sur 500 impulsions a été mesurée avant et après chaque série de 5 balayages et corrigée de la réflexion sur la face avant de l'échantillon. L'énergie moyenne n'a pas varié de plus de $\pm 2\%$ durant l'ensemble de cette étude. Les conditions expérimentales moyennes de l'étude sont résumées dans le tableau 5.2.

Longueur d'onde	$\lambda [nm]$	1064	532
Energie	$E [mJ]$	0.436	0.1
Surface effective	$S_{eff} [cm^2]$	4.5×10^{-6}	3.1×10^{-6}
Fluence sur l'axe optique	$F [J/cm^2]$	96	35
Durée d'impulsion effective	$\tau'_{eff} [ns]$	3.7	2.3
Intensité effective sur l'axe optique	$I_e [GW/cm^2]$	10	6

TAB. 5.2 – *Conditions expérimentales moyennes de l'étude menée avec le laser QUANTEL ULTRA.*

Courbes brutes

Les résultats de la première étude concernant les 4 échantillons de silices testés à 1064 nm avec des impulsions de 20 ns sont présentés sur la figure 5.5. Les courbes expérimentales et les simulations adaptées correspondantes y sont représentées.

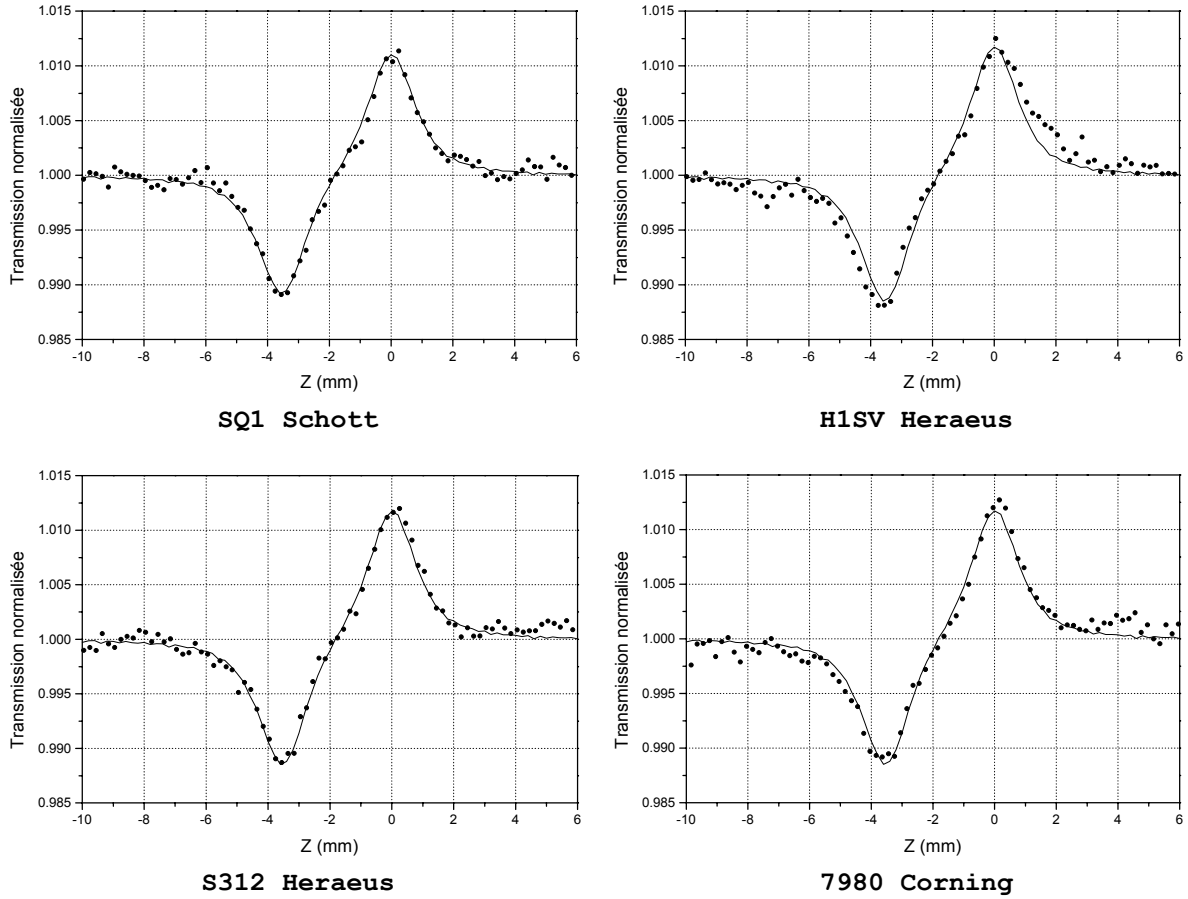


FIG. 5.5 – Courbes de transmission normalisée obtenues avec 4 échantillons de silice à 1064 nm (points : expérimental, lignes continues : simulation).

On constate sur ces courbes expérimentales que la sensibilité de notre montage est particulièrement bonne, puisque les fluctuations de la transmission normalisée “à vide” sont inférieures à 0.1% en écart-type. Par ailleurs, un très bon accord est constaté entre les points de mesure et les simulations. Il est important de noter que les simulations ont été ajustées aux résultats expérimentaux en ne faisant varier que le paramètre Δn . Tous les autres paramètres ont été mesurés et utilisés pour la simulation du faisceau incident.

Ce dernier a été comparé aux résultats expérimentaux (voir chapitre 3), puis injecté dans l'algorithme de propagation en milieu non-linéaire.

Après installation du cristal doubleur et une nouvelle caractérisation du faisceau incident, une seconde série de mesures a été menée sur les 4 échantillons à la longueur d'onde de 532 nm . Les courbes expérimentales et les simulations correspondantes sont représentées sur la figure 5.6.

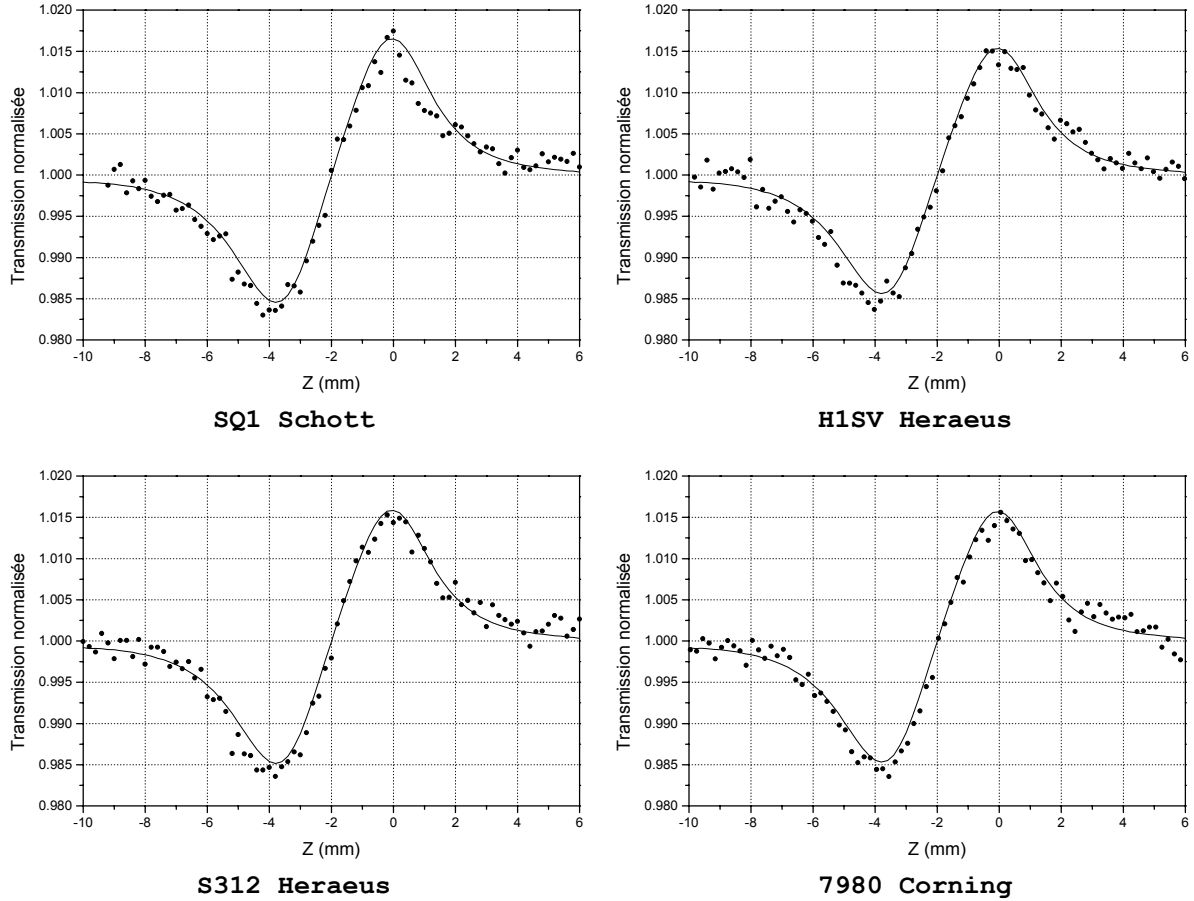


FIG. 5.6 – Courbes de transmission normalisée obtenues avec 4 échantillons de silice à 532 nm (points : expérimental, lignes continues : simulation).

De la même manière, l'accord entre les simulations et les mesures est très bon, bien que pour cette longueur d'onde, les fluctuations du faisceau soient un peu plus importantes, du fait de la conversion de fréquence.

Les résultats de la seconde étude menée avec le laser QUANTELE ULTRA à 1064 nm

sont présentés sur la figure 5.7. Les courbes expérimentales et les simulations adaptées correspondantes y sont encore représentées.

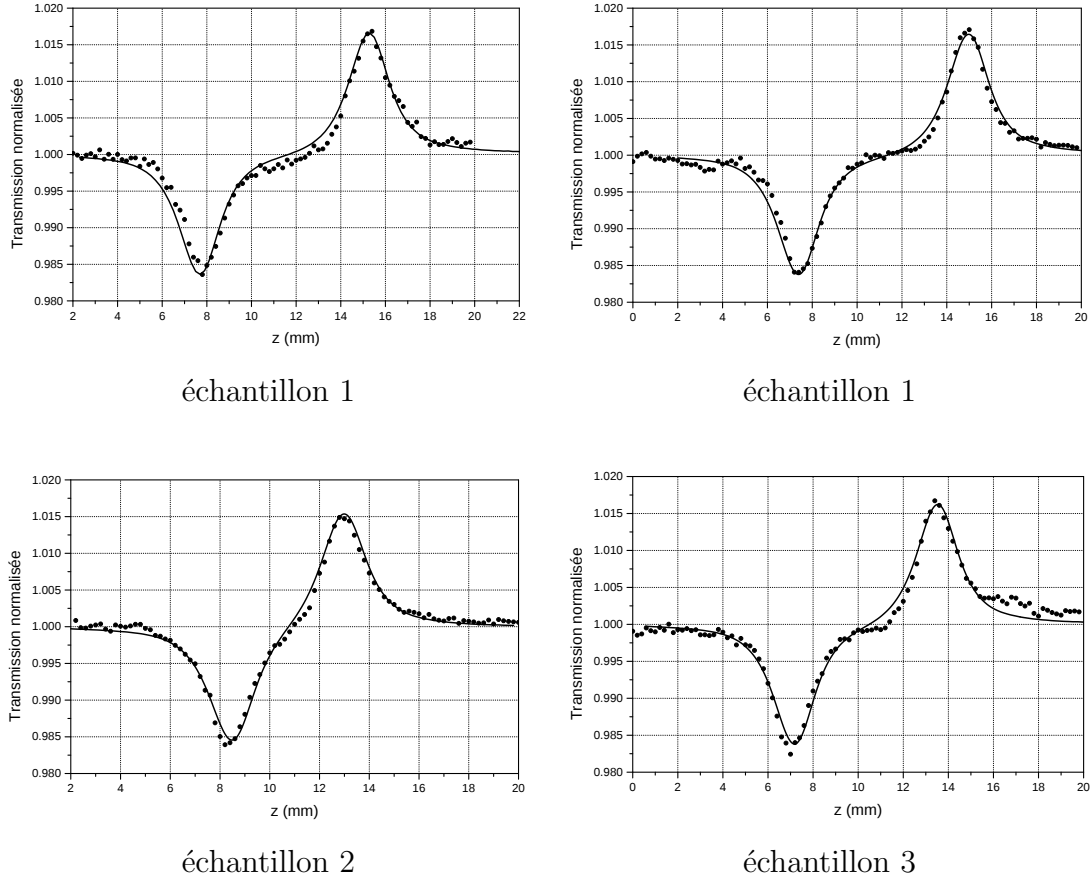


FIG. 5.7 – Courbes de transmission normalisée obtenues à partir de 3 échantillons - échantillon 1 : 11 mm, échantillon 2 : 6.5 mm, échantillon 3 : 9.2 mm- à 1064 nm (points : expérimental, lignes continues : simulation).

La figure 5.7 donne tout d'abord deux mesures pour le même échantillon de 11 mm d'épaisseur de silice Suprasil. Une bonne répétabilité est donc constatée à partir de ces deux mesures, puisque l'indice de réfraction non-linéaire obtenu est le même à 4% près. Sur cette même figure sont représentées d'autres mesures effectuées dans les mêmes conditions sur des échantillons d'épaisseur 6.2 mm et 9.2 mm. On constate encore que les points de mesure sont en parfait accord avec les simulations, et ce, avec les différents échantillons. Ceci tend à valider une fois de plus notre montage expérimental et nos simulations numériques.

Pour cette étude des mesures ont également été réalisées à 532 nm pour les échan-

tillons précédents. Les courbes expérimentales et les simulations correspondantes sont représentées à la figure 5.8.

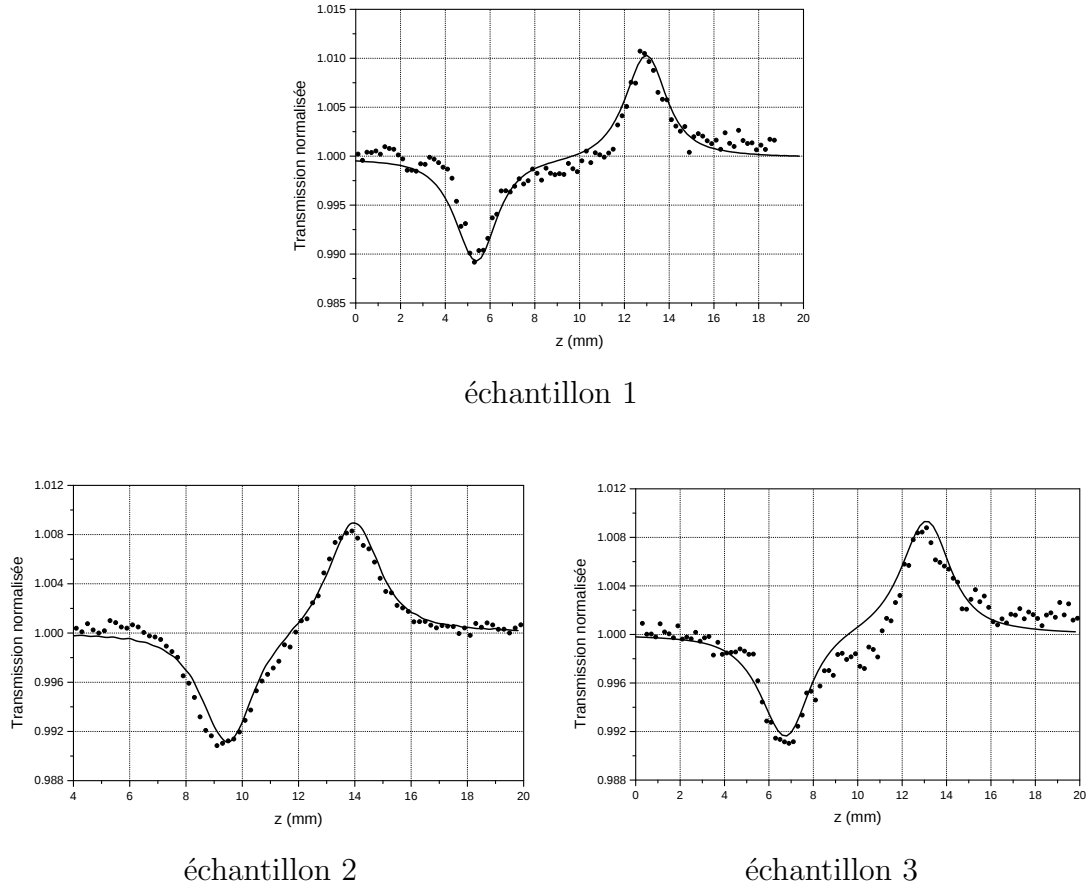


FIG. 5.8 – Courbe de transmission normalisée obtenue à partir de 3 échantillons - échantillon 1 : 11 mm, échantillon 2 : 6.5 mm, échantillon 3 : 9.2 mm- à 532 nm (points : expérimental, lignes continues : simulation).

On constate sur la figure 5.8 que ces mesures à 532 nm sont en moins bon accord que les mesures précédentes. Cela provient des plus grandes instabilités du faisceau et de ses dérives durant cette étude à 532 nm. Les résultats obtenus ici sont très certainement entachés d'une erreur supérieure à 15%.

Indice non-linéaire

A partir des courbes de transmission normalisée des figures 5.5 et 5.6 nous avons pu extraire la valeur de l'indice non-linéaire pour chaque échantillon, les valeurs sont résumées dans le tableau 5.3.

Echantillon	$\lambda = 1064\text{ nm}$	$\lambda = 532\text{ nm}$
SQ1 Schott	$\gamma = 5.03 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$	$\gamma = 3.39 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$
H1SV Heraeus	$\gamma = 4.98 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$	$\gamma = 3.3 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$
S312 Heraeus	$\gamma = 4.73 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$	$\gamma = 3.25 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$
7980 Corning	$\gamma = 4.98 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$	$\gamma = 3.35 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$

TAB. 5.3 – *Indice non-linéaire trouvé pour les différentes silices avec des impulsions de 20 ns. La précision des mesures est de $\pm 0.6 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ à 1064 nm et $\pm 0.4 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ à 532 nm*

L'incertitude de ces mesures est estimée à 12% à 1064 nm et à 16% à 532 nm. De plus, afin de vérifier l'uniformité de l'indice de réfraction non-linéaire, plusieurs mesures à différentes positions ont été réalisées pour chaque échantillon et aucune différence significative n'a pu être constatée, l'homogénéité des échantillons, la sensibilité de la méthode et les dérives des sources ne le permettant pas. Dans ces conditions, l'indice de réfraction non-linéaire moyen vaut environ $(4.9 \pm 0.6) \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ à 1064 nm et $(3.4 \pm 0.4) \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ à 532 nm.

