



HAL
open science

Génération paramétrique infrarouge dans les cristaux de $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Ta}_{0,5}\text{O}_{14}$ et BaGa_4Se_7

Elodie Boursier

► **To cite this version:**

Elodie Boursier. Génération paramétrique infrarouge dans les cristaux de $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Ta}_{0,5}\text{O}_{14}$ et BaGa_4Se_7 . Optique / photonique. Université Grenoble Alpes, 2016. Français. NNT : 2016GREAT070 . tel-01492910

HAL Id: tel-01492910

<https://theses.hal.science/tel-01492910>

Submitted on 20 Mar 2017

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 DE LA COMMUNAUTE UNIVERSITE GRENOBLE ALPES

Spécialité : OPTIQUE ET RADIOFREQUENCES

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

Elodie BOURSIER

Thèse dirigée par **Patricia SEGONDS** et **Benoît BOULANGER**

préparée au sein de l'**Institut Néel**
dans l'**École Doctorale EEATS**

Génération paramétrique infrarouge dans les cristaux de $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Ta}_{0,5}\text{O}_{14}$ et BaGa_4Se_7

Thèse soutenue publiquement le **16 Septembre 2016**,
devant le jury composé de :

Monsieur Guy VITRANT

Directeur de Recherche au CNRS, IMEP-LAHC, Président

Monsieur Fabien BRETENAKER

Directeur de Recherche au CNRS, Laboratoire Aimé Cotton, Rapporteur

Monsieur Giuseppe LEO

Professeur à l'Université Paris Diderot, LMPQ, Rapporteur

Monsieur Antoine GODARD

Maître de Recherche à l'ONERA, DMPH, Examineur

Monsieur Jean-Christophe DELAGNES

Maître de Conférences à l'Université de Bordeaux, CELIA, Examineur

Madame Patricia SEGONDS

Professeur à l'Université Grenoble Alpes, Institut Néel, Directrice de thèse

Monsieur Benoît BOULANGER

Professeur à l'Université Grenoble Alpes, Institut Néel, Directeur de thèse



REMERCIEMENTS

C'est avec grande émotion que s'achèvent ces trois années de thèse. L'expérience est plus facile lorsqu'on est bien entouré, et cela a été mon cas !

Mes premiers remerciements s'adressent tout naturellement à mes directeurs de thèse Patricia et Benoît pour la confiance et le temps qu'ils m'ont accordé malgré leur emploi du temps chargé. J'aimerais les remercier pour leur accompagnement, au travers de leur enthousiasme persistant, du début à la fin de ce marathon qu'est la thèse.

J'aimerais chaleureusement remercier tous les membres du jury, Fabien BRETE-NAKER, Giuseppe LEO, Antoine GODARD, Jean-Christophe DELAGNES et Guy VITRANT d'avoir accepté d'évaluer mon travail et pour le temps qu'ils m'ont accordé.

Un grand merci à David pour les nombreuses heures passées en salle de manip pour optimiser le laser qui se voulait capricieux, pour son aide, sa patience et surtout, pour sa sympathie. Merci également à Jérôme, pour la préparation de tous ces échantillons, pour sa pédagogie, pour le temps qu'il a passé à me former à la mise en forme des cristaux et pour toutes les discussions. Je remercie chaleureusement Cyril et Clément, pour leur bonne humeur, pour les excellents moments passés en salle de manip, je ne ferai d'ailleurs aucun commentaire sur la musique qu'ils m'imposaient (ironie, bien entendu). Bon courage à eux pour leur thèse ! Merci aussi à Feng pour son aide lors des dernières manip et à qui je souhaite une bonne chance pour la suite de sa thèse. Je remercie également Corinne, Sandra, Bertrand et Julien pour leur disponibilité. Une énorme pensée à Véronique, « la grande sœur des non-permanents », pour sa bonne humeur, pour son aide tant scientifique que psychologique, pour les fous-rires aux mauvais moments, merci ! Merci également à toute l'équipe OPTIMA pour leur accueil.

Lors de mon périple à Bordeaux, j'ai eu la chance de travailler avec Jean-Christophe et Eric que je remercie vivement pour toutes les discussions, leur sympathie, leur enthousiasme et leur accueil. Merci à Stéphane pour son aide et un grand merci à Giedré pour les nombreuses heures passées en manip et les promenades dans Bordeaux !

Evidemment, je remercie tous les thésards que j'ai pu côtoyer pendant ces trois années. D'abord les "anciens", Vincent, Adrien, Anne, Medhi, Joséphine, Sonia, qui sont déjà bien loin. Une pensée à Patricia Loren, William, Antoine, Marlon, Cristina, Anthony, Peng, Alberto. Salutations aussi aux thésards des séminaires non permanents avec lesquels j'ai pu échanger : Karim, Ketty, Marine, Yann, Alexis, Emilie...

Enfin, pour toutes les soirées et sorties ensemble, Sydney, Khalil, Justin, Christophe (bon désolée, tu es dans la partie « non-permanent »!), Shridevi («ouaich poulette»), Simon ; Cyril, pour les nombreuses pauses "thés", pour son soutien inconditionnel, et j'en passe, et Pauline, pour les (trop ?) nombreuses discussions dans le bureau, pour son soutien. Tout cela va beaucoup me manquer !

Enfin, j'aimerais remercier ma famille, Maeva, Mamie, Dédé, Christophe et Caroline, et surtout mes parents qui m'ont toujours soutenue. Une spéciale mention à Erika, qui fait quasiment partie de ma famille, merci pour son soutien inconditionnel, surtout dans les moments difficiles.

Merci à tous, pour tout.

TABLE DES MATIÈRES

TABLE DES MATIÈRES	1
INTRODUCTION : CONTEXTE, ÉTAT DE L'ART ET MOTIVATIONS	5
1 ÉLÉMENTS DE THÉORIE	11
1.1 OPTIQUE LINÉAIRE CRISTALLINE	11
1.1.1 Polarisation linéaire	11
1.1.1.1 Equation constitutive	11
1.1.1.2 Susceptibilité électrique du premier ordre	12
1.1.2 Processus du premier ordre	14
1.1.3 Equation de propagation	14
1.1.4 Dispersion des indices de réfraction principaux	15
1.1.5 Surface des indices	16
1.1.6 Phénomène de double réfraction et états de polarisation	19
1.1.6.1 Angle de double réfraction	19
1.1.6.2 Etats de polarisation	20
1.2 OPTIQUE NON LINÉAIRE CRISTALLINE	21
1.2.1 Polarisation non linéaire	21
1.2.1.1 Equation constitutive	21
1.2.1.2 Susceptibilité électrique du second ordre	22
1.2.2 Processus du second ordre	22
1.2.2.1 Fusion de deux photons	23
1.2.2.2 Scission d'un photon	23
1.2.3 Equation de propagation	25
1.2.4 Expression de l'énergie générée	26
1.2.5 Coefficient effectif χ_{eff}	27
1.2.5.1 Définition	27
1.2.5.2 Formalisme du tenseur champ	28
1.2.6 Accord de phase	28
1.2.6.1 Intérêt de l'accord de phase	28
1.2.6.2 Conditions d'accord de phase non colinéaire et colinéaire	29
1.2.6.3 Accord de phase colinéaire par biréfringence	30
1.2.6.4 Acceptances	31

1.2.6.5	Effet de l'angle de double réfraction	32
2	ÉLÉMENTS DE MÉTHODOLOGIE EXPÉRIMENTALE	35
	INTRODUCTION	35
2.1	MISE EN FORME DES ÉCHANTILLONS	36
2.1.1	Lame	36
2.1.2	Sphère	37
2.2	SOURCES PARAMÉTRIQUES ET DÉTECTION	38
2.2.1	Oscillateur paramétrique optique en régime nanoseconde	39
2.2.2	Générateur paramétrique optique en régime picoseconde	40
2.2.3	Oscillateurs paramétriques optiques cylindriques en régime nanoseconde	41
2.2.4	Contrôle de la polarisation	43
2.2.5	Détection	43
2.3	MESURE DES PROPRIÉTÉS OPTIQUES SUR LAME	44
2.3.1	Orientation du repère diélectrique	44
2.3.1.1	Méthode conoscopique	45
2.3.1.2	Méthode de Malus	46
2.3.2	Spectre de transmission	48
2.3.3	Seuil de dommage optique	48
2.3.4	Angle de double réfraction	48
2.3.5	Rendement de conversion et accord de phase	49
2.3.6	Acceptances	49
2.3.7	Valeur absolue des coefficients non linéaires	50
2.4	MESURE DES PROPRIÉTÉS OPTIQUES SUR SPHÈRE	51
2.4.1	Dispositif expérimental	51
2.4.1.1	Orientation de la sphère	52
2.4.1.2	Cercle d'Euler	52
2.4.1.3	Focalisation dans la sphère	54
2.4.2	Mesures directes	55
2.4.2.1	Angle de double réfraction	55
2.4.2.2	Réfraction conique intérieure	56
2.4.2.3	Orientation du repère diélectrique	57
2.4.2.4	Rendement de conversion et accord de phase	59
2.4.2.5	Acceptances	60
2.4.3	Analyse des mesures directes	60
2.4.3.1	Amplitude et dispersion des indices de réfraction	60
2.4.3.2	Valeur absolue et signe relatif des coefficients non linéaires	61
	CONCLUSION	65
3	ÉTUDE DU CRISTAL DE LANGATATE $LA_3GA_{5,5}TA_{0,5}O_{14}$ (LGT) POUR LA BANDE II	67
	INTRODUCTION	67

3.1	ÉTAT DE L'ART	68
3.2	ECHANTILLONS DE LGT	73
3.3	SPECTRE DE TRANSMISSION	74
3.4	SEUIL DE DOMMAGE OPTIQUE	75
3.5	ACCORD DE PHASE	76
3.5.1	Analyse par le formalisme du tenseur champ	76
3.5.2	Mesure directe des angles d'accord de phase	80
3.6	DÉTERMINATION DE LA DISPERSION DES INDICES DE RÉFRACTION À PARTIR DES MESURES DES DIRECTIONS D'ACCORD DE PHASE	84
3.7	TENSEUR DE SUSCEPTIBILITÉ ÉLECTRIQUE DU SECOND ORDRE $\bar{d}^{(2)}$	87
3.7.1	Principe de la mesure	88
3.7.2	Mesure du rapport ζ dans LGT et dans KTP	89
3.7.3	Détermination de l'amplitude du coefficient non linéaire d_{11}^{LGT} de LGT	91
3.8	GÉNÉRATION D'UN SUPERCONTINUUM DANS LGT	92
3.9	GÉNÉRATION DE DIFFÉRENCE DE FRÉQUENCES	93
3.9.1	DFG de type I autour de $2 \mu\text{m}$	95
3.9.1.1	Dispositif expérimental	95
3.9.1.2	Choix de l'échantillon de LGT	96
3.9.1.3	Mesure de la courbe d'accord de phase	99
3.9.1.4	Détermination de la largeur $\delta\lambda_p$ sélectionnée par la lame de LGT	102
3.9.2	DFG de type I autour de $3 \mu\text{m}$	103
3.9.2.1	Dispositif expérimental	103
3.9.2.2	Choix de l'échantillon de LGT	104
3.9.2.3	Mesure de la courbe d'accord de phase	105
3.9.2.4	Interprétation de la largeur $\delta\lambda_s$ sélectionnée par la lame de LGT	107
	CONCLUSION	108
4	ÉTUDE DU CRISTAL DE SELENIURE BaGa_4Se_7 (BGSE) POUR LA BANDE III	111
	INTRODUCTION	111
4.1	ÉTAT DE L'ART	112
4.2	ECHANTILLONS DE BGSE	118
4.3	ORIENTATION DU REPÈRE DIÉLECTRIQUE	119
4.4	SPECTRE DE TRANSMISSION	120
4.5	ACCORD DE PHASE	121
4.5.1	Analyse par le formalisme du tenseur champ	121
4.5.2	Mesure directe des courbes d'accord de phase	124
4.6	DÉTERMINATION DE LA DISPERSION DES INDICES DE RÉFRACTION À PARTIR DES MESURES DES DIRECTIONS D'ACCORD DE PHASE	129
4.7	GÉNÉRATION D'UN SUPERCONTINUUM DANS BGSE	130

4.8	TENSEUR DE SUSCEPTIBILITÉ ÉLECTRIQUE DU SECOND ORDRE $\bar{d}^{(2)}$	131
4.8.1	SHG en accord de phase non critique angulaire sur lame	132
4.8.1.1	Principe de la mesure	132
4.8.1.2	Mesure des longueurs d'onde fondamentales dans les lames de BGSe	134
4.8.1.3	Mesure de la valeur maximale du rapport ζ dans BGSe et KTP	140
4.8.1.4	Détermination de l'amplitude des coefficients non linéaires	140
4.8.2	SHG en hors accord de phase non critique angulaire sur lame	142
4.8.2.1	Principe de la mesure	142
4.8.2.2	Calcul des franges en longueur d'onde dans BGSe	143
4.8.2.3	Mesure du rapport ζ dans BGSe et KTP	145
4.8.2.4	Détermination de l'amplitude des coefficients non linéaires	145
4.8.3	SHG en accord de phase dans les plans principaux sur sphère	146
4.8.3.1	Principe de la mesure	146
4.8.3.2	Calcul de l'évolution du coefficient effectif le long des courbes d'accord de phase	146
4.8.4	SHG en accord de phase hors des plans principaux sur sphère	156
4.8.4.1	Principe de la mesure	156
4.8.4.2	Calcul des directions d'accord de phase hors des plans principaux	156
4.8.4.3	Coefficient effectif associé	157
	CONCLUSION	159
	CONCLUSION ET PERSPECTIVES	161
	BIBLIOGRAPHIE	167
	A CALCUL DES DIRECTIONS D'ACCORD DE PHASE NON COLINÉAIRES	iii
	B LISTE DES PUBLICATIONS ET DES COMMUNICATIONS	vii

INTRODUCTION : CONTEXTE, ÉTAT DE L'ART ET MOTIVATIONS

Il y a actuellement un réel besoin de sources cohérentes capables d'émettre une énergie importante sur une très large gamme de longueur d'onde dans l'infrarouge, pour des applications diverses comme la chirurgie laser, la détection de gaz polluants, la spectroscopie infrarouge ou encore les contre-mesures. Les sources laser commercialisées aujourd'hui ne permettent pas complètement de répondre à ces besoins, notamment car elles émettent généralement un rayonnement monochromatique dont la longueur d'onde est imposée par les constituants du milieu amplificateur. La détection de gaz par exemple, requiert l'utilisation de sources de rayonnements cohérents capables de couvrir les domaines de transparence de l'atmosphère afin que les faisceaux ne perdent pas de leur efficacité, surtout sur de longues distances. L'accordabilité en longueur d'onde avec une même source est également souhaitée.

La figure 1 [1] montre que les domaines de transparence de l'atmosphère, qui correspondent à un taux de transmission important, sont divisés en trois zones, appelées bande I, bande II et bande III :

- la bande I correspond à la gamme spectrale "proche infrarouge" du spectre électromagnétique, c'est-à-dire aux longueurs d'onde comprises entre 1 et 3 μm ;
- la bande II correspond au début de "l'infrarouge moyen" et donc à une bande de transparence comprise entre 3 et 5 μm ;
- la bande III se situe aussi dans "l'infrarouge moyen" mais les longueurs d'onde sont comprises entre 8 et 12 μm .

La figure 1 donne également, à partir de traits horizontaux en couleur, les différentes gammes de longueur d'onde couvertes par des sources cohérentes aujourd'hui com-

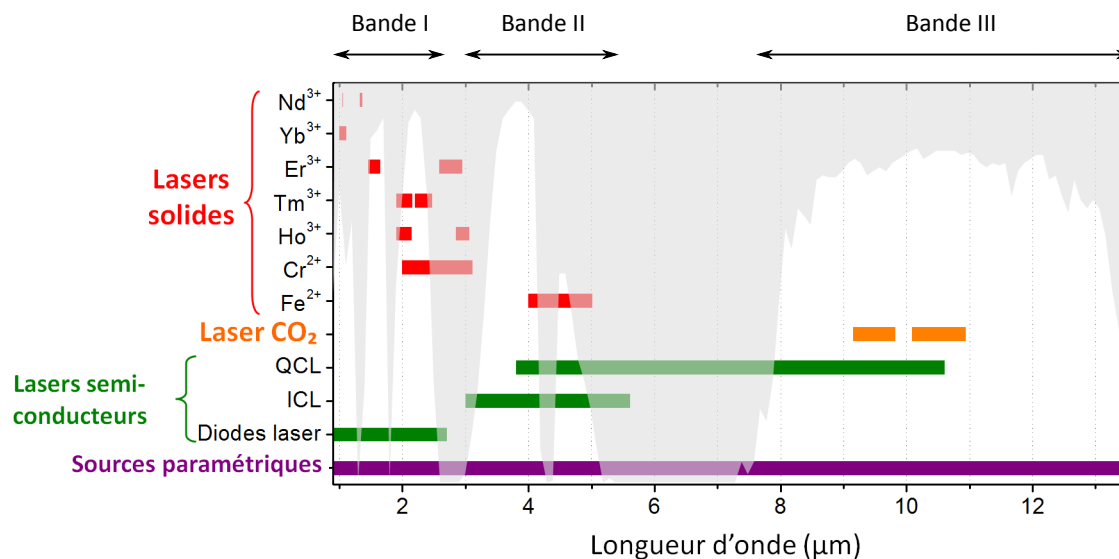


FIGURE 1 – Gammes de longueur d'onde entre 1 et 13 μm , émises par différentes sources lasers et paramétriques [1].

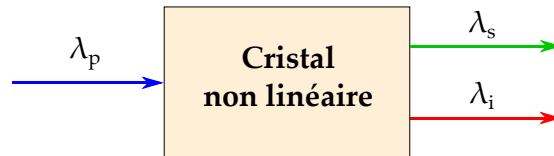
mercialisées ou disponibles en laboratoire. Les traits rouges correspondent aux gammes d'émission des lasers solides qui utilisent des cristaux dopés avec des ions lanthanides divalents ou trivalents comme centres actifs. Cela permet de constater que ces sources sont peu accordables en longueur d'onde et se situent majoritairement dans la bande I de transmission de l'atmosphère. Une première exception est le laser solide dopé par des ions Fe^{2+} qui couvre la bande II. Quant au laser CO_2 , il émet exclusivement des longueurs d'onde autour de 10 μm , dont la gamme spectrale est matérialisée par les traits oranges horizontaux. Viennent ensuite les diodes laser et les laser ICL (Interband Cascade Laser) qui peuvent couvrir les bandes I et II de transmission de l'atmosphère respectivement (voir les traits horizontaux en vert). Seule la gamme d'émission des laser QCL (Quantum Cascade Laser) peut couvrir les bandes II et III. Cependant, les énergies générées par ce type de laser à température ambiante sont moins élevées que celles des autres lasers solides (voir par exemple la réf. [2]) et généralement insuffisantes pour les applications visées. De plus, l'accordabilité en longueur d'onde des lasers QCL est limitée et nécessite la mise en place de plusieurs modules QCL pour atteindre de plus larges gammes spectrales [3].

La seule alternative pour allier à la fois accordabilité en longueur d'onde et haute énergie est celle des sources paramétriques optiques qui exploitent un processus de conversion de fréquence dans un cristal massif à propriétés optiques non linéaires du second ordre pompé par un laser. Comme le montre la figure 1 en violet, elles peuvent couvrir à la fois les bandes I, II et III de transmission de l'atmosphère. Les sources paramétriques optiques présentent donc la meilleure accordabilité en longueur d'onde qui puisse être obtenue. Enfin, il a été montré qu'elles sont capables, lorsqu'elles sont pompées par des sources laser de grande énergie, d'émettre des énergies suffisantes

pour la détection de gaz polluants dans l'atmosphère par exemple [4].

Deux types de sources paramétriques sont couramment utilisés : le Générateur Paramétrique Optique (OPG) et l'Oscillateur Paramétrique Optique (OPO) dont les schémas de principe sont représentés dans la figure 2. La physique de ces sources sera évoquée dans le chapitre 1.

(a) Générateur Paramétrique Optique (OPG)



(b) Oscillateur Paramétrique Optique (OPO)

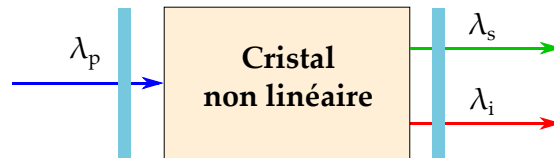


FIGURE 2 – Schéma de principe : (a) Générateur Paramétrique Optique (OPG) et (b) Oscillateur Paramétrique Optique (OPO).

Comme le montre la figure 2, l'OPG consiste à convertir la fréquence d'une source laser monochromatique de longueur d'onde λ_p (laser de pompe) dans un milieu non linéaire, sachant bien évidemment que λ_p doit appartenir au domaine de transparence du matériau. Dans ce cas, la figure 1 montre que les lasers solides sont particulièrement adaptés car ils émettent dans la bande I de transmission de l'atmosphère (voir en rouge sur la figure 1), où la majorité des matériaux non linéaires sont transparents. Il faut aussi faire attention à ce que la coupure à basse longueur d'onde soit telle qu'il n'y ait pas d'absorption à deux photons. Cela signifie que le matériau non linéaire doit être transparent à $\lambda_p/2$. Dans un OPG, deux faisceaux de longueurs d'onde λ_s (faisceau signal) et λ_i (faisceau idler) sont générés en régime d'onde progressive. Dans un OPO, le matériau est inséré dans une cavité optique. L'interaction paramétrique est alors résonante, et les nombreux allers-retours permettent d'augmenter l'énergie générée par le processus non linéaire. L'accordabilité en longueur d'onde est généralement obtenue à partir de la rotation du milieu non linéaire ou d'une modification de sa température en ayant fixé la longueur d'onde λ_p . Elle peut encore être obtenue en modifiant la longueur d'onde λ_p du faisceau pompe, l'orientation et la température du milieu restant fixes.

Dans ce cas, si des énergies importantes sont visées, la principale difficulté est de trouver un cristal non linéaire de très bonne qualité et de grandes dimensions. Il faut

aussi qu'il soit suffisamment robuste pour pouvoir résister au flux laser du faisceau pompe : un seuil de dommage optique élevé est donc recherché. Vient ensuite la valeur de son coefficient non linéaire d_{ij} sollicité qui doit être la plus élevée possible. De plus, une préférence est accordée aux cristaux dont le domaine de transparence est très étendu dans l'infrarouge, de manière à couvrir les bandes II et III de transmission de l'atmosphère avec un seul échantillon. Dans ce contexte, de nombreuses études dédiées à la caractérisation des propriétés optiques de cristaux non linéaires ont déjà permis d'identifier plusieurs cristaux massifs non linéaires capables de remplir au mieux la majorité des conditions qui viennent d'être listées. Le tableau 1 donne le domaine de transparence, le coefficient non linéaire le plus élevé et le seuil de dommage optique des cristaux de KTiOPO_4 périodiquement polé, LiNbO_3 périodiquement polé, LiB_3O_5 et $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ pour la bande II et ceux de AgGaS_2 , AgGaSe_2 , ZnGeP_2 et CdSiP_2 pour la bande III. Il donne aussi des exemples d'accordabilité du faisceau idler obtenues dans ces cristaux.