De même la table 5.4 donne la valeur de l'indice non-linéaire correspondant aux mesures des figures 5.7 et 5.8.

Echantillon	épaisseur	$\lambda = 1064\text{ nm}$	$\lambda = 532\text{ nm}$
échantillon 1	11 mm	$\gamma = 4.0 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$	$\gamma = 2.9 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$
échantillon 2	6.5 mm	$\gamma = 3.8 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$	$\gamma = 2.2 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$
échantillon 3	9.2 mm	$\gamma = 3.9 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$	$\gamma = 3 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$

TAB. 5.4 – *Indice non-linéaire trouvé pour les différentes silices avec des impulsions de 7 ns.*

Ainsi nous avons trouvé qu'à 1064 nm avec une durée d'impulsion d'environ 7 ns l'indice de réfraction non-linéaire moyen est de $3.9 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, avec un écart de $\pm 0.15 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, soit environ $\pm 4\%$. A 2ω les valeurs trouvées sont assez différentes (plus de 30% de différence). Mais ces valeurs sont à considérer avec précautions étant donné les

imperfections de l'ajustement des simulations avec l'expérience. Avec ce laser, relativement instable, et dépointant fortement les difficultés pour effectuer une mesure précise sont trop importantes.

5.5.2 Régime sub-picoseconde

Au regard des deux études menées en régime nanoseconde il s'avère que pour de telles durées d'impulsions l'indice de réfraction non-linéaire effectif mesuré à 1064 nm est particulièrement élevé par rapport à la valeur habituellement trouvée, de 3 à $4 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, mesuré à l'aide de méthode de mélange à quatre ondes [28, 33]. Par ailleurs, une dépendance très nette de l'indice de réfraction non-linéaire en fonction de la durée d'impulsion et de la longueur d'onde est constatée. Pour vérifier ces résultats et confirmer la dépendance temporelle de l'indice non-linéaire avec la durée des impulsions nous avons réalisé une étude en régime sub-picoseconde.

Courbes brutes

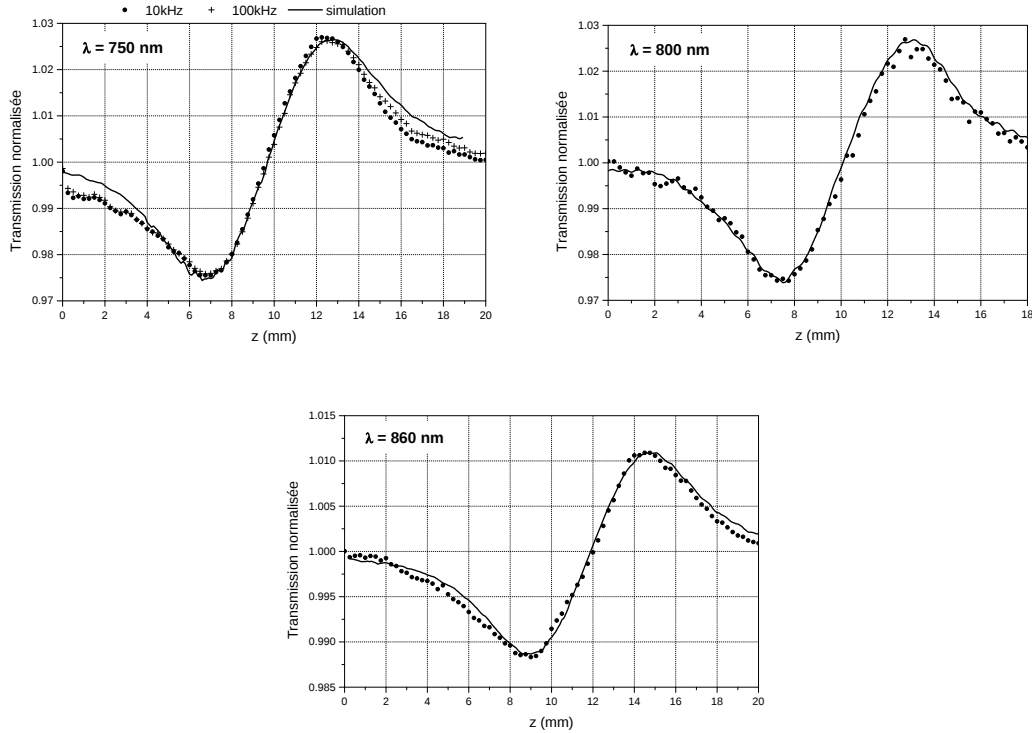


FIG. 5.9 – Courbes de transmission normalisée pour des impulsions de 155 fs (FWHM) et un échantillon de silice Homosil de $7,4\text{ mm}$ (points expérimentaux et simulation à 750 , 800 et 860 nm).

Les résultats de cette étude concernent 3 échantillons de silices de natures différentes (Suprasil, Herasil et Homosil) et testés à trois longueurs d'onde au voisinage de 800 nm avec des impulsions faisant 155 fs de largeur à mi-hauteur. Les figures 5.9, 5.10 et 5.11 présentent quelques courbes expérimentales obtenues ainsi que les simulations adaptées correspondantes. Encore une fois on constate sur ces courbes un très bon accord entre les simulations et les mesures.

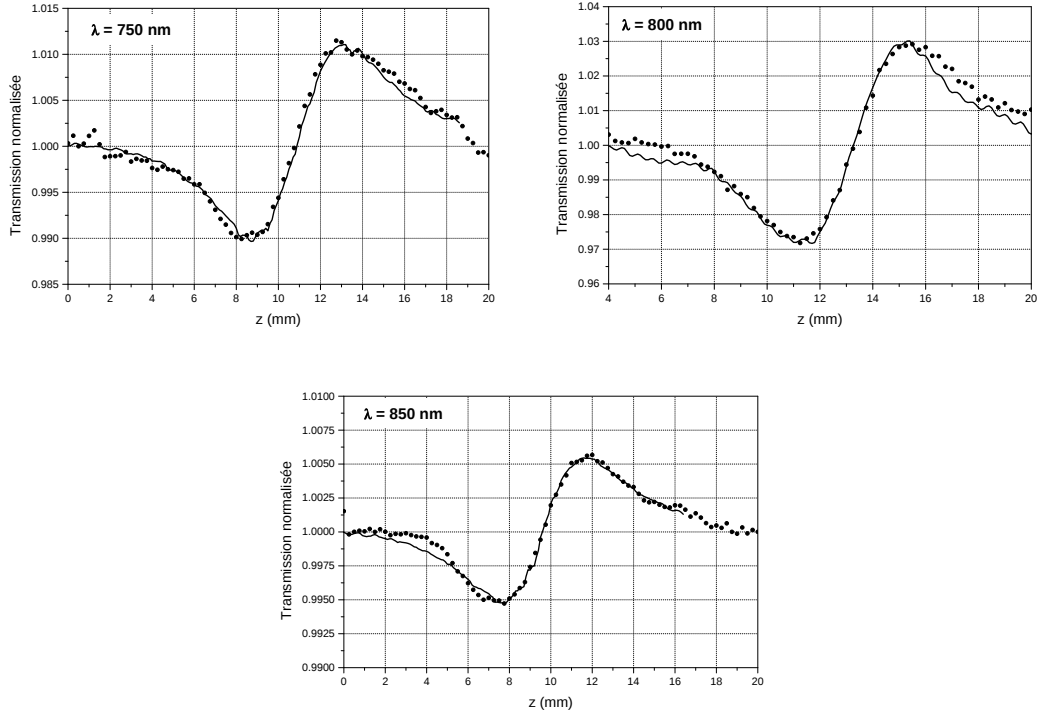


FIG. 5.10 – Courbes de transmission normalisée pour des impulsions de 155 fs (FWHM) et un échantillon de silice Herasil de 3 mm d'épaisseur (points expérimentaux et simulation à 750 , 800 et 860 nm).

Indice non-linéaire

De l'ensemble des mesures effectuées sur ces trois échantillons, en différents points, nous avons extrait leurs indices non-linéaires moyens aux différentes longueurs d'onde, les valeurs sont résumées dans le tableau 5.5.

Nous avons constaté que la dispersion de l'indice non-linéaire trouvé en fonction des mesures est relativement importante et atteint $0.7 \cdot 10^{-20}\text{ cm}^2/\text{W}$ dans le cas de l'échantillon d'Herasil. Cet échantillon mesure 3 mm d'épaisseur soit environ 2 fois la distance

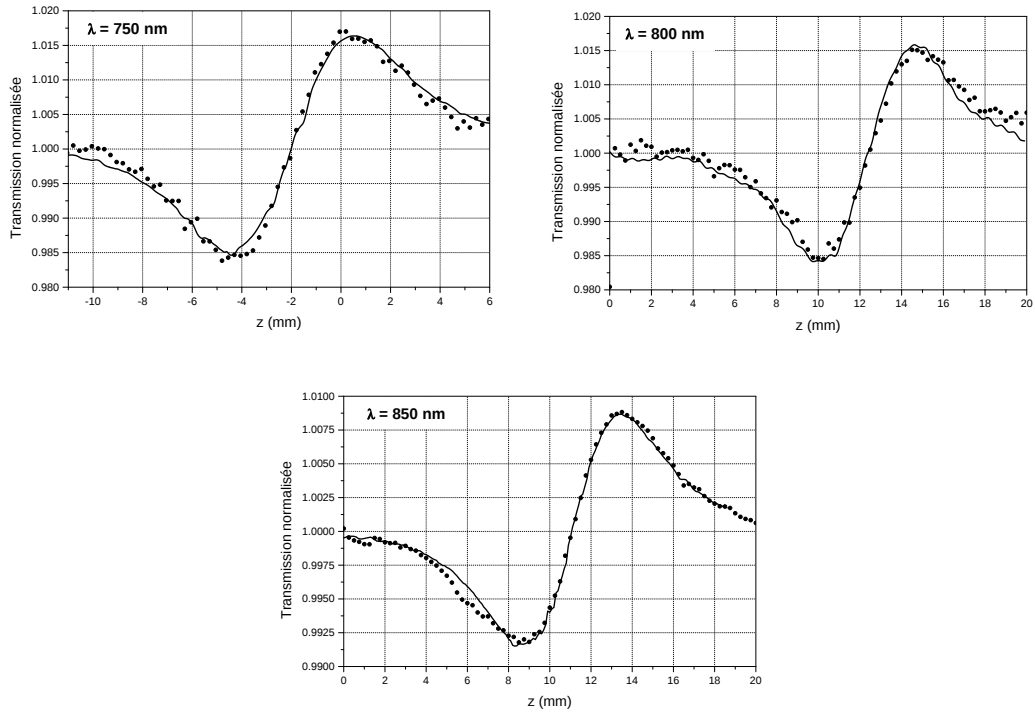


FIG. 5.11 – Courbes de transmission normalisée pour des impulsions de 155 fs (FWHM) et un échantillon de silice Suprasil de 5 mm d'épaisseur (points expérimentaux et simulation à 750, 800 et 860 nm).

Type de silice	$\gamma @ \lambda = 750 \text{ nm}$	$\gamma @ \lambda = 800 \text{ nm}$	$\gamma @ \lambda = 860 \text{ nm}$
Homosil	$2.15 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$	$2.55 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$	$2.2 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$
Suprasil	$2.25 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$	$2.39 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$	$2.17 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$
Herasil	$2.5 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$	$2.7 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$	$2.1 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$

TAB. 5.5 – *Indice non-linéaire trouvé pour les différentes silices avec des impulsions de largeur à mi-hauteur de 155 fs.*

de Rayleigh du faisceau. D'après la courbe 3.22 cela signifie que pour cet échantillon nous sommes dans une configuration très fortement sensible au profil du faisceau. La mesure de l'indice non-linéaire de cet échantillon est donc plus difficile, et plus sensible aux imperfections résiduelles du filtrage spatial.

Les différences d'indice non-linéaire effectif trouvé pour les différentes longueurs d'onde et les différents échantillons de silice sont inférieures aux barres d'erreur. L'indice non-linéaire moyen à $\lambda = 800 \text{ nm}$ pour des impulsions de 155 fs -FWHM- est de $2.3 \times 10^{-20} \text{ cm}^2/\text{W}$, ce qui est légèrement inférieur mais compatible avec les valeurs présentées dans la référence [72].

De plus la tendance générale lors de cette étude, est cependant d'attribuer un indice non-linéaire supérieur pour l'échantillon de silice de type Herasil dont nous disposons que pour celui de type suprasil. Toutefois les différences étant inférieures aux barres d'erreur, ces conclusions sont à prendre avec précaution.

Enfin la métrologie mise en place étant identique dans le cas nanoseconde et sub-picoseconde, les importantes valeurs trouvées en régime nanoseconde, peuvent donc bien être attribuées à l'excitation de mécanismes lents comme l'électrostriction et non à une interprétation erronée des courbes de transmission normalisée. Cette dernière contribution est aussi importante que la contribution de la polarisation électronique pour des impulsions de 20 ns.

Notons que des mesures en régime picoseconde vont permettre de confirmer ou d'infirmer ce résultat. Elles vont aussi permettre d'expliquer les faibles valeurs de l'indice

non-linéaire effectif que nous avons trouvé pour des impulsions de 155 fs . En effet, pour cette durée d'impulsion la contribution de la polarisation électronique n'est peut être pas entière. Si nous nous reportons aux travaux de Stolen et al.[154], relatifs à la propagation des impulsions courtes dans les fibres de silice, le temps de réponse de la contribution du noyau à la polarisation électronique est de de l'ordre de la centaine de femtosecondes pour la silice. Ainsi il est probable que la contribution de ces mécanismes ne soit pas entière pour des impulsions de 155 fs .

Absence d'effets thermiques

En régime sub-picoseconde, les mécanismes liés à l'absorption peuvent être excités du fait du taux de répétition élevé des sources et ainsi une origine thermique à l'indice non-linéaire est possible et peut être significative suivant le matériau considéré. En effet la contribution thermique de l'indice de réfraction non-linéaire est liée à l'énergie absorbée pendant le temp de diffusion de la chaleur. A énergie par impulsion constante, l'existence d'une telle contribution, doit introduire une dépendance de l'indice non-linéaire avec le taux de répétition de la source laser. C'est-à-dire que la présence d'effets thermiques doit se traduire par une dilataion de la courbe de transmission normalisée avec le taux de répétition du laser toutes choses étant égales part ailleurs.

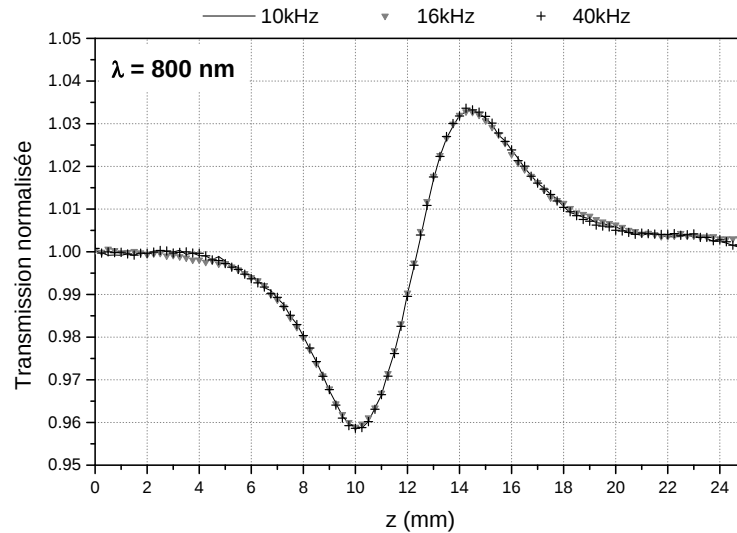


FIG. 5.12 – Courbe de transmission normalisée en fonction du taux de répétition du système MIRA + PULSE SWITCH à 800 nm (échantillon de silice Suprasil de 5 mm).

La figure 5.12 donne trois enregistrements réalisés le même jour consécutivement sur le même échantillon de silice Suprasil de 5 mm d'épaisseur à la longueur d'onde de 800 nm. Le système MIRA + PULSE SWITCH dont nous disposons permet de faire varier le taux de répétition du laser sans modifier ni la durée impulsion et leur énergie, ni l'alignement du montage, ni le profil spatial du faisceau. On constate que les mesures à 10 kHz, 16 kHz et 40 kHz se superposent parfaitement alors que la puissance moyenne varie d'un facteur 4. Cela montre qu'à 800 nm les contributions thermiques à l'indice non-linéaire sont négligables dans la silice.

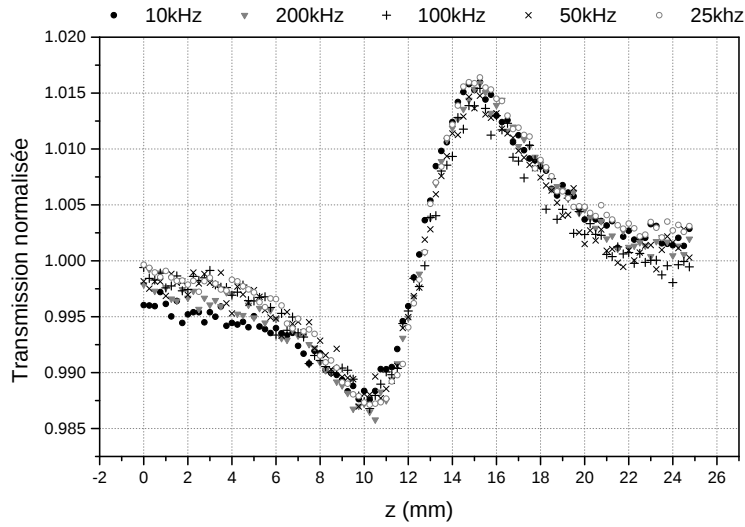


FIG. 5.13 – Courbe de transmission normalisée en fonction du taux de répétition du système MIRA + PULSE SWITCH à 750 nm (échantillon de silice Suprasil de 5 mm).