		Domaine de transparence (μm)	d_{ij} (pm/V)	Seuil de dommage optique (GW/cm^2)	Accordabilité idler (μm)
Cristaux de la bande II	KTiOPO_4 (PPKTP)	0,35 - 4,5 [5]	$d_{33}=10,6$ [6] @ 0,66 μm	31,5 [7] (1,064 μm ; 8,5 ns)	2,128 - 4 [8]
	LiNbO_3 (PPLN)	0,33 - 5,5 [9]	$d_{33}=31,8$ [10] @ 0,659 μm	0,05-0,06 [9, 11] (1,064 μm ; 10 ns)	3,2 - 3,8 [12] 3,8 - 4,3 [13]
	LiB_3O_5 (LBO)	0,16 - 2,6 [14]	$d_{32}=1,17$ [9, 15] @ 0,54 μm	25 [14] (1,064 μm ; 0,1 ns)	1,08 - 2,85 [16]
	$\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ (BBO)	0,198 - 2,6 [9]	$d_{22}=2,22$ $d_{31}=0,16$ [9]	25 [17] (0,355 μm ; 8 ns)	0,42 - 2,3 [18]
Cristaux de la bande III	AgGaS_2 (AGS)	0,5 - 13 [19, 20]	$d_{36}=35$ [20] @ 4,64 μm	0,01 [21] (1,064 μm ; 20 ns)	2 - 12 ⁽¹⁾
	AgGaSe_2 (AGSe)	0,7 - 18 [22]	$d_{36}=32,4$ [23] @ 5,3 μm	0,011 [23] (1,064 μm ; 35 ns)	5,8 - 8 9 - 18 [24]
	ZnGeP_2 (ZGP)	0,7 - 13 [25, 26]	$d_{36}=75$ [25]	0,18 [27] (1,064 μm ; 8 ns)	7,8 - 8,4 [28]
	CdSiP_2 (CSP)	0,5 - 9 [29]	$d_{36}=84,5$ [30] @ 2,28 μm	0,05 [27] (1,064 μm ; 8 ns)	6,54 - 7,19 [31]

TABLE 1 – Domaine de transparence en μm , coefficient non linéaire d_{ij} en pm/V, seuil de dommage optique en GW/cm^2 des cristaux de KTiOPO_4 périodiquement polé, LiNbO_3 périodiquement polé, LiB_3O_5 et $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ pour la bande II ainsi que de AgGaS_2 , AgGaSe_2 , ZnGeP_2 et CdSiP_2 pour la bande III. L'accordabilité obtenue dans ces cristaux est également indiquée. ⁽¹⁾Source paramétrique accessible avec l'entreprise lituanienne Light Conversion. Elle sera décrite dans le chapitre 2.

Le tableau 1 montre que les cristaux présentant les meilleures caractéristiques dans

la bande II de transmission de l'atmosphère sont KTP et PPLN d'un point de vue du coefficient non linéaire, et le grand cristal de la bande III est ZGP. Néanmoins, le cristal de KTP ne permet une génération que jusqu'à $4 \mu\text{m}$ seulement, le seuil de dommage de PPLN est très faible, et ZGP ne peut pas être pompé autour de $1 \mu\text{m}$. Cela montre qu'aucun cristal ne donne encore entière satisfaction.

Ce travail de thèse s'inscrit dans la perspective d'étudier de nouveaux cristaux dont la croissance a aujourd'hui atteint la maturité nécessaire pour l'étude de leurs propriétés optiques. C'est le cas des cristaux de Langatate $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Ta}_{0,5}\text{O}_{14}$ (LGT) et de Séléniure BaGa_4Se_7 (BGSe) obtenus dans le cadre de collaborations internationales. Avec le β -quartz, le cristal de LGT est le matériau de référence pour des applications de type capteur de pression ou démodulateur accousto-optique en télécommunication par exemple du fait de ses propriétés piézoélectriques exceptionnelles. Il s'avère que sa symétrie cristalline non centrosymétrique permet de réaliser des processus du second ordre, et que son domaine de transparence couvre la bande II de transmission de l'atmosphère. De plus, il a l'avantage de croître dans de grandes dimensions et avec une haute pureté grâce à la méthode de Czochralski. Une partie de la thèse a alors été consacrée à son étude sous l'angle de l'optique non linéaire afin de pouvoir le situer parmi les cristaux existants de la bande II.

Contrairement à LGT, la croissance du cristal de BGSe est très récente puisqu'elle est maîtrisée seulement depuis 2010. Ce cristal monoclinique a l'avantage de pouvoir être pompé autour de $1 \mu\text{m}$ sans absorption à deux photons, contrairement aux cristaux de ZGP et AGSe, et son domaine de transparence est plus étendu dans l'infrarouge puisqu'il atteint $18 \mu\text{m}$. Pour toutes ces raisons, ce nouveau cristal de la bande III est prometteur et nous avons donc étudié ses propriétés optiques non linéaires.

Le chapitre 1 donne des bases théoriques d'optique linéaire et non linéaire cristalline pour l'étude de la conversion de fréquence dans des cristaux à propriétés optiques non linéaires. Ce travail a porté uniquement sur les processus non linéaires du second ordre, notamment les générations de somme et différence de fréquences. Ils correspondent respectivement à des fusions et scissions de photons permettant de générer de nouvelles longueurs d'onde. Cette génération est la plus efficace lorsque les trois ondes en interaction sont en accord de phase, et cette condition est obtenue grâce à la biréfringence des cristaux.

Sur la base de ces fondements théoriques, le chapitre 2 est dédié aux éléments de méthodologie expérimentale permettant l'étude des processus quadratiques de conversion de fréquence dans les cristaux. Il décrit les méthodes utilisées pour l'étude de paramètres gouvernant ces processus. En particulier, ce chapitre montre l'intérêt d'utiliser des échantillons usinés en forme de sphères qui permettent d'accéder à toutes les directions de propagation dans le cristal. L'ensemble des mesures qui peuvent être

réalisées grâce à la méthode de la sphère sont décrites. Ce sont en particulier les courbes d'accord de phase ainsi que les valeurs absolues et les signes relatifs des coefficients du tenseur de susceptibilité électrique de second ordre.

A partir de l'exploitation des fondements théoriques et méthodologies présentés dans les deux chapitres précédents, le chapitre 3 décrit la première étude approfondie des propriétés optiques non linéaires du cristal de Langatate $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Ta}_{0,5}\text{O}_{14}$ (LGT), qui est uniaxe optique. La mesure directe des angles d'accord de phase de plusieurs processus quadratiques a permis d'affiner les équations de dispersion de ses indices de réfraction principaux, et nous avons déterminé son coefficient non linéaire à partir de l'analyse de l'énergie générée lors d'un processus de génération de second harmonique. Le cristal de LGT a également été étudié en régime femtoseconde pour des processus de génération de différence de fréquences autour de 2 et 3 μm , et d'amplification paramétrique autour de 1,5 μm .

La même démarche appliquée au cristal monoclinique de Sélénure BaGa_4Se_7 (BGSe) fait l'objet du chapitre 4. L'étude de ses propriétés optiques non linéaires a également été réalisée avec la méthode de la sphère, où en particulier les générations de second harmonique et de différence de fréquences ont été étudiées et ont permis d'affiner les équations de dispersion de ses indices de réfraction principaux. La stratégie pour la caractérisation complète des coefficients du tenseur de susceptibilité électrique de second ordre est également donnée. La mesure de la valeur absolue de trois d'entre eux est présentée, de même que la marche à suivre pour la détermination de l'amplitude et des signes relatifs des trois autres coefficients du tenseur.

Enfin, après avoir conclu sur ce travail, deux annexes closent ce document. L'annexe A décrit la procédure à suivre pour le calcul des directions d'accord de phase non colinéaires et l'annexe B dresse la liste des publications et des communications concernant ce travail de thèse. Elle donne également le contenu des publications concernant nos études sur les cristaux de LGT et BGSe.

CHAPITRE

1

ÉLÉMENTS DE THÉORIE

INTRODUCTION

Ce chapitre décrit les interactions entre un champ électrique excitateur et un milieu anisotrope à propriétés optiques non linéaires du second ordre. Il donne les fondements d'optique cristalline et d'optique non linéaire servant de support pour la compréhension théorique de mon travail de thèse présenté dans les chapitres suivants.

Il débute par une partie consacrée à l'optique linéaire cristalline qui définit la polarisation induite lors de l'interaction d'une onde électromagnétique avec un milieu cristallin. La propagation de la lumière dans les cristaux optiquement anisotropes est décrite, ainsi que les effets qui lui sont associés. D'autre part, des notions théoriques d'optique non linéaire sont données, en particulier les processus du second ordre, dits "quadratiques", qui apparaissent lorsque le couplage entre la lumière et la matière est important. Enfin, les paramètres pertinents impliqués dans les effets quadratiques sont décrits.

1.1 OPTIQUE LINÉAIRE CRISTALLINE

1.1.1 Polarisation linéaire

1.1.1.1 Equation constitutive

Une onde électromagnétique est caractérisée par un champ électrique $\vec{E}(\vec{r}, t)$ et un champ magnétique $\vec{H}(\vec{r}, t)$. Le développement de ces champs sous la forme d'une

superposition d'ondes monochromatiques permet de définir chacune des composantes de Fourier $\vec{E}(\vec{r}, \omega)$ (et $\vec{H}(\vec{r}, \omega)$ pour le champ magnétique) qui sont décrites par des grandeurs complexes.

Sous l'action du champ électrique, les électrons de valence des atomes du milieu considéré se mettent en oscillation autour de leur position d'équilibre. Dans la limite où la densité de puissance du champ électrique ne dépasse pas 1 MW/cm^2 , la polarisation électronique macroscopique peut être considérée comme dépendante linéairement du champ électrique, et s'écrit à la position \vec{r} [32] :

$$\vec{P}(\omega) = \epsilon_0 \bar{\chi}^{(1)}(\omega) \cdot \vec{E}(\omega) \quad (1.1)$$

ϵ_0 est la permittivité diélectrique du vide qui vaut $8,85 \times 10^{-12} \text{ A}^2 \cdot \text{s}^4 \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{m}^{-3}$ et le signe \cdot correspond au produit contracté. La grandeur $\bar{\chi}^{(1)}(\omega)$ est le tenseur de susceptibilité électrique de 1^{er} ordre, appelé aussi le tenseur de susceptibilité électrique linéaire ; le nombre de barres au dessus de la lettre χ fait référence au rang du tenseur. En effet, $\bar{\chi}^{(1)}(\omega)$ est un tenseur de rang 2. L'expression (1.1) définit l'équation constitutive linéaire de l'interaction lumière-matière, et montre que la polarisation linéaire oscille à la même pulsation ω que le champ électrique exciteur $\vec{E}(\omega)$.

Le déplacement électrique $\vec{D}(\omega)$ qui fait intervenir à la fois le champ électrique exciteur et la polarisation linéaire induite, s'écrit à la position \vec{r} :

$$\begin{aligned} \vec{D}(\omega) &= \epsilon_0 \vec{E}(\omega) + \vec{P}(\omega) \\ &= \epsilon_0 \left(\vec{I} + \bar{\chi}^{(1)}(\omega) \right) \cdot \vec{E}(\omega) \end{aligned} \quad (1.2)$$

De ce fait, le déplacement électrique varie également linéairement avec le champ électrique. Le tenseur de permittivité diélectrique relative du matériau est défini par $\bar{\epsilon}_r(\omega) = \vec{I} + \bar{\chi}^{(1)}(\omega)$, \vec{I} étant la matrice identité. Les éléments du tenseur de susceptibilité électrique linéaire $\bar{\chi}^{(1)}(\omega)$ sont réels si la pulsation ω appartient au domaine de transparence du matériau. Par conséquent, c'est aussi le cas des éléments de $\bar{\epsilon}_r(\omega)$.

1.1.1.2 Susceptibilité électrique du premier ordre

Il existe un repère propre qui diagonalise la matrice $\bar{\chi}^{(1)}$: c'est le repère diélectrique, appelé aussi repère optique et noté (x, y, z) . Dans ce repère, la matrice représentative du tenseur $\bar{\chi}^{(1)}$ s'écrit :

$$\bar{\chi}^{(1)}(\omega) = \begin{pmatrix} \chi_{xx}^{(1)}(\omega) & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{yy}^{(1)}(\omega) & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{zz}^{(1)}(\omega) \end{pmatrix} \quad (1.3)$$

avec la relation d'ordre conventionnelle suivante : $\chi_{xx}^{(1)} \leq \chi_{yy}^{(1)} \leq \chi_{zz}^{(1)}$. Ces trois valeurs propres définissent les trois indices de réfraction principaux :

$$\begin{cases} n_x^2(\omega) &= 1 + \chi_{xx}^{(1)}(\omega) \\ n_y^2(\omega) &= 1 + \chi_{yy}^{(1)}(\omega) \\ n_z^2(\omega) &= 1 + \chi_{zz}^{(1)}(\omega) \end{cases} \quad (1.4)$$

avec la relation d'ordre : $n_x \leq n_y \leq n_z$.

Les valeurs relatives des indices de réfraction principaux dépendent de la classe optique à laquelle appartient le matériau. Il existe trois classes optiques possibles : isotrope, anisotrope uniaxe et anisotrope biaxe.

1. La classe optique *isotrope* : $n_x(\omega) = n_y(\omega) = n_z(\omega) = n(\omega)$. Les trois indices de réfraction principaux sont égaux, c'est-à-dire que les propriétés physiques sont identiques quelles que soient les directions de polarisation et de propagation considérées. C'est le cas des matériaux cristallisant dans le système cubique, mais aussi des gaz, liquides et solides amorphes.
2. La classe optique *anisotrope uniaxe* concerne les matériaux appartenant aux systèmes cristallins rhomboédrique, quadratique et hexagonal. Dans ce cas : $n_x(\omega) = n_y(\omega) = n_o(\omega)$ et $n_z(\omega) = n_e(\omega)$, où n_o et n_e sont respectivement appelés indices de réfraction ordinaire et extraordinaire.
3. Les cristaux monocliniques, tricliniques et orthorhombiques appartiennent quant à eux à la classe optique *anisotrope biaxe* : $n_x(\omega) \neq n_y(\omega) \neq n_z(\omega)$.

Le repère diélectrique (x, y, z) est tri-rectangulaire. Par conséquent, il peut être différent du repère cristallographique $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$ [33]. Suivant le degré de symétrie du milieu cristallin [34], les repères cristallographique et diélectrique ont zéro, un, deux ou les trois axes en commun. Par exemple, pour les systèmes cubique, quadratique et orthorhombique, les trois axes sont toujours confondus car les deux repères sont orthogonaux. Comme nous le verrons dans les chapitres 3 et 4, les repères sont liés et ont deux axes confondus pour les matériaux trigonaux (hexagonaux et rhomboédriques) alors que dans le système monoclinique, ils sont confondus par un seul axe. Enfin, les deux repères sont complètement indépendants dans le cas de cristaux tricliniques. De plus dans les systèmes monocliniques et tricliniques, la difficulté est d'autant plus accrue que l'orientation du repère diélectrique peut changer en fonction de la pulsation ω de la lumière, mais également de tout autre paramètre dispersif de l'indice de réfraction [33].

1.1.2 Processus du premier ordre

Lorsqu'une onde électromagnétique traverse un matériau, deux processus du premier ordre différents peuvent avoir lieu en fonction de la pulsation ω de l'onde incidente. D'une part, si la pulsation d'excitation se situe dans le domaine de transparence du cristal, l'onde se propage sans subir d'absorption : c'est le régime linéaire propagatif. Ce processus est illustré par la figure 1.1(a) qui correspond à la description quantique de ce régime où le niveau excité, situé en dessous du "gap" du matériau, est un niveau du champ électromagnétique. Ce schéma traduit aussi qu'il y a conservation de l'énergie.

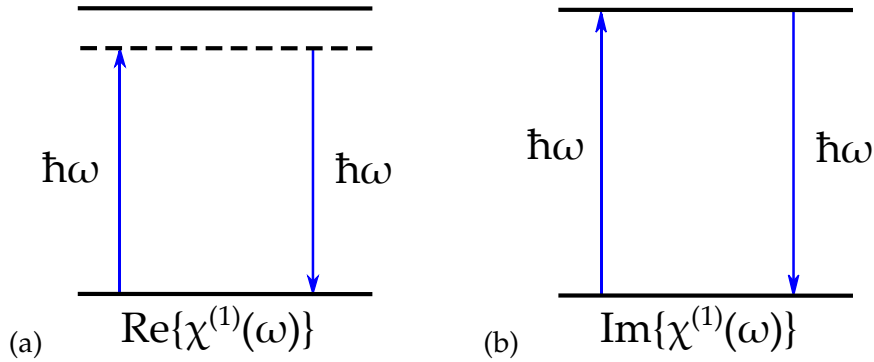


FIGURE 1.1 – Représentation schématique des deux processus du premier ordre : (a) Propagation linéaire sans absorption. (b) Atténuation linéaire.

D'autre part, la figure 1.1(b) représente le cas où la pulsation d'excitation ω correspond à une des fréquences propres du milieu. Cette fois-ci, il y a absorption, qui correspond au régime dissipatif : l'intensité lumineuse décroît alors exponentiellement, selon la loi de Beer-Lambert.

Dans la suite, nous chercherons à nous placer dans le cas où l'onde incidente n'est pas atténuée lors de sa propagation, c'est-à-dire que nous travaillerons dans le domaine de transparence du cristal.

1.1.3 Equation de propagation

En considérant des milieux transparents, sans courant, non magnétiques et homogènes, les équations de Maxwell permettent d'établir l'équation de propagation relative à chaque composante de Fourier du champ électrique de l'onde électromagnétique [32] :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{\nabla} \wedge \vec{E}(\vec{r}, \omega) = \frac{\omega^2}{c^2} \vec{\epsilon}_r(\vec{r}, \omega) \vec{E}(\vec{r}, \omega) \quad (1.5)$$

c est la vitesse de la lumière dans le vide et $\vec{\epsilon}_r$ est le tenseur de permittivité diélectrique relative dans la direction \vec{r} considérée. L'onde plane est une solution de l'équation de propagation à une pulsation ω donnée, et la composante spatiale de son champ électrique s'écrit [32] :

$$\vec{E}(\vec{r}, \omega) = \vec{e}(\vec{r}, \omega) E(\vec{r}, \omega) e^{-j\vec{k}(\omega) \cdot \vec{r}} \quad (1.6)$$

$\vec{e}(\vec{r}, \omega)$ est un vecteur unitaire qui décrit l'état de polarisation de l'onde, et $E(\vec{r}, \omega)$ l'amplitude complexe du champ électrique. $\vec{k}(\omega)$ est le vecteur d'onde défini par $\vec{k}(\omega) = \frac{\omega}{c} n(\omega) \vec{u}$, où le vecteur unitaire \vec{u} représente la direction de propagation de l'onde dans le repère diélectrique du milieu. Le vecteur \vec{u} s'écrit en coordonnées sphériques :

$$\vec{u}(\theta, \phi) = \begin{pmatrix} u_x \\ u_y \\ u_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sin(\theta) \cos(\phi) \\ \sin(\theta) \sin(\phi) \\ \cos(\theta) \end{pmatrix} \quad (1.7)$$

Les angles θ et ϕ qui déterminent la direction de propagation \vec{u} en coordonnées sphériques, sont définis dans la figure 1.2.

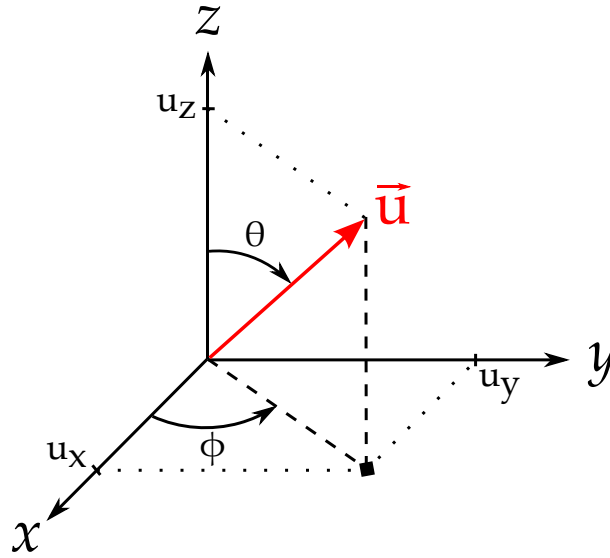


FIGURE 1.2 – Orientation de la direction de propagation \vec{u} de l'onde, repérée par les angles de coordonnées sphériques θ et ϕ dans le repère diélectrique.

1.1.4 Dispersion des indices de réfraction principaux

Comme indiqué dans le système d'équations (1.4), à température ambiante, les indices de réfraction principaux n_x , n_y et n_z d'un cristal dépendent de la pulsation ω . La dispersion des indices de réfraction principaux est généralement exprimée en fonction de la longueur d'onde λ , directement reliée à ω par $\lambda = \frac{2\pi c}{\omega}$. Il y a plusieurs domaines de transparence dans un milieu donné. Chacun de ces domaines est délimité par deux oscillateurs harmoniques dont les fréquences propres dépendent des atomes ou molécules concernées. Dans un domaine de transparence, le modèle de Lorentz permet d'aboutir aux équations de dispersion suivantes, appelées couramment *équations de Sellmeier* [35] :

$$n_i^2(\lambda) = A_i + \frac{B_i \cdot \lambda^2}{\lambda^2 - C_i} + \frac{D_i \cdot \lambda^2}{\lambda^2 - E_i} \quad (1.8)$$

avec $i = x, y$ ou z , et la longueur d'onde λ s'exprime en μm . Les paramètres $A_i, B_i,$

C_i , D_i et E_i sont généralement obtenus empiriquement à partir de l'interpolation de résultats expérimentaux. Si l'on considère le domaine de transparence visible-infrarouge, les paramètres $C_i = \lambda_{UV}^2$ et $E_i = \lambda_{IR}^2$ définissent les longueurs d'onde de résonance λ_{UV} et λ_{IR} de chaque oscillateur harmonique : typiquement l'une dans l'ultraviolet (UV) et l'autre dans l'infrarouge (IR) délimitant le domaine de transparence qui va nous intéresser. L'équation (1.8) est valable uniquement entre ces deux longueurs d'onde de résonance. Nous verrons dans les chapitres suivants qu'il peut exister d'autres formes d'équations de dispersion des indices de réfraction principaux d'un matériau. Toutes les formes utilisées correspondent à des fonctions décroissantes avec la longueur d'onde dans un domaine de transparence : la dispersion est alors qualifiée de "normale".

1.1.5 Surface des indices

La projection de l'équation de propagation (1.5) sur les trois axes principaux x , y et z du repère diélectrique permet d'obtenir, dans le domaine de transparence du cristal, l'équation de Fresnel [36] :

$$\frac{u_x^2(\theta, \phi)}{n^{-2}(\omega, \theta, \phi) - n_x^{-2}(\omega)} + \frac{u_y^2(\theta, \phi)}{n^{-2}(\omega, \theta, \phi) - n_y^{-2}(\omega)} + \frac{u_z^2(\theta, \phi)}{n^{-2}(\omega, \theta, \phi) - n_z^{-2}(\omega)} = 0 \quad (1.9)$$

Rappelons que $n_x(\omega)$, $n_y(\omega)$ et $n_z(\omega)$ sont les indices de réfraction principaux du matériau, qui sont des quantités réelles ici car il n'y a pas d'absorption. $n(\omega, \theta, \phi)$ est l'indice de réfraction dans la direction de propagation \vec{u} . Enfin, $u_x(\theta, \phi)$, $u_y(\theta, \phi)$ et $u_z(\theta, \phi)$ sont les trois composantes cartésiennes de \vec{u} en coordonnées sphériques (voir équation (1.7)).

L'équation de Fresnel est une équation du second degré par rapport à $n(\omega, \theta, \phi)$, et sa résolution est analytique. $n^+(\omega, \theta, \phi)$ et $n^-(\omega, \theta, \phi)$ sont les deux solutions de cette équation, avec par définition, $n^+(\omega, \theta, \phi) \geq n^-(\omega, \theta, \phi)$. Elles décrivent respectivement la nappe externe et la nappe interne de la surface des indices, et sont données par [36] :

$$\begin{cases} n^\pm(\omega, \theta, \phi) = \left(\frac{2}{-B \mp (B^2 - 4C)^{1/2}} \right)^{1/2} \\ B = -u_x^2(b+c) - u_y^2(a+c) - u_z^2(a+b) \\ C = u_x^2bc + u_y^2ac + u_z^2ab \\ a = n_x^{-2}(\omega), b = n_y^{-2}(\omega), c = n_z^{-2}(\omega) \end{cases} \quad (1.10)$$

La biréfringence dans une direction de propagation $\vec{u}(\theta, \phi)$ fixée est définie par la quantité $n^+(\omega, \theta, \phi) - n^-(\omega, \theta, \phi)$. La figure 1.3 représente, dans un octant de l'espace, la surface des indices d'un cristal biaxe à une pulsation ω donnée, et avec $n_x < n_y < n_z$. Elle montre que, dans le cas du cristal biaxe, la surface des indices est constituée d'une

nappe circulaire et d'une nappe elliptique uniquement dans les plans principaux : $x - y$ ($\theta = 90^\circ, \phi$ quelconque), $y - z$ (θ quelconque, $\phi = 90^\circ$) et $x - z$ (θ quelconque, $\phi = 0^\circ$). Par exemple dans le plan $y - z$, $n^+(\omega, \theta, \phi)$ et $n^-(\omega, \theta, \phi)$ s'écrivent :

$$\begin{cases} n^+(\omega, \theta, \phi) &= \left(\frac{\cos^2(\theta)}{n_y^2(\omega)} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_z^2(\omega)} \right)^{-1/2} \\ n^-(\omega, \theta, \phi) &= n_x(\omega) \end{cases} \quad (1.11)$$

Hors des plans principaux, il est nécessaire de considérer la solution générale décrite par l'équation (1.10).