De même la figure 5.13 donne la transmission normalisée obtenue sur le même échantillon que précédemment à la longueur d'onde de 750 nm. Les 5 courbes sont une nouvelle fois obtenues consécutivement le même jour, et correspondent à une gamme plus importante du taux de répétition, allant de 10 kHz à 200 kHz. Bien que ces mesures soient légèrement plus bruitées que précédemment, on n'observe pas d'évolution significative entre ces différentes mesures, ce qui montre encore une fois qu'il n'y a pas de contribution thermique à l'indice non-linéaire dans la silice Suprasil à 750 nm.

Ce résultat a aussi été vérifié sur l'échantillon d'Homosil à $\lambda = 750$ nm (cf. figure 5.9). L'absence d'effets thermiques à ces longueurs d'onde tient d'une part au très faible coefficient d'absorption linéique de la silice. A cette longueur d'onde il est typiquement inférieur

à 10^{-4} cm^{-1} . D'autre part l'absence d'effet thermique signifie que les mécanismes d'absorption multiphotonique ne sont pas excités dans notre configuration expérimentale. En effet si de tels processus avaient lieu les courbes de transmission normalisée seraient totalement déformées au regard des simulations effectuées au paragraphe 3.6.4. De plus, après une longue exposition du matériau de tels mécanismes induisent généralement des défauts absorbants [155] et donc des modifications permanentes de l'indice de réfraction. Après une exposition prolongée sur plusieurs heures dans le plan focal de la lentille de focalisation de notre banc de mesure, aucune modification permanente de l'indice de l'échantillon de silice n'a été détectée sur le banc de caractérisation optique mis en place par Lumeau et al. [156] à l'intitut Fresnel. Ce banc est pourtant sensible à des variations spatiales d'indice de réfraction⁴ de l'ordre de 10^{-6} à $1.55 \mu\text{m}$. Cela confirme que dans le cas de la silice, et pour les intensités mises en jeu dans ce travail il n'y a pas de processus d'absorption multiphotonique.

L'indice non-linéaire de la silice n'a pas de contribution thermique significative aux longueurs d'onde voisines de 800 nm . L'indice non-linéaire effectif moyen sur les différents types de silice trouvé ($2.3 \pm 0.7 \times 10^{-20} \text{ cm}^2/\text{W}$) pour des impulsions de 155 fs est entièrement du à la polarisation électronique.

5.5.3 Régime picoseconde

Toujours pour essayer de discriminer les différentes contributions à l'indice non-linéaire, des mesures ont été réalisées en régime picoseconde. La serie de mesures présentée ici a été obtenue pour des impulsions de 1.3 ps de largeur à mi-hauteur, un faisceau de section effective au waist de $240 \mu\text{m}^2$ et une longueur d'onde de 800 nm . Les courbes brutes correspondants aux trois échantillons de silice (Herasil, Suprasil, Homosil) sont présentées sur la figure 5.14.

L'accord entre les simulations et les expériences est légèrement moins bon que précédemment, mais il reste satisfaisant. Il est à noter que l'amplitude des courbes de transmission normalisée est très faible (de l'ordre de 0.5%), soit à peine supérieure aux fluctuations du signal à vide. Les mesures présentée ici sont dues aux efforts répétés que nous avons fourni pour stabiliser le laser, corrélér les voies de mesure et supprimer les variations

⁴L'indice de réfraction mesuré étant l'indice moyen sur une surface de $50 \mu\text{m}$ de diamètre (taille du faisceau d'analyse).

parasites de manière générale. En effet ces mesures sont plus difficiles à obtenir que dans le cas sub-picoseconde. Le système MIRA900 + PULSE SWITCH dont nous disposons, émet des impulsions dont l'énergie maximale est voisine de 40 nJ , lorsqu'il est réglé en mode picoseconde. Aussi, même en changeant la lentille de focalisation de 100 mm par une seconde de 50 mm l'intensité du faisceau dans le plan focal ne dépasse pas 4 GW/cm^2 soit environ deux fois moins que dans le cas sub-picoseconde. Les effets non-linéaires sont donc plus faiblement excités.

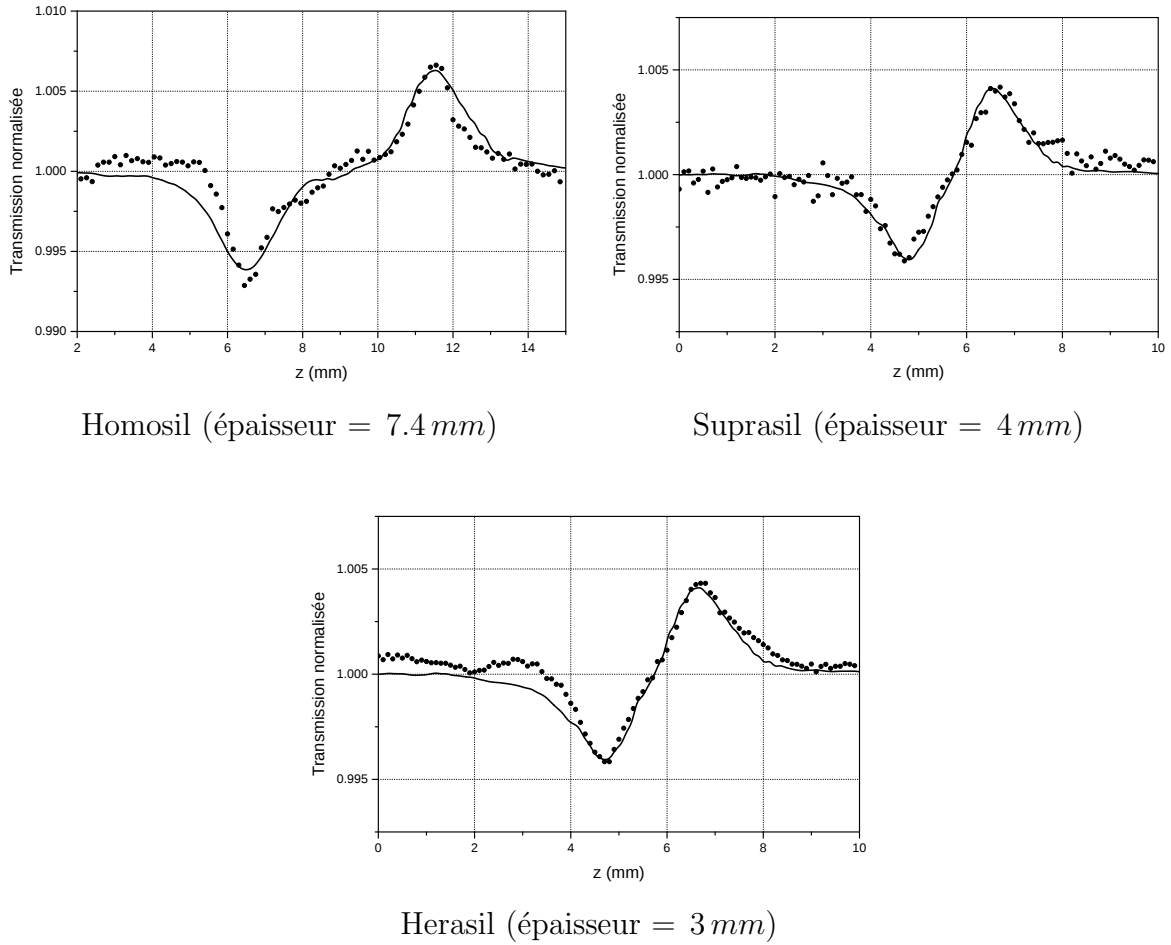


FIG. 5.14 – Courbes de transmission normalisée pour des impulsions de 1.3 ps (FWHM) à $\lambda = 800 \text{ nm}$ (points expérimentaux et simulations).

Une focalisation supérieure n'est pas souhaitable, pour plusieurs raisons. Premièrement nous avons vu que l'autofocalisation est déterminée par la puissance du faisceau. Aussi, pour des échantillons épais, l'amplitude de la courbe de transmission normalisée n'augmente pas si l'on n'augmente pas la puissance du faisceau. Or avec une lentille de

focalisation de 50 *mm* de focale et pour les échantillons dont nous disposons nous sommes déjà en configuration “échantillon épais”, il ne sert donc à rien de focaliser plus le faisceau.

De plus une focalisation supérieure poserait de nombreux problèmes d’encombrement. Il serait entre autres difficile de faire balayer correctement tout le volume focal par des échantillons de 5 *mm* d’épaisseur sans toucher la lentille. La mise en place du miroir escamotable pour la caractérisation spatiale nécessiterait de déplacer la platine de déplacement et l’échantillon, ce qui est gênant lorsque l’on souhaite faire plusieurs mesures précisément au même point.

Enfin nous avons vu que pour de plus fortes focalisations, le caractère vectoriel du champ doit être pris en compte, et la validité du modèle scalaire développé doit être rediscuté.

Pour ces mesures nous disposons d’une moins grande statistique, plus d’expériences ayant été rejetées à cause d’un bruit trop important présent sur les courbes expérimentales. Le tableau 5.6 donne les valeurs de l’indice non-linéaire obtenues pour les courbes expérimentales de la figure 5.14.

Type de silice	$\gamma @ \lambda = 800 \text{ nm}$
Homosil	$3.3 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$
Suprasil	$3.4 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$
Herasil	$2.7 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$

TAB. 5.6 – *Indice non-linéaire trouvé pour les différents type de silice avec des impulsions de largeur à mi hauteur de 1.3 ps.*

Toutes les valeurs trouvées sont supérieures à ce qui avait été trouvé dans le cas sub-picoseconde, ce qui indique que plus de mécanismes entrent en jeu. Le temps de réponse de la contribution du noyau à la polarisation non-linéaire électronique est de l’ordre de la centaine de femtosecondes. Cette contribution est donc entière pour des impulsions de quelques picosecondes, ce qui n’était sûrement pas très efficace pour des impulsions d’une centaine de femtosecondes. Ainsi en régime picoseconde l’indice non-linéaire trouvé est de 30% supérieur en moyenne à celui trouvé en régime sub-picoseconde. Cette valeur est à prendre avec grande précaution, le nombre de mesures réalisées dans ce régime n’étant pas très important et l’accord entre les simulations et les courbes expérimentales n’étant pas parfait en régime picoseconde, le bruit présent sur les mesures restant important.

Nous trouvons un indice non-linéaire moyen pour l'ensemble des silices testées de $3.2 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ avec cette durée d'impulsion. Les différences entre les différents types de silices sont une nouvelle fois à prendre avec grande précaution, et à valider avec d'autres séries de mesure.

5.5.4 Conclusions des mesures dans la silice

Tout d'abord rappelons que nous avons obtenu de manière générale une bonne uniformité de l'indice de réfraction non-linéaire sur chaque échantillon. De plus les différents échantillons de silice testés ont un indice de réfraction non-linéaire similaire dans la mesure où les différences sont inférieures aux barres d'erreur. L'indice non-linéaire des différents types de silice est donc le même à quelques pourcents près. Toutefois la série de mesures réalisées sur le banc sub-picoseconde tend à indiquer que l'indice non-linéaire de la silice naturel (Herasil) est en moyenne légèrement plus important que pour la silice de type Suprasil. En outre, le très bon accord entre expérience et simulation et la bonne répétabilité des mesures obtenues avec des échantillons d'épaisseurs différentes montre que notre banc de mesure est stable et que notre modèle est bien adapté à notre montage expérimental.

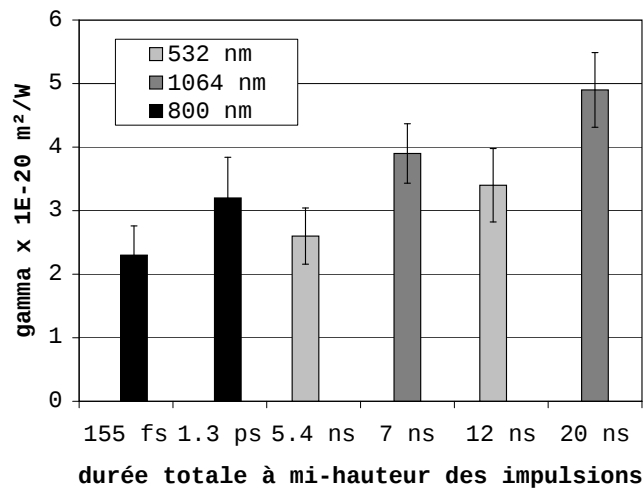


FIG. 5.15 – *Indice de réfraction non-linéaire de la silice mesuré avec notre montage pour différentes durées d'impulsions et longueurs d'onde.*

La figure 5.15 résume les résultats obtenus à l'issue de toutes ces mesures. Une dépen-

dance très nette de l'indice de réfraction non-linéaire moyen sur l'ensemble des silices est constatée en fonction de la durée d'impulsion et de la longueur d'onde. Pour une même longueur d'onde on peut constater que l'indice de réfraction mesuré dans ces conditions augmente avec la durée d'impulsion, du fait de l'excitation efficace de certains mécanismes.

L'indice de réfraction non-linéaire mesuré en régime nanoseconde est particulièrement élevé par rapport aux valeurs habituellement trouvées, de 3 à $4 \times 10^{-20} m^2/W$, mesuré à l'aide de la méthode de mélange à quatre ondes [33, 28] en régime picoseconde. Cette valeur indique une forte contribution induite par des mécanismes de temps de réponse plus grands que la centaine de picosecondes. Et plus la durée d'impulsion augmente, plus ces phénomènes ont le temps de se développer et induisent une contribution plus importante à la variation d'indice de réfraction globale.

La prédiction de l'indice de réfraction non-linéaire de la silice semble donc difficile. Celui-ci dépend en effet fortement du régime temporel considéré. Si nous avons montré que les effets thermiques sont négligeables, nous avons également démontré par l'expérience que l'électrostriction a une influence notable sur l'indice de réfraction non-linéaire et tout particulièrement en régime nanoseconde.

La valeur trouvée à $532 nm$ est plus faible qu'à $1064 nm$. Cela est contraire à la dispersion normale de l'indice non-linéaire électronique (cf paragraphe 2.7). De même, au regard des relations 1.52 et 1.55, l'amplitude maximale du phénomène électrostrictif est plus important pour les courtes longueurs d'onde. Les variations de ce phénomène sont effectivement proportionnels à γ_e^2/n_0^2 . Pour la silice, compte tenu des relations de dispersion de l'indice de réfraction, le calcul donne une augmentation de 6% de l'électrostriction à $532 nm$ par rapport à $1064 nm$. Il est à rappeler que ce calcul n'est valide que si les mécanismes électrostrictif sont pleinement excités.

La dispersion "anormale" observée expérimentalement des valeurs trouvées en régime nanoseconde peut alors s'expliquer par la diminution de la contribution électrostrictive à l'indice de réfraction non-linéaire à $532 nm$. En effet, du fait de la conversion dans le second harmonique dans le cristal doubleur, la durée d'impulsion à $532 nm$ est plus faible qu'à $1064 nm$. Suivant le laser utilisé nous avons mesuré que la durée effective des impulsions à $532 nm$ était de 1.2 à 1.7 fois inférieure. Les mécanismes, tel l'électrostriction, dont le temps de réponse est de l'ordre de la nanoseconde sont alors beaucoup moins sollicités.

Cet effet semble donc dominant sur la dispersion normale de la contribution électronique ou de la contribution électrostrictive maximale possible. D. Kovsh et al. [38] ont présenté des résultats similaires lors d'une étude sur des milieux fortement non-linéaires comme le CS₂ et le Nigrosine. Il a été montré que lorsque la durée des impulsions passe de 0.5 à 3 fois le temps de réponse, la contribution de l'électrostriction varie d'environ 90%.

5.6 Mesures d'autres matériaux

Nous avons testé également d'autres matériaux à l'aide de ces bancs. Le tableau 5.7 résume les valeurs trouvées et les conditions expérimentales.

5.6.1 Mesures nanosecondes

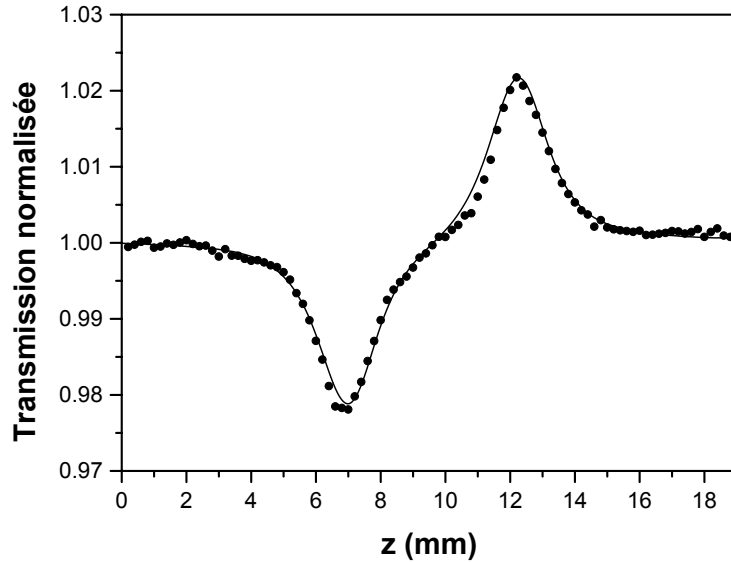


FIG. 5.16 – Courbe de transmission normalisée obtenue sur un échantillon de BK7 de 8 mm à 1064 nm (points) et simulation (trait continu). L'indice de réfraction non-linéaire obtenu vaut : $\gamma \approx 5,1 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$.

Premièrement dans le cas d'un verre de BK7 testé à 1064 nm en régime nanoseconde, un indice de réfraction non-linéaire d'environ $5,1 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ a été trouvé. Cette valeur est également supérieure à la valeur estimée avec l'équation empirique de Boling, Glass et Owyong, c'est à dire environ $3,2 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ en prenant un indice de réfraction

linéaire égal à 1,52 et un nombre d'Abbe égal à 64 [41]. L'indice de réfraction est ici plus élevé pour la même raison que pour la silice, c'est à dire que l'électrostriction et les effets thermiques peuvent apporter une contribution non négligeable dans le régime nanoseconde.