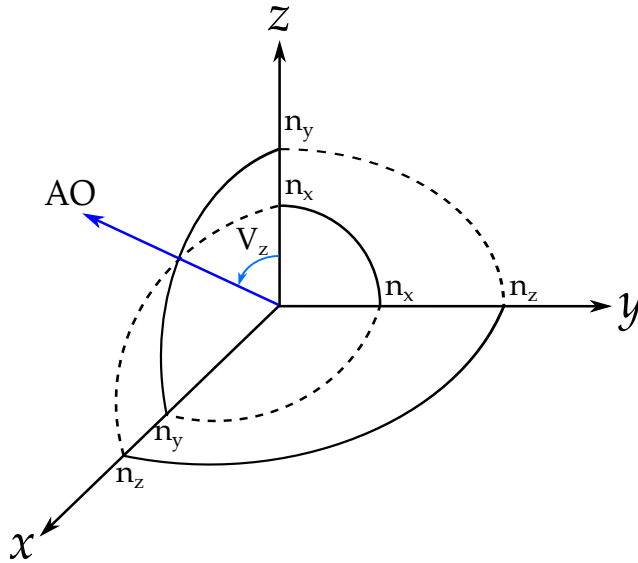


FIGURE 1.3 – Surface des indices d'un cristal biaxe avec la convention $n_x < n_y < n_z$, décrivant la distribution angulaire de l'indice de réfraction à une pulsation ω fixée. Les traits pleins correspondent aux portions circulaires alors que les traits pointillés décrivent les portions elliptiques des nappes dans les plans principaux. AO signifie Axe Optique, où les deux nappes d'indice se croisent.

Une solution double de l'équation de Fresnel apparaît toujours dans le plan $x - z$ d'un cristal biaxe avec la convention $n_x < n_y < n_z$. Elle est matérialisée par quatre croisements des deux nappes $n^+(\omega, \theta, \phi)$ et $n^-(\omega, \theta, \phi)$. Ces quatre directions forment par paire deux axes, appelés *axes optiques* et notés AO, dont la direction par rapport à l'axe z est repérée par l'angle orienté V_z (voir figure 1.3). Cette existence de deux axes optiques est à l'origine de l'appellation biaxe. L'expression de V_z qui correspond à $n^+(\omega, V_z, 0) = n^-(\omega, V_z, 0)$ est donnée par :

$$\sin^2 V_z(\omega) = \frac{n_y^{-2}(\omega) - n_x^{-2}(\omega)}{n_z^{-2}(\omega) - n_x^{-2}(\omega)} \quad (1.12)$$

Remarquons que la valeur de l'angle V_z dépend de la pulsation ω .

La surface des indices d'un cristal uniaxe est obtenue en imposant $n_x(\omega) = n_y(\omega) = n_o(\omega)$ et $n_z(\omega) = n_e(\omega)$. L'indice "o" correspond à "ordinaire" et "e" à "extraordinaire". On parlera alors d'indice ordinaire et d'indice extraordinaire. Le signe optique d'un

crystal uniaxe est défini par : positif si $n_e(\omega) > n_o(\omega)$, et négatif si $n_e(\omega) < n_o(\omega)$. La figure 1.4 représente par exemple la surface des indices d'un cristal uniaxe positif à la pulsation ω .

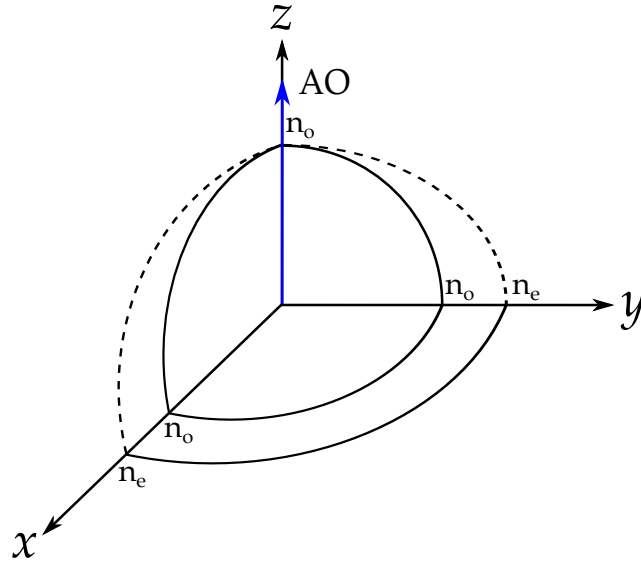


FIGURE 1.4 – Surface des indices d'un cristal uniaxe positif ($n_e > n_o$), décrivant la distribution angulaire de l'indice de réfraction à une pulsation ω fixe. Les traits pleins correspondent aux nappes circulaires alors que les traits pointillés décrivent les nappes elliptiques. n_o et n_e sont respectivement les indices principaux ordinaire et extraordinaire.

La figure 1.4 montre également que, dans le cas du cristal uniaxe, il n'y a qu'un seul axe optique, d'où la dénomination d'uniaxe, et sa direction est confondue avec l'axe z quelle que soit ω . La surface des indices d'un cristal uniaxe est de symétrie de révolution autour de l'axe optique : elle est constituée d'une nappe sphérique appelée nappe ordinaire $n^o(\omega)$ et d'une nappe ellipsoïdale nommée nappe extraordinaire $n^e(\omega, \theta)$. Les nappes $n^+(\omega, \theta, \phi)$ et $n^-(\omega, \theta, \phi)$ de l'équation (1.10) correspondent chacune à $n^e(\omega, \theta)$ ou à $n^o(\omega)$ suivant que le cristal est uniaxe positif ou négatif. Cette correspondance est résumée dans le tableau 1.1.

	Uniaxe	
	Positif $n_e > n_o$	Négatif $n_e < n_o$
Nappe externe $n^+(\omega, \theta, \phi)$	$n^e(\omega, \theta)$	$n^o(\omega)$
Nappe interne $n^-(\omega, \theta, \phi)$	$n^o(\omega)$	$n^e(\omega, \theta)$

TABLE 1.1 – Correspondance entre les nappes externe $n^+(\omega, \theta, \phi)$ et interne $n^-(\omega, \theta, \phi)$ et les nappes extraordinaire $n^e(\omega, \theta)$ et ordinaire $n^o(\omega)$ dans un cristal uniaxe selon qu'il est positif ou négatif.

Comme le montre la figure 1.4, le plan diélectrique principal $x - y$ ($\theta = 90^\circ$, ϕ quelconque) est constitué de deux nappes circulaires, soit $n^o(\omega) = n_o(\omega)$ et $n^e(\omega, \theta) = n_e(\omega)$. Dans les plans $x - z$ (θ quelconque, $\phi = 0^\circ$) et $y - z$ (θ quelconque, $\phi = 90^\circ$), les

nappes $n^o(\omega)$ et $n^e(\omega, \theta)$ sont décrites par l'équation (1.11) si x et y sont substitués par o et z par e et si la correspondance donnée dans le tableau 1.1 est appliquée.

1.1.6 Phénomène de double réfraction et états de polarisation

1.1.6.1 Angle de double réfraction

Lors de la propagation d'une onde électromagnétique dans la direction $\vec{u}(\theta, \phi)$ d'un matériau biréfringent, il existe deux modes de propagation du champ électrique \vec{E}^+ et \vec{E}^- . Ils sont associés à deux états de polarisation rectilignes, décrits par les vecteurs unitaires $\vec{e}^+(\omega, \theta, \phi)$ et $\vec{e}^-(\omega, \theta, \phi)$, et à deux nappes $n^+(\omega, \theta, \phi)$ et $n^-(\omega, \theta, \phi)$ de la surface des indices. Par conséquent, ces deux modes correspondent à deux vecteurs d'onde $\vec{k}^+ = \frac{\omega}{c} n^+(\omega, \theta, \phi) \vec{u}(\theta, \phi)$ et $\vec{k}^- = \frac{\omega}{c} n^-(\omega, \theta, \phi) \vec{u}(\theta, \phi)$ et à deux champs magnétiques \vec{H}^+ et \vec{H}^- . La direction de propagation de l'énergie lumineuse de chacun des modes (+) et (-) est décrite par les vecteurs de Poynting $\vec{\Pi}^+$ et $\vec{\Pi}^-$ définis par [37] :

$$\|\vec{\Pi}^\pm\| = \|\vec{E}^\pm \wedge \vec{H}^\pm\| = \frac{1}{2} \epsilon_0 c n^\pm \vec{E}^\pm \cdot \vec{E}^{\pm*} \quad (1.13)$$

Cette grandeur est une puissance par unité de surface (ou densité de puissance) exprimée en W/m^2 . La figure 1.5 illustre par exemple comment sont orientés les vecteurs précédents lors de la propagation colinéaire (\vec{k}^+ parallèle à \vec{k}^-) des deux modes dans une direction quelconque, dans le plan $y-z$ d'un cristal biaxe.

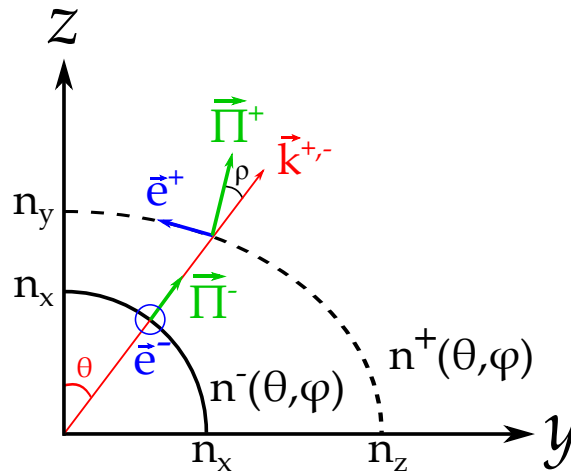


FIGURE 1.5 – Propagation d'une onde électromagnétique dans la direction θ du plan $y-z$ ($\phi = 90^\circ$) du repère diélectrique à une pulsation ω fixe.

La figure 1.5 montre que les vecteurs $\vec{\Pi}^\pm$ sont toujours normaux à la nappe d'indice sollicitée, tandis que les vecteurs $\vec{e}^\pm(\omega, \theta, \phi)$ sont tangents à la nappe. Par conséquent, pour la nappe elliptique du plan $y-z$, un angle non nul noté ρ apparaît entre les vecteurs $\vec{\Pi}^+$ et \vec{k}^+ . Comme ce plan principal contient aussi une nappe circulaire et donc $\vec{\Pi}^-$ reste colinéaire à \vec{k}^+ , le même angle ρ apparaît entre les vecteurs $\vec{\Pi}^+$ et $\vec{\Pi}^-$ (voir figure 1.5). Cette dernière propriété reste vraie dans les trois plans principaux où l'angle ρ est donné par :

$$\cos(\rho) = \frac{\vec{\Pi}^+ \cdot \vec{\Pi}^-}{\|\vec{\Pi}^+\| \|\vec{\Pi}^-\|} \quad (1.14)$$

L'angle ρ est appelé angle de double réfraction, ou en anglais *spatial walk-off*, et il s'écrit dans la direction de propagation α du plan principal $u - v$ et à la pulsation ω [38] :

$$\rho_{uv}(\omega, \alpha) = \arccos \left(\frac{[n_v^2(\omega)/n_u^2(\omega)] \cos^2 \alpha + \sin^2 \alpha}{\sqrt{[n_v^4(\omega)/n_u^4(\omega)] \cos^2 \alpha + \sin^2 \alpha}} \right) \quad (1.15)$$

avec, pour un cristal biaxe

- $(u, v) = (x, z)$ et $\alpha = \theta$ dans le plan $x - z$
- $(u, v) = (y, z)$ et $\alpha = \theta$ dans le plan $y - z$
- $(u, v) = (y, x)$ et $\alpha = \phi$ dans le plan $x - y$

Pour un cristal uniaxe, l'angle ρ est nul dans le plan $x - y$ alors que dans les plans $x - z$ et $y - z$, il vérifie l'équation (1.15) avec $(u, v) = (o, e)$ et $\alpha = \theta$.

L'équation (1.15) montre également que l'angle $\rho(\omega, \alpha)$ est toujours nul selon les axes principaux x , y et z , et qu'il est maximal lorsque $\alpha = 45^\circ$ où il vaut typiquement quelques mrad, que le cristal soit uniaxe ou biaxe [38].

1.1.6.2 Etats de polarisation

Pour déterminer l'évolution des états de polarisation rectilignes $\vec{e}^\pm(\omega, \theta, \phi)$ en fonction de la direction de propagation $\vec{u}(\theta, \phi)$ dans le cristal, il est nécessaire de projeter l'équation de propagation (1.5) sur les trois axes x , y et z du repère diélectrique, la condition de normation $(e_x^\pm)^2 + (e_y^\pm)^2 + (e_z^\pm)^2 = 1$ étant toujours vérifiée par définition.

Pour une propagation hors des plans principaux d'un cristal biaxe, l'expression des états de polarisation n'est pas analytique, et la résolution numérique de l'équation suivante permet d'obtenir les trois composantes de chaque vecteur unitaire [32] :

$$e_i^\pm(\omega, \theta, \phi) = \frac{[n^\pm(\omega, \theta, \phi)]^2}{[n^\pm(\omega, \theta, \phi)]^2 - [n_i(\omega)]^2} u_i(\theta, \phi) [\vec{u}(\theta, \phi) \cdot \vec{e}^\pm(\omega, \theta, \phi)] \quad (1.16)$$

avec $i = x, y$ ou z . $n^\pm(\omega, \theta, \phi)$ correspond à l'indice de réfraction dans la direction de propagation $\vec{u}(\theta, \phi)$, qui est décrite par l'équation (1.10), et $n_i(\omega)$ est l'indice de réfraction principal décrit dans la partie 1.1.4.

Néanmoins, pour toute direction de propagation dans les cristaux uniaxes et dans les trois plans principaux des cristaux biaxes, on peut montrer que les expressions des vecteurs unitaires $\vec{e}^\pm(\omega, \theta, \phi)$ sont analytiques et données par [32] :

$$\vec{e}^-(\phi) = \begin{pmatrix} e_x^- \\ e_y^- \\ e_z^- \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\sin \phi \\ \cos \phi \\ 0 \end{pmatrix} \quad (1.17)$$

$$\vec{e}^+(\omega, \theta, \phi) = \begin{pmatrix} e_x^+ \\ e_y^+ \\ e_z^+ \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\cos[\theta \pm \rho(\omega, \theta)] \cos \phi \\ -\cos[\theta \pm \rho(\omega, \theta)] \sin \phi \\ \sin[\theta \pm \rho(\omega, \theta)] \end{pmatrix} \quad (1.18)$$

avec $-\rho(\omega, \theta)$ pour les cristaux uniaxes positifs et $+\rho(\omega, \theta)$ pour les uniaxes négatifs, où $\rho(\omega, \theta)$ est l'angle de double réfraction défini par l'équation (1.15). Dans les cristaux biaxes, ces équations sont valables avec $-\rho(\omega, \theta)$ uniquement dans les plans principaux $y - z$ et $x - z$ avec $\theta > V_z$.

Pour les cristaux uniaxes et dans les plans principaux des biaxes, $\vec{e}^-(\phi) \cdot \vec{e}^+(\omega, \theta, \phi) = 0$ est toujours vérifié. Par contre, hors des plans principaux des cristaux biaxes, les vecteurs $\vec{e}^+(\omega, \theta, \phi)$ et $\vec{e}^-(\omega, \theta, \phi)$ ne sont plus orthogonaux entre eux.

1.2 OPTIQUE NON LINÉAIRE CRISTALLINE

1.2.1 Polarisation non linéaire

1.2.1.1 Equation constitutive

Lorsque la densité de puissance du champ électrique exciteur est supérieure au MW/cm^2 , il est possible de détecter des effets non linéaires, bien décrits par une polarisation induite qui n'est plus linéaire avec le champ électrique. Si la densité de puissance ne dépasse pas le TW/cm^2 , il est possible d'utiliser le modèle de Lorentz avec une approche perturbative. Chaque composante de Fourier de la polarisation peut alors être développée en puissances du champ électrique exciteur à la position \vec{r} [35] :

$$\begin{aligned} \vec{P}(\omega) = & \epsilon_0 \bar{\chi}^{(1)}(\omega) \cdot \vec{E}(\omega) + \epsilon_0 \bar{\bar{\chi}}^{(2)}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2) : \vec{E}(\omega_1) \otimes \vec{E}(\pm\omega_2) \\ & + \epsilon_0 \bar{\bar{\bar{\chi}}}^{(3)}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3) \therefore \vec{E}(\omega_1) \otimes \vec{E}(\pm\omega_2) \otimes \vec{E}(\pm\omega_3) + \dots \end{aligned} \quad (1.19)$$

Les notations \cdot , $:$ et \therefore correspondent aux produits contractés, et \otimes au produit tensoriel. La grandeur $\bar{\chi}^{(1)}$ correspond au tenseur de susceptibilité électrique de premier ordre alors que $\bar{\bar{\chi}}^{(2)}$ et $\bar{\bar{\bar{\chi}}}^{(3)}$ sont respectivement les tenseurs de susceptibilité électrique du second et troisième ordre. Le premier terme du développement de l'équation (1.19) correspond à la polarisation linéaire décrite par l'équation (1.1). Les termes d'ordre supérieur correspondent à la réponse non linéaire du matériau. La polarisation non linéaire est responsable du rayonnement des champs électriques aux nouvelles pulsations $\omega_1, \omega_2, \omega_3, \dots$ différentes de la pulsation initiale ω .

Seuls les processus d'ordre deux seront présentés dans ce document. Ils correspondent au premier terme non linéaire de la polarisation associé au tenseur de susceptibilité électrique $\bar{\chi}^{(2)}$ et décrivent des interactions à trois ondes.

1.2.1.2 Susceptibilité électrique du second ordre

La susceptibilité électrique du second ordre $\bar{\chi}^{(2)}$ étant un tenseur de rang 3, elle est constituée de 27 éléments indépendants dans le cas général. Suivant la symétrie d'orientation du cristal, le principe de Neumann impose que certains éléments du tenseur $\bar{\chi}^{(2)}$ soient nuls et que, parmi les autres, certains soient égaux ou de signes opposés entre eux [33]. En particulier, pour les cristaux centrosymétriques, tous les éléments $\chi_{ijk}^{(2)}$ du tenseur $\bar{\chi}^{(2)}$ sont nuls, rendant alors inexistants les processus du second ordre. Pour les cristaux non centrosymétriques, le nombre d'éléments non nuls peut être réduit en prenant en compte la symétrie de Kleinman [32]. En effet, si le milieu étudié est faiblement dispersif aux pulsations considérées et que ces dernières se situent dans le domaine de transparence du matériau, le tenseur $\bar{\chi}^{(2)}$ devient symétrique par rapport aux trois indices cartésiens x, y et z [39].

Comme l'indice de réfraction, le tenseur de susceptibilité du second ordre dépend de la pulsation. Le modèle de l'oscillateur anharmonique du second ordre permet de définir la relation de Miller suivante [40] :

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2) = \delta_{ijk} \chi_{ii}^{(1)}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2) \chi_{jj}^{(1)}(\omega_1) \chi_{kk}^{(1)}(\pm \omega_2) \quad (1.20)$$

δ_{ijk} , indépendant de la pulsation, est appelé indice de Miller¹. Les éléments $\chi_{ijk}^{(2)}$ du tenseur de susceptibilité électrique non linéaire peuvent alors être exprimés en fonction des éléments $\chi_{aa}^{(1)}$ du tenseur de susceptibilité électrique du premier ordre, c'est-à-dire en fonction des indices de réfraction principaux puisque, quelle que soit la pulsation, $n_a^2 = 1 + \chi_{aa}^{(1)}$ (avec $a = i, j$ ou k). A partir de l'équation (1.20), il est possible de calculer un élément $\chi_{ijk}^{(2)}$ à la pulsation ω_B connaissant ce même élément à la pulsation ω_A , puisqu'ils sont liés par le même indice de Miller δ_{ijk} .

1.2.2 Processus du second ordre

Considérons une interaction entre trois ondes de pulsations ω_1, ω_2 et ω_3 vérifiant la conservation de l'énergie :

$$\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 = \hbar\omega_3 \quad (1.21)$$

avec, par convention, $\omega_3 > \omega_2 \geq \omega_1$. La polarisation non linéaire \vec{P}^{NL} du second ordre à la position \vec{r} et à chaque pulsation s'écrit [32] :

1. L'indice de Miller ne correspond pas à celui usuellement utilisé en cristallographie et δ_{ijk} n'a aucun rapport avec le symbole de Kronecker.

$$\begin{cases} \vec{P}^{NL}(\omega_1) = \epsilon_0 \bar{\chi}^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) : \vec{E}(\omega_3) \otimes \vec{E}^*(\omega_2) \\ \vec{P}^{NL}(\omega_2) = \epsilon_0 \bar{\chi}^{(2)}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) : \vec{E}(\omega_3) \otimes \vec{E}^*(\omega_1) \\ \vec{P}^{NL}(\omega_3) = \epsilon_0 \bar{\chi}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) : \vec{E}(\omega_1) \otimes \vec{E}(\omega_2) \end{cases} \quad (1.22)$$

L'équation (1.22) fait apparaître deux processus du second ordre possibles, qui, sous l'angle quantique peuvent être décrits par la *fusion de deux photons* et la *scission d'un photon* [41].

1.2.2.1 Fusion de deux photons

La fusion de deux photons d'énergies $\hbar\omega_1$ et $\hbar\omega_2$ par le biais des atomes ou molécules du milieu, donne naissance à un troisième photon, de plus grande énergie $\hbar\omega_3 = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2$ d'après l'équation (1.21). D'un point de vue ondulatoire, ce processus correspond à la somme de fréquences (SFG). Une représentation schématique de ce phénomène est présentée dans la figure 1.6(a).

La génération de second harmonique (SHG), appelée aussi "doublage de fréquence", est un cas dégénéré de la somme de fréquences. Elle correspond à la fusion de deux photons de même énergie $\hbar\omega_1 = \hbar\omega_2 = \hbar\omega$ pour créer un photon d'énergie double $\hbar\omega_3 = 2\hbar\omega$, comme le montre la figure 1.6(b).

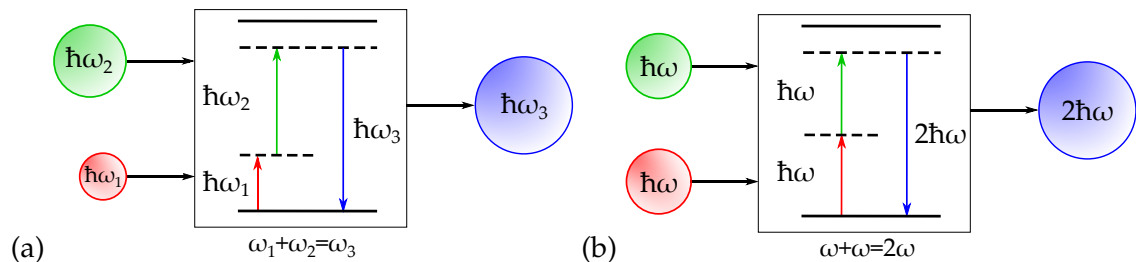


FIGURE 1.6 – Processus quadratique de fusion de deux photons : (a) génération de somme de fréquences et (b) génération de second harmonique qui est un cas dégénéré de la génération de somme de fréquences.

1.2.2.2 Scission d'un photon

Spontanée Un photon d'énergie $\hbar\omega_3$ peut subir une scission spontanée donnant naissance à deux photons d'énergies $\hbar\omega_1$ et $\hbar\omega_2$, reliés par la conservation d'énergie $\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 = \hbar\omega_3$: ce processus s'appelle la "fluorescence paramétrique". Le rendement de cette interaction étant extrêmement faible, il peut être mesuré uniquement si le nombre initial de photons d'énergie $\hbar\omega_3$ est important. Ce processus est représenté par la figure 1.7.

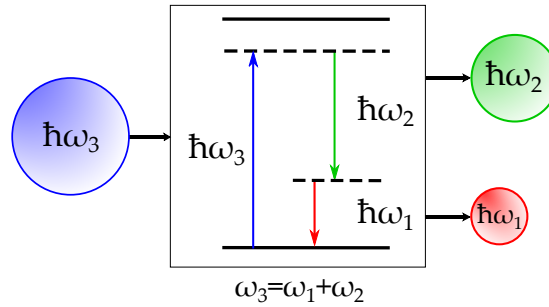


FIGURE 1.7 – Processus quadratique de scission spontanée d'un photon, appelée fluorescence paramétrique.

Stimulée La scission du photon d'énergie $\hbar\omega_3$ peut être stimulée par des photons d'énergie $\hbar\omega_2$ (resp. $\hbar\omega_1$), pour donner naissance d'une part à un photon d'énergie $\hbar\omega_1 = \hbar\omega_3 - \hbar\omega_2$ (resp. $\hbar\omega_2 = \hbar\omega_3 - \hbar\omega_1$) et d'autre part à un autre photon d'énergie $\hbar\omega_2$ (resp. $\hbar\omega_1$). Ce processus est représenté par la figure 1.8, où il y a non seulement création de photons à une nouvelle pulsation, mais aussi amplification du nombre de photons stimulant le processus. On parle donc à la fois de différence de fréquences (DFG) si l'on s'intéresse à la fréquence nouvellement créée, et d'amplification paramétrique optique (OPA) si l'on s'intéresse à la fréquence des photons de stimulation. Les cas dégénérés ($\omega_3 = \omega_2$ ou $\omega_3 = \omega_1$) correspondent à la rectification optique où un champ statique est créé dans le milieu.

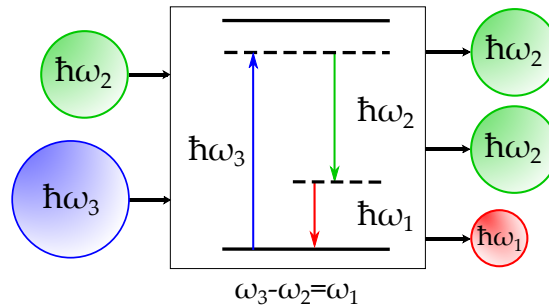


FIGURE 1.8 – Processus quadratique de scission stimulée d'un photon, correspondant à la génération de différence de fréquences et à l'amplification paramétrique optique.

Succession de scissions spontanée et stimulée Lorsqu'une multitude de photons d'énergie $\hbar\omega_3$ se propagent dans le milieu, des scissions spontanées et stimulées de ces photons se succèdent. En effet, comme l'indique la figure 1.9, une première scission spontanée, qui correspond à la fluorescence paramétrique (voir figure 1.7), donne naissance à deux nouveaux photons d'énergies $\hbar\omega_1$ et $\hbar\omega_2$. Chaque photon d'énergie $\hbar\omega_1$ ou $\hbar\omega_2$ peut alors stimuler de nouvelles scissions de photons d'énergie $\hbar\omega_3$, ce qui correspond aux processus de différence de fréquences et d'amplification paramétrique (voir figure 1.8). La succession de ces processus permet donc d'amplifier le nombre de photons générés aux énergies $\hbar\omega_1$ et $\hbar\omega_2$ (voir figure 1.9).

Ce phénomène est appelé "génération paramétrique optique" (OPG). Lorsque le

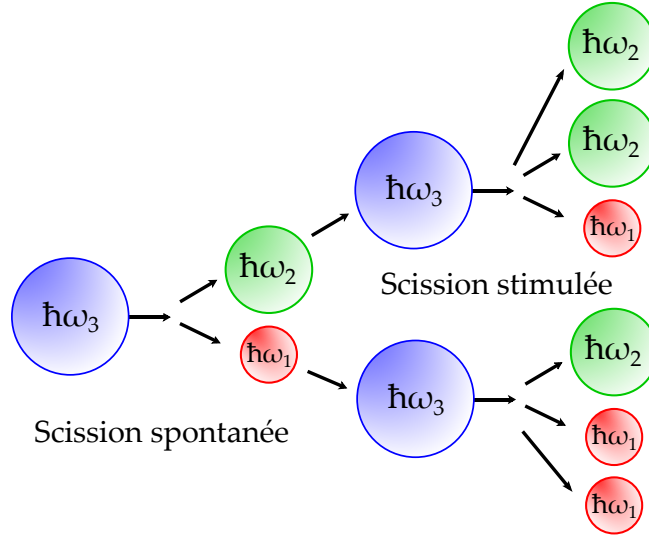


FIGURE 1.9 – Processus quadratique de scissions spontanée et stimulée de photons, correspondant à la génération paramétrique optique ou à l'oscillation paramétrique optique.

milieu est placé dans une cavité optique, le processus devient résonant à la pulsation ω_1 et/ou ω_2 et la longueur d'interaction entre le cristal et la lumière est artificiellement augmentée grâce à des allers-retours dans la cavité. Le nombre de photons amplifiés augmente alors considérablement. Cela correspond à l'oscillation paramétrique optique (OPO).

Dans la suite, lorsque les sources paramétriques seront concernées, nous appellerons "photons pompe", d'énergie $\hbar\omega_p$, les photons d'énergie $\hbar\omega_3$; les photons générés, quant à eux, seront appelés "photons signal", d'énergie $\hbar\omega_2 = \hbar\omega_s$, et "photons idler" d'énergie $\hbar\omega_1 = \hbar\omega_i$, avec $\omega_p > \omega_s \geq \omega_i$.

1.2.3 Equation de propagation

De la même manière qu'en régime linéaire, en utilisant les équations de Maxwell et l'expression du déplacement électrique (1.2) à la pulsation ω_i qui devient en régime non linéaire : $\vec{D}(\omega_i) = \epsilon_0 \vec{\epsilon}_r \cdot \vec{E}(\omega_i) + \vec{P}^{NL}(\omega_i)$, l'équation de propagation s'écrit :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{\nabla} \wedge \vec{E}(\vec{r}, \omega_i) = \frac{\omega_i^2}{c^2} \vec{\epsilon}_r(\vec{r}, \omega_i) \vec{E}(\vec{r}, \omega_i) + \mu_0 \omega_i^2 \vec{P}^{NL}(\vec{r}, \omega_i) \quad (1.23)$$

Par rapport à l'équation de propagation en régime linéaire (1.5), celle en régime non linéaire (1.23) contient un terme supplémentaire qui provient de la polarisation non linéaire \vec{P}^{NL} . L'onde plane (expression (1.6)) est, malgré le terme non linéaire, toujours solution de l'équation de propagation. L'injection du système d'équations (1.22) dans l'équation (1.23) et l'approximation de l'enveloppe lentement variable, $\frac{\partial E(\omega, Z)}{\partial Z} \ll \frac{E(\omega, Z)}{\lambda}$ qui se justifie dans le cadre de nos études, permettent d'obtenir le système suivant de trois équations différentielles couplées [32] :

$$\begin{cases} \frac{\partial E(\omega_1, Z)}{\partial Z} = j\kappa_1 \chi_{\text{eff}} E(\omega_3, Z) E^*(\omega_2, Z) \exp(j\Delta k \cdot Z) \\ \frac{\partial E(\omega_2, Z)}{\partial Z} = j\kappa_2 \chi_{\text{eff}} E(\omega_3, Z) E^*(\omega_1, Z) \exp(j\Delta k \cdot Z) \\ \frac{\partial E(\omega_3, Z)}{\partial Z} = j\kappa_3 \chi_{\text{eff}} E(\omega_1, Z) E(\omega_2, Z) \exp(-j\Delta k \cdot Z) \end{cases} \quad (1.24)$$

$$\text{avec } \kappa_i = \frac{\omega_i}{2c \cdot n(\omega_i, \theta, \phi) \cos^2 \rho(\omega_i)}.$$

χ_{eff} est appelé coefficient effectif de l'interaction quadratique, et Z est la direction de propagation commune aux trois ondes en interaction colinéaire dans le matériau, ce qui sera le cas dans nos expériences. Le paramètre $\Delta k \cdot Z$ représente le déphasage spatial entre la polarisation non linéaire $\vec{P}^{NL}(\omega_i)$ et le champ $\vec{E}(\omega_i)$ qu'elle rayonne à la même pulsation ω_i .

1.2.4 Expression de l'énergie générée

Dans l'approximation de la pompe non dépeuplée, c'est-à-dire lorsque la variation de l'amplitude des champs électriques aux pulsations ω_1 et ω_2 est négligeable au cours de la propagation ($E(\omega_1, Z) \simeq E(\omega_1, 0)$ et $E(\omega_2, Z) \simeq E(\omega_2, 0)$), l'intégration des équations couplées (1.24) est simplifiée et cela permet de définir l'énergie de l'onde générée. En effet, d'après l'équation (1.13), la relation entre l'amplitude du champ électrique $E(\omega, Z)$ et l'énergie $\mathcal{E}(\omega, Z)$ est donnée par :

$$\mathcal{E}(\omega, Z) = \pi w_0^2 \frac{1}{2} \epsilon_0 c n^\pm(\omega, \theta, \phi) \vec{E}^\pm(\omega, Z) \cdot \vec{E}^{\pm*}(\omega, Z) \quad (1.25)$$

Cela permet d'exprimer par exemple l'énergie $\mathcal{E}(\omega_3, Z)$ de l'onde générée par somme de fréquences, soit [35] :

$$\mathcal{E}(\omega_3, Z) = \beta \frac{\mathcal{A}}{\lambda_1 \lambda_2} G(Z, w_0, \rho) \chi_{\text{eff}}^2 \mathcal{E}(\omega_1, 0) \mathcal{E}(\omega_2, 0) Z^2 \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k Z}{2} \right) \quad (1.26)$$

avec

$$\mathcal{A} = \frac{T^\pm(\omega_3, \theta, \phi) T^\pm(\omega_1, \theta, \phi) T^\pm(\omega_2, \theta, \phi)}{n^\pm(\omega_3, \theta, \phi) n^\pm(\omega_1, \theta, \phi) n^\pm(\omega_2, \theta, \phi)} \quad (1.27)$$

β correspond à un coefficient prenant en compte la géométrie et la section des faisceaux, et $\lambda_i = 2\pi c / \omega_i$ (avec $i = 1$ ou 2) est la longueur d'onde des ondes incidentes. $G(Z, w_0, \rho)$ est le coefficient d'atténuation dû au walk-off spatial. Il sera développé dans la partie 1.2.6.5, avec Z la longueur d'interaction dans le milieu et w_0 le rayon des deux champs incidents. Les paramètres $T^\pm(\omega_i, \theta, \phi)$ ($i=1, 2$ ou 3) correspondent aux coefficients de Fresnel aux pulsations ω_i donnés par $T^\pm(\omega_i, \theta, \phi) = 4n^\pm(\omega_i, \theta, \phi) / (n^\pm(\omega_i, \theta, \phi) + 1)^2$ où $n^\pm(\omega_i, \theta, \phi)$ est la nappe d'indice sollicitée décrite par l'équation (1.10) [32]. Enfin, la notation $\text{sinc}(u)$ correspond à la

fonction sinus cardinal.

Notons que l'expression de l'énergie générée (1.26) est directement transposable lorsqu'un processus de génération de second harmonique ou de différence de fréquences est considéré, à condition que les deux ondes incidentes ne soient jamais dépeuplées [32].

χ_{eff} et Δk sont deux paramètres clés de l'équation (1.26) pour caractériser et optimiser l'efficacité de conversion d'un processus non linéaire. Ils seront considérés à température ambiante uniquement, et font l'objet des deux parties suivantes.

1.2.5 Coefficient effectif χ_{eff}

1.2.5.1 Définition

Le coefficient non linéaire effectif χ_{eff} dépend de l'état de polarisation associé à chaque onde en interaction et des propriétés optiques non linéaires d'ordre deux du matériau. Pour un processus de somme de fréquences par exemple, il vient [32] :

$$\chi_{\text{eff}}(\omega_3, \omega_1, \omega_2, \theta, \phi) = \bar{e}^{\pm}(\omega_3, \theta, \phi) \cdot \left[\bar{\chi}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) : \bar{e}^{\pm}(\omega_1, \theta, \phi) \otimes \bar{e}^{\pm}(\omega_2, \theta, \phi) \right] \quad (1.28)$$

où les notations \cdot et $:$ sont les produits contractés et \otimes est le produit tensoriel. Rappelons que les vecteurs $\bar{e}^{\pm}(\omega_i, \theta, \phi)$ (avec $i = 1, 2$ ou 3) correspondent aux états de polarisation possibles de chacune des trois ondes en interaction (voir équations (1.17) et (1.18) ou plus généralement l'équation (1.16)). L'écriture tensorielle développée du coefficient effectif s'écrit donc :

$$\chi_{\text{eff}}(\omega_3, \omega_1, \omega_2, \theta, \phi) = \sum_{ijk} e_i^{\pm}(\omega_3, \theta, \phi) \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) e_j^{\pm}(\omega_1, \theta, \phi) e_k^{\pm}(\omega_2, \theta, \phi) \quad (1.29)$$

Les indices i, j et k correspondent chacun à x, y ou z . Les termes e_i^{\pm} , e_j^{\pm} et e_k^{\pm} sont trois composantes cartésiennes dans le repère diélectrique (x, y, z) , à une pulsation donnée, des vecteurs \bar{e}^{\pm} dont le calcul des expressions est présenté dans la partie 1.1.6. L'efficacité de l'interaction est alors d'autant plus importante que la configuration de polarisation va solliciter l'élément $\chi_{ijk}^{(2)}$ le plus fort du tenseur $\bar{\chi}^{(2)}$. A l'inverse, elle peut solliciter un élément nul, ou une combinaison d'éléments dont la résultante est nulle, auquel cas le coefficient effectif sera nul. La notation $d_{\text{eff}} = \frac{\chi_{\text{eff}}}{2}$ est également employée, et c'est celle-ci qui sera utilisée dans les chapitres suivants.

1.2.5.2 Formalisme du tenseur champ

Il y a un intérêt, dans le cadre de la problématique de la mesure des coefficients non linéaires $\chi_{ijk}^{(2)}$, à décrire la contribution des états de polarisation des trois ondes en interaction avec une nouvelle grandeur appelée tenseur champ, définie par [42] :

$$\bar{\bar{F}}^{(2)}(\omega_3, \omega_1, \omega_2, \theta, \phi) = \bar{e}^{\pm}(\omega_3, \theta, \phi) \otimes \bar{e}^{\pm}(\omega_1, \theta, \phi) \otimes \bar{e}^{\pm}(\omega_2, \theta, \phi) \quad (1.30)$$

et dont l'écriture développée de chaque élément est :

$$F_{ijk}^{(2)}(\omega_3, \omega_1, \omega_2, \theta, \phi) = e_i^{\pm}(\omega_3, \theta, \phi) e_j^{\pm}(\omega_1, \theta, \phi) e_k^{\pm}(\omega_2, \theta, \phi) \quad (1.31)$$

Il s'agit donc d'un tenseur d'ordre deux, composé de 27 éléments. Avec le formalisme du tenseur champ, le coefficient effectif s'écrit alors comme le produit contracté de deux tenseurs de rang 3 [32, 42] :

$$\begin{aligned} \chi_{\text{eff}}(\omega_3, \omega_1, \omega_2, \theta, \phi) &= \bar{\bar{\chi}}^{(2)}(\omega_3) \cdot \bar{\bar{F}}^{(2)}(\omega_3, \omega_1, \omega_2, \theta, \phi) \\ &= \sum_{ijk} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3) F_{ijk}^{(2)}(\omega_3, \omega_1, \omega_2, \theta, \phi) \end{aligned} \quad (1.32)$$

1.2.6 Accord de phase

1.2.6.1 Intérêt de l'accord de phase

Dans un cristal de longueur L fixe, l'énergie générée est maximale lorsque le terme Δk est nul ; en effet, l'interaction paramétrique est constructive sur toute la longueur d'interaction dans ce cas. Inversement lorsque $\Delta k \neq 0$, il y a alternativement interférence constructive et destructive entre la polarisation non linéaire et le champ qu'elle rayonne, avec une période spatiale de $2l_c = 2\pi/\Delta k$, où l_c est appelée longueur de cohérence du processus paramétrique ; elle peut typiquement varier entre 1 et 100 μm . La figure 1.10 représente l'énergie générée en fonction de la longueur d'interaction Z , comprise entre 0 et L , dans les cas où $\Delta k = 0$ et $\Delta k \neq 0$.

La figure 1.10 montre que l'énergie générée en fonction de la longueur d'interaction Z dans le milieu est très faible et périodiquement nulle lorsque $\Delta k \neq 0$. A l'inverse, elle varie quadratiquement avec Z si $\Delta k = 0$. Il y a donc un intérêt à exploiter les conditions dites d'accord de phase, c'est-à-dire lorsque $\Delta k = 0$. A l'accord de phase, le rendement de conversion associé est maximal à la sortie d'un cristal de longueur L . Il est noté $\eta(\omega_3, L)$ et défini comme le rapport entre l'énergie générée à la pulsation ω_3 et la somme des énergies incidentes aux pulsations ω_1 et ω_2 :

$$\eta(\omega_3, L) = \frac{\mathcal{E}(\omega_3, L)}{\mathcal{E}(\omega_1, 0) + \mathcal{E}(\omega_2, 0)} \quad (1.33)$$

Pour la mesure du coefficient effectif, χ_{eff} , nous considérerons le paramètre ζ en

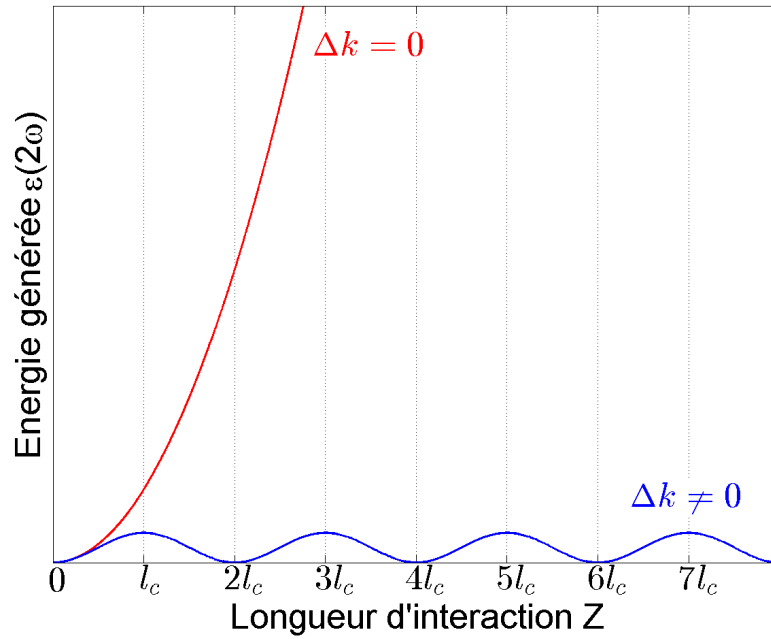


FIGURE 1.10 – Energie générée $\mathcal{E}(2\omega)$ en fonction de la longueur d'interaction Z dans le milieu. L'efficacité de conversion est bien plus importante lorsque $\Delta k = 0$.

vertu de l'équation (1.26). Il est défini comme le rapport entre l'énergie générée à la pulsation ω_3 et le produit des énergies incidentes aux pulsations ω_1 et ω_2 :

$$\zeta(\omega_3, L) = \frac{\mathcal{E}(\omega_3, L)}{\mathcal{E}(\omega_1, 0)\mathcal{E}(\omega_2, 0)} \quad (1.34)$$

1.2.6.2 Conditions d'accord de phase non colinéaire et colinéaire

A l'accord de phase, où $\Delta k = 0$, la polarisation non linéaire est en phase avec le champ qu'elle rayonne. Ce phénomène peut également être décrit d'un point de vue corpusculaire par la conservation de la quantité de mouvement des trois photons en interaction. Dans le cas général, la condition d'accord de phase est vectorielle et s'écrit :

$$\vec{\Delta k} = \vec{0} \Leftrightarrow \vec{k}^{\pm}(\omega_3, \theta, \phi) - \vec{k}^{\pm}(\omega_1, \theta, \phi) - \vec{k}^{\pm}(\omega_2, \theta, \phi) = \vec{0} \quad (1.35)$$

Elle est représentée schématiquement par la figure 1.11 où les vecteurs d'onde des trois ondes en interaction ne sont pas colinéaires. On note α_2 l'angle entre les vecteurs $\vec{k}_3 = \vec{k}^{\pm}(\omega_3, \theta, \phi)$ et $\vec{k}_2 = \vec{k}^{\pm}(\omega_2, \theta, \phi)$, et α_1 l'angle entre \vec{k}_3 et $\vec{k}_1 = \vec{k}^{\pm}(\omega_1, \theta, \phi)$.

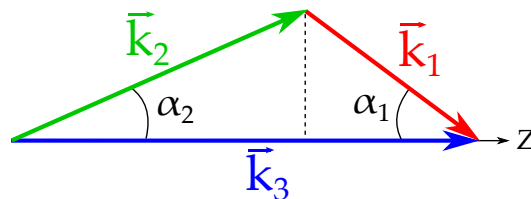


FIGURE 1.11 – Représentation schématique de la condition d'accord de phase lorsque les trois ondes sont en interaction non colinéaire.

Pour la résolution de l'équation (1.35), les vecteurs \vec{k}_1 , \vec{k}_2 et \vec{k}_3 de la figure 1.11 sont projetés sur l'axe de propagation Z . Ainsi, on obtient :

$$\Delta k = 0 \Leftrightarrow k^\pm(\omega_3, \theta, \phi) - k^\pm(\omega_1, \theta, \phi) \cos(\alpha_1) - k^\pm(\omega_2, \theta, \phi) \cos(\alpha_2) = 0 \quad (1.36)$$

L'équation (1.36) est la condition d'accord de phase non colinéaire. La projection sur l'axe perpendiculaire à Z permet d'établir une relation supplémentaire entre les angles α_1 et α_2 :

$$k^\pm(\omega_2, \theta, \phi) \sin(\alpha_2) - k^\pm(\omega_1, \theta, \phi) \sin(\alpha_1) = 0 \quad (1.37)$$

Lorsque les angles α_1 et α_2 sont nuls, les trois vecteurs \vec{k} sont colinéaires comme l'indique la figure 1.12. Cela correspond donc à un accord de phase colinéaire.

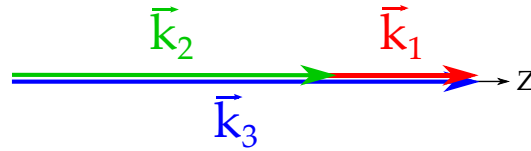


FIGURE 1.12 – Représentation schématique de la condition d'accord de phase lorsque les trois ondes sont en interaction colinéaire, c'est-à-dire lorsque $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$.