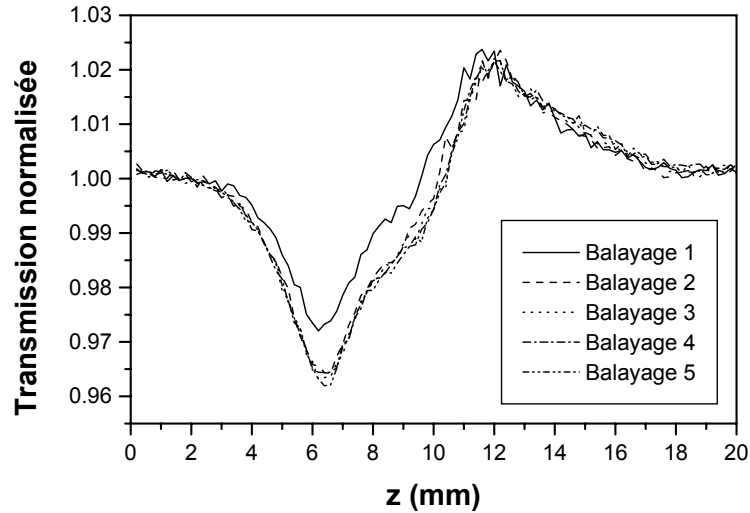


FIG. 5.17 – *Courbes de transmission normalisée obtenues consécutivement sur un échantillon de BK7 à 532 nm.*

Une mesure a également été effectuée dans l'échantillon de BK7 à 532 nm (Cf figure 5.17). Contrairement à ce qui a été présenté jusqu'à maintenant, il a été constaté alors une très forte dissymétrie des courbes de transmission normalisée et leur modification au cours de la mesure. Cela indique que le matériau a été modifié par l'insolation. La mesure de l'indice non-linéaire n'est donc pas possible.

Pour comprendre ce phénomène, l'échantillon de BK7 a été testé dans une configuration de Z-scan "ouvert", c'est à dire une configuration dans laquelle toute l'énergie du faisceau est mesurée, afin de ne s'intéresser qu'à l'effet de l'absorption non-linéaire (voir chapitre 2). La figure 5.18 représente les courbes d'énergie normalisée à la sortie de l'échantillon, obtenues consécutivement. Comme on peut le voir, l'absorption non-linéaire semble augmenter balayage après balayage, puis saturer. Ce type de comportement peut s'expliquer par l'apparition progressive d'absorption linéaire durable non-uniformément répartie dans l'échantillon. Ce genre de phénomène, déjà observé dans le BK7 et d'autres verres silicates [157] est induit dans ce cas par l'absorption à deux photons à 532 nm. On

parle alors de création de centres colorés photo-induits par absorption à deux photons. Ce phénomène a pour effet d'engendrer une absorption linéaire durable dans le matériau dans les zones qui ont été irradiées. Lorsque le matériau est irradié par des tirs répétés issus d'un laser impulsif nanoseconde, le niveau d'absorption évolue en fonction du nombre de tirs, donc de la dose d'énergie qui a été reçue par le matériau. Une saturation de l'absorption est observée au bout d'un certain nombre de tirs et ce niveau de saturation dépend de la densité d'énergie reçue à chaque tir [157].

Nous avons positionné l'échantillon pour être au minimum des courbes d'énergie normalisée représentées sur la figure 5.18, afin d'étudier l'évolution de cette absorption induite par solarisation en fonction du nombre de tirs. L'évolution du minimum est représenté sur la figure 5.19. A titre de comparaison, le nombre de tirs nécessaire à l'acquisition d'une seule courbe de Z-scan est d'environ 6000. Cette mesure a été réalisée avec des tirs de fluence moyenne égale à $36 J/cm^2$ sur l'axe optique et au point de focalisation. Ces résultats sont en assez bon accord avec ceux obtenus par White et ses collaborateurs [157] en ce qui concerne la vitesse d'évolution en fonction du nombre de tirs.

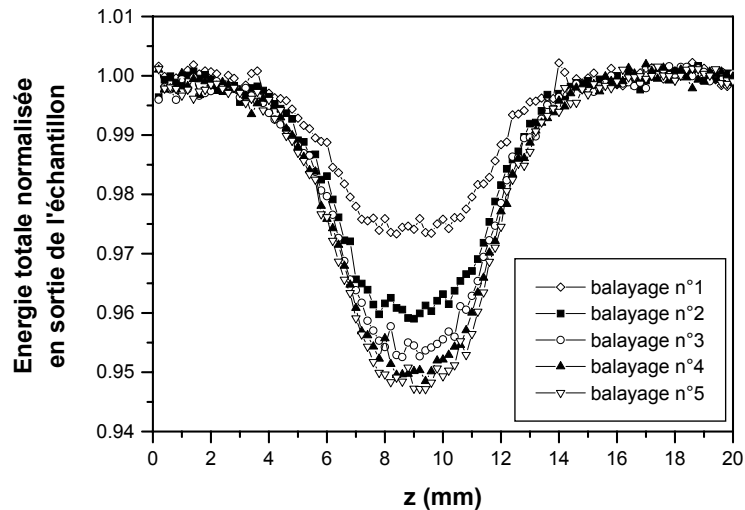


FIG. 5.18 – Courbes d'énergie totale normalisée à la sortie de l'échantillon obtenues consécutivement sur l'échantillon de BK7 à 532 nm

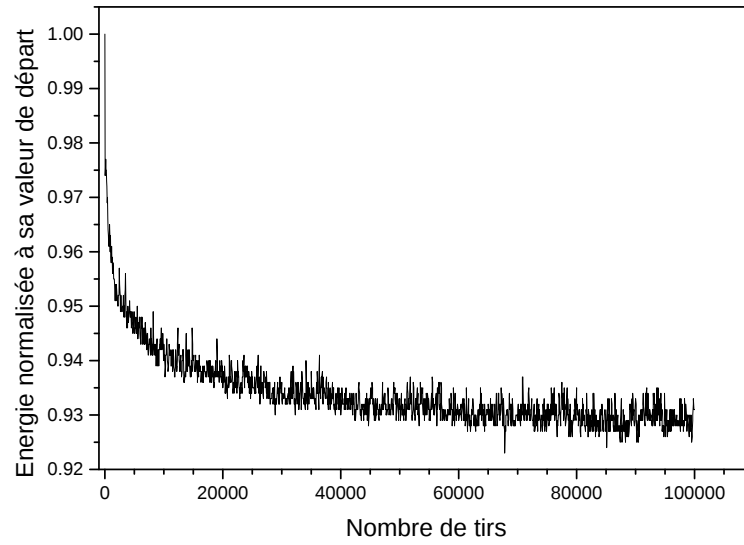


FIG. 5.19 – *Evolution de l'énergie au minimum des courbes d'énergie normalisée en fonction du nombre de tirs*

Cet échantillon ayant été endommagé il ne nous a pas été permis de le tester sur le banc de mesure sub picoseconde. De plus les autres échantillons dont nous disposions n'étaient pas suffisamment polis, et diffusaient trop pour obtenir un signal Z-scan exploitable.

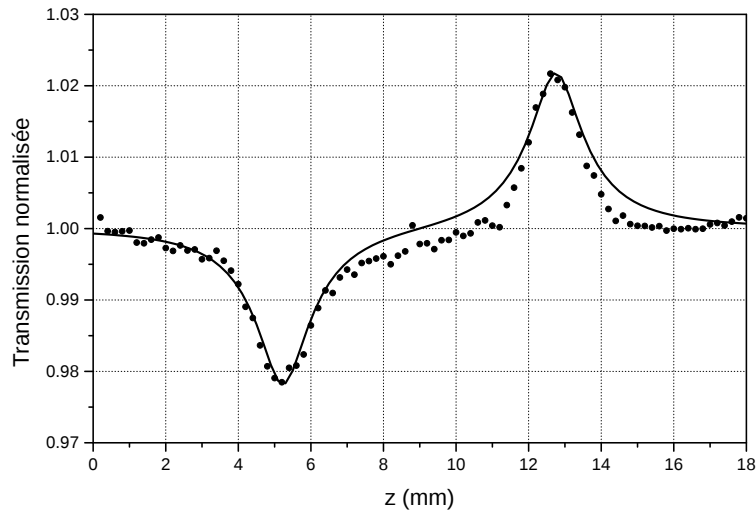


FIG. 5.20 – *Courbe de transmission normalisée obtenue sur une cuve d'eau de 10 mm à 1064 nm (points) et simulation (trait continu). L'indice de réfraction non-linéaire obtenu vaut : $\gamma \approx 8 \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$.*

Nous avons également testé l'eau distillée dans une cuve de 10 mm d'épaisseur. La courbe est présentée sur la figure 5.20. A 1066 nm et pour des impulsions de 20 ns, l'indice non-linéaire de l'eau est deux ordres de grandeur au-dessus de l'indice des verres. Cela provient du phénomène d'orientation moléculaire particulièrement important pour cette molécule polaire.

5.6.2 Mesures sub-picosecondes

Quelques autres verres ont été mesurés sur ce banc. Nous donnons les résultats obtenus dans le tableau 5.7.

Matériau	durée d'impulsion	λ	$\gamma \times 10^{-20} m^2/W$
H ₂ O	20 ns	1064 nm	800
H ₂ O	155 fs	800 nm	4.1
BK7	7 ns	1064 nm	5.1
CaF ₂	155 fs	750 nm	1.6
CaF ₂	155 fs	860 nm	1.5
C2036	155 fs	750 nm	10
C2036	155 fs	800 nm	11
C2036	155 fs	860 nm	11
B1664	155 fs	800 nm	4.8

TAB. 5.7 – *Indice non-linéaire de quelques matériaux testés sur le banc.*

L'indice non-linéaire de l'eau à été mesuré et sa valeur vaut $4.1 \times 10^{-20} m^2/W$ dans le cas sub-picoseconde alors que la valeur de $8 \times 10^{-18} m^2/W$ avait été trouvée dans le cas nanoseconde. Dans des conditions similaires Nibbering et al. [68] ont trouvé une valeur sub-picoseconde similaire. Les deux ordres de grandeur d'écart trouvé entre ces deux mesures peut-être expliqué par l'excitation des mécanismes d'orientation moléculaire dans le premier cas contrairement au second. En effet ces mécanismes ont un temp de réponse de l'ordre de quelques picosecondes [28]. Or les mécanismes d'orientation moléculaire sont très importants dans les liquides comme l'eau, l'indice non-linéaire assoslié est de l'ordre de $10^{-18} m^2/W$, ce qui explique la valeur importante en régime nanoseconde.

De plus, l'indice non-linéaire du CaF_2 est très faible. En effet ce matériau est connu pour être moins non-linéaire que la silice. L'indice non-linéaire mesuré par Weber et al. [124] pour des impulsions de 100 à 150 picosecondes est de $1.9 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$. Là aussi il semble que la contribution du noyau à la polarisation non-linéaire électronique n'est pas entière pour des impulsions de 150 femtosecondes.

L'étude plus systématique de ces matériaux reste cependant à faire. Un problème rencontré pour la réaliser est d'avoir et de conserver une qualité de surface des échantillons suffisamment bonne, et ce sur une surface de plusieurs millimètres carrés. L'étude d'un cristal de titane saphir n'a de ce fait pas pu être possible, la zone utile de l'échantillon dont nous disposions étant trop petite.

5.7 Conclusion

Dans un premier temps, l'analyse précise de la transmission normalisée intégrée a permis de déterminer le lien entre les courbes de transmission normalisée expérimentales et les courbes de transmission normalisée simulées. Cette analyse a permis de définir le paramètre temporel pertinent à mesurer, ce qui nous a amené à définir une durée d'impulsion effective pour l'interaction non-linéaire. Par ailleurs, une estimation des erreurs sur l'étalonnage et de la résolution des appareils de mesure nous indique que l'indice de réfraction non-linéaire est déterminé avec une erreur maximale de $\pm 10\%$ à $\pm 20\%$.

Dans un second temps, nous avons présenté les résultats de deux études menées en régime nanoseconde dans la silice. Grâce à la stabilité et la sensibilité de notre montage et aux caractérisations précises des paramètres du faisceau, nous avons pu réaliser des mesures fiables, qui concordent parfaitement avec les simulations numériques effectuées en parallèle. Ceci a été également vérifié pour différentes énergies et épaisseurs d'échantillons, ce qui montre la linéarité de notre montage et tend à valider le bon accord avec nos simulations numériques. Une bonne répétabilité des mesures a également été constatée, indiquant que l'erreur en relatif est meilleure que 5%.

Ensuite les mesures de l'indice non-linéaire en régime sub-picoseconde et picoseconde ont également été présentées. La mise au point et l'automatisation de ce second banc de

mesure a lui aussi nécessité de nombreux efforts et possède une sensibilité suffisante. La dispersion des valeurs trouvées en fonction de la longueur d'onde (voisine de 800 nm) et de la nature des échantillons reste inférieure à l'incertitude absolue de la mesure. Cependant en moyenne les différents types de silice se distinguent très légèrement. La silice Herasil est très légèrement "plus non-linéaire" que la silice Suprasil ou Homosil.

Dans ces conditions, l'indice de réfraction non-linéaire moyen de la silice augmente avec la durée des impulsions. En effet, comme on pouvait s'y attendre, les différents mécanismes contribuent différemment à l'indice non-linéaire suivant la durée des impulsions. Pour des impulsions de 160 fs la contributions du noyau à la polarisation électronique n'est pas entière. Ce qui peut expliquer que l'on trouve une valeur plus grande en régime picoseconde. L'électrostriction peut aussi commencer à être excitée bien que cela doit être très faible. Par contre en régime nanoseconde cette contribution n'est vraiment plus négligeable. Elle semble même atteindre 30% de la contribution électronique pour des durées d'impulsions de 20 ns .

Par ailleurs nous avons montré que la contribution thermique n'existe pas dans le cas de la silice, pour ces longueurs d'onde. Cela vient d'une part de l'absorption linéaire très faible de ce matériau et d'autre part de l'absence de processus multiphotoniques dans les configurations expérimentales mises en place.

En conclusion générale, nous avons montré la grande sensibilité de notre montage à l'aide de mesures dans un matériau aussi peu non-linéaire que la silice. Ce qui nous a permis d'ouvrir également la voie à des études dans une large gamme de matériaux.

Conclusion

L’objectif de cette thèse était de mesurer l’indice non-linéaire des verres en régime nanoseconde, picoseconde et sub-picoseconde, en se focalisant sur le cas de la silice. Cette étude s’intégrait aux efforts de recherche entrepris à l’institut Fresnel dans le cadre de l’analyse et la compréhension des phénomènes d’endommagement laser, en particulier l’influence de l’autofocalisation.

Nous avons commencé par une étude des mécanismes conduisant à des variations d’indice photo-induites. Trois contributions majeures sont possibles dans les verres : la polarisation électronique non-linéaire du troisième ordre, l’électrostriction et les effets thermiques. Chacun de ces mécanismes ayant des temps de réponse différents, leur contribution à l’indice non-linéaire varie selon la durée des impulsions, rendant difficile la prévision de la valeur de l’indice non-linéaire, et nécessaire sa mesure pour différentes durées d’impulsions. Après une étude des différentes techniques, nous avons pu constater que la méthode de Z-scan était la plus adaptée à la mesure de l’indice de réfraction non-linéaire responsable de l’autofocalisation d’un faisceau unique pour différentes durées d’impulsion s’étalant de la centaine de femtosecondes à quelques dizaines de nanosecondes.

Au début de ce travail de thèse, un premier banc de mesure d’indices de réfraction non-linéaires en régime nanoseconde était en cours de réalisation. Nous nous sommes attaché dans un premier temps à améliorer ce banc en le dotant de tous les outils de caractérisation nécessaires à une métrologie “absolue” de faibles indices de réfraction non-linéaires. L’ensemble des améliorations apportées nous a permis d’obtenir un dispositif automatique, stable et optimisé pour répondre à plusieurs contraintes imposées par notre étude [158, 159] : mesurer des indices non-linéaires particulièrement faibles, travailler loin de la puissance critique (utilisation de faisceaux relativement focalisés) et rester en dessous du seuil d’endommagement laser (densité surfacique d’énergie limitée à une centaine de J/cm^2).

Nous avons ensuite mis en place un second banc de mesure fonctionnant en régime

picoseconde et sub-picoseconde. De même nous avons doté ce banc d'une métrologie très développée et d'un système de contrôle des paramètres expérimentaux. La maîtrise de la source laser, une bonne connaissance des caractéristiques spatio-temporelles du faisceau incident, un soin tout particulier concernant le choix de la configuration expérimentale et la qualité de l'alignement, a permis d'améliorer d'un rapport proche de 10 la sensibilité de la méthode par rapport à l'étude initiale de Sheik-Bahae. Ceci nous a permis d'avoir une détectivité estimée à $\lambda/500$ et une sensibilité de $\lambda/3000$ sur la détermination de la variation de chemin optique dans l'échantillon.

Parallèlement nous avons développé un modèle numérique général, permettant de simuler le signal obtenu dans une configuration de Z-scan arbitraire. Pour cela nous avons pris soin tout d'abord de vérifier que dans la configuration expérimentale choisie, une description scalaire était valide. De plus, la programmation et l'utilisation de l'algorithme de transformée de Hankel rapide "FFTLog" a permis une accélération appréciable des simulations. Le modèle numérique développé a ensuite été validé en le confrontant aux modèles analytiques existants, et un très bon accord a été trouvé.

Nous nous sommes ensuite intéressé aux limites de ces modèles, et à leur robustesse. Nous avons alors montré que le signal obtenu par la méthode de Z-scan était très fortement dépendant de la nature du faisceau incident et que la diffusion de l'échantillon ne pouvait pas être simplement éliminée. De même l'absorption linéaire (uniforme ou non) et l'absorption non-linéaire ont pu être intégrées dans ce modèle et leurs effets sur le signal mesuré ont pu être établis, ce qui permet d'en tenir compte dans les simulations si l'on dispose de leur connaissance a priori, ou alors de les estimer dans certains cas.

Aussi, à l'aide de ce modèle numérique et des outils de caractérisation spatio-temporels du faisceau incident, nous avons pu réduire les risques de mauvaise interprétation des mesures expérimentales qui, rapidement, peuvent mener à des erreurs relative de plusieurs dizaines de pourcents.

Des mesures ont été effectuées sur plusieurs échantillons de silice de natures, épaisseurs et fabricants différents. Les mesures en régime nanoseconde ont été réalisées pour deux longueurs d'onde (1064 nm et 532 nm) et pour deux durées d'impulsion (7 ns et 20 ns) [160, 161]. Concernant les mesures picoseconde et sub-picoseconde plusieurs longueurs d'onde au voisinage de 800 nm ont été utilisées et la durée des impulsions était de 1.3 ps à mi-hauteur dans le premier cas et de 155 fs dans le second. L'erreur sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire a été estimée à 15% en régime nanoseconde et à 20% en régime sub-picoseconde et picoseconde.

Ces mesures ont montré que la contribution thermique à l'indice non-linéaire de la silice était négligeable pour ces longueurs d'onde. L'électrostriction quant à elle ne l'est pas, ce qui conduit à des valeurs très importantes en régime nanoseconde [162]. Par ailleurs, une faible dispersion de l'indice non-linéaire entre les différents types de silice en régime sub-picoseconde semble apparaître même si ses différences restent inférieures aux incertitudes absolues sur la détermination de l'indice non-linéaire. Les études dans un verre de BK7 en régime nanoseconde ont elles aussi permis d'observer que la valeur prévue par l'équation empirique de Boling, Glass et Owyong était inférieure à celle effectivement mesurée, ce qui indique là aussi que la contribution de l'électrostriction est importante.

Au cours de ce travail, un problème majeur auquel nous ayons dû faire face est sans conteste l'état de surface et la diffusion des échantillons testés. Le signal recherché étant très faible de nombreux échantillons et matériaux ont finalement dû être écartés, ceux-ci ne disposant pas ou plus d'un état de surface suffisamment correct. Aussi, l'on peut regretter le faible nombre de matériaux qui ont donné lieu à des données chiffrées dans ce manuscrit. De plus, notamment en régime nanoseconde, l'endommagement des matériaux est venu perturber la mesure de l'indice de réfraction non-linéaire comme nous avons pu le voir dans le cas du verre de BK7 à 532 nm .

Comme nous venons de le souligner la première perspective de ce travail, est de poursuivre l'étude de façon plus systématique sur d'autres matériaux. Pour cela des échantillons de très grande qualité vont être utilisés. Le doublage du faisceau issu du laser sub-picoseconde et picoseconde permettrait aussi des mesures à 400 nm à condition que l'énergie par impulsion maximale disponible à cette longueur d'onde soit suffisante.

Les efforts réalisés ici pour améliorer la détectivité de la méthode de Z-scan peuvent aussi être mis à profit pour étudier d'autres effets non-linéaires par cette méthode. Ainsi, l'étude de matériaux fragiles ou très absorbants peut être envisagée sans que l'on soit obligé de travailler dans des conditions d'intensité et de fluence risquant de les endommager. De même des études similaires dans le troisième harmonique méritent d'être tentées. Par ailleurs, l'étude des effets non-linéaires du second ordre comme la conversion de fréquence peut être envisagée en intégrant ce phénomène dans le modèle numérique développé.

Annexe A

Transformation de Hankel numérique

En symétrie cylindrique l'expression des champs fait intervenir des intégrales contenant des fonctions de Bessel. Ces intégrales peuvent se décomposer en transformations de Hankel d'ordre n définies comme suit :

$$FHT\{f(r)\} = \hat{f}_n(\alpha) = \int_0^\infty r f(r) J_n(\alpha r) dr \quad (\text{A.1})$$

D'un point de vue numérique, le calcul direct de l'intégrale A.1 nécessite un algorithme de complexité $N \times N$. En coordonnées cartésiennes, la transformation de Fourier peut être estimée numériquement par des algorithmes du type FFT (Fast Fourier Transform) permettant de réduire la complexité à $N \times \log N$ [163].

Dans le cas de la transformation de Hankel, le problème est un peu plus délicat. Il n'existe pas de méthodes numériques qui puissent calculer directement la transformation de Hankel avec le même gain de temps de calcul que celui offert par la FFT. En revanche, il est possible, grâce à un échantillonnage logarithmique, d'exprimer la transformation de Hankel sous la forme d'un produit de convolution [164]. Ce produit de convolution peut ensuite être calculé à l'aide d'une FFT, une multiplication par une certaine fonction analytique, puis une FFT inverse. Cette idée a donné lieu à plusieurs méthodes numériques de calcul rapide de transformation de Hankel. Parmi celles-ci, nous utiliserons l'algorithme de FFTLog originalement décrit par Talman [129] et adapté par Hamilton [130].

A.1 Principe

Comme la transformée de Fourier discrète qui suppose que la fonction f dont on cherche la transformée est périodique en fonction de la coordonnée r , la FFTlog suppose une périodicité mais cette fois en fonction de la coordonnée $x = \ln(r)$. Si on note X la période de f (considérée comme fonction de x), alors on a $f(re^X) = f(r)$ pour tous points r .

Considérons l'intervalle $[\ln(r_0) - X/2, \ln(r_0) + X/2]$ centré sur $\ln(r_0)$. La périodicité de la fonction f par rapport à la variable x permet d'identifier f à sa série de Fourier :

$$f(r) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} c_m e^{2iC_d m \ln(r/r_0)/X} \quad (\text{A.2})$$

Si la fonction f varie suffisamment lentement cette somme peut être tronquée de $-N/2$ à $N/2$, pour ne garder que les $N + 1$ fréquences les plus basses. De plus l'échantillonnage de la fonction f aux N points $r_p = r_0 e^{pX/N}$, inévitable avec les méthodes numériques, permet aussi d'écrire c_m sous forme de série, cela s'écrit :

$$c_m = \frac{1}{N} \sum_{p=-N/2}^{N/2} f(r_p) e^{-2C_d i p m / N} \quad (\text{A.3})$$

Si l'on substitue l'expression de f dans la définition de la transformée de Hankel, on obtient :

$$\hat{f}_n(\alpha) = \sum_{m=-N/2}^{N/2} c_m \int_0^\infty r e^{2iC_d m \ln(r/r_0)/X} J_n(\alpha r) dr \quad (\text{A.4})$$

En fait cette équation se réduit à :

$$\hat{f}_n(\alpha) = \sum_{m=-N/2}^{N/2} \frac{1}{\alpha^2} c_m u_{n,m} e^{-2iC_d m \ln(\alpha/\alpha_0)/X} \quad (\text{A.5})$$

avec $u_{n,m}$ défini de la façon suivante :

$$u_{n,m} = (\alpha_0 r_0)^{-2C_d i m / X} U_n \left(1 + \frac{2C_d i m}{X} \right) \quad (\text{A.6})$$

avec

$$U_n(y) = 2^y \frac{\Gamma(n+1+y)}{\Gamma(n+1-y)} \quad (\text{A.7})$$

et où Γ est la fonction Gamma d'Euler.

On peut noter que $u_{n,m}^* = u_{n,-m}$, se qui assure que $\hat{f}_n(\alpha)$ est réelle lorsque la fonction f est réelle et que l'équation A.5 donne bien la transformée de Hankel $\hat{f}_n$ d'ordre n de la fonction f . De plus, d'après l'expression A.5 la fonction $\hat{f}_n$ est X -périodique avec la coordonnée logarithmique $a = \ln(\alpha)$ et l'intervalle associé est $[\ln(\alpha_0) - X/2, \ln(\alpha_0) + X/2]$. Le paramètre α_0 peut être choisis arbitrairement, bien qu'Hamilton est montré que pour minimiser les problèmes numériques (oscillations de Gibbs) le produit $\alpha_0 r_0$ doit vérifier :

$$\ln(\alpha_0 r_0) = \frac{X}{N} \left\{ \frac{1}{C_d} \text{Arg} \left[U_n \left(1 + \frac{2C_d i m}{X} \right) \right] + \text{entier} \right\} \quad (\text{A.8})$$

La relation A.5 s'identifie à une transformée de Fourier discrète, ce qui donne en l'inversant :

$$\frac{1}{\alpha^2} c_m u_{n,m} = \frac{1}{N} \sum_{p=-N/2}^{N/2} \hat{f}_n(\alpha_p) e^{2C_d i p m / N} \quad (\text{A.9})$$

En remplaçant c_m par l'expression A.3 dans l'équation A.5 et en utilisant la définition de l'échantillonnage logarithmique en α (les points échantillonnés sont $\alpha_p = \alpha_0 e^{pX/N}$), on obtient :

$$\hat{f}_n(\alpha_p) = \sum_{m=-N/2}^{N/2} f(r_m) \nu_{m+p} \quad (\text{A.10})$$

avec :

$$\nu_p = \frac{1}{N} \sum_{m=-N/2}^{N/2} u_{n,m} e^{-2C_d i m p / N} \quad (\text{A.11})$$

On reconnaît dans cette expression la transformée de Fourier discrète de $u_{n,m}$. Ainsi calculer la transformée de Hankel, peut se faire en calculant la transformée de Fourier discrète de la fonction $u_{n,m}$, ce qui donne la fonction ν_p , en effectuant ensuite le produit $\nu_p f$ puis enfin en effectuant la transformée de Fourier discrète de ce produit.

A.2 Application à notre cas

L'échantillonnage logarithmique de la coordonnée radiale r et de sa variable conjuguée α peut se mettre sous la forme :

$$r_i = \sqrt{r_N r_1} \left(\frac{r_N}{r_1} \right)^{\frac{i}{N} - \frac{1}{2}} \quad \alpha_i = \frac{C_{\alpha r}}{\sqrt{r_N r_1}} \left(\frac{r_N}{r_1} \right)^{\frac{i}{N} - \frac{1}{2}} \quad (\text{A.12})$$

où r_1 est le premier point de l'échantillonnage en r , r_N le dernier et $C_{\alpha r}$ le produit $r_{N/2} \times \alpha_{N/2}$. Ceci permet d'obtenir un échantillonnage logarithmique de N points variant

de r_1 à r_N dans lequel le point central à $N/2$ vaut $r_c = \sqrt{r_N r_1}$. De même la constante $C_{\alpha r}$ permet également d'ajuster le centrage de l'échantillonnage en α par rapport à celui en r .

Il est nécessaire d'utiliser un grand nombre de points pour échantillonner correctement les oscillations rapides du champ pour les grandes valeurs de r . L'échantillonnage logarithmique impose alors un sur-échantillonnage pour les faibles valeurs de r . Enfin, comme tout algorithme de transformation de Fourier, il est nécessaire que la fonction à laquelle la FFT est appliquée ne possède pas de coupure brutale qui engendrerait de fortes oscillations de Gibbs [163].

Dans tous nos calculs les oscillations du champ sont d'autant plus critiques à décrire que le faisceau est large et possède un rayon de courbure prononcé. Pour la simulation du faisceau incident le cas le plus exigeant a lieu dans le plan principal image de la lentille. Pour déterminer rapidement l'échantillonnage adapté, l'amplitude dans le plan principal image est assimilée à l'amplitude à $z = -f' = -100 \text{ mm}$ d'un faisceau gaussien de rayon $15 \mu\text{m}$ à $z = 0$. Dans ces conditions, le faisceau possède un rayon à $1/e^2$ en intensité égal à $w = 2,3 \text{ mm}$ dans le plan principal image. Par ailleurs, le terme de phase le plus significatif à cette position est celui introduit par la lentille, à savoir :

$$\phi(r) = \frac{\pi}{\lambda f} r^2 \quad (\text{A.13})$$

Pour échantillonner correctement l'amplitude complexe, le critère que l'on s'impose est d'avoir au moins 2 points par période (soit $\phi(r_{i+1}) - \phi(r_i) < \pi$) pour $r = 2w \approx 5 \text{ mm}$. Utilisant les expressions A.12 et A.13 de l'échantillonnage et de la phase, notre critère équivaut à la condition :

$$N > \frac{\ln(r_N/r_1)}{\ln\left(1 + \frac{\lambda f}{r^2}\right)} \quad (\text{A.14})$$

Si r reste inférieur au centimètre, un développement limité du logarithme nous donne :

$$N > \frac{r^2 \ln(r_N/r_1)}{\lambda f} \quad (\text{A.15})$$

Nous voyons donc que le nombre de points nécessaires ne dépend que faiblement de (r_N/r_1) . Pour éviter toute erreur due à une coupure brutale, il est donc possible, sans trop augmenter le temps de calcul, de choisir un échantillonnage sur un grand nombre de décades. Avec 14 décades $((r_N/r_1) = 10^{14})$, et pour une longueur d'onde de $0,8 \mu\text{m}$,

la condition précédente équivaut à $N > 8500$. Nous choisirons par la suite de travailler avec 10000 points. Dans le cas d'un faisceau gaussien, la figure A.1 représente le module de la fonction à laquelle sera appliquée la première FFT nécessaire au calcul de la transformation de Hankel numérique. Le phénomène d'oscillation de Gibbs sera très faible car pour un si grand nombre de décades, il n'y a pas de coupure brutale quand $r \rightarrow 0$.

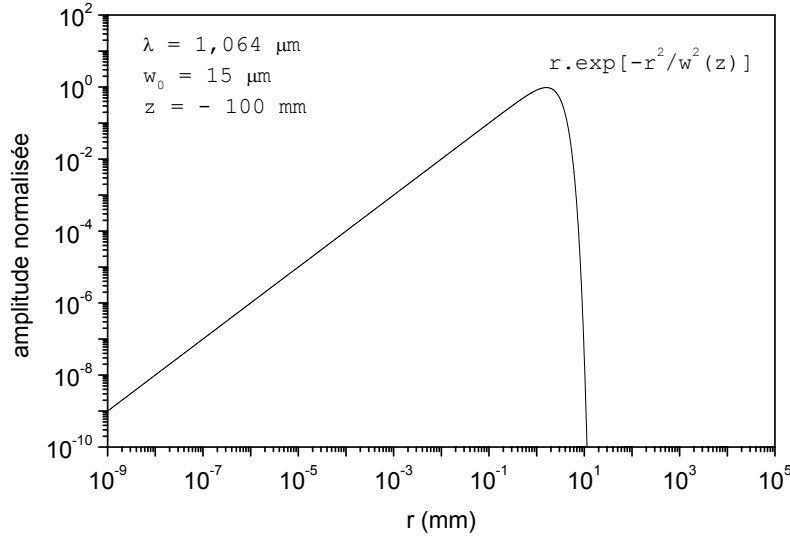


FIG. A.1 – *Module de l'amplitude dans le plan principal image de la lentille (cas gaussien, échelle LOG-LOG).*

Dans le cas des simulations des faisceaux fortement focalisés, le nombre de point a été augmenté jusqu'à un 10^5 points pour éviter les problèmes numériques ce qui a considérablement augmenté le temps de calcul.

Même s'il nécessite un grand nombre de points, il faut donc noter que l'échantillonnage logarithmique permet de résoudre avec une très grande précision la répartition spatiale du faisceau autour de l'axe optique, et donc, dans la zone où le phénomène d'autofocalisation est significatif et où il engendrera une réduction de la taille du faisceau. Par ailleurs, ce type d'échantillonnage permet de travailler sur une très large plage, réduisant ainsi fortement le problème d'oscillations de Gibbs.

Annexe B

Conversion entre les systèmes S.I. et CGS

Bien que le système d'unité le plus couramment utilisé aujourd'hui soit le système S.I., de nombreux ouvrages et publications, utilisent encore le système d'unité CGS pour la définition de la susceptibilité non-linéaire et de l'indice de réfraction non-linéaire. Ces grandeurs portent alors la mention $[esu]$, c'est à dire : "electrostatic system of units".

Afin de pouvoir passer d'un système à l'autre, il est utile de rappeler quelques relations de conversion.

Dans ce travail, la convention adoptée pour le développement en série de la polarisation électrique est la suivante :

$$P = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} E + \frac{3}{4} \times \frac{\chi^{(3)}}{\epsilon_0} |E|^2 E + \dots \right) \quad (\text{B.1})$$

où le champ s'exprime en V/m .

En revanche, dans le système CGS, la convention adoptée pour le développement en série de la polarisation électrique est la suivante :

$$P = \chi^{(1)} E + \frac{3}{4} \times \chi^{(3)} |E|^2 E + \dots \quad (\text{B.2})$$

où le champ s'exprime en *statvolt/cm*.

L'indice de réfraction est défini par les relations :

$$\begin{cases} n^2 = 1 + 4\pi\chi & \text{en CGS} \\ n^2 = 1 + \chi & \text{en S.I.} \end{cases} \quad (\text{B.3})$$

Par ailleurs, l'indice de réfraction **non-linéaire** est, quant à lui, défini à l'aide des relations suivantes, communes aux deux systèmes d'unité :

$$n = n_0 + \frac{n_2}{2} |E|^2 \quad \text{et} \quad n = n_0 + \gamma I \quad (\text{B.4})$$

A l'aide de ces conventions, on dresse le tableau B.1, résumant les relations de passage entre susceptibilité et indices non-linéaires pour les deux systèmes d'unité.

CGS	S.I.
$n_2[esu] = \frac{3\pi}{n_0} \chi^{(3)}[esu]$	$n_2[m^2/V^2] = \frac{3}{4n_0\epsilon_0} \chi^{(3)}[C \cdot m/V^3]$
$\gamma[esu] = \frac{4\pi}{n_0 c} n_2[esu]$	$\gamma[m^2/W] = \frac{120\pi}{n_0} n_2[m^2/V^2]$

TAB. B.1 – *Relations entre susceptibilités et indices de réfraction non-linéaires pour les systèmes d'unité CGS et S.I.*

Enfin, notons que la plupart du temps, $\chi^{(3)}$ et n_2 sont exprimés en système CGS, tandis qu'il est beaucoup plus parlant et pratique de manipuler l'indice de réfraction non-linéaire γ en m^2/W . Sachant que :

$$I[esu] = I \left[\frac{erg}{cm^2 \times s} \right] = 10^3 \times I \left[\frac{W}{m^2} \right]$$

On trouve la relation suivante :

$$\gamma[m^2/W] = \frac{40\pi}{n_0 c} n_2[esu] \quad (\text{B.5})$$

Annexe C

Propriétés optiques linéaires de quelques verres silicates

Nous présentons ici quelques propriétés optiques de verres silicates. Ces données concernent une vingtaine de verres fabriqués par OHARA CORPORATION et sont disponibles sur le site <http://www.oharacorp.com>.

C.1 Diagramme d'Abbe : indice et dispersion

Pour classer les différents types de verres, leur position est indiquée sur le diagramme d'Abbe qui comporte le nombre d'Abbe ν_d en abscisse et l'indice linéaire n_d en ordonnée C.1. Le nombre d'Abbe est caractéristique de la dispersion chromatique et est défini comme :

$$\nu_d = \frac{n_d - 1}{n_F - n_C}$$

où n_d , n_F et n_C sont les indices de réfractions mesurés respectivement avec la raie jaune de l'Helium (587,56 nm), la raie bleue de l'hydrogène (486,13 nm) et la raie rouge de l'hydrogène (656,27 nm).