D'après l'équation (1.36) avec $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$, la condition d'accord de phase colinéaire se réduit à :

$$k^\pm(\omega_3, \theta, \phi) - k^\pm(\omega_1, \theta, \phi) - k^\pm(\omega_2, \theta, \phi) = 0 \quad (1.38)$$

1.2.6.3 Accord de phase colinéaire par biréfringence

L'accord de phase colinéaire par biréfringence correspond aux directions de propagation dans un cristal anisotrope, repérées dans le repère diélectrique par les angles (θ, ϕ) , où la biréfringence compense la dispersion des indices de réfraction principaux aux pulsations ω_1 , ω_2 et ω_3 . En utilisant le fait que $k^\pm(\omega_i, \theta, \phi) = \omega_i n^\pm(\omega_i, \theta, \phi) / c$, la relation d'accord de phase colinéaire devient :

$$\omega_3 n^\pm(\omega_3, \theta, \phi) - \omega_1 n^\pm(\omega_1, \theta, \phi) - \omega_2 n^\pm(\omega_2, \theta, \phi) = 0 \quad (1.39)$$

$n^\pm(\omega_i, \theta, \phi)$ correspond aux deux valeurs possibles de l'indice de réfraction données par l'équation (1.10). Il existe de ce fait *a priori* $2^3 = 8$ configurations différentes à même de satisfaire la condition d'accord de phase par biréfringence. Parmi elles, seulement trois configurations sont compatibles avec la conservation de la quantité de mouvement (1.39) et de l'énergie (1.21) ainsi qu'avec les relations d'ordre suivantes qui proviennent du fait que les milieux étudiés sont à dispersion "normale" (voir partie 1.1.4) [42] :

$$\begin{cases} \omega_3 > \omega_2 \geq \omega_1 \\ n^+(\omega_3, \theta, \phi) > n^+(\omega_2, \theta, \phi) \geq n^+(\omega_1, \theta, \phi) \\ n^-(\omega_3, \theta, \phi) > n^-(\omega_2, \theta, \phi) \geq n^-(\omega_1, \theta, \phi) \end{cases} \quad (1.40)$$

Il existe donc trois types d'accord de phase par biréfringence, nommés types I, II et III, correspondant aux trois configurations spécifiques de polarisation des trois ondes en interaction suivantes :

$$\text{Type I : } \quad \omega_3 n^-(\omega_3, \theta, \phi) = \omega_1 n^+(\omega_1, \theta, \phi) + \omega_2 n^+(\omega_2, \theta, \phi) \quad (1.41)$$

$$\text{Type II : } \quad \omega_3 n^-(\omega_3, \theta, \phi) = \omega_1 n^-(\omega_1, \theta, \phi) + \omega_2 n^+(\omega_2, \theta, \phi) \quad (1.42)$$

$$\text{Type III : } \quad \omega_3 n^-(\omega_3, \theta, \phi) = \omega_1 n^+(\omega_1, \theta, \phi) + \omega_2 n^-(\omega_2, \theta, \phi) \quad (1.43)$$

Ces trois conditions d'accord de phase sont valables aussi bien pour les processus de SFG (et SHG) que de DFG avec la convention suivante : le type I correspond au cas où les ondes à ω_1 et ω_2 ont la même polarisation (équation (1.41)), alors que pour les types II et III, elles n'ont pas la même polarisation (équations (1.42) et (1.43)). Notons que pour un processus de SHG ($\omega_1 = \omega_2 = \omega$, $\omega_3 = 2\omega$), les types II et III sont équivalents.

Les expériences réalisées dans le cadre de ce travail portant uniquement sur l'accord de phase par biréfringence, nous ne détaillerons pas ici les autres moyens d'obtenir l'accord de phase, comme le quasi-accord de phase [43, 44].

1.2.6.4 Acceptances

La condition d'accord de phase colinéaire par biréfringence $\Delta k = 0$ est réalisée selon une direction particulière (θ_{PM}, ϕ_{PM}) (où PM correspond à *Phase-Matching* pour accord de phase en anglais) pour un jeu de pulsations ($\omega_1, \omega_2, \omega_3$) et donc un jeu de longueurs d'onde ($\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$) donnés. Il est important de connaître l'effet d'une variation de Δk par rapport à la valeur $\Delta k(\xi_{PM}) = 0$, variation due à un écart angulaire ($\theta_{PM} \pm \Delta\theta_{PM}, \phi_{PM} \pm \Delta\phi_{PM}$) ou spectral ($\lambda_i^{PM} \pm \Delta\lambda_i^{PM}$) autour du "point" d'accord de phase ($\lambda_i^{PM}, \theta_{PM}, \phi_{PM}$). La variation correspondante de l'énergie générée normalisée par rapport à sa valeur maximale est proportionnelle à $\text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)$ comme le montre la figure 1.13. L'acceptance est une grandeur qui caractérise l'effet de ces variations, notée $L\delta\xi$ où $\xi = \lambda_i, \theta, \phi$. $\delta\xi$ correspond à la largeur à 0,405 du maximum du pic de la fonction représentée dans la figure 1.13 : c'est aussi l'écart entre l'origine et le premier zéro de la fonction, qui correspond à une variation de Δk entre 0 et $2\pi/L$.

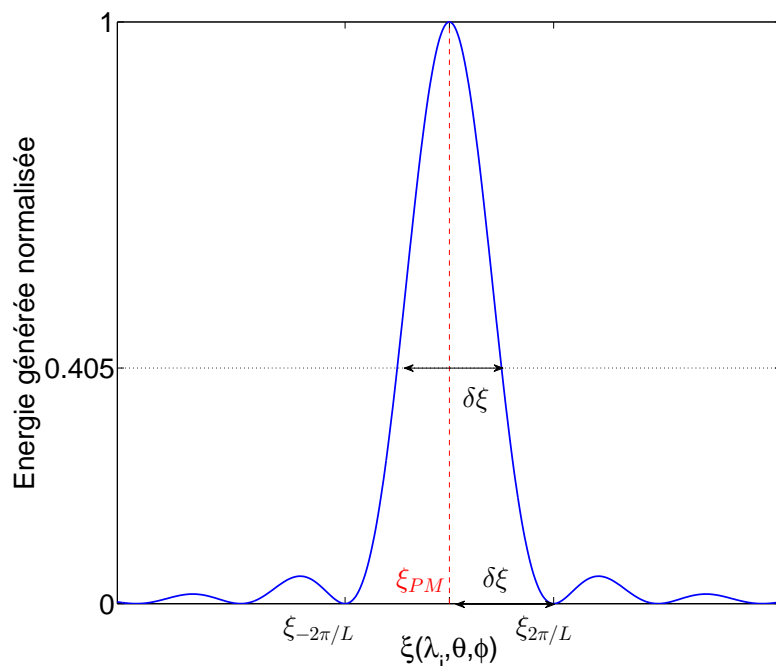


FIGURE 1.13 – Variation de l'énergie générée normalisée par rapport à sa valeur maximale, en fonction du paramètre $\xi = \lambda_i, \theta, \phi$. $\delta\xi$ est la largeur de la courbe à 0,405 du maximum. $\xi_{\pm 2\pi/L}$ correspond à ξ pour lequel $\Delta k = \pm 2\pi/L$.

L'acceptance $L\delta\xi$ peut être calculée en écrivant le terme Δk sous la forme d'une série de Taylor autour de la valeur ξ_{PM} [32] :

$$\Delta k(\xi_{PM}) = \frac{2\pi}{L} = \delta\xi \left. \frac{\partial \Delta k}{\partial \xi} \right|_{\xi=\xi_{PM}} + \frac{1}{2}(\delta\xi)^2 \left. \frac{\partial^2 \Delta k}{\partial \xi^2} \right|_{\xi=\xi_{PM}} + \dots \quad (1.44)$$

Dans le cas où le terme du premier ordre est prédominant, l'accord de phase est dit "critique" et l'acceptance $L\delta\xi$ s'écrit :

$$L\delta\xi = \frac{2\pi}{\left. \frac{\partial \Delta k}{\partial \xi} \right|_{\xi=\xi_{PM}}} \quad (1.45)$$

Si maintenant le terme du premier ordre est nul, alors le terme du second ordre domine, et l'accord de phase est dit non critique (NCPM). Dans ce cas, l'acceptance $L\delta\xi$ s'écrit :

$$L\delta\xi = \sqrt{\frac{4\pi L}{\left. \frac{\partial^2 \Delta k}{\partial \xi^2} \right|_{\xi=\xi_{PM}}}} \quad (1.46)$$

1.2.6.5 Effet de l'angle de double réfraction

La réalisation de l'accord de phase par biréfringence nécessitant l'utilisation de cristaux optiquement anisotropes, il faut prendre en considération l'effet de l'angle de double réfraction $\rho(\omega, \theta, \phi)$ (voir partie 1.1.6) qui peut affecter le rendement de conver-

sion η et également le paramètre ζ . En effet, les ondes incidentes vont interagir uniquement sur un volume restreint à cause de leur séparation spatiale lors de la propagation dans le cristal de longueur L . La figure 1.14 montre l'effet de l'angle de double réfraction dans une configuration de génération de second harmonique (SHG) de type II pour une direction de propagation quelconque dans un cristal uniaxe ou dans les plans principaux d'un cristal biaxe.

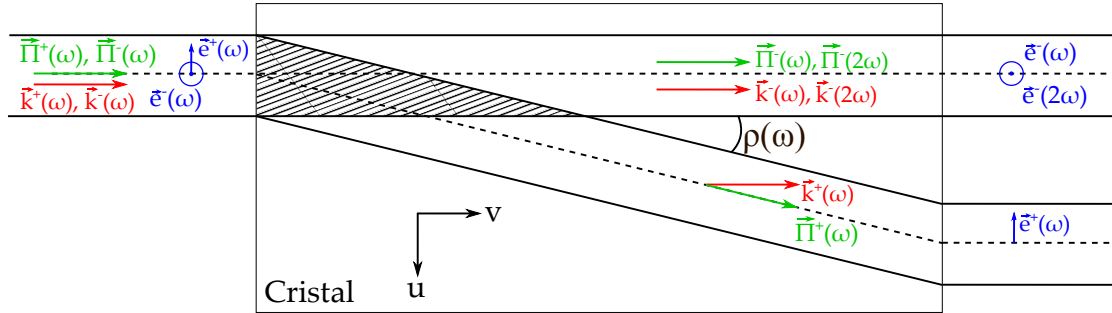


FIGURE 1.14 – Séparation spatiale entre les faisceaux à la pulsation fondamentale ω dans le cas de la SHG de type II.

Il est possible de calculer le coefficient d'atténuation $G(L, w_0, \rho)$ dû au phénomène de double réfraction qui s'écrit en SHG de types I et II [32, 45] :

$$\text{Type I : } G_I(t) = \frac{\sqrt{\pi}}{t} \operatorname{erf}(t) - \frac{1}{t^2} [1 - \exp(-t^2)] \quad (1.47)$$

$$\text{Type II : } \begin{cases} G_{II}(t) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} F^2(a, t) da \\ \text{où} \\ F(a, t) = \frac{1}{t} \exp(-a^2) \int_0^t \exp[-(a + \tau)^2] d\tau \end{cases} \quad (1.48)$$

avec : $t = \frac{\rho L}{w_0}$, $a = \frac{u}{w_0}$ et $\tau = \frac{\rho v}{w_0}$, où u et v sont les coordonnées cartésiennes dans le plan qui contient l'angle de double réfraction (voir figure 1.14).

Le facteur G est évidemment égal à 1 lorsque l'angle de double réfraction ρ est rigoureusement nul, et c'est le cas lorsque l'accord de phase est non critique en angle, c'est-à-dire pour une propagation selon un des axes principaux du repère diélectrique. C'est aussi le cas pour toutes les directions de propagation du plan principal $x - y$ d'un cristal uniaxe. Hormis ces cas, les faisceaux subissent le phénomène de double réfraction qui limite la longueur effective de l'interaction quadratique non linéaire.

CONCLUSION

En conclusion, les éléments décrits dans ce chapitre ont montré l'importance de travailler aux pulsations se situant dans le domaine de transparence des matériaux étu-

diés. De plus, lorsque l'amplitude du champ électrique exciteur devient suffisamment importante, la polarisation induite ne dépend plus linéairement du champ électrique, de sorte que de nouvelles pulsations peuvent être générées. Ce phénomène correspond à des processus non linéaires quadratiques tels que la somme et la différence de fréquences qui sont au coeur de cette thèse.

Le coefficient effectif est un paramètre important à prendre en compte car il peut s'annuler à cause des symétries du matériau étudié, rendant nul le rendement de conversion. Ce dernier est d'autant plus important que l'amplitude du coefficient non linéaire effectif χ_{eff} est grande.

Il a également été rappelé que le rendement de conversion est maximal lorsque la polarisation non linéaire est en phase avec le champ qu'elle rayonne, c'est-à-dire lorsque l'accord de phase est réalisé. L'accord de phase par biréfringence correspond à la situation où la dispersion des indices de réfraction est exactement compensée par la biréfringence d'un matériau anisotrope. C'est donc finalement l'optique cristalline linéaire qui pilote les conditions d'accord de phase du milieu cristallin.

Enfin, une onde électromagnétique se propageant dans un cristal anisotrope peut subir un effet de double réfraction qui est indésirable lors d'expériences d'optique non linéaire car le rendement de conversion en est amoindri.

Le chapitre suivant aborde les éléments de méthodologie expérimentale correspondant aux fondements théoriques présentés dans ce chapitre.

CHAPITRE

2

ÉLÉMENTS DE MÉTHODOLOGIE EXPÉRIMENTALE

INTRODUCTION

Ce chapitre décrit les méthodes expérimentales employées au cours de la thèse, ainsi que le matériel utilisé pour parvenir à une caractérisation des propriétés optiques de cristaux avec une très grande précision.

Il développe d'abord l'usinage des échantillons sous forme de lames ou de sphères ainsi que leur orientation. Viennent ensuite le fonctionnement des trois sources paramétriques utilisées, les éléments optiques pour le contrôle de la polarisation ainsi que les différents systèmes de détection.

Dans un second temps, certaines techniques de mesure des propriétés optiques sont décrites. En particulier, l'orientation entre les repères cristallographique et diélectrique, et l'orientation du repère diélectrique en fonction de la longueur d'onde sont abordées. Ces deux informations sont obtenues en associant la méthode conoscopique, celle de Malus récemment développée dans l'équipe, et la méthode de Laue basée sur la diffraction des rayons X. De plus, les mesures du domaine de transparence et du seuil de dommage optique sont évoquées. Celles des directions d'accord de phase ainsi que des rendements de conversion et acceptances associés sont détaillées.

Nous présentons enfin la méthode de la sphère, conçue et développée de longue date dans l'équipe. Elle permet la mesure directe d'un grand nombre de propriétés telles que la position des axes optiques d'un cristal biaxe, l'orientation du repère diélectrique,

l'angle de double réfraction, les directions d'accord de phase ainsi que les rendements de conversion et acceptances associés.

Le chapitre se termine par l'analyse de ces mesures directes réalisées sur sphère dans le but d'affiner les équations de dispersion des indices de réfraction principaux du cristal non linéaire étudié. D'autre part, la caractérisation complète de son tenseur de susceptibilité électrique du second ordre est également présentée.

2.1 MISE EN FORME DES ÉCHANTILLONS

Trois géométries d'échantillons orientés sont généralement considérées dans l'équipe : la lame, le cylindre et la sphère. Seules les lames et les sphères ont été étudiées dans cette thèse. Pour l'usinage et le polissage d'échantillons sous forme cylindrique ou partiellement cylindrique, le lecteur peut se référer à [46, 47]. La procédure de mise en forme diffère légèrement suivant la géométrie des échantillons souhaitée. Si l'orientation préliminaire est importante pour les lames, elle ne l'est pas pour les sphères dont le caractère isotrope de la forme renvoie les opérations d'orientation *a posteriori*.

Au-delà des aspects de forme traités au cours de la phase de rodage, le polissage est une étape primordiale pour chaque géométrie. L'état de surface, et plus spécifiquement une surface de faible rugosité, sont essentiels à la tenue au flux laser de l'échantillon. Effectivement, un unique défaut de surface (pique, rayure, fracture) peut engendrer, au même titre qu'un mauvais nettoyage, une focalisation ou une absorption localisée du faisceau incident qui conduit à l'endommagement irréversible du cristal. Notons que, suivant la dureté et la qualité cristalline des matériaux, un rodage et un polissage plus ou moins complexes doivent être mis en œuvre.

2.1.1 lame

Les échantillons taillés sous forme de lame sont les plus couramment rencontrés car ils sont simples à mettre en forme, les procédés d'usinage plan étant les mieux maîtrisés généralement. Les lames étudiées dans cette thèse sont orientées et le plus souvent taillées perpendiculairement à la direction d'un axe principal du repère diélectrique x , y ou z . Cependant, le protocole décrit ci-après est similaire pour la préparation d'une lame orientée dans une direction quelconque (θ, ϕ) .

La mise en œuvre de la méthode de Laue, basée sur la diffraction des rayons X, et l'utilisation d'un diffractomètre monochromatique donnent accès à l'orientation du repère cristallographique de l'échantillon. L'orientation entre les repères cristallographique et diélectrique est généralement connue et tous les cas possibles ont été discutés dans la partie 1.1.1.2. Si les deux repères sont orthogonaux, ils sont confondus et l'accès

au repère diélectrique est direct par la diffraction des rayons X avec une précision de $0,05^\circ$. Si les deux repères sont liés par un ou deux axes seulement, la diffraction des rayons X doit être couplée à la méthode conoscopique, qui sera décrite dans la partie 2.3.1.1, afin de déterminer, avec une moins bonne précision, l'orientation entre les deux repères.

Dans un premier temps, il est plus habile de choisir un volume utile du cristal c'est-à-dire qui soit exempt de défauts : des études par strioscopie ou ombroscopie [48] peuvent amener à sélectionner ce volume. En effet, la présence de défauts de type "crack", impureté ou bulle, peut affecter le rendement de conversion ou même localement les propriétés du matériau, en influant sur les valeurs des indices de réfraction par exemple.

Le cristal est collé sur un support goniométrique qui possède deux axes de rotation de sorte que l'orientation de l'échantillon puisse être ajustée finement. Ce support est adapté au transfert du cristal depuis son étude par la méthode de Laue vers sa découpe réalisée par une scie à fil diamanté. La découpe permet d'obtenir la première face d'une lame orientée dans la direction visée avec une précision inférieure à $0,5^\circ$. Cette première face sert de référence pour la suite des opérations.

En effet, la face de référence est collée à une tête de polissage qui permet un positionnement angulaire à $0,01^\circ$ près. A l'aide d'une polisseuse automatique PM5 (Logitech), le rodage puis le polissage d'une face parallèle à celle de référence sont effectués en utilisant des plateaux différents et des abrasifs de plus en plus fins (de quelques dizaines de μm à quelques dixièmes de μm) pour atteindre un poli dit "optique" (la rugosité étant inférieure à $\lambda/10$). Lorsque le poli optique est obtenu pour cette face, la face de référence est polie à son tour.

La lame orientée avec deux faces parallèles et polies ainsi réalisée est collée sur une pinnule insérée dans une tête goniométrique qui sert de support pour les mesures optiques.

2.1.2 Sphère

Comme décrit en préambule, les échantillons taillés sous forme de sphère ne nécessitent pas d'opération préalable d'orientation. Par contre, la sélection du volume utile est primordiale, le but étant d'extraire d'abord un cube de la meilleure qualité possible. Ce diagnostic procède par des caractérisations volumiques telles que la microscopie, la strioscopie [48] ou encore la topographie X [49], sans se soucier de l'orientation du cristal.

La méthode de mise en forme présentée dans cette partie a été mise au point dans l'équipe. Le cube sélectionné est réduit à un polyèdre régulier à 26 faces par abrasion des 12 arêtes et des 8 sommets (voir figure 2.1(a)). Collé sur un support et mis en rotation, il est mis en forme par rodage avec un papier abrasif (figure 2.1(b)), puis avec un plateau de forme hémisphérique et des solutions d'alumine de granulométrie décroissante (de quelques dizaines de μm à quelques dixièmes de μm). La figure 2.1(c) montre une photographie du cristal de BGSe étudié pendant cette thèse, dont la forme est intermédiaire entre un polyèdre et une sphère de diamètre $D=7,55$ mm. La forme finale sphérique est atteinte quand l'asphéricité ($\Delta D/D$) est inférieure au pour cent, de sorte que l'étape de polissage peut être abordée jusqu'au poli optique.

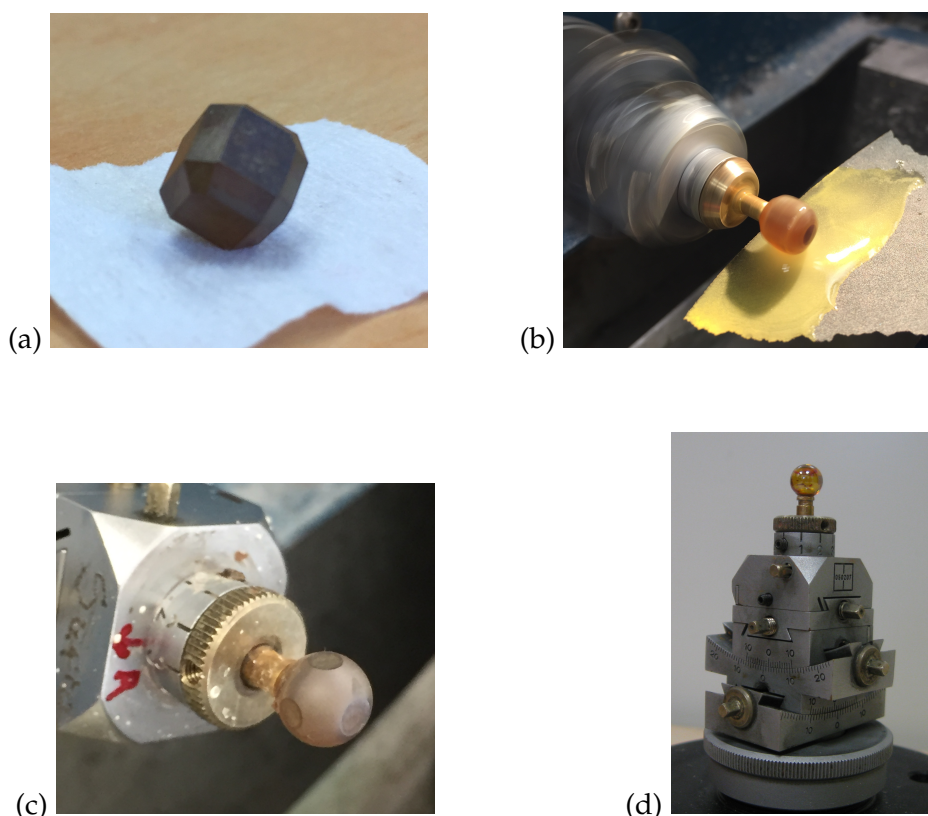


FIGURE 2.1 – Les différentes étapes de la mise en forme : (a-c) d'un polyèdre à (d) une sphère orientée polie à la qualité optique et montée sur une tête goniométrique pour son étude.

Une fois que la sphère est complètement polie, elle est transférée sur une tête goniométrique (figure 2.1(d)), mettant la méthode de Laue à profit afin que l'orientation finale de la sphère, qui sera décrite dans la partie 2.4.1.1, soit réalisée.

2.2 SOURCES PARAMÉTRIQUES ET DÉTECTION

Toutes les méthodes de mesure présentées dans ce chapitre nécessitent d'abord l'utilisation d'un laser continu Hélium-Néon (He-Ne), émettant à $0,633 \mu\text{m}$, que ce soit pour l'alignement des éléments optiques ou pour les mesures préliminaires. Ce sont

ensuite des sources paramétriques impulsives de haute énergie par impulsion et accordables en longueur d'onde qui sont employées. Leur accordabilité est primordiale pour l'étude de la dispersion des propriétés optiques des matériaux. Elles produisent de fortes intensités lumineuses qui permettent que les processus non linéaires quadratiques, présentés dans la partie 1.2.2, soient observables et mesurables. Les trois sources présentées dans les trois paragraphes suivants, elles-mêmes basées sur des processus quadratiques de conversion de fréquence dans des cristaux non linéaires, délivrent des faisceaux polarisés linéairement. Les deux derniers paragraphes sont consacrés aux éléments utilisés pour le contrôle de la polarisation et la détection lors des mesures de propriétés optiques.

2.2.1 Oscillateur paramétrique optique en régime nanoseconde

Comme nous l'avons vu dans la partie 1.2.2, le principe d'un oscillateur paramétrique optique (OPO) repose sur un cristal à propriétés optiques non linéaires du second ordre placé dans une cavité et dans lequel a lieu une succession de scissions spontanées et stimulées de photons (voir partie 1.2.2). Pompé à la longueur d'onde λ_p , l'OPO génère deux faisceaux de longueurs d'onde λ_s (signal) et λ_i (idler), reliées par la conservation d'énergie $\lambda_s^{-1} + \lambda_i^{-1} = \lambda_p^{-1}$ (voir équation (1.21)).

Notre OPO, commercialisé par la société Continuum, utilise un laser Nd:YAG émettant des impulsions de 10 ns (largeur à mi-hauteur) à $\lambda_0 = 1,064 \mu\text{m}$, avec un taux de répétition de 10 Hz. Ce faisceau est alors doublé puis triplé en fréquence à l'aide de deux cristaux de KDP pour générer un faisceau à la longueur d'onde $\lambda_p = 0,355 \mu\text{m}$ qui sert à pomper l'OPO. L'ensemble forme une source paramétrique dont le principe de fonctionnement est schématisé dans la figure 2.2.