C.2 Absorption linéaire

Le coefficient d'absorption linéaire d'une vingtaine de verres est également représenté pour 4 longueurs d'ondes à la figure C.2.

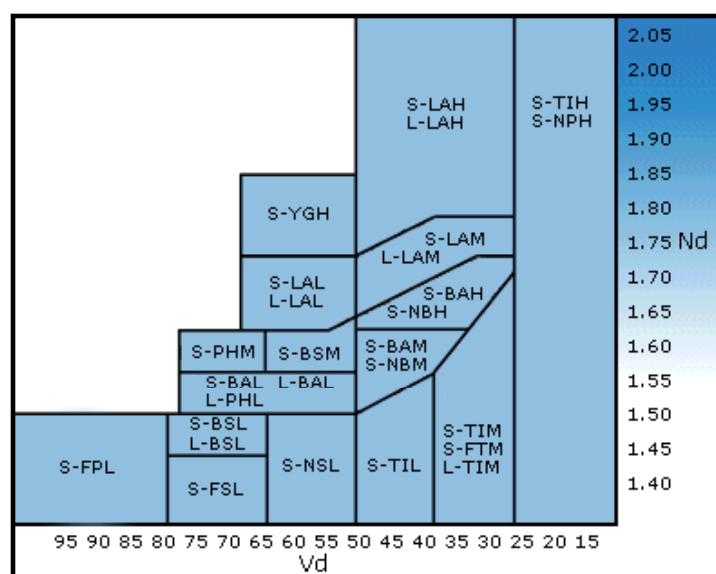


FIG. C.1 – *Diagramme d'Abbe des verres de OHARA CORPORATION*

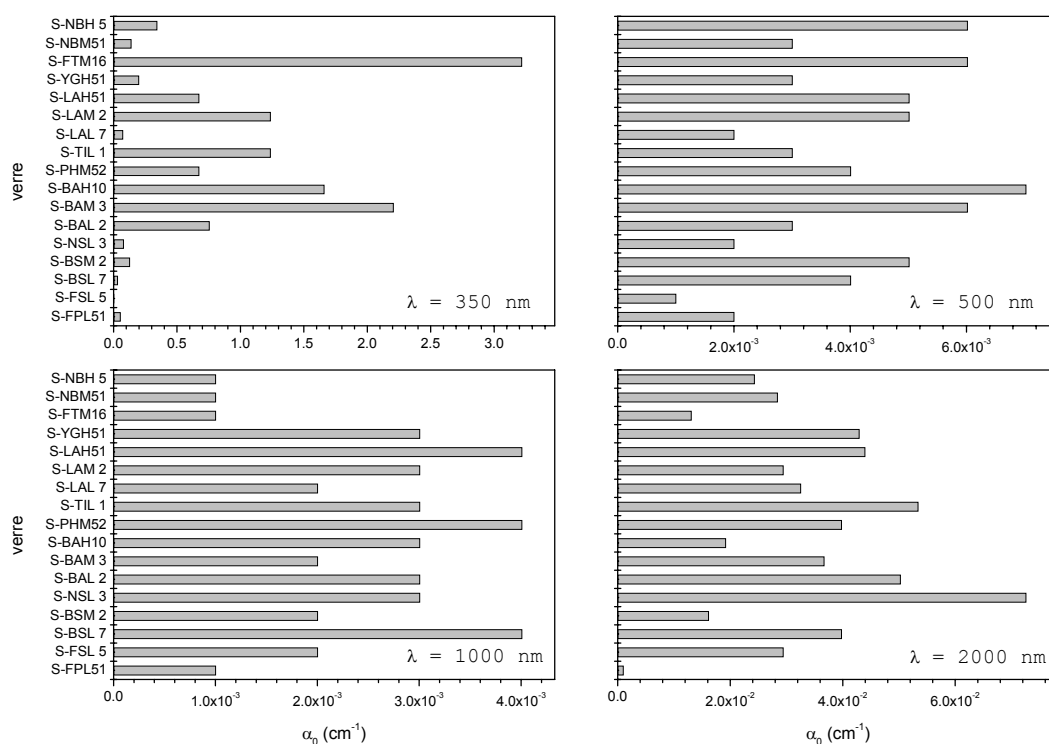


FIG. C.2 – *Coefficients d'absorption des verres de OHARA CORPORATION à $\lambda = 350\text{ nm}$, 500 nm , 1000 nm et 2000 nm*

Annexe D

Propriétés de la silice

D.1 Transmission de la silice

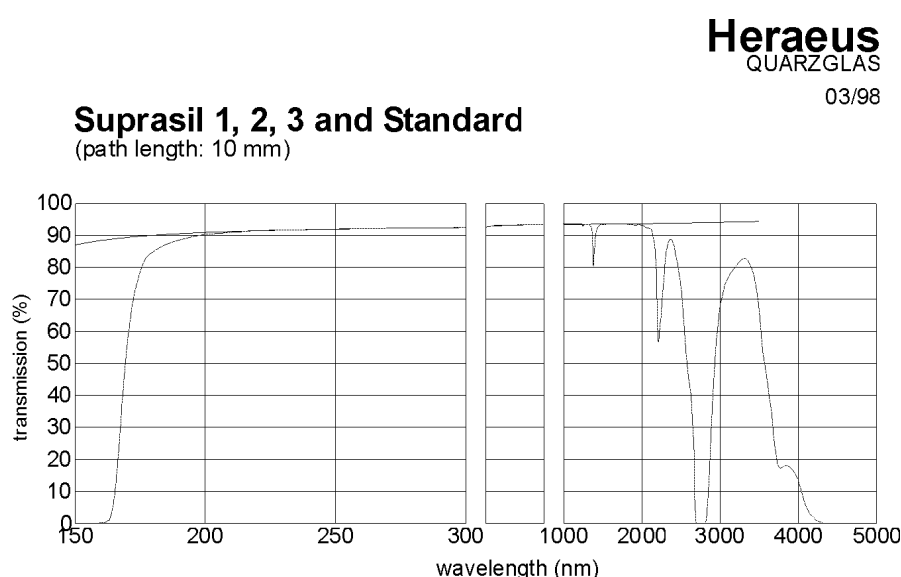


FIG. D.1 – *Transmission de la silice suprasil.* (source : Heraeus).

La transmission de la silice Suprasil (silice synthétique) diffère de celle de la silice naturelle (Homosil et Herasil) dans l'ultra-violet de 150 nm à 270 nm et par deux bandes vers 1400 nm et 2200 nm . Ces différences de transmission peuvent s'expliquer par de faibles différences de composition : les silices naturelles contiennent environ 20 ppm d'impuretés métalliques contre approximativement 1 ppm pour la silice synthétique. Par contre les silices naturelles contiennent seulement 130 à 200 ppm de liaisons OH contre 170 à 1000 pour le Suprasil.

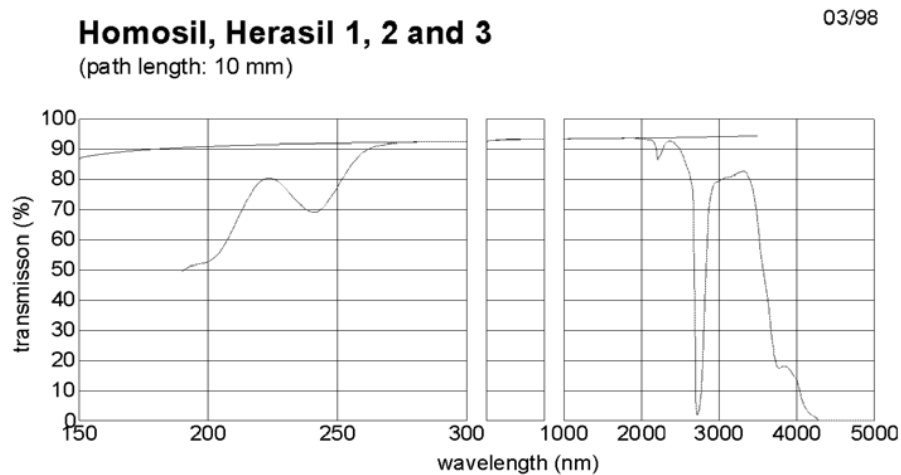


FIG. D.2 – *Transmission de la silice herasil. (source : Heraeus).*

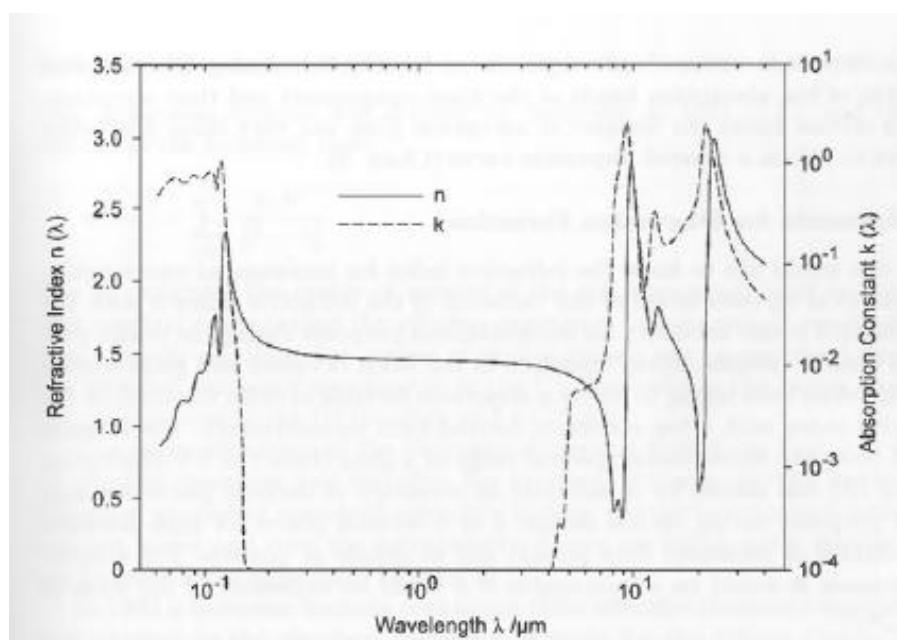


FIG. D.3 – *Indice de réfraction et absorption de la silice. (source : Schott).*

D.2 Indice non-linéaire de la silice

Nous présentons ici quelques valeurs de l'indice non-linéaire de la silice mesurées expérimentalement et trouvées dans la littérature.

$\gamma \times 10^{-20} m^2/W$	λ	FWHM	Référence	Technique
7.8 ± 1.5	$266 nm$	$15 ps$	DeSalvo et al. [165]	Z-scan
2.4 ± 0.5	$355 nm$	$17 ps$	DeSalvo et al. [165]	Z-scan
2.5 ± 1.2	$355 nm$	$150 - 200 ps$	White et al. [166]	TRI, suprasil
$2.5 - 3.5$	$800 nm$	$150 - 200 ps$	Santran et al. [72]	TRI
3.4 ± 0.6	$400 nm$	$\approx 150 ps$	Santran et al. [72]	TRI
3.2 ± 0.6	$400 nm$	$\approx 150 fs$	Santran et al. [72]	TRI
2.2 ± 0.5	$532 nm$	$22 ps$	DeSalvo et al. [165]	Z-scan
2.6 ± 0.6	$532 nm$	$5.6 ns$	Ce travail	Z-scan
3.4 ± 0.6	$532 nm$	$12 ns$	Ce travail	Z-scan
3.45	$694 nm$	$13 ns$	Owyong et al. [167, 168]	PR
2.8 ± 0.3	$800 nm$	$\approx 150 fs$	Nibbering et al. [68]	SA, suprasil
3.2 ± 0.3	$800 nm$	$\approx 150 fs$	Nibbering et al. [68]	SA, herasil
3.5 ± 1.5	$800 nm$	$110 fs$	Couris et al. [169]	Z-scan, 20 Hz
2.3 ± 0.6	$800 nm$	$155 fs$	Ce travail	Z-scan
3.2 ± 0.6	$800 nm$	$1.3 ps$	Ce travail	Z-scan
2.4	$1064 nm$	$100 ps$	Adair et al. [125]	TWM
2.73 ± 0.3	$1064 nm$	$100 - 150 ps$	Weber et al. [124]	TRI
2.1 ± 0.5	$1064 nm$	$30 ps$	DeSalvo et al. [165]	Z-scan
3.9 ± 0.6	$1064 nm$	$7 ns$	Ce travail	Z-scan
4.9 ± 0.6	$1064 nm$	$20 ns$	Ce travail	Z-scan
2.5 ± 0.6	$1500 nm$	$\approx 150 fs$	Santran et al. [72]	TRI

TAB. D.1 – *Indice non-linéaire de la silice mesuré dans différentes conditions expérimentales. (TRI : Time-resolved interferometry, TWM : Three-wave mixing, SA : Spectral analysis, PR : Polarization rotation)*

Bibliographie

- [1] P. Geoges, F. Salin, G. Lesaux, G. Roger, and A. Brun, "Generation of high-power 20-fs pulses," *Journal de physique*, vol. 49, no. C-2, pp. 51–54, 1988.
- [2] J. Chambaret, C. LeBlanc, G. Cheriaux, P. Curley, G. Darpentigny, P. Rousseau, G. Hamoniaux, A. Antonetti, and F. Salin, "Generation of 25-tw, 32-fs pulses at 10 hz," *Optics letters*, vol. 21, no. 23, pp. 1921–1923, 1996.
- [3] D. Touboul, F. Salin, B. Mortemousque, A. Courjaud, P. Chabassier, E. Mottay, F. Leger, and J. Colin, "Tissular and mechanical effects observed with an experimental femtosecond laser microkeratome for corneal refractive surgery," *Journal francais d'ophtalmologie*, vol. 28, no. 3, pp. 274–284, 2005.
- [4] J. Lopez, F. Salin, M. Hernandez, and M. Faucon, "Nanosecond uv laser micromachining or femtosecond micromachining - state of the art and comparison," *Journal de physique IV*, vol. 108, pp. 13–17, 2003.
- [5] A. Pereira, A. Cros, P. Delaporte, S. Georgiou, A. Manousaki, W. Marine, and M. Sentis, "Surface nanostructuring of metals by laser irradiation : effects of pulse duration, wavelength and gas atmosphere," *Applied physics A*, vol. 79, no. 4-6, pp. 1433–1437, 2004.
- [6] A. Thomann, A. Basillais, M. Wegscheider, C. Boulmer-Leborgne, A. Pereira, P. Delaporte, M. Sentis, and T. Sauvage, "Chemical and structural modifications of laser treated iron surfaces : investigation of laser processing parameters," *Applied surface science*, vol. 230, no. 1-4, pp. 350–363, 2004.
- [7] J. Wolf, *Encyclopedia of Analytical Chemistry*. J. Wiley eds, New York, 2000, ch. Chapitre 3 : UV-DIAL-Lidar Techniques for Air Pollution Monitoring, pp 2226–2247.
- [8] T. Polack, J. P. Ogilvie, S. Franzen, M. H. Vos, M. Joffre, J.-L. Martin, and A. Alexandrou, "Co vibration as a probe of ligand dissociation and transfer in

- myoglobin,” *Physical Review Letters*, vol. 93, no. 1, p. 018102, 2004. [Online]. Available : <http://link.aps.org/abstract/PRL/v93/e018102>
- [9] C. Ventalon, J. M. Fraser, M. H. Vos, A. Alexandrou, J.-L. Martin, and M. Joffre, “Coherent vibrational climbing in carboxyhemoglobin,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 101, no. 36, pp. 13 216–13 220, 2004.
- [10] L. Canioni, R. Barille, A. Brocus, and L. Sarger, “Nonlinear microscopy,” *Journal de physique IV*, vol. 108, pp. 233–237, 2003.
- [11] N. Djaker, P.-F. Lenne, and H. Rigneault, “Vibrational imaging by coherent anti-stokes raman scattering (cars) microscopy,” in *Photonics Europe 2004 : Metrology, Sensing, and Biophotonics, Femtosecond Laser Applications in Biology*, vol. 5463, 2004, pp. 133–139.
- [12] F. Salin, P. Georges, G. Roger, G. L. Saux, P. Grangier, and A. Brun, *Optoélectronique (volume 1)*. <http://www.bibsciences.org>, 2002, ch. Optique non-linéaire femtoseconde, p. 113.
- [13] A. Couairon, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrowicz, “Filamentation and damage in fused silica induced by tightly focused femtosecond laser pulses,” *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, vol. 71, no. 12, p. 125435, 2005. [Online]. Available : <http://link.aps.org/abstract/PRB/v71/e125435>
- [14] T. N. Kim, K. Campbell, A. Groisman, D. Kleinfeld, and C. B. Schaffer, “A femtosecond laser-drilled capillary integrated into a microfluidic device,” *Applied Physics Letters*, vol. à paraître, 2005.
- [15] K. Hirao and K. Miura, “Writing waveguides and gratings in silica and related materials by a femtosecond laser,” *Journal of non-crystalline solids*, vol. 239, no. 1-3, pp. 91–95, 1998.
- [16] N. Takeshima, Y. Narita, T. Nagata, S. Tanaka, and K. Hirao, “Fabrication of photonic crystals in zns-doped glass,” *Optics letters*, vol. 30, no. 5, pp. 537–539, 2005.
- [17] B. Bertussi, “Etude des mécanismes initiateurs de l’endommagement laser dans les composants optiques : vers une amélioration de la tenue au flux,” Juillet 2005, *Thèse de doctorat*, Université Paul Cezanne - Aix-Marseille III.
- [18] L. Gallais, “Endommagement laser dans les composants optiques : métrologie, analyse statistique et photo-induite des sites initiateurs,” novembre 2002, *Thèse de doctorat*, Université de droit, d’économie et des sciences d’Aix-Marseille III.

-
- [19] A. During, "Microscopie photothermique and endommagement laser," decembre 2002, *Thèse de doctorat*, Université de droit, d'économie et des sciences d'Aix-Marseille III.
- [20] M. Born and E. Wolf, *Principles of optics*, 7th ed. Cambridge University Press, 1999.
- [21] P. N. Butcher and D. Cotter, *The elements of nonlinear optics*. Cambridge University Press, 1990.
- [22] R. Petit, *Ondes électromagnétiques en radioélectricité et en optique*. Masson, 1993.
- [23] S. V. Popov, Y. P. Svirko, and N. I. Zheludev, *Susceptibility tensors for nonlinear optics*, ser. Optics and optoelectronics. Institute of Physics Publishing, 1995.
- [24] M. Sheik-Bahae and M. P. Hasselbeck, *OSA Handbook of Optics, Vol. IV*. McGraw-Hill, 2001, ch. Third Order Optical Nonlinearities, pp. 17.3–17.38.
- [25] D. Hutchings, D. Sheik-Bahae, M. and Hagan, and E. VanStryland, "Kramers-kronig relations in nonlinear optics," *Optical and Quantum Electronics*, vol. 24, pp. 1–30, 1992.
- [26] M. Sheik-Bahae, D. Hagan, and E. VanStryland, "Dispersion and band-gap scaling of the electronic kerr effect in solids associated with two-photon absorption," *Physical Review Letters*, vol. 65, pp. 96–99, 1990.
- [27] N. Bloembergen, *Nonlinear Optics*. World Scientific, 1996.
- [28] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*. Academic Press, Inc., 1992.
- [29] J. Ducuing and N. Bloembergen, "Observation of reflected light harmonics at the boundary of piezoelectric crystals," *Physical Review Letters*, vol. 10, no. 11, p. 474–476, 1963.
- [30] J. Coutaz, D. Maystre, M. Nevriere, and R. Reinisch, "Optical 2nd-harmonic generation from silver at $1.064\text{-}\mu\text{m}$ pump wavelength," *Journal of applied physics*, vol. 62, no. 4, pp. 1529–1531, 1987.
- [31] M. Nevriere, R. Reinisch, and D. Maystre, "Surface-enhanced 2nd-harmonic generation at a silver grating - a numerical study," *Physical review B*, vol. 32, no. 6, pp. 3634–3641, 1985.
- [32] S. Enoch, "Etude théorique et expérimentale du doublage de fréquence par les couches minces optiques," 1997, *Thèse de doctorat*, Université de droit, d'économie et des sciences d'Aix-Marseille III.

- [33] N. L. Boling, A. J. Glass, and A. Owyong, "Empirical relationships for predicting nonlinear refractive index changes in optical solids," *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. QE-14, pp. 601–608, 1978.
- [34] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T.-H. Wei, D. J. Hagan, and E. W. VanStryland, "Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam," *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 26, no. 4, pp. 760–769, April 1990.
- [35] E. Dieulesaint and D. Royer, *Ondes élastiques dans les solides*. MASSON and cie, 1974.
- [36] G. Liu, "Theory of the photoacoustic effect in condensed matter," *Applied Optics*, vol. 21, no. 5, pp. 955–960, March 1981.
- [37] P. R. Longaker and M. M. Litvak, "Perturbation of the refractive index of absorbing media by a pulsed beam," *Journal of Applied Physics*, vol. 40, no. 10, pp. 4033–4041, September 1969.
- [38] D. Kovsh, S. Yang, D. J. Hagan, and E. W. VanStryland, "Nonlinear optical propagation for optical limiting," *Applied Optics*, vol. 38, no. 24, pp. 5168–5180, August 1999.
- [39] S. R. J. Brueck, H. Kildal, and L. J. Belanger, "Photo-acoustic and photo-refractive detection of small absorptions in liquids," *Optics Communications*, vol. 34, no. 2, pp. 199–204, August 1980.
- [40] J. M. Heritier, "Electrostrictive limit and focusing effects in pulsed photoacoustic detection," *Optics Communications*, vol. 44, no. 4, pp. 267–272, January 1983.
- [41] H. Bach and N. Neuroth, *The Properties of Optical Glass*. Springer, 1995.
- [42] M. Bass, E. W. VanStryland, D. R. Williams, and W. L. Wolfe, *Handbook of Optics (II), Devices, Measurements and Properties*. McGraw-Hill, 2000.
- [43] E. Vanstryland, H. Vanherzeele, M. Woodall, M. Soileau, A. Smilrl, S. Guha, and T. Boggess, "2 photon-absorption, nonlinear refraction, and optical limiting in semiconductors," *Optical Engineering*, vol. 24, no. 4, pp. 613–623, 1985.
- [44] E. Vanstryland, Y. Wu, D. Hagan, M. Soileau, and K. Mansour, "Optical limiting with semiconductors," *Journal of the optical society of america B*, vol. 5, no. 9, pp. 1980–1989, 1988.
- [45] K. S. Bindra, S. M. Oak, and K. C. Rustagi, "Optical limiting in semiconductor-doped glasses," *Optics Communications*, vol. 124, no. 5-6, pp. 452–6, 1996.

-
- [46] G. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*. academic Press, 1989.
- [47] R. L. Fork, C. V. Shank, C. Hirlimann, R. Yen, and W. J. Tomlinson, “Femtosecond white-light continuum pulses,” *Optics Letters*, vol. 8, no. 1, pp. 1–3, 1983.
- [48] J. Dudley, L. Provino, N. Grossard, H. Maillotte, R. Windeler, B. Eggleton, and S. Coen, “Supercontinuum generation in air-silica microstructured fibers with nanosecond and femtosecond pulse pumping,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 19, no. 3, pp. 1–12, 2002.
- [49] G. Méjean, J. Kasparian, E. Salmon, J. Yu, J.-P. Wolf, R. Bourayou, R. Sauerbrey, M. Rodriguez, L. Wöste, H. Lehmann, B. Stecklum, U. Laux, J. Eislöffel, A. Scholz, , and A. Hatzes, “Towards a supercontinuum-based infrared lidar,” *Applied Physics B : Lasers and Optics*, vol. 77, no. 3, pp. 357–359, 2003.
- [50] “<http://pclasim47.univ-lyon1.fr/>.”
- [51] P. D. Maker and R. W. Terhune, “Study of optical effects due to an induced polarization third order in the electrical field strength,” *Physical Review*, vol. 137, no. 3A, pp. A801–A818, August 1964.
- [52] M. D. Levenson, “Feasibility of measuring the nonlinear index of refraction by third-order frequency mixing,” *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. QE-10, no. 2, pp. 110–115, February 1974.
- [53] R. Adair, L. L. Chase, and S. A. Payne, “Nonlinear refractive index measurements of glasses using three-wave frequency mixing,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 4, no. 6, pp. 875–881, June 1987.
- [54] D. Milam and J. Weber, “Measurement of nonlinear refractive index coefficients using time-resolved interferometry : Application to optical materials for high-power neodymium lasers,” *Journal of Applied Physics*, vol. 47, no. 6, pp. 2497–2501, June 1976.
- [55] R. Quintero-Torres and M. Thakur, “Measurement of the nonlinear refractive index of polydiacetylene using michelson interferometry and z-scan,” *Journal of Applied Physics*, vol. 85, no. 1, pp. 401–403, January 1999.
- [56] G. Boudebs, M. Chis, and X. N. Phu, “Third-order susceptibility measurement by a new mach-zender interferometry technique,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 18, no. 5, pp. 623–627, May 2001.

- [57] G. Boudebs, F. Sanchez, J. Troles, and F. Smektala, "Nonlinear optical properties of chalcogenide glasses : comparison between mach-zehnder interferometry and z-scan techniques," *Optics Communications*, vol. 199, no. 5-6, pp. 425–433, December 2001.
- [58] M.-O. Martin, L. Canioni, and L. Sarger, "Measurements of complex third-order optical susceptibility in a collinear pump-probe experiment," *Optics Letters*, vol. 23, no. 24, pp. 1874–6, 1998.
- [59] B. Jeansannetas, S. Blanchandin, P. Thomas, P. Marchet, J. C. Champarnaud-Mesjard, T. Merle-Mejean, B. Frit, V. Nazabal, E. Fargin, G. Le-Flem, M. O. Martin, B. Bousquet, L. Canioni, S. Le-Boiteux, P. Segonds, and L. Sarger, "Glass structure and optical nonlinearities in thallium(i) tellurium(iv) oxide glasses," *Journal of Solid State Chemistry*, vol. 146, no. 2, pp. 329–35, 1999.
- [60] G. Boudebs, F. Sanchez, C. Duverger, and B. Boulard, "Improvement of mach-zehnder interferometry technique for third-order susceptibility measurement," *Optics Communications*, vol. 199, no. 1-4, pp. 257–265, 2001.
- [61] G. Boudebs, S. Cherukulappurath, M. Guignard, J. Troles, F. Smektala, and F. Sanchez, "Experimental observation of higher order nonlinear absorption in tellurium based chalcogenide glasses," *Optics communications*, vol. 232, no. 1-6, pp. 417–423, 2004.
- [62] A. Feldman, D. Horowitz, and R. M. Waxler, "Mechanisms for self-focusing in optical glasses," *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. QE-9, no. 11, pp. 1054–1061, November 1973.
- [63] W. L. Smith, J. H. Bechtel, and N. Bloembergen, "Dielectric-breakdown threshold and nonlinear refractive index measurements with picosecond laser pulses," *Physical Review B*, vol. 12, no. 2, pp. 706–714, July 1975.
- [64] H. Bercegol, A. C. Boscheron, C. Lepage, E. Mazataud, T. Donval, L. Lamaignère, M. Loiseau, G. Raze, and C. Sudre, "Self-focusing and surface damage in fused silica windows of variable thickness with uv laser pulses," in *Laser-Induced Damage in Optical Materials : 2003*, vol. Proc. SPIE Vol. 5273,. SPIE, 2003, pp. 136–144.
- [65] D. Weaire, B. S. Wherrett, D. A. B. Miller, and S. D. Smith, "Effect of low-power nonlinear refraction on laser-beam propagation in insb," *Optics Letters*, vol. 4, no. 10, pp. 331–333, October 1979.

-
- [66] W. E. Williams, M. J. Soileau, and E. V. Stryland, "Optical switching and n_2 measurements in cs_2 ," *Optics Communications*, vol. 50, no. 4, pp. 256–260, June 1984.
- [67] P. P. Banerjee, R. M. Misra, and M. Maghraoui, "Theoretical and experimental studies of propagation of beams through a finite sample of cubically nonlinear material," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 8, no. 5, pp. 1072–1080, May 1991.
- [68] E.-T.-J. Nibbering, M.-A. Franco, B.-S. Prade, G. Grillon, C. Le-Blanc, and A. Mysyrowicz, "Measurement of the nonlinear refractive index of transparent materials by spectral analysis after nonlinear propagation," *Optics Communications*, vol. 119, no. 5-6, pp. 479–84, 1995.
- [69] R. W. Hellwarth, "Third-order optical susceptibilities of liquids and solids," *Progress in Quantum Electronics*, vol. 5, pp. 1–68, 1979.
- [70] J. F. Ripoche, M. A. Franco, G. Grillon, E. T. J. Nibbering, B. S. Prade, and A. Mysyrowicz, "Dynamical studies of non-linear refractive index by cross phase modulation," in *Proceedings of Ultrafast Phenomena 1997 OSA Technical Digest Series Vol.8. 28 May 1 June 1996 San Diego, CA, USA*. Opt. Soc. America, Washington, DC, USA, 1996, pp. xxi+471.
- [71] E. T. J. Nibbering, M. A. Franco, B. S. Prade, G. Grillon, and A. Chambaret, J.-P. andr Mysyrowicz, "Spectral determination of the amplitude and the phase of intense ultrashort optical pulses," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 13, no. 2, p. 317, feb 1996.
- [72] S. Santran, L. Canioni, L. Sarger, T. Cardinal, and E. Fargin, "Precise and absolute measurements of the complex third-order optical susceptibility," *Journal of the Optical Society of America B Optical Physics*, vol. 21, no. 12, pp. 2180–90, December 2004.
- [73] T. Xia, J. Hagan, M. Sheik-Bahae, and E. W. V. Stryland, "Eclipsing z-scan measurement of $\lambda/10^4$ wave-front distortion," *Optics Letters*, vol. 19, no. 5, pp. 317–319, March 1994.
- [74] J. A. Hermann and R. G. McDuff, "Analysis of spatial scanning with thick optically nonlinear media," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 10, no. 11, pp. 2056–2064, November 1993.
- [75] A. E. Siegman, *Lasers*. University Science Book, 1986.

- [76] R. E. Samad and N. D. Vieira, "Analytical description of z-scan on-axis intensity based on the Huygens-Fresnel principle," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 15, no. 11, pp. 2742–2746, November 1998.
- [77] P. B. Chapple, J. Staromlynska, and R. G. McDuff, "Z-scan studies in the thin- and thick-sample limits," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 11, no. 6, pp. 975–982, June 1994.
- [78] W. Zhao and P. Palffy-Muhoray, "Z-scan technique using top-hat beams," *Applied Physics Letters*, vol. 63, no. 12, pp. 1613–1615, September 1993.
- [79] B. K. Rhee, J. S. Byun, and E. W. VanStryland, "Z-scan using circularly symmetric beams," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 13, no. 12, pp. 2720–2723, December 1996.
- [80] P. Chen, D. A. Oulianov, I. V. Tomov, and P. M. Rentzepis, "Two-dimensional z-scan for arbitrary beam shape and sample thickness," *Journal of Applied Physics*, vol. 85, no. 10, pp. 7043–7050, May 1999.
- [81] M. Sheik-Bahae, J. Wang, R. DeSalvo, D. J. Hagan, and E. W. VanStryland, "Measurement of nondegenerate nonlinearities using a two-color z scan," *Optics Letters*, vol. 17, no. 4, pp. 258–260, February 1992.
- [82] J. Castillo, V. P. Kozich, and O. A. Marciano, "Thermal lensing resulting from one- and two-photon absorption studied with a two color time resolved z-scan," *Optics Letters*, vol. 19, no. 3, pp. 171–173, February 1994.
- [83] J. Wang, M. Sheik-Bahae, A. A. Said, D. J. Hagan, and E. W. V. Stryland, "Time resolved z-scan measurements of optical nonlinearities," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 11, no. 6, pp. 1009–1017, June 1994.
- [84] H. Ma and C. B. de Araujo, "Two-color z-scan technique with enhanced sensitivity," *Applied Physics Letters*, vol. 66, pp. 1581–1583, 1995.
- [85] T. Kawazoe, H. Kawaguchi, J. Inoue, O. Haba, and M. Ueda, "Measurement of nonlinear refractive index by time-resolved z-scan technique," *Optics Communications*, vol. 160, no. 1-3, pp. 125–129, February 1999.
- [86] T. Wei, T. Huang, and T. Wen, "Mechanism of reverse saturable absorption in chloro-aluminum phthalocyanine solution studied with z-scan," *Chemical Physics Letters*, vol. 314, pp. 403–410, 1999.

-
- [87] A. V. Afanas'ev and al., "Picosecond z-scan measurements of nonlinear optical susceptibility of films and solutions of novel organometallic polymers," *Optics Communications*, vol. 201, pp. 207–215, 2002.
- [88] E. Giorgetti, G. Toci, M. Vannini, D. Cavallo, and G. Dellepiane, "Measurements of the third order nonlinearity of a soluble polycarbazolydiacetylene by picosecond z-scan at 1064 and 1500nm," *Synthetic Metals*, vol. 127, pp. 139–142, 2002.
- [89] B. Yu, C. Zhu, F. Gan, X. Wu, G. Zhang, G. Tang, and W. Chen, "Optical nonlinearities of fe₂o₃ nanoparticles investigated by z-scan technique," *Optical Materials*, vol. 8, no. 4, pp. 249–254, 1997.
- [90] B. Yu, G. Yin, C. Zhu, and F. Gan, "Optical nonlinear properties of pbs nanoparticles studied by the z-scan technique," *Optical Materials*, vol. 11, no. 1, pp. 17–21, 1998.
- [91] H. P. Li, B. Liu, C. H. Kam, Y. L. Lam, W. X. Que, L. M. Gan, C. H. Chew, and G. Q. Xu, "Femtosecond z-scan investigation of nonlinear refraction in surface modified pbs nanoparticles," *Optical Materials*, vol. 14, no. 4, pp. 321–327, 2000.
- [92] Y. Song, Y. Wang, C. Zhang, G. Fang, S. Qu, and X. Xin, "Signs alteration of nonlinear refraction of cubane-like shaped clusters from nanosecond to picosecond pulses," *Optics Communications*, vol. 192, no. 3-6, pp. 273–276, 2001.
- [93] J. Del Nero, R. de Araujo, A. Gomes, and C. de Melo, "Theoretical and experimental investigation of the second hyperpolarizabilities of methyl orange," *Journal of chemical physics*, vol. 122, no. 10, p. 104506, 2005.
- [94] A. G. Bezerra, I. E. Borissevitch, A. S. L. Gomes, and C. B. de Arajo, "Exploitation of the z-scan technique as a method to optically probe pka in organic materials : application to porphyrin derivatives," *Optics Letters*, vol. 25, no. 5, pp. 323–325, March 2000.
- [95] R. E. Araujo, A. S. L. Gomes, and C. B. Araujo, "Measurement of pka of organic molecules using third-order nonlinear optics," *Chemical Physics Letters*, vol. 330, pp. 347–353, 2000.
- [96] J. Castillo, J. Hung, A. Fernández, and V. Mujica, "Non-linear optical evidences of aggregation in asphaltene-toluene solutions," *Fuel*, vol. 80, pp. 1239–1243, 2001.
- [97] A. A. Said, M. Sheik-Bahae, D. J. Hagan, T.-H. Wei, J. Wang, J. Young, and E. W. VanStryland, "Determination of bound-electronic and free-carrier nonlinearities in

- znse, gaas, cdte, and znte,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 9, no. 3, pp. 405–414, March 1992.
- [98] K.-H. Lee, W.-R. Cho, J.-H. Park, J.-S. Kim, S.-H. Park, and U. Kim, “Measurement of free-carrier nonlinearities in znse based on the z-scan technique with a nanosecond laser,” *Optics Letters*, vol. 19, no. 15, pp. 1116–1118, August 1994.
- [99] D. O. Caplan, G. S. Kanter, and P. Kumar, “Characterization of dynamic optical nonlinearities by continuous time-resolved z-scan,” *Optics Letters*, vol. 21, no. 17, pp. 1342–1344, September 1996.
- [100] P. A. M. Aguilar, J. J. S. Mondragon, and S. Stepanov, “Modulation z-scan technique for characterization of photorefractive crystals,” *Optics Letters*, vol. 21, no. 19, pp. 1541–1543, October 1996.
- [101] I. J. Blewett, J. Stokes, A. Tookey, K. A. K., and B. S. Wherrett, “Fastscan z-scan system for determining optical nonlinearities in semiconductors,” *Optics and Laser Technology*, vol. 29, pp. 355–358, 1997.
- [102] K. S. Bindra, S. M. Oak, and K. C. Rustagi, “Intensity dependence of the z-scan in semiconductor-doped glasses for separation of third and fifth order contributions in the below band gap region,” *Optics Communications*, vol. 168, pp. 219–225, 1999.
- [103] P. A. M. Aguilar, J. J. S. Mondragón, S. Stepanov, and G. Bloch, “Z-scan experiments with cubic photorefractive crystal bi₁₂tio₂₀,” *Optics Communications*, vol. 118, pp. 165–174, 1995.
- [104] S. Bian, “Estimation of photovoltaic field in linbo₃ crystal by z-scan,” *Optics Communications*, vol. 141, pp. 292–297, 1997.
- [105] A. Siahmakoun, D. Breitling, and A. Najaf-Zadeh, “Continuous-wave z-scan measurement of photorefractive sbn :60,” *Applied Optics*, vol. 39, no. 29, pp. 5360–5366, October 2000.
- [106] A. V. Kir’yanov, Y. O. Barmenkov, A. N. Starodumov, V. P. Leppanen, J. Vanhanen, and T. Jaaskelainen, “Application of the z-scan technique to a saturable photorefractive medium with the overlapped ground and excited state absorption,” *Optics Communications*, vol. 177, pp. 417–423, 2000.
- [107] C. H. Kwak, Y. L. Lee, and S. G. Kim, “Analysis of asymmetric z-scan measurement for large optical nonlinearities in an amorphous as₂s₃ thin film,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 16, no. 4, pp. 600–604, April 1999.