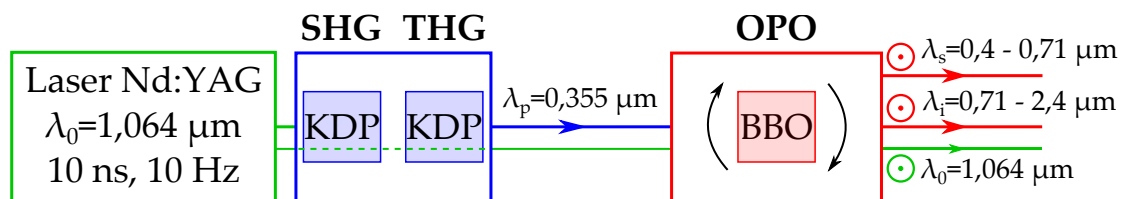


FIGURE 2.2 – Schéma de principe de l'oscillateur paramétrique optique en régime nanoseconde.

Basé sur un cristal de BBO, l'OPO est accordable entre 0,4 et 2,4 μm : la longueur d'onde λ_s (signal) s'étend de 0,4 à 0,71 μm alors que λ_i (idler) est comprise entre 0,71 et 2,4 μm . Les longueurs d'onde λ_s et λ_i sont accordées continûment par la rotation motorisée du cristal de BBO. Les faisceaux générés par l'OPO sont polarisés linéairement comme indiqué dans la figure 2.2 : le symbole \odot correspond à un état de polarisation vertical, c'est-à-dire perpendiculaire au plan d'incidence. L'énergie totale générée maximale est de l'ordre de 10 mJ mais elle varie avec la longueur d'onde ; la largeur spectrale varie de quelques nanomètres à plusieurs dizaines de nanomètres lorsque la longueur

d'onde s'approche de la dégénérescence de l'OPO où $\lambda_i = \lambda_s = 2\lambda_p = 0,71\mu\text{m}$.

Cette source paramétrique permet, par exemple, de réaliser des mesures de génération de second harmonique (SHG) dans un cristal non linéaire si le faisceau accordable est utilisé seul. Il est aussi possible d'utiliser une partie résiduelle du faisceau à $1,064\mu\text{m}$, transmise par les deux cristaux de KDP, pour réaliser de la somme (SFG) ou différence de fréquences (DFG) dans le cristal non linéaire à l'étude. Pour cela, la partie résiduelle est recombinaisonnée avec le faisceau accordable de l'OPO par le biais d'une lame dichroïque.

2.2.2 Générateur paramétrique optique en régime picoseconde

Nous avons également utilisé un générateur paramétrique optique (OPG) en régime picoseconde. La seule différence avec l'OPO en régime nanoseconde est que l'interaction paramétrique n'est pas résonante (voir partie 1.2.2). Cependant, elle est amplifiée par plusieurs passages du faisceau pompe dans un cristal non linéaire, grâce à des miroirs.

Notre OPG, commercialisé par les sociétés Excel Technology et Light Conversion, utilise un laser Nd :YAG, émettant des impulsions de 15 ps à $\lambda_0 = 1,064\mu\text{m}$ avec une fréquence de répétition de 10 Hz. Son principe de fonctionnement est présenté dans la figure 2.3.

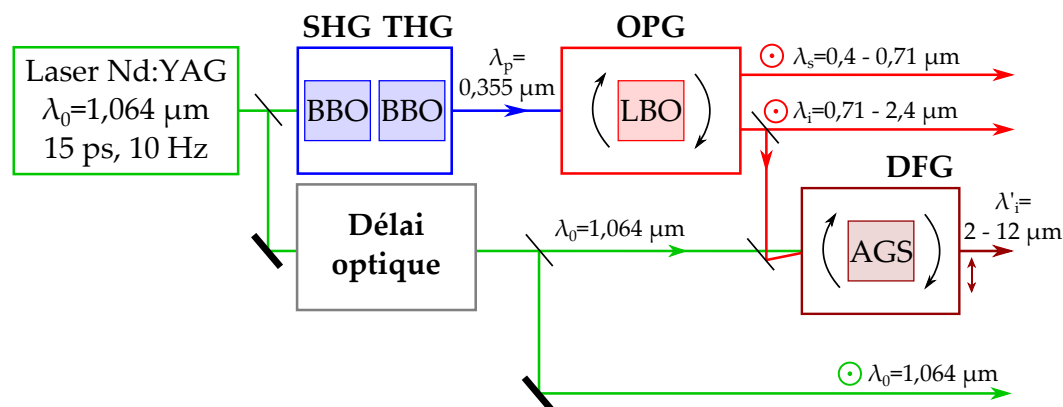


FIGURE 2.3 – Schéma de principe du générateur paramétrique optique en régime picoseconde.

Le laser Nd :YAG génère un faisceau intense à $1,064\mu\text{m}$ d'environ 40 mJ qui est séparé en deux parties : 25% traversent un délai optique tandis que les 75% restants traversent deux cristaux de BBO qui permettent de réaliser successivement une SHG et une THG, pour générer un faisceau à $0,355\mu\text{m}$. Ces deux cristaux de BBO jouent le même rôle que les cristaux de KDP de la source nanoseconde décrite dans la partie 2.2.1. L'OPG, constitué d'un cristal de LBO dont la rotation est motorisée, est pompé par le faisceau à $\lambda_p = 0,355\mu\text{m}$ avec une énergie par impulsion d'environ 7 mJ. Il délivre un faisceau accordable entre $0,4$ et $2,4\mu\text{m}$ avec une énergie par impulsion comprise

entre 80 et 500 μJ en fonction de la longueur d'onde λ_s qui varie de 0,4 à 0,71 μm , et de la longueur d'onde λ_i comprise entre 0,71 et 2,4 μm . Cette gamme d'émission est donc la même que celle de l'OPO en régime nanoseconde. Mais avec l'OPG, de plus grandes longueurs d'onde sont accessibles en réalisant de la différence de fréquences non colinéaire (DFG) dans un cristal de AgGaS_2 (AGS) entre le faisceau idler issu de l'OPG ($\lambda_i=0,71 - 2,4 \mu\text{m}$) et les 25% d'énergie prélevée au faisceau à $\lambda_0 = 1,064 \mu\text{m}$ (voir figure 2.3). Cela implique qu'ils aient traversé aussi un délai optique afin que leur chemin optique soit égal. En effet, contrairement au régime nanoseconde où l'extension spatiale d'une impulsion est de l'ordre de 3 m, elle est réduite à 4,5 mm pour une impulsion de 15 ps : le recouvrement temporel des faisceaux doit alors être pris en compte et il doit être contrôlé par un délai optique, constitué ici de plusieurs miroirs. Le faisceau généré par DFG, dont la longueur d'onde est notée λ'_i , est accordable entre 2 et 12 μm . La largeur spectrale ne dépasse pas 3 nm, quelle que soit la longueur d'onde. La figure 2.3 indique les états de polarisation rectilignes de tous les faisceaux générés par l'OPG et l'étage DFG : le symbole \updownarrow correspond à une polarisation horizontale, c'est-à-dire dans le plan d'incidence de l'expérience.

Le faisceau accordable entre 0,4 et 12 μm peut être utilisé pour réaliser des mesures de SHG dans un nouveau cristal non linéaire à l'étude. Il est possible aussi de prélever une partie du faisceau initial à 1,064 μm et de le combiner avec le faisceau idler accordable entre 0,71 et 2,4 μm pour réaliser des mesures de SFG ou DFG directement dans le cristal. Le recouvrement temporel des faisceaux doit alors à nouveau être contrôlé à l'aide d'un délai optique. Nous avons opté pour un prisme monté sur une translation qui permet d'ajuster la longueur des chemins optiques : le "délai zéro", qui correspond à la coïncidence temporelle et spatiale optimale de deux impulsions, est d'abord obtenu dans un cristal de KTP dans lequel un processus de SFG est réalisé. Le choix d'une interaction de type II, où les deux faisceaux sont polarisés perpendiculairement l'un par rapport à l'autre dans le cristal de KTP, permet de valider sans ambiguïté le "délai zéro". En effet, la SFG de type II est observée uniquement quand les deux impulsions sont recouvertes temporellement et spatialement et elle est maximale lorsque le "délai zéro" est atteint.

2.2.3 Oscillateurs paramétriques optiques cylindriques en régime nanoseconde

Nous avons utilisé une troisième source qui fonctionne en régime nanoseconde et qui a été développée récemment dans l'équipe [46]. Elle est basée sur les mêmes processus quadratiques que les deux précédentes. Elle est constituée de deux OPO identiques et accordables indépendamment l'un de l'autre, ces deux OPO étant pompés simultanément par le même faisceau. Chaque OPO est constitué d'un cristal périodiquement polé de Niobate de Lithium dopé à l'oxyde de Magnésium (5%MgO :PPLN) et taillé sous la forme d'un cylindre partiel [46, 50]. Le montage optique de cette source

est présenté dans la figure 2.4.

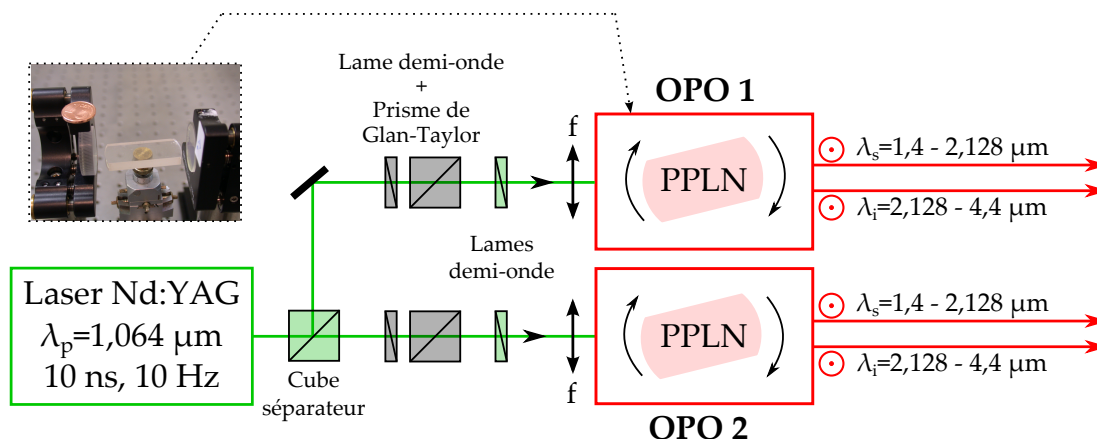


FIGURE 2.4 – Schéma de principe des deux oscillateurs paramétriques optiques constitués de cylindres partiels. Ils ont identiques mais indépendants, avec $\lambda_p = 1,064 \mu\text{m}$.

Elle est composée d'un laser Nd :YAG, commercialisé par la société Excel Technology, qui émet des impulsions de 10 ns à $\lambda_p = 1,064 \mu\text{m}$ avec un taux de répétition de 10 Hz. Il sert simultanément de laser de pompe aux deux OPO. Pour cela, un cube séparateur permet de diviser le faisceau pompe en deux faisceaux qui sont focalisés dans chaque cylindre partiel inséré entre deux miroirs plans. L'intensité des faisceaux pompe est continûment contrôlée grâce à la combinaison d'une lame demi-onde et d'un polariseur de type prisme de Glan-Taylor. Leur polarisation est ajustée par une deuxième lame demi-onde placée après le prisme de Glan-Taylor (voir figure 2.4).

La rotation du cylindre partiel de chaque OPO permet de générer des faisceaux continûment accordables de longueurs d'onde λ_s comprise entre 1,4 et 2,128 μm et λ_i entre 2,128 et 4,4 μm . Ils sont complètement indépendants et polarisés verticalement. Ils peuvent être spatialement recombinaés grâce à une lame dichroïque. Ils ont l'avantage de pouvoir émettre des longueurs d'onde très proches, et par conséquent de permettre l'étude de la SFG ou DFG sur une très large gamme de longueur d'onde dans le cristal à l'étude.

L'énergie par impulsion générée par cette source paramétrique varie entre 0,6 et 1,4 mJ en fonction de la longueur d'onde, pour une énergie de pompe de 5 mJ. La largeur spectrale n'est pas optimisée dans la version actuelle. Elle peut atteindre 40 nm à la dégénérescence quand $\lambda_s = \lambda_i = 2,128 \mu\text{m}$, mais elle demeure inférieure à 20 nm pour les longueurs d'onde éloignées de 2,128 μm .

La longueur d'onde générée par cette source est systématiquement mesurée en exploitant le fait que chaque OPO émet des longueurs d'onde parasites [46, 50]. Quatre

d'entre elles sont mesurées avec un spectromètre fibré (OceanOptics) dont la sensibilité spectrale est comprise entre 0,2 et 1,1 μm , avec une précision de 0,3 nm :

- $\lambda_1 = \lambda_p/2 = 0,532 \mu\text{m}$: SHG du faisceau pompe ($\lambda_p = 1,064 \mu\text{m}$).
- $\lambda_2 = \lambda_s/2$: SHG du faisceau signal.
- $\lambda_3 = (\lambda_s^{-1} + \lambda_p^{-1})^{-1}$: SFG entre les faisceaux signal et pompe.
- $\lambda_4 = (\lambda_i^{-1} + \lambda_p^{-1})^{-1}$: SFG entre les faisceaux idler et pompe.

Si la longueur d'onde λ_1 est constante, les trois autres évoluent avec l'orientation des cylindres partiels. La mesure des trois longueurs d'onde générées λ_2 , λ_3 et λ_4 permet donc, à partir des égalités précédentes, d'en déduire la valeur de la longueur d'onde λ_i de l'idler et λ_s du signal à la sortie de chaque OPO [46].

2.2.4 Contrôle de la polarisation

Comme nous avons vu dans la partie 1.2.6, les trois types d'accord de phase (types I, II et III) possibles dans un cristal non linéaire biréfringent correspondent à trois configurations différentes de polarisation des faisceaux en interaction. L'état de polarisation des faisceaux de chaque source paramétrique utilisée étant imposé (voir figures 2.2, 2.3 et 2.4), il faut contrôler leur polarisation avec une lame demi-onde achromatique. Cette dernière est en effet capable de tourner la polarisation sur une grande gamme spectrale, typiquement de l'ordre de 1 μm . De ce fait, plusieurs lames demi-onde achromatiques ont été utilisées entre 1 et 2 μm , entre 2 et 3 μm et enfin entre 3 et 4 μm . En dehors de ces gammes spectrales, l'échantillon a dû être tourné sur lui-même dans le plan perpendiculaire aux faisceaux incidents.

2.2.5 Détection

Les longueurs d'onde incidentes ou générées sont mesurées avec deux spectromètres fibrés (OceanOptics) : le HR4000 de sensibilité spectrale comprise entre 0,2 et 1,1 μm avec une précision de 0,3 nm et le NIRQuest sensible entre 0,9 et 1,7 μm à 3 nm près.

Pour la mesure de l'énergie de chacun des faisceaux incidents, des détecteurs joulemètres pyroélectriques (Ophir PE50 et PE10) suffisamment robustes pour mesurer de hautes énergies ont été utilisés. Des roues de densités optiques fonctionnant pour les longueurs d'onde du visible et de l'infrarouge ont permis d'atténuer les faisceaux générés par les sources paramétriques. Une alternative a été de combiner une lame demi-onde à un prisme de Glan-Taylor, comme indiqué dans la figure 2.4, afin de contrôler de manière continue l'énergie des faisceaux. Des densités optiques ont également été placées devant les détecteurs afin qu'ils ne fonctionnent pas en régime de saturation et que leur réponse reste proportionnelle à l'effet observé.

Différents détecteurs sensibles dans le visible et l'infrarouge ont été utilisés pour la mesure des énergies incidentes et générées :

- joulemètre pyroélectrique (Molelectron J4-09) pour mesurer l'énergie des faisceaux incidents quel que soit le processus étudié. Sa réponse spectrale est relativement constante entre 0,2 et 100 μm ;
- photodiode InSb refroidie à l'azote pour la mesure de l'énergie des faisceaux générés par SFG ou DFG dans le cristal, entre 1 et 5,5 μm ;
- détecteur photoélectromagnétique HgCdTe non refroidi (Vigo) pour la détection des faisceaux générés par DFG entre 2 et 12 μm ;
- joulemètre pyroélectrique (Molelectron J3-05) combiné à un amplificateur (PEM531) pour la mesure des faisceaux générés. Sa sensibilité spectrale est identique à celle du joulemètre pyroélectrique Molelectron J4-09. Il était particulièrement adapté quand l'énergie des faisceaux générés était trop faible pour utiliser les détecteurs InSb et HgCdTe.

Etant donné la grande plage spectrale de sensibilité de nos détecteurs, il a été nécessaire de les associer à des filtres avec des transmissions spécifiques afin de détecter uniquement les longueurs d'onde des faisceaux générés par le cristal non linéaire. Le tableau 2.1 résume les différents filtres utilisés avec les gammes de transmission correspondantes.

Filtre	Transmission
Notch (1064)	$0,800 < \lambda < 1,031 \mu\text{m}$ et $1,097 < \lambda < 1,400 \mu\text{m}$
KDP	$0,2 < \lambda < 1,6 \mu\text{m}$
Verre (BK7)	$0,3 < \lambda < 2,7 \mu\text{m}$
Saphir	$0,2 < \lambda < 6,5 \mu\text{m}$
Prisme Glan-Taylor	Polariseur ($0,3 < \lambda < 2,7 \mu\text{m}$)
Germanium (traité)	$2,4 < \lambda < 4,8 \mu\text{m}$
Germanium (traité)	$3,6 < \lambda < 7,2 \mu\text{m}$
Germanium (traité)	$7,3 < \lambda < 14,6 \mu\text{m}$

TABLE 2.1 – Différents filtres utilisés pour la détection et leurs gammes de transmission associées.

2.3 MESURE DES PROPRIÉTÉS OPTIQUES SUR LAME

2.3.1 Orientation du repère diélectrique

Nous avons vu dans la partie 1.1.1.2 que l'orientation entre les repères cristallographique et diélectrique dépend du système cristallin auquel appartient le matériau étudié. Cette orientation doit être connue, en particulier pour la préparation de lames orientées (voir partie 2.1.1). La méthode conoscopique permet de déterminer l'orientation du repère diélectrique. Cette information est particulièrement importante pour le repère diélectrique des cristaux monocliniques, qui a la particularité de tourner en

fonction de la longueur d'onde (cf. partie 1.1.1.2). En effet, contrairement au repère cristallographique qui est fixe, une variation des paramètres dispersifs de l'indice de réfraction (tels que la longueur d'onde, la température, etc...) induit une rotation du repère diélectrique [51]. Ce phénomène peut aussi être caractérisé par la conoscopie, mais la précision n'est que de l'ordre du degré. Pour gagner presque un ordre de grandeur, une autre méthode a été récemment développée dans l'équipe, sur la base de la loi de Malus [52]. Elle est décrite après un rappel sur la méthode conoscopique.

2.3.1.1 Méthode conoscopique

La microscopie en éclairage conoscopique consiste à illuminer un échantillon avec un faisceau lumineux monochromatique polarisé et très convergent. L'objectif est d'explorer sous différents angles le cristal taillé sous forme de lame et positionné entre un polariseur et un analyseur, qui sont parallèles et/ou croisés. Dans cette configuration, des interférences se forment à l'infini et peuvent être imagées à l'aide d'une lentille dite de Bertrand [53]. La figure d'interférence est composée de motifs de même intensité lumineuse, appelés *isogyres*. Suivant l'orientation (θ, ϕ) dans le repère diélectrique de la lame préparée, différentes figures d'interférence sont observées, dont l'explication théorique est donnée par exemple dans la réf. [53]. La figure 2.5 montre des figures de conoscopie observées à travers une lame d'un cristal biaxe, taillée perpendiculairement à l'axe diélectrique y (à gauche), et à l'axe x ou z (à droite).

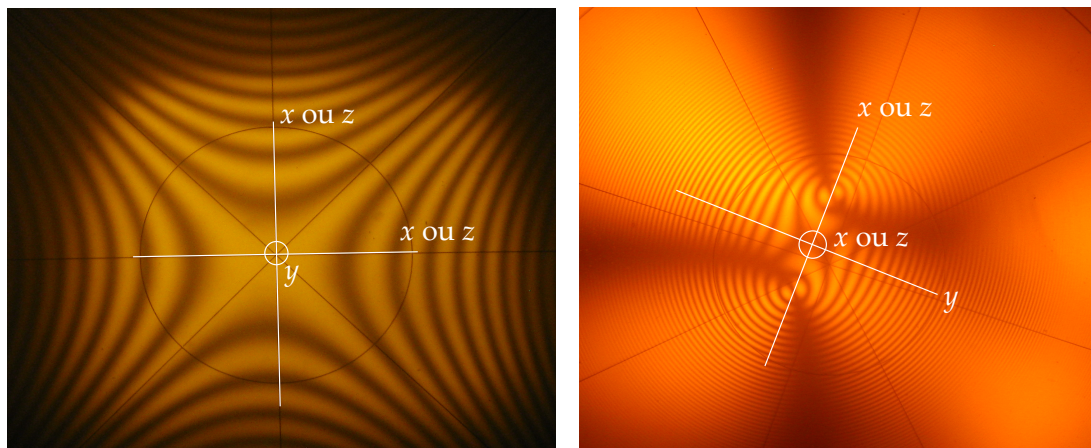


FIGURE 2.5 – Figures de conoscopie observées à travers un cristal biaxe taillé en forme de lame, orientée perpendiculairement à l'axe y du repère diélectrique (à gauche), et à l'axe x ou z (à droite).

L'image de gauche est constituée de quatre hyperboles : les deux axes de symétrie de la figure correspondent donc aux axes x et z [54], qu'on ne peut pas différencier. Quant à l'image de droite, elle est constituée de deux singularités qui correspondent aux axes optiques (AO) de l'échantillon : l'axe x ou z se situe donc à égale distance de ces deux points. Puisque les axes optiques sont observés uniquement dans le plan $x - z$ (voir figure 1.3), la position de l'axe y est déterminée sans ambiguïté (voir figure 2.5). Afin de différencier les axes x et z , il faudra avoir recours à des méthodes complémentaires, comme par exemple des mesures sur prismes ou sphères.

Ainsi, connaissant la position des axes \vec{a} , \vec{b} et \vec{c} du cristal, préalablement déterminée à partir de la méthode de Laue, l'orientation entre les repères cristallographique et diélectrique à la longueur λ_0 peut être déterminée en utilisant la méthode conoscopique.

En couplant cette méthode à une lampe spectrale ou à un laser, la position des axes optiques d'un cristal biaxe peut être déterminée en fonction de la longueur d'onde λ . Il est également possible de suivre avec la longueur d'onde la position des axes diélectriques dans une lame orientée telle que dans l'image de droite de la figure 2.5. Cependant, la précision de l'orientation des axes diélectriques ne peut pas être inférieure au degré.

Notons que la méthode conoscopique est également capable de déterminer le signe optique d'un cristal uniaxe [55].

2.3.1.2 Méthode de Malus

L'équipe a préféré développer la méthode de Malus qui a été validée avec des cristaux de symétrie monoclinique taillés en forme de lames, orientées perpendiculairement à l'axe spécial du repère cristallographique [52]. En effet, le repère diélectrique peut tourner uniquement dans le plan perpendiculaire à l'axe spécial. Pour la symétrie monoclinique, l'axe spécial correspond à l'axe cristallographique qui est, soit perpendiculaire au plan miroir m pour les groupes ponctuels m et $2/m$, soit parallèle à l'axe d'ordre 2 pour les groupes 2 et $2/m$ [34]. Pour la suite, nous avons choisi l'axe cristallographique \vec{b} qui représente l'axe spécial. La figure 2.6 montre une orientation possible entre le repère cristallographique $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$ et le repère diélectrique (x, y, z) dans un cristal monoclinique, où $y // \vec{b}$. Elle définit notamment l'angle φ entre les axes \vec{a} et x dont la valeur dépend de la longueur d'onde λ si l'orientation du repère diélectrique varie en fonction de cette grandeur. L'orientation du repère diélectrique de la figure 2.6 a été obtenue en utilisant la méthode conoscopique à $\lambda_0 = 0,633 \mu\text{m}$.

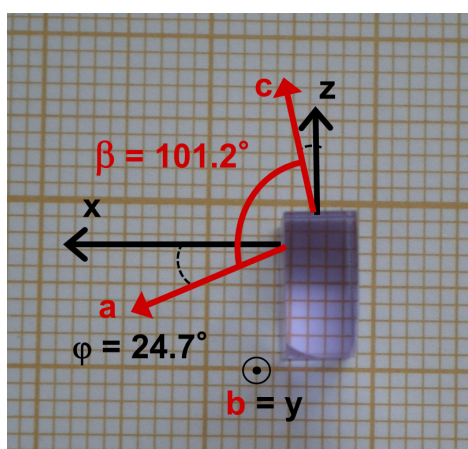


FIGURE 2.6 – Exemple d'orientation entre les repères cristallographique $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$ et diélectrique (x, y, z) d'un cristal monoclinique, avec $y // \vec{b}$ pour une longueur d'onde fixée $\lambda_0 = 0,633 \mu\text{m}$.

Expérimentalement, la lame taillée et orientée perpendiculairement à l'axe \vec{b} est montée sur une rotation motorisée qui lui permet de tourner continûment dans le plan $\vec{a} - \vec{c}$ qui est donc aussi un plan diélectrique. L'ensemble est ensuite placé entre polariseur et analyseur croisés, constitués de prismes de Glan-Taylor dont le taux d'extinction atteint $1 : 10^6$ [56]. La puissance du faisceau incident transmise par le système optique est ensuite mesurée en fonction de la rotation du cristal : elle suit la loi de Malus [52]. La mesure de puissance transmise est réalisée simultanément pour deux longueurs d'onde (voir figure 2.7(a)). L'une d'entre elles est émise par un laser He-Ne, qui permet de retrouver la mesure de référence à $\lambda_0 = 0,633 \mu\text{m}$ obtenue par conoscopie. Le faisceau traverse le montage et un filtre passe-bande autour de $0,633 \mu\text{m}$, et est ensuite focalisé sur une photodiode calibrée en Silicium qui détecte jusque $1,1 \mu\text{m}$. Ainsi, la loi de Malus, à la longueur d'onde λ_0 uniquement, est enregistrée. L'autre longueur d'onde est émise par l'OPO accordable en régime nanoseconde (voir partie 2.2.1). Après le montage, le faisceau est transmis et réfléchi par une lame de verre, puis traverse un filtre de type Notch coupant la longueur d'onde $0,633 \mu\text{m}$. Il est enfin focalisé sur une photodiode calibrée en InGaAs qui détecte sa loi de Malus entre $\lambda=0,7$ et $1,8 \mu\text{m}$. Le tracé de l'enregistrement simultané des deux lois de Malus aux deux longueurs d'onde $\lambda_0 = 0,633 \mu\text{m}$ et λ accordable, est présenté dans la figure 2.7(b).

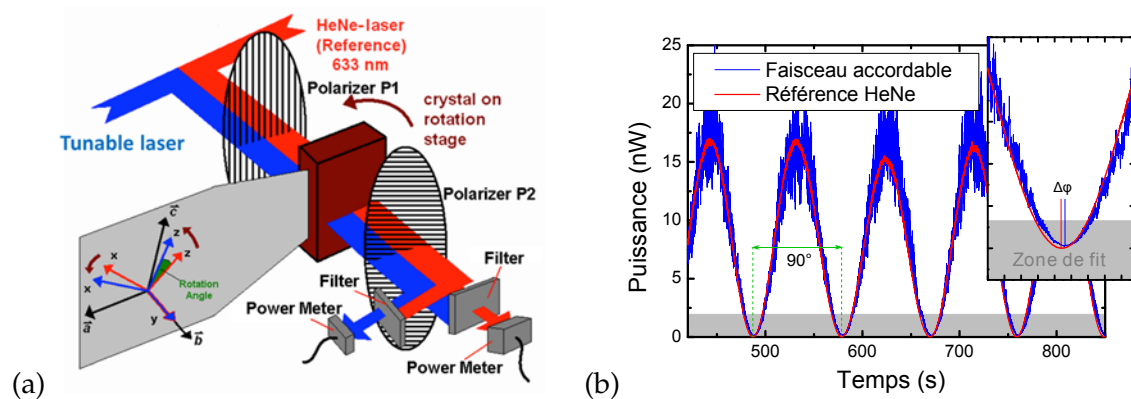


FIGURE 2.7 – (a) Schéma de principe de la mesure de l'orientation du repère diélectrique. Le trait bleu correspond au trajet du faisceau accordable et le trait rouge au faisceau de référence à $\lambda_0 = 0,633 \mu\text{m}$. (b) Evolution de la puissance mesurée (en nW) du faisceau accordable et du faisceau de référence en fonction de la rotation du cristal.

L'échelle des abscisses de la figure 2.7(b) représente la durée de rotation de l'échantillon pendant une acquisition. L'écart angulaire entre deux minima correspondant à 90° [57], il est possible de déduire l'angle de rotation du cristal en fonction du temps. Néanmoins, la conversion "temps-angle" est bien plus précise à partir d'un ajustement d'un ensemble de minima mesurés. Ainsi, il est possible de déterminer l'écart angulaire $\Delta\phi$ entre un minimum à la longueur d'onde de référence λ_0 et un minimum à l'autre longueur d'onde λ accordable (voir encart de la figure 2.7(b)). En changeant la valeur de la longueur d'onde λ entre deux acquisitions, l'évolution de cet écart angulaire $\Delta\phi$ correspond directement à la variation de l'orientation du repère diélectrique en fonction

de la longueur d'onde.

En résumé, l'orientation entre les repères cristallographique et diélectrique à $\lambda_0 = 0,633 \mu\text{m}$ est obtenue à partir de la mesure de $\varphi(\lambda_0)$ sur une lame orientée en couplant la méthode de conoscopie à celle de Laue. La valeur de $\Delta\varphi(\lambda)$ obtenue à partir de la méthode de Malus correspond à la variation de l'orientation du repère diélectrique avec la longueur d'onde. En associant ces méthodes, il est donc possible de déterminer l'orientation $\varphi(\lambda) = \varphi(\lambda_0) + \Delta\varphi(\lambda)$ entre les repères cristallographique et diélectrique en fonction de la longueur d'onde, avec une précision comprise entre $0,3$ et $0,5^\circ$.

2.3.2 Spectre de transmission

Comme expliqué dans le chapitre 1, il est primordial en optique non linéaire paramétrique de travailler dans le domaine de transparence du cristal étudié. Pour cela, son spectre de transmission doit avant tout être mesuré. Étant donné que les mesures en optique non linéaire sont réalisées en lumière polarisée, les spectres de transmission sont également étudiés dans cette configuration. Deux appareils commerciaux, équipés de modules polarisants, ont été utilisés : le spectromètre λ 900 (Perkin-Elmer) pour les longueurs d'onde comprises entre $0,25$ et $3 \mu\text{m}$, et un spectromètre de type FTIR (Bruker) entre $0,4$ et $200 \mu\text{m}$ dont le module polarisant fonctionne uniquement entre 1 et $40 \mu\text{m}$. Tous les spectres enregistrés qui seront présentés dans la suite ne sont pas corrigés des pertes de Fresnel.

2.3.3 Seuil de dommage optique

La mesure du seuil de dommage optique est également un des tests de base qui est réalisé avant toute étude des propriétés optiques des cristaux. En effet, elle détermine l'énergie maximale du faisceau incident en dessous de laquelle les mesures doivent être réalisées afin de ne pas endommager l'échantillon. L'étude du seuil de dommage optique est un domaine de recherche à part entière [58, 59] : il dépend entre autres de la longueur d'onde, de la durée de l'impulsion laser ou encore de sa fréquence de répétition. Il dépend également de la taille du faisceau qui peut être mesurée par la méthode du couteau [60] : les profils d'énergie mesurés ont été interpolés par une fonction *erf* dont le paramètre ajustable était le rayon w_0 du faisceau.

2.3.4 Angle de double réfraction

A la sortie d'une lame, les deux faisceaux séparés par le phénomène de double réfraction, décrit dans la partie 1.1.6, sont réfractés dans l'air avec le même angle, et restent parallèles l'un par rapport à l'autre. La distance entre les deux faisceaux est directement proportionnelle à la longueur de l'échantillon généralement inférieure au centimètre. Il est donc difficile de les distinguer d'autant qu'ils ont une certaine largeur.

Pour ces deux raisons, l'angle de double réfraction ρ est difficilement mesurable lorsque l'échantillon est usiné en forme de lame.

Rappelons que l'angle de double réfraction est nul uniquement à travers une lame orientée selon un axe diélectrique ou dans le plan $x - y$ d'un cristal uniaxe (voir partie 1.2.6.5). Si la lame est orientée dans une autre direction, le phénomène de double réfraction intervient mais il peut être volontairement réduit en limitant l'épaisseur de la lame à quelques centaines de μm . Ainsi, l'effet devient négligeable et n'intervient pas dans la valeur des rendements de conversion ou pour la détermination de la valeur absolue des coefficients non linéaires associés.

2.3.5 Rendement de conversion et accord de phase

Le rendement de conversion (équation (1.33)) est obtenu par la mesure simultanée des énergies incidentes et de l'énergie générée par un cristal taillé en forme de lame lors d'un processus quadratique de conversion de fréquence. Bien qu'il puisse être mesuré dans n'importe quelle situation, il est maximal en condition d'accord de phase c'est-à-dire lorsque $\Delta k = 0$ (voir partie 1.2.6). Dans ce cas, l'évolution du rendement de conversion en fonction de la longueur d'onde λ ou de l'angle θ ou ϕ a la forme du sinc^2 , comme montré dans la figure 1.13. L'obtention de cette forme de courbe est la signature irréfutable d'un accord de phase. En particulier pour les échantillons taillés en forme de lame, cette mesure doit être réalisée systématiquement. Quand il s'agit de mesure en fonction de l'angle θ ou ϕ , notons qu'elle est effectuée en fonction d'un angle externe correspondant à l'angle entre le faisceau incident et la normale à la face d'entrée de la lame, et non pas directement en fonction de l'angle interne θ ou ϕ .

L'étude exhaustive des propriétés d'accord de phase de cristaux anisotropes nécessite d'accéder à une multitude de directions de propagation. Il faudrait alors tailler autant de lames parfaitement orientées que de directions à étudier : cette méthode contraint alors de préparer un très grand nombre d'échantillons et nécessite donc un volume important de matière.

2.3.6 Acceptances

Le rendement de conversion η , normalisé à l'unité, mesuré en fonction de la longueur d'onde λ , de l'angle θ ou de l'angle ϕ autour de la direction d'accord de phase $(\lambda_{PM}, \theta_{PM}, \phi_{PM})$ permet de déterminer respectivement les acceptances spectrales $L\delta\lambda$ et angulaires $L\delta\theta$ et $L\delta\phi$ (définies dans la partie 1.2.6.4).

2.3.7 Valeur absolue des coefficients non linéaires

La détermination des coefficients non linéaires $d_{ijk}^{(2)} = \chi_{ijk}^{(2)}/2$ (voir partie 1.2.5) repose généralement sur la mesure du paramètre ζ , défini par l'équation (1.34), pour un processus de SHG. D'après l'équation (1.26), cette mesure permet en effet de déterminer le carré du coefficient effectif $d_{\text{eff}}^2 = (\chi_{\text{eff}}/2)^2$ et ainsi sa valeur absolue $|d_{\text{eff}}|$. Il existe principalement trois méthodes de mesure de la valeur absolue des coefficients non linéaires.

La première est celle des franges de Maker qui est la plus répandue, même si c'est de loin la moins précise. Elle est basée sur la mesure du paramètre ζ de SHG en hors accord de phase dans une lame généralement orientée selon un axe diélectrique et mise en rotation par rapport à l'axe d'un faisceau [61]. Une variation du désaccord de phase Δk , du fait de l'incidence oblique du faisceau en fonction de la rotation de la lame, se traduit par une oscillation du paramètre ζ . L'interpolation des points expérimentaux permet d'obtenir la valeur absolue du coefficient non linéaire d_{ijk} sollicité. Les valeurs absolues de tous les coefficients non linéaires peuvent être mesurées en choisissant les états de polarisation \vec{e}^{\pm} et en utilisant différentes lames orientées. Cette méthode est facile à mettre en oeuvre, mais la modélisation de la variation du paramètre Δk est difficile (équation (1.39)), et nécessite de connaître les indices de réfraction avec une grande précision, de l'ordre de 10^{-4} .

La technique du prisme translaté consiste à mesurer le paramètre ζ de SHG en hors accord de phase en fonction de l'épaisseur du prisme traversée par le faisceau incident [35, 61]. De manière équivalente, différentes lames orientées dans la même direction et d'épaisseurs croissantes pourraient être utilisées. La variation d'épaisseur est obtenue en translatant le prisme orienté perpendiculairement à l'axe du faisceau. Le paramètre Δk restant fixe et non nul, le paramètre ζ évolue sinusoïdalement avec la longueur d'interaction, comme nous l'avons vu dans la figure 1.10. La mesure de l'amplitude et de la période de la courbe mesurée permet d'en déduire la valeur absolue $|d_{ijk}^{(2)}|$ du coefficient non linéaire sollicité. Les valeurs absolues de tous les coefficients non linéaires peuvent ainsi être déterminées à partir de la mesure sur trois prismes orientés. Pour y parvenir, la polarisation du faisceau incident doit être contrôlée ainsi que la polarisation d'analyse du faisceau généré.

Ces deux méthodes, basées sur la mesure de la SHG en hors accord de phase, permettent d'obtenir l'amplitude de chaque coefficient non linéaire indépendant. Par contre, elles ne permettent pas d'en déterminer les signes relatifs. Une autre limitation provient du fait que les énergies générées sont faibles et c'est donc aussi le cas des paramètres ζ correspondants.

Enfin, il existe aussi la méthode de SHG en accord de phase qui est associée à des énergies générées bien plus élevées. Cette technique consiste à mesurer le paramètre ζ dans des cristaux non linéaires taillés en forme de lames orientées dans des directions d'accord de phase particulières (θ_{PM}, ϕ_{PM}) du repère diélectrique. Cette méthode sera utilisée et développée dans les chapitres 3 et 4.

2.4 MESURE DES PROPRIÉTÉS OPTIQUES SUR SPHÈRE

La mesure des propriétés optiques d'un cristal taillé sous forme de sphère présente l'avantage de donner accès à n'importe quelle direction dans les trois dimensions de l'espace avec un seul échantillon. Grâce à cette géométrie, le faisceau lumineux incident traverse toujours la sphère en incidence normale dont le diamètre peut être aussi petit que 1,5 mm. En contrepartie, un appareillage très précis et une grande minutie de l'alignement sont nécessaires pour obtenir une bonne précision de mesure (de l'ordre de $0,5^\circ$). Cette méthode a été inventée dans l'équipe [62].

2.4.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental de la méthode de la sphère est présenté dans la figure 2.8. Ce schéma est général à tous les processus de conversion de fréquence pouvant être mesurés : les deux faisceaux de longueurs d'onde λ_1 et λ_2 sont recombinaés dans la sphère pour réaliser de la SFG (cf. figure 1.6(a)) ou de la DFG (cf. figure 1.8), alors qu'un seul faisceau est nécessaire pour la SHG (cf. figure 1.6(b)) ou les mesures des propriétés optiques linéaires (cf. figure 1.1(a)). Dans tous les cas, la méthode de la sphère est couplée à une des sources paramétriques présentées dans la partie 2.2.

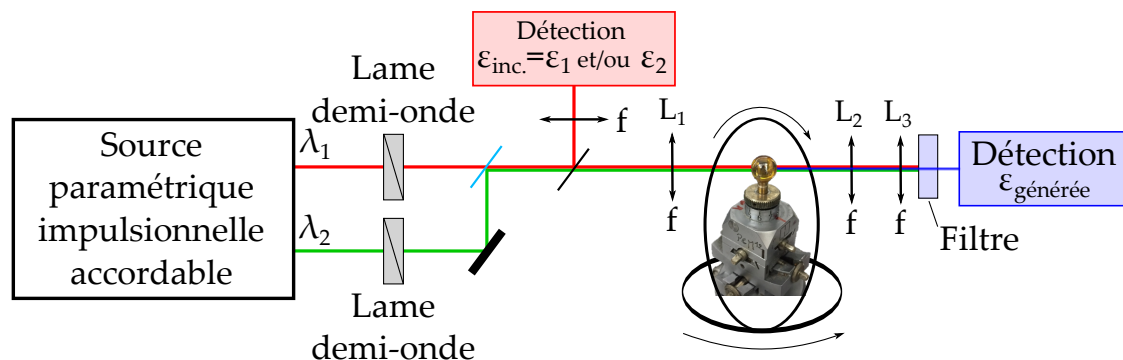


FIGURE 2.8 – Dispositif expérimental de la méthode de la sphère.

Le choix de la source paramétrique est réalisé en fonction des longueurs d'onde incidentes requises par l'expérience. Pour les mesures de toutes les propriétés optiques, un laser He-Ne est aussi utilisé pour l'alignement du montage. La polarisation des faisceaux est contrôlée par une lame demi-onde achromatique (cf. partie 2.2.4). Une partie du faisceau accordable, de longueur d'onde λ_1 par exemple, est prélevée et focalisée par une lentille de focale 50 mm dans un détecteur (voir partie 2.2.5) pour mesurer l'éner-

gie incidente. Une lentille L_1 de focale 100 mm est utilisée pour la focalisation dans la sphère qui est placée au centre d'un cercle d'Euler. Deux lentilles L_2 et L_3 , identiques à L_1 , sont éventuellement positionnées après le cristal. La lentille L_3 permet de focaliser le faisceau généré pour ajuster sa taille à la surface du détecteur utilisé (voir partie 2.2.5). Les paragraphes suivants sont consacrés à l'orientation de la sphère, le cercle d'Euler, et les conditions de focalisation dans la sphère.

2.4.1.1 Orientation de la sphère

On cherche toujours à ce qu'un plan principal du repère diélectrique ($x - z$, $y - z$ ou $x - y$) corresponde au plan équatorial de la sphère qui est perpendiculaire à la pinnule, en vue d'étudier ces plans par une rotation de l'échantillon sur 360° . Cela implique de coller la sphère sur une pinnule avec un axe diélectrique principal (x , y ou z) vertical. Par exemple, si l'axe y est vertical, la rotation de la sphère permet d'accéder à toutes les directions de propagation dans le plan principal $x - z$.

Les corrections angulaires calculées grâce au diagramme de diffraction de Laue puis le transfert de l'échantillon d'une première tête goniométrique (1) vers une seconde tête (2) permettent d'obtenir un collage d'une sphère avec un axe diélectrique vertical. La figure 2.9 montre l'opération de transfert de la première tête goniométrique (1) vers la tête (2) : la tête définitive (2) dépourvue de cristal (à gauche), dont la position correspond à la bonne orientation pour la sphère, est approchée du cristal sphérique monté sur sa tête initiale (1) (à droite) par le biais d'une translation de précision.



FIGURE 2.9 – Photographie de la sphère de BGSe en phase de transfert de la tête goniométrique (1) vers la tête (2).

2.4.1.2 Cercle d'Euler

La sphère orientée collée sur la tête goniométrique est placée au centre d'un cercle d'Euler. Toute précession de l'échantillon est annulée par le biais de réglages de petites platines de translation situées sur la tête goniométrique. Le cercle d'Euler permet de contrôler manuellement la rotation de la sphère avec une précision de 10 secondes

d'arc, soit 3.10^{-3} degré. Constitué de trois axes de rotation repérés par les angles α , β et γ , il est schématisé par la figure 2.10(a).

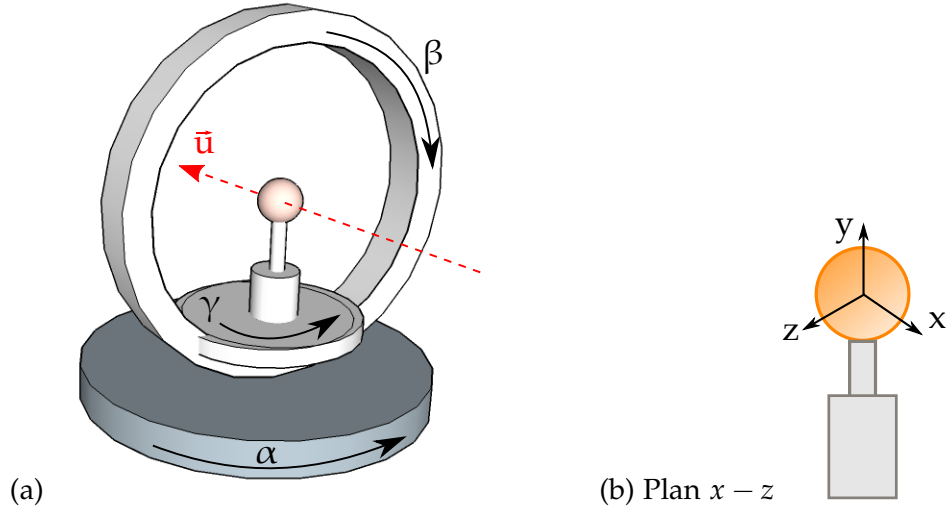


FIGURE 2.10 – Représentations schématiques (a) du cercle d'Euler, composé de trois axes de rotation repérés par les angles α , β et γ et (b) de la sphère collée perpendiculairement à l'axe y .

Un faisceau incident est convenablement focalisé de manière à passer par le centre de la sphère. Dans ces conditions, la rotation de l'échantillon permet d'étudier n'importe quelle direction (θ, ϕ) du repère diélectrique (x, y, z) . L'accès aux directions hors des plans principaux est possible en faisant varier indépendamment les angles α , β et γ du cercle d'Euler. Notons que certaines zones de la sphère ne sont pas accessibles à cause du support mécanique. Dans ce cas, la sphère peut être recollée selon un autre axe diélectrique en suivant la procédure décrite dans la partie 2.4.1.1.

Comme dans la figure 2.10(a), l'angle β peut également être fixé de manière à maintenir la sphère verticale, qui est collée selon l'axe diélectrique y par exemple. La rotation de l'échantillon au travers de l'angle $\alpha = \gamma$ permet d'explorer un plan diélectrique principal, soit le plan $x - z$ pour l'exemple choisi.

L'avantage de cet appareil est sa simplicité d'utilisation, puisque la lecture des graduations permet d'obtenir directement les angles de rotation de la sphère [63]. En appliquant le raisonnement de la réf. [63] lorsque la sphère est collée perpendiculairement à l'axe diélectrique y par exemple (voir figure 2.10(b)), la relation entre les angles θ et ϕ du repère diélectrique et les angles α , β et γ du cercle d'Euler s'écrit :

$$\begin{cases} \theta = \frac{\pi}{2} - (\alpha + \gamma) \\ \phi = 0 \end{cases} \quad (2.1)$$

Expérimentalement, uniquement lorsque les plans principaux sont étudiés, l'angle α est fixé de sorte que le cercle d'Euler soit perpendiculaire à l'axe du faisceau. Ainsi,

dans cet exemple, l'angle θ est directement contrôlé par la variation de l'angle γ .

2.4.1.3 Focalisation dans la sphère

Dans le but de réaliser des mesures précises de directions (θ, ϕ) , tout faisceau incident doit être focalisé de manière à se propager parallèlement au diamètre de la sphère. Pour y parvenir, la distance entre la lentille L_1 (voir figure 2.8) et la sphère doit être judicieusement choisie. Il faut utiliser le fait que la sphère est constituée de deux dioptrés sphériques accolés et est équivalente à une lentille boule avec deux distances focales identiques f décrites par [64] :

$$f^{\pm}(\lambda, \theta, \phi) = \frac{n^{\pm}(\lambda, \theta, \phi)R}{2(n^{\pm}(\lambda, \theta, \phi) - 1)} \quad (2.2)$$

avec R , le rayon de la sphère et $n^{\pm}(\lambda, \theta, \phi)$ son indice de réfraction dans la direction (θ, ϕ) (voir équation (1.10)). Si $n^{\pm}(\lambda, \theta, \phi) < 2$ alors on a $f^{\pm}(\lambda, \theta, \phi) > R$, ce qui signifie que les deux plans focaux de la sphère se situent en dehors du cristal (voir figure 2.11(a)). Par contre, si $n^{\pm}(\lambda, \theta, \phi) > 2$, ils sont situés à l'intérieur de la sphère, ce qui peut entraîner un endommagement du cristal (voir figure 2.11(b)).