-
- [108] E. Falcao, C. de Araujo, C. Bosco, G. Maciel, L. Acioli, M. Nalin, and Y. Messaddeq, "Antimony orthophosphate glasses with large nonlinear refractive indices, low two-photon absorption coefficients, and ultrafast response," *Journal of Applied Physics*, vol. 97, no. 1, p. 013505, 2005.
- [109] E. Falcao, C. de Araujo, C. Bosco, L. Acioli, G. Poirier, Y. Messaddeq, G. Boudebs, and M. Poulain, "Nonlinear optical properties of tungstate fluorophosphate glasses," *Journal of Applied Physics*, vol. 96, no. 5, pp. 2525–2529, 2004.
- [110] C. A. C. Bosco, E. L. Falcao-Filho, G. S. Maciel, L. H. Acioli, C. B. de Araujo, A. A. Lipovskii, and D. K. Tagantsev, "Near-infrared nonlinear properties of a glass-ceramic containing sodium niobate nanocrystals," *Journal of Applied Physics*, vol. 94, no. 9, pp. 6223–5, 2003.
- [111] N. Pinçon-Roetzinger, D. Prot, B. Palpant, E. Charron, and S. Debrus, "Large optical kerr effect in matrix-embedded metal nanoparticles," *Materials Science and Engineering C*, vol. 19, p. 51, 2002.
- [112] N. Pinçon, B. Palpant, D. Prot, E. Charron, and S. Debrus, "Third-order nonlinear optical response of au :sio₂ thin films : influence of gold nanoparticle concentration and morphologic parameters," *European Physics Journal D*, vol. 19, no. 3, p. 395, 2002.
- [113] D. Prot, D. B. Stout, J. Lafait, N. Pinçon, B. Palpant, and S. Debrus, "Local electric field enhancements and large third order optical nonlinearity in nanocomposite materials," *Journal of optics A - pure and applied optics*, vol. 4, no. 5, p. S99, 2002.
- [114] G. S. Maciel, "Picosecond z-scan measurements on a glass-ceramic containig sodium niobate nanocrystals," *Optics Communications*, vol. 203, pp. 441–444, 2001.
- [115] S. Debrus, J. Lafait, M. May, N. Pinçon, D. Prot, C. Sella, and J. Venturini, "Z-scan determination of the third order optical nonlinearity of gold :silica nanocermets," *Journal of Applied Physics*, vol. 88, p. 4469, 2000.
- [116] T. Hashimoto, H. Uchida, I. Takagi, H. Nasu, and K. Kamiya, "Optical nonlinearity of tio₂-containing glasses measured by z-scan technique," *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 253, no. 1-3, pp. 30–36, 1999.
- [117] M. Kyoung and M. Lee, "Nonlinear absorption and refractive index measurements of silver nanorods by the z-scan technique," *Optics Communications*, vol. 171, pp. 145–148, 1999.

- [118] T. Catunda, M. L. Baesso, Y. Messaddeq, and M. A. Aegerter, "Time resolved z-scan and thermal lens measurement in er+3 and nd+3 doped fluorindate glasses," *Journal of Non Crystalline Solids*, vol. 213-214, pp. 225–230, 1997.
- [119] G. Battaglin, P. Calvelli, E. Cattaruzza, R. Polloni, E. Borsella, T. Cesca, F. Gonella, and P. Mazzoldi, "Laser-irradiation effects during z-scan measurement on metal nanocluster composite glasses," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 17, no. 2, pp. 213–218, 2000.
- [120] G. Battaglin, P. Calvelli, E. Cattaruzza, F. Gonella, R. Polloni, G. Mattei, and P. Mazzoldi, "Z-scan study on the nonlinear refractive index of copper nanocluster composite silica glass," *Applied Physics Letters*, vol. 78, no. 25, pp. 3953–5, 2001.
- [121] J. Zhou, E. Y. B. Pun, P. S. Chung, and X. H. Zhang, "Z-scan measurement of a novel amorphous molecular material," *Optics Communications*, vol. 191, pp. 427–433, 2001.
- [122] S. K. Lam, M. A. Chan, and D. Lo, "Z-scan measurement of the nonlinear absorption and refractive index for fluorescein 548-doped organically modified sol-gel silica films," *Optical Materials*, vol. 18, no. 2, pp. 235–241, 2001.
- [123] S. Venugopal Rao, N. K. M. Naga Srinivas, and D. Narayana Rao, "Nonlinear absorption and excited state dynamics in rhodamine b studied using z-scan and degenerate four wave mixing," *Chemical Physics Letters*, vol. 361, no. 5-6, pp. 439–445, 2002.
- [124] M. J. Weber, D. Milam, and W. L. Smith, "Nonlinear refractive index of glasses and crystals," *Optical Engineering*, vol. 17, no. 5, pp. 463–9, 1978.
- [125] R. Adair, L. L. Chase, and S. A. Payne, "Nonlinear refractive index of optical crystals," *Physical Review B Condensed Matter*, vol. 39, no. 5, pp. 3337–50, 1989.
- [126] J. E. Aber, M. C. Newstein, and B. A. Garetz, "Femtosecond optical kerr effect measurement in silicate glasses," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 17, no. 1, pp. 120–127, January 2000.
- [127] I. Kang, T. D. Krauss, F. W. Wise, B. G. Aitken, and N. F. Borelli, "Femtosecond measurement of enhanced optical nonlinearities of sulfide glasses and heavy-metal-doped oxide glasses," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 12, no. 11, pp. 2053–2059, November 1995.
- [128] R. Adair, L. L. Chase, and S. A. Payne, "Dispersion of the nonlinear refractive index of optical crystals," *Optical Materials*, vol. 1, no. 3, pp. 185–93, 1992.

-
- [129] J. D. Talman, "Numerical fourier and bessel transforms in logarithmic variables," *J. Comp. Phys*, vol. 29, no. 1, p. 35, 1978.
- [130] A. J. S. Hamilton, "Uncorrelated modes of the nonlinear power spectrum," *Mon. Not. R. Astron. Soc.*, vol. 312, no. 257, 2000.
- [131] J. W. Goodman, *Introduction to Fourier Optics*. McGraw-Hill, 1968.
- [132] W. H. Southwell, "Validity of the fresnel approximation in the near field," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 71, no. 1, pp. 7–14, January 1981.
- [133] R. Y. Chiao, E. Garmire, and C. H. Townes, "Self-trapping of optical beams," *Physical Review Letters*, vol. 13, pp. 479–482, 1964.
- [134] P. L. Kelley, "Self-focusing of optical beams," *Physical Review Letters*, vol. 15, no. 26, pp. 1005–1008, December 1965.
- [135] W. G. Wagner, H. A. Haus, and J. H. Marburger, "Large-scale self-trapping of optical beams in the paraxial ray approximation," *Physical Review*, vol. 175, no. 1, pp. 256–266, November 1968.
- [136] E. L. Dawes and J. H. Marburger, "Computer studies of self-focusing," *Physical Review*, vol. 179, no. 3, pp. 862–868, March 1969.
- [137] G. Fibish and A. L. Gaeta, "Critical power for self-focusing in bulk media and in hollow waveguide," *Optics Letters*, vol. 25, no. 5, pp. 335–337, March 2000.
- [138] M. D. Feit and J. A. Fleck, "Beam nonparaxiality, filament formation, and beam breakup in the self-focusing of optical beams," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 5, no. 3, pp. 633–640, March 1988.
- [139] M. D. Feit, "Solution of the scalar helmholtz wave equation by lanczos reduction," in *Progress in electromagnetics reasearch*, vol. PIER 11, 1995, pp. 103–141.
- [140] M. D. Feit and J. A. Fleck, "Simple spectral method for solving propagation problems in cylindrical geometry with fast fourier transforms," *Optics Letters*, vol. 14, no. 13, pp. 662–664, July 1989.
- [141] P. Chamorro-Posada, G. S. McDonald, and G. H. C. New, "Non-paraxial beam propagation methods," *Optics Communications*, vol. 192, pp. 1–12, May 2001.
- [142] C. Sien and Q. Guo, "Vector theory of self-focusing of an optical beam in kerr media," *Optics Letters*, vol. 20, no. 15, pp. 1598–1600, August 1995.
- [143] R. Fuente, O. Varela, and H. Michinel, "Fourier analysis of non-paraxial self-focusing," *Optics Communications*, vol. 173, pp. 403–411, January 2000.

- [144] B. Crosignani, P. D. Porto, and A. Yariv, "Nonparaxial equation for linear and nonlinear optical propagation," *Optics Letters*, vol. 22, no. 11, pp. 778–780, June 1997.
- [145] A. Ciattoni, P. D. Porto, B. Crosignani, and A. Yariv, "Vectorial nonparaxial propagation equation in the presence of a tensorial refractive-index perturbation," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 17, no. 5, pp. 809–819, May 2000.
- [146] A. Ciattoni, C. Conti, E. DelRe, P. D. Porto, B. Crosignani, and A. Yariv, "Polarization and energy dynamics in ultrafocussed optical kerr propagation," *Optics Letters*, vol. 27, no. 9, pp. 734–736, May 2002.
- [147] M. D. Feit and J. A. Fleck, "Light propagation in graded index fibers," *Applied Optics*, vol. 17, p. 3390, 1979.
- [148] R. L. Fork and O. E. Martinez, "Negative dispersion using pairs of prisms," *Optics Letters*, vol. 9, no. 5, p. 150, May 1984.
- [149] K. Kurokawa, H. Kubota, and M. Nakazawa, "48 fs, 190 kw pulse generation from a cavity dumped, synchronously pumped dye laser," *Optics Communications*, vol. 68, no. 4, pp. 287–290, 1988.
- [150] M. Ramaswamy, M. Ulman, J. Paye, and J. G. Fujimoto, "Cavity-dumped femto-second kerr-lens mode-locked ti:al₂o₃ laser," *Optics letters*, vol. 18, no. 21, p. 1822, 1993.
- [151] J. Ranka, A. Gaeta, A. Baltuska, M. Pshenichnikov, and D. Wiersma, "Autocorrelation measurement of 6-fs pulses based on the two-photon-induced photocurrent in a gaasp photodiode," *Optics letters*, vol. 22, no. 17, pp. 1344–1346, 1997.
- [152] D. T. Reid, W. Sibbett, J. M. Dudley, L. P. Barry, B. Thomsen, and J. D. Harvey, "Commercial semiconductor devices for the two-photon absorption autocorrelation of ultrashort light pulses," *Engineering and Laboratory Notes, Optics and Photonics News*, May 1998.
- [153] H. Ma, A. S. L. Gomes, and C. B. DeARaujo, "Measurements of nondegenerate optical nonlinearity using a 2-color single beam method," *Applied Physics Letters*, vol. 59, no. 21, pp. 2666–2668, 1991.
- [154] R. Stolen and W. Tomlinson, "Effect of the raman part of the nonlinear refractive index on the propagation of ultrashort optical pulses in fiber," *Journal of the optical society of america B*, vol. 9, no. 4, pp. 565–573, 1992.

-
- [155] O. M. Efimov, K. Gabel, S. V. Garnov, L. B. Glebov, S. Grantham, M. Richardson, and M. J. Soileau, "Color-center generation in silicate glasses exposed to infrared femtosecond pulses," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 15, no. 1, pp. 193–199, 1998.
 - [156] J. Lumeau, "Application de la photosensibilité à la réalisation de filtres optiques interférentiels," Juillet 2004, *Thèse de doctorat*, Université de droit, d'économie et des sciences d'Aix-Marseille III.
 - [157] W. T. White, M. A. Henesian, and M. J. Weber, "Photothermal-lensing measurements of two-photon-induced color centers in borosilicates glasses at 532 nm," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 2, no. 9, pp. 1402–1408, 1985.
 - [158] F. Billard, T. Olivier, and H. Akhouayri, "Study and experimental setting of the z-scan method for accurate nonlinear refractive index and absorption metrology," in *Laser-Induced Damage in Optical Materials : 2003*, vol. 5273, 2004, pp. 334–40.
 - [159] T. Olivier, F. Billard, and H. Akhouayri, "Z-scan studies of the nonlinear refractive index of fused silica in the nanosecond regime," in *Optical Systems Design 2003 : Optical Fabrication, Testing, and Metrology*, vol. 5252, no. 1, 2004, pp. 391–401.
 - [160] T. Olivier, "Contribution à la métrologie de l'indice de réfraction et de l'absorption non-linéaires dans le régime nanoseconde : amélioration de la méthode de z-scan et simulations numérique," Janvier 2004, *Thèse de doctorat*, Université de droit, d'économie et des sciences d'Aix-Marseille III.
 - [161] T. Olivier, F. Billard, and H. Akhouayri, "Nanosecond z-scan measurements of the nonlinear refractive index of fused silica," *Optics Express*, vol. 12, no. 7, pp. 1377 – 1382, 2004.
 - [162] F. Billard, M. Commandré, C. Amra, J. Y. Natoli, and H. Akhouayri, "Sub-picosecond z-scan measurements of nonlinear refractive index of dense materials," in *Laser-Induced Damage in Optical Materials : 2004*, vol. 5647, feb 2005, pp. 403–410, best poster presentation.
 - [163] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, and B. P. Flannery, *Numerical recipes in FORTRAN*. Cambridge University Press, 1992, second edition.
 - [164] A. E. Siegman, "Quasi fast hankel transform," *Optics Letters*, vol. 1, no. 1, pp. 13–15, July 1977.
 - [165] R. DeSalvo, A. A. Said, D. J. Hagan, E. W. VanStryland, and M. Sheik-Bahae, "Infrared to ultraviolet measurements of two-photon absorption and n_2 in

- wide bandgap solids,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 32, no. 8, pp. 1324–33, 1996.
- [166] I. White, W. T., W. L. Smith, and D. Milam, “Direct measurement of the nonlinear refractive-index coefficient gamma at 355 nm in fused silica and in bk-10 glass,” *Optics Letters*, vol. 9, no. 1, pp. 10–12, 1984.
- [167] A. Owyong, R. Hellwarth, and N. George, “Intensity-induced changes in optical polarizations in glasses,” *Physical Review B*, vol. 5, no. 2, pp. 628–633, Jan 1972.
- [168] A. Owyong, “Ellipse rotation studies in laser host materials,” *IEEE Journal of quantum electronics*, vol. 9, no. 11, pp. 1064–1069, Nov 1973.
- [169] S. Couris, M. Renard, O. Faucher, B. Lavorel, R. Chaux, E. Koudoumas, and X. Michaut, “An experimental investigation of the nonlinear refractive index of carbon disulfide and toluene by spectral shearing interferometry and z-scan techniques,” *Chemical Physics Letters*, vol. 369, no. 3-4, pp. 318–324, 2003.

Résumé

Afin de mieux étudier la contribution des non-linéarités à l'endommagement laser ou de prévoir l'évolution d'une impulsion courte dans un système optique, la mesure précise de l'indice de réfraction non-linéaire est importante. Afin d'étudier la contribution à l'indice non-linéaire des différents mécanismes plusieurs bancs de mesure, reposant sur la méthode de Z-scan, sensibles à de faibles indices de réfraction non-linéaire ont été développés.

L'étude du signal obtenu a été possible grâce à un modèle numérique que nous avons développé. Il a été montré que le profil spatial du faisceau avait une grande importance. Ensuite la réalisation expérimentale de ces bancs ainsi que les moyens de caractérisation du faisceau nécessaires à la diminution des erreurs de mesure sont détaillés.

Enfin dans ces conditions, une étude de l'indice de réfraction non-linéaire de la silice a été entreprise pour différents régimes temporels. Une très grande dépendance avec la durée des impulsions est constatée, une contribution non négligeable de l'électrostriction est montrée en nanoseconde et l'absence d'effets thermiques a pu être constatée.

Mots-clefs : optique non-linéaire, indice de réfraction non-linéaire, électrostriction, effets thermiques, autofocalisation, Z-scan, métrologie, propagation laser, impulsions courtes, silice, verres optiques

Abstract

To study the contribution of nonlinear effects to laser damage or predict ultrafast pulses evolution, nonlinear refractive index has to be measured accurately. To study the different contribution to nonlinear index we have implemented several sensitive measurement benches based on the Z-scan method. First, we have developed a general simulation algorithm. Thanks to it the signal obtained by this method is shown highly dependent on the spatial beam profile at the beam waist and on its evolution around the waist. Then, we present the experimental set-up including the tools needed to verify and characterize the experimental beam and reduce errors on the determination of the nonlinear index. Finally, this set-up is applied to the study of the nonlinear index of silica for different pulses durations. The nonlinear index of fused silica is found highly dependent on the pulses duration. Thermal effects are negligible and the contribution of electrostriction is important for nanosecond pulses.

Keywords : nonlinear optics, nonlinear refractive index, nonlinear absorption, electrostriction, thermal effects, self-focusing, Z-scan, metrology, laser propagation, ultrafast optics, silica, optical glasses