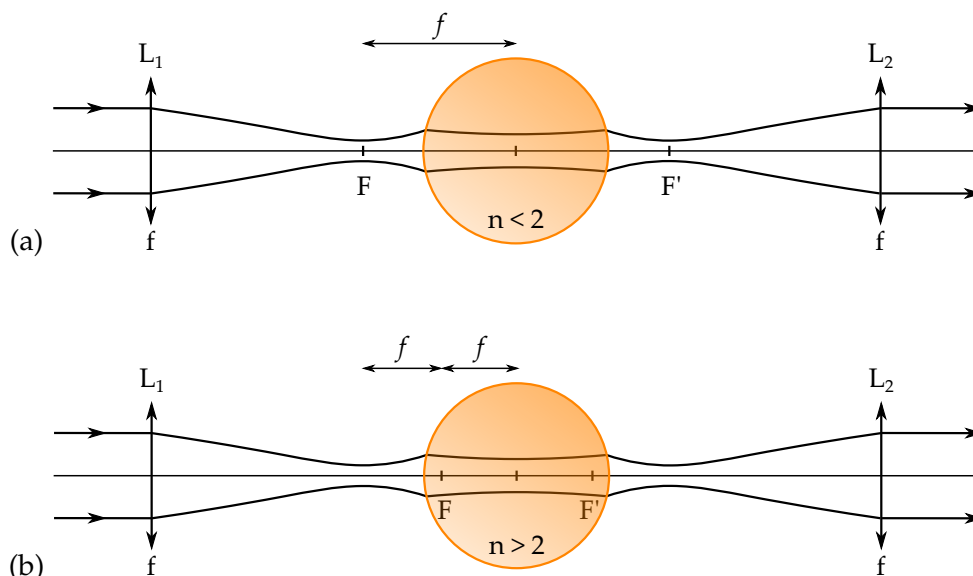


FIGURE 2.11 – Condition de focalisation du faisceau incident lorsque (a) $n^{\pm}(\lambda, \theta, \phi) < 2$ et (b) $n^{\pm}(\lambda, \theta, \phi) > 2$.

Afin de propager les faisceaux incidents en configuration quasi-parallèle dans la sphère, la focalisation doit être réalisée en prenant en compte ces contraintes [63] : il faut que le plan focal du faisceau incident soit situé au plan focal du dioptré d'entrée de la sphère si $n^{\pm}(\lambda, \theta, \phi) < 2$ (voir figure 2.11(a)). Au contraire si $n^{\pm}(\lambda, \theta, \phi) > 2$, la configuration $2f - 2f$ devra être utilisée (voir figure 2.11(b)) [63].

La réf. [63] développe, par le formalisme des matrices $ABCD$, le calcul modélisant

la focalisation d'un faisceau gaussien dans la sphère. Cette étude permet de déterminer la distance optimale d entre la lentille d'injection L_1 et la sphère pour que la propagation des faisceaux gaussiens incidents soit quasi-parallèle à l'intérieur de la sphère : cela correspond à la situation où le rayon du faisceau gaussien $w_{sph}(Z)$ est le plus important à l'intérieur de la sphère. De plus, une propagation quasi-parallèle dans la sphère est obtenue à condition que son diamètre D soit bien plus faible que la longueur de Rayleigh Z_R définie par [65] :

$$Z_R = \frac{\pi n^{\pm}(\theta, \phi, \lambda) w_{sph}^2}{\lambda} \quad (2.3)$$

Toutes ces précautions seront prises avant de réaliser les mesures.

2.4.2 Mesures directes

2.4.2.1 Angle de double réfraction

Contrairement au cristal taillé en forme de lame (voir partie 2.3.4), la sphère équivalente à une lentille boule de courte focale permet que l'espacement entre les deux faisceaux émergents, ayant subi le phénomène de double réfraction, soit exalté. Ainsi, les faisceaux ne sont plus parallèles à la sortie d'un cristal sphérique [38, 66] : la figure 2.12 montre cet effet dans un plan principal $u - v$. Ce plan correspond au plan diélectrique principal $y - x$, $y - z$ ou $x - z$ d'un cristal biaxe ou au plan $y - z$ ou $x - z$ d'un cristal uniaxe. ρ_{uv} correspond à l'angle de double réfraction du cristal. Son expression dans un plan principal diélectrique $u - v$ est donnée par l'équation (1.15), et ρ_{uv}^{ext} est l'angle entre les deux faisceaux émergents. D'autre part, la sphère offre la possibilité de mesurer l'angle ρ_{uv} en fonction de l'angle θ dans les plans $x - z$ et $y - z$ ou ϕ dans le plan $y - x$.

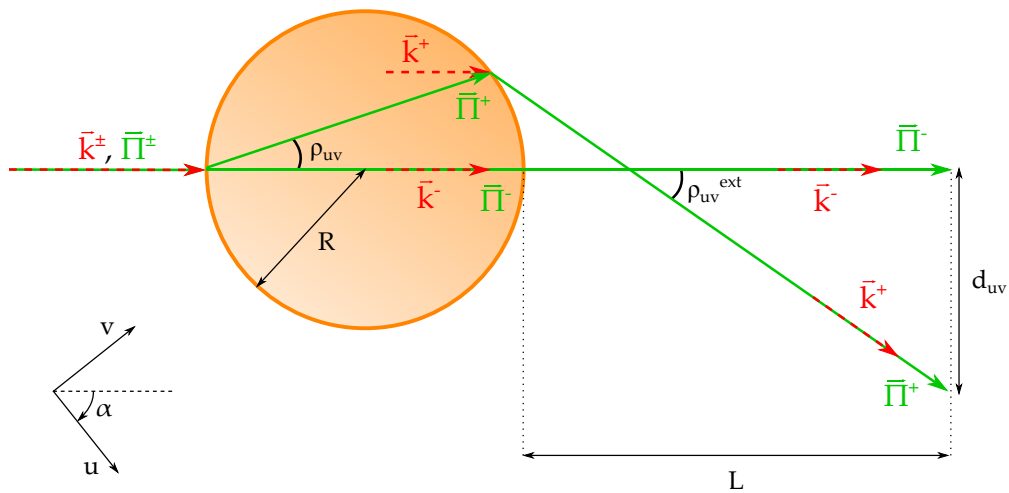


FIGURE 2.12 – Propagation dans le plan principal $u - v$ d'un cristal uniaxe ou biaxe. Le faisceau ordinaire $\bar{\Pi}^-$ et le faisceau extraordinaire $\bar{\Pi}^+$ sont réfractés dans l'air à des angles différents.

D'après la figure 2.12, l'angle ρ_{uv}^{ext} ne dépend pas du rayon de la sphère [38] :

$$\rho_{uv}^{ext}(\alpha) = \arcsin[n_{uv}(\alpha) \sin(2\rho_{uv}(\alpha))] - 2\rho_{uv}(\alpha) \quad (2.4)$$

où n_{uv} est l'indice de réfraction de la sphère dans la direction α , défini par (voir partie 1.1.5) :

$$n_{uv}(\alpha) = (n_u^{-2} \cos^2 \alpha + n_v^{-2} \sin^2 \alpha)^{-1/2} \quad (2.5)$$

L'angle ρ_{uv}^{ext} , et donc l'angle ρ_{uv} , sont déterminés par la mesure de la distance d_{uv} entre les faisceaux émergents à la longueur d'onde λ [38, 62] :

$$d_{uv}(\alpha) = \left[L - R \left(\frac{n_{uv}(\alpha) \sin(2\rho_{uv}(\alpha))}{\sin(\rho_{uv}^{ext}(\alpha))} - 1 \right) \right] \tan(\rho_{uv}^{ext}(\alpha)) \quad (2.6)$$

Pour cela, une caméra CCD constituée de 2048 pixels est positionnée à la distance L après le cristal, et la distance d_{uv} est déterminée par la distance entre les deux maxima des profils transverses gaussiens détectés par la caméra. La mesure de d_{uv} en fonction de la rotation du cristal dans un plan principal donne directement accès à la variation de l'angle ρ_{uv} en fonction de α .

2.4.2.2 Réfraction conique intérieure

Comme expliqué dans la partie 1.1.5, un cristal biaxe possède deux axes optiques, repérés par l'angle V_z dans le plan principal $x - z$ si $n_x < n_y < n_z$. Cette direction correspond au contact entre les deux nappes d'indices $n^+(\lambda, \theta, \phi)$ et $n^-(\lambda, \theta, \phi)$. Dans une direction de propagation quelconque du cristal biaxe, sont associés deux vecteurs de Poynting, $\vec{\Pi}^+$ et $\vec{\Pi}^-$ et deux vecteurs décrivant les états de polarisation $\vec{e}^+(\lambda, \theta, \phi)$ et $\vec{e}^-(\lambda, \theta, \phi)$ (voir partie 1.1.6). Dans la direction particulière de l'axe optique, il y a un nombre infini de vecteurs de Poynting formant un cône [67] : ce phénomène est appelé *réfraction conique intérieure*. Généralement, il peut être observé uniquement avec un microscope du fait de la faible ouverture du cône. Il a été montré dans l'équipe que la sphère en permet une observation aisée du fait d'un phénomène de grandissement comme évoqué dans la partie 2.4.2.1 [68]. La figure 2.13 montre l'exemple d'une mesure de la réfraction conique intérieure avec le faisceau d'un laser He-Ne. Il y a un double anneau du fait de la divergence du faisceau incident.

Une figure constituée de deux cercles brillants séparés par un cercle sombre est observée. Notons que la sphère doit être exactement orientée dans le plan $x - z$ puisque le double anneau n'est plus observé à partir d'une erreur de 10 mrad sur l'orientation du cristal. L'observation du phénomène de réfraction conique intérieure et l'étude de la polarisation de part et d'autre des axes optiques sont décrites dans les réfs. [68, 69]. Lorsque la rotation de la sphère autour des axes optiques est exploitée, l'évolution de la figure du double anneau est observée sur une gamme angulaire de quelques degrés [68].

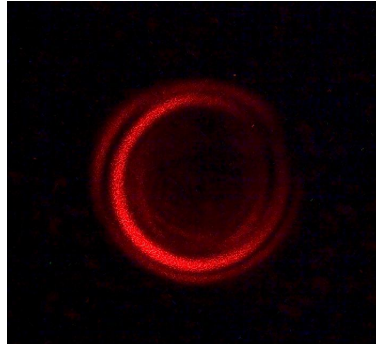


FIGURE 2.13 – Photographie de la figure observée à la sortie d'un cristal biaxe en forme de sphère lors de la propagation du faisceau d'un laser He-Ne dans la direction d'un axe optique.

Expérimentalement, la rotation complète de la sphère dans le plan principal $x - z$ donne accès à quatre positions qui correspondent par paires aux deux axes optiques. Ainsi, quatre angles goniométriques, pour lesquels la figure du double anneau est visualisée sur un écran, sont mesurés. La prise en compte de ces quatre angles permet d'obtenir avec une précision de $0,2^\circ$ la valeur absolue de l'angle V_z . En couplant cette technique avec une source accordable, il est possible de déterminer la dispersion de V_z à partir de sa variation en fonction de la longueur d'onde [64, 68, 70]. L'angle V_z dépendant des indices de réfraction (cf. équation (1.12)), sa connaissance en fonction de la longueur d'onde est donc très utile pour affiner les équations de dispersion des indices de réfraction principaux à partir d'équations de type (1.8), mais également pour déterminer l'orientation du repère diélectrique [70].

2.4.2.3 Orientation du repère diélectrique

L'orientation du repère diélectrique d'un cristal monoclinique ou triclinique, généralement déterminée par des mesures sur lames (voir partie 2.3.1), peut également être étudiée avec des échantillons sphériques [70]. Dans l'exemple présenté, l'axe diélectrique y est confondu avec l'axe cristallographique \vec{b} . Si la sphère est collée selon l'axe diélectrique y , elle tourne dans le plan $x - z$. La méthode est basée sur la mesure de la position des axes optiques du cristal biaxe à l'étude, décrite dans la partie précédente. Il s'agit de déduire celle des axes diélectriques x et z par rapport aux axes optiques et par rapport au repère cristallographique.

Dans une première étape, la méthode de Laue, basée sur la diffraction des rayons X, est utilisée pour repérer les axes cristallographiques \vec{a} et \vec{c} dont les positions respectives sont notées α_a et α_c .

Une fois que l'orientation du repère cristallographique a été identifié, la sphère collée selon l'axe $y = \vec{b}$ est transférée sur le cercle d'Euler. La position des deux axes optiques du cristal biaxe est repérée à l'aide d'un laser He-Ne en observant la figure en forme de double anneau. La rotation de la sphère sur 360° dans le plan $x - z$ permet de

déterminer les positions notées α_1 , α_2 , α_3 et α_4 des 4 ombilics de la surface des indices correspondant deux à deux aux deux axes optiques, comme indiqué sur la figure 2.14. Cette dernière montre un exemple de configuration des deux axes optiques. Les valeurs 0° , 90° , 180° et 270° correspondent aux angles goniométriques du cercle d'Euler.

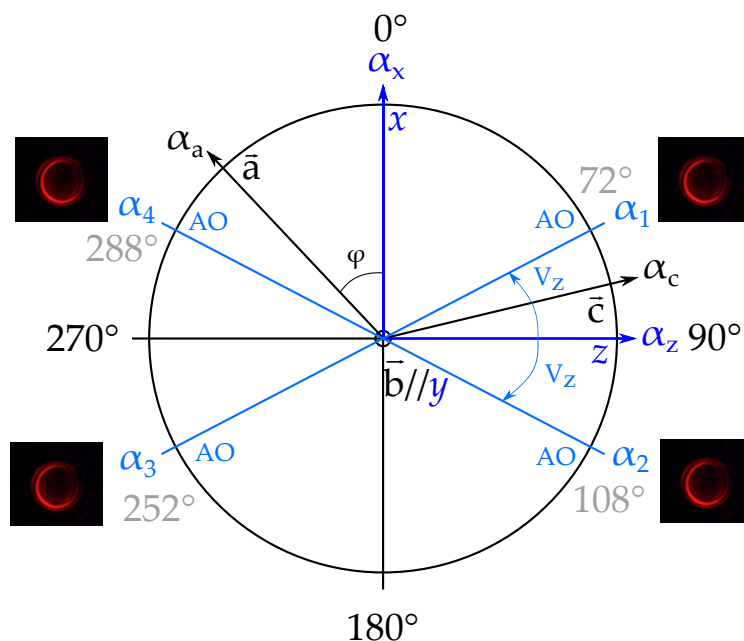


FIGURE 2.14 – Orientation entre le repère diélectrique (x, y, z) et les axes optiques (AO) qui sont repérés par rapport à l'axe z par l'angle V_z à la longueur d'onde $0,633 \mu\text{m}$.

Etant donné que les deux axes optiques sont symétriques par rapport aux axes x et z comme le montre la figure 2.14, les positions α_x et α_z qui valent 0° et 90° dans la figure sont déterminées à partir de la mesure directe des angles α_1 , α_2 , α_3 et α_4 dont un exemple de valeurs est donné. De plus, la prise en compte des quatre angles permet d'augmenter la précision de mesure évaluée à $0,2^\circ$. La position α_z peut être déterminée par :

$$\alpha_z = \frac{\left(\frac{\alpha_1 + \alpha_2}{2}\right) + \left(\frac{\alpha_3 + \alpha_4}{2} - 180\right)}{2} \quad (2.7)$$

Et par définition $\alpha_x = \alpha_z \pm 90^\circ$. De même, l'angle $V_z(0,633 \mu\text{m})$ est obtenu avec précision par la relation :

$$V_z = \frac{\left(\frac{\alpha_2 - \alpha_1}{2}\right) + \left(\frac{\alpha_4 - \alpha_3}{2}\right)}{2} \quad (2.8)$$

Comme la position des axes \vec{a} et \vec{c} a été préalablement repérée, il est aussi possible de déterminer l'angle absolu $\varphi(0,633\mu\text{m})$ entre \vec{a} et x grâce à cette méthode.

Dans un deuxième temps, la mesure est réalisée avec d'autres longueurs d'onde

afin de déterminer l'évolution de φ et de V_z en fonction de λ . Dans cette perspective, la sphère est couplée à l'OPO en régime nanoseconde (voir partie 2.2.1), accordable entre 0,4 et 2,4 μm . La procédure pour déterminer les positions α_x et α_z est identique à la mesure avec le laser He-Ne. Si l'observation du double anneau est aisée pour des longueurs d'onde dans le visible, elle l'est beaucoup moins dans l'infrarouge car on doit utiliser une carte de visualisation. L'erreur sur la mesure, principalement due à la qualité de l'observation dans l'infrarouge, est de l'ordre de $0,5^\circ$. Finalement, lorsque la position du repère cristallographique est connue, cette technique permet d'obtenir l'orientation du repère diélectrique en fonction de la longueur d'onde $\varphi(\lambda)$, et également la dispersion de l'angle $V_z(\lambda)$ [70].

2.4.2.4 Rendement de conversion et accord de phase

Comme indiqué dans la figure 2.8 du dispositif expérimental de la méthode de la sphère, les énergies générée et incidente sont mesurées simultanément, permettant de déterminer le rendement de conversion défini par l'équation (1.33) dans un échantillon en forme de sphère. Comme discuté dans la partie 2.3.5, le rendement de conversion est maximal en condition d'accord de phase. Son évolution en fonction de la longueur d'onde λ ou de l'angle θ ou ϕ suit la forme du *sinc*² (voir figure 1.13) qui peut être mesurée dans toutes les directions du repère diélectrique. L'utilisation d'un échantillon en forme de sphère permet d'accéder directement aux angles internes θ ou ϕ contrairement aux mesures sur une lame.

Les directions d'accord de phase par biréfringence ($\Delta k = 0$), définies dans le chapitre 1, pourraient être calculées à partir des équations (1.41) à (1.43) et des indices de réfraction du matériau décrits par les équations (1.8) et (1.10). Mais généralement la précision avec laquelle sont connus les indices de réfraction n'est pas suffisante : il faut en effet une précision relative de l'ordre de 10^{-4} sur les indices de réfraction pour être capable de calculer une direction d'accord de phase à mieux que le degré. C'est pour cette raison que le choix de l'équipe a été de mesurer directement les conditions d'accord de phase (λ_{PM} , θ_{PM} , ϕ_{PM}) dans une sphère, le faisceau étant toujours en incidence normale. Les données sont utilisables telles quelles, et nous verrons que leur interpolation simultanée permet de déterminer ou d'affiner les équations de dispersion des indices de réfraction principaux (équations (1.8)).

Les courbes d'accord de phase correspondant aux paramètres (λ_{PM} , θ_{PM} , ϕ_{PM}) sont entièrement mesurées avec une précision angulaire totale de $0,5^\circ$ avec le cercle d'Euler, par rotations successives de l'échantillon sur lui-même. Cette méthode permet, en utilisant un échantillon unique, d'étudier sur tout le domaine de transparence du cristal, tous les processus de SHG, SFG ou DFG possibles. Nous l'utiliserons pour l'accord de

phase par biréfringence de types I, II ou III.

Nous pouvons appliquer deux protocoles distincts pour la mesure des conditions d'accord de phase :

1. La longueur d'onde du faisceau incident λ est fixe et ce sont les deux angles θ et ϕ vérifiant la condition d'accord de phase qui sont recherchés. Dans ce cas, les angles θ_{PM} sont tracés en fonction des angles ϕ_{PM} : on obtient alors un *cône d'accord de phase*, décrivant les directions d'accord de phase hors des plans principaux [62, 64].
2. L'angle ϕ (resp. θ) est fixe, et la longueur d'onde du faisceau incident λ ainsi que l'angle θ (resp. ϕ) varient. Cette méthode permet d'étudier les conditions d'accord de phase dans un plan principal du cristal. La courbe d'accord de phase correspond alors au tracé de λ_{PM} en fonction de θ_{PM} (resp. ϕ_{PM}) [70–72].

Tout comme les axes optiques (voir partie 2.4.2.3), une même direction d'accord de phase située dans un plan principal est repérée par quatre angles goniométriques, définissant deux à deux les deux directions d'accord de phase symétriques. La mesure de ces positions permet de déterminer les angles d'accord de phase mesurés avec une précision de $0,5^\circ$.

2.4.2.5 Acceptances

Comme sur des échantillons en forme de lames, la mesure du rendement de conversion η , normalisé à l'unité, en fonction de la longueur d'onde λ , de l'angle θ ou de l'angle ϕ autour de la direction d'accord de phase ($\lambda_{PM}, \theta_{PM}, \phi_{PM}$) permet de déterminer respectivement les acceptances spectrales $L\delta\lambda$ et angulaires $L\delta\theta$ et $L\delta\phi$ (définies dans la partie 1.2.6.4).

2.4.3 Analyse des mesures directes

2.4.3.1 Amplitude et dispersion des indices de réfraction

L'amplitude des indices de réfraction est classiquement déterminée par la mesure du minimum de déviation sur des échantillons taillés en forme de prismes [73]. Dans le cas des cristaux anisotropes, un prisme orienté permet de déterminer deux indices de réfraction principaux en exploitant deux états de polarisation différents du faisceau incident. Ainsi, un seul échantillon permet de mesurer les indices de réfraction n_o et n_e d'un cristal uniaxe alors que deux prismes orientés dans des directions différentes sont nécessaires pour la détermination de n_x , n_y et n_z d'un cristal biaxe [35]. L'interpolation des indices de réfraction principaux mesurés à différentes longueurs d'onde permet d'établir les équations de dispersion telles que les équations (1.8). Bien que les appareils de mesure aient évolué, la précision de mesure de l'indice de réfraction par cette méthode est typiquement de l'ordre de 10^{-3} dans le visible, et est encore moins bonne dans l'infrarouge du fait d'une plus grande difficulté de détection. Or, le calcul des

directions d'accord de phase à mieux que le degré requiert une précision de 10^{-4} sur les indices de réfraction comme cela a été évoqué précédemment : cela correspondrait à utiliser des prismes de plusieurs centimètres de côté, ce qui n'est généralement pas compatible avec les volumes de matière accessibles. L'imprécision de cette technique provient d'une part du fait qu'usiner un prisme orienté et ayant des faces parfaitement planes est difficile, et d'autre part, la détection du minimum de déviation dans l'infrarouge est délicate, limitant la fiabilité de la méthode du visible au proche infrarouge (typiquement jusqu'à $2 \mu\text{m}$).

Les courbes d'accord de phase directement mesurées sur sphère peuvent être utilisées afin d'obtenir des équations de dispersion des indices de réfraction à 10^{-4} près : une interpolation simultanée de toutes les données expérimentales est menée par un algorithme de Levenberg-Macquardt, basé sur la méthode des moindres carrés non linéaires [74], en utilisant le logiciel MATLAB par exemple. Lorsque des équations de dispersion existent déjà, elles sont utilisées pour initialiser l'interpolation. Un même indice de réfraction pouvant être sollicité par différentes mesures, la convergence rapide de l'interpolation dénote une certaine cohérence des résultats expérimentaux obtenus. L'ajustement se termine lorsque l'écart entre la courbe mesurée et la courbe calculée avec tous les paramètres p affinés est satisfaisant : les nouveaux coefficients sont donnés avec une précision telle que $\Delta n/n \simeq 10^{-4}$. L'ensemble des courbes d'accord de phase mesurées dans les plans principaux et hors des plans principaux pourrait suffire à affiner les équations de Sellmeier, et c'est généralement le cas en pratique. Cependant, les mesures des propriétés optiques linéaires (axes optiques, orientation du repère diélectrique, angle de double réfraction dans plusieurs plans principaux) apportent des informations supplémentaires en particulier dans l'ultraviolet et le visible. Finalement, l'interpolation de toutes les données permet de décrire les équations de Sellmeier sur tout le domaine de transparence du cristal, comme cela a été le cas pour de nombreux cristaux étudiés dans l'équipe [70–72].

Notons enfin que les mesures réalisées sur sphère permettent uniquement de déduire la dispersion en longueur d'onde des rapports des indices de réfraction principaux, soit pour un cristal biaxe $(n_x/n_y)(\lambda)$, $(n_x/n_z)(\lambda)$, et $(n_y/n_z)(\lambda)$.

2.4.3.2 Valeur absolue et signe relatif des coefficients non linéaires

La mesure du paramètre ζ de SHG, défini par l'équation (1.34), permet de déterminer le carré du coefficient effectif $d_{\text{eff}}^2 = (\chi_{\text{eff}}/2)^2$ directement relié aux coefficients non linéaires d_{ijk} . Cela est possible en particulier en accord de phase par SHG. L'analyse préalable du coefficient effectif permet de choisir les types d'accord de phase (voir partie 1.2.6) et les directions de propagation spécifiques qui conduisent à la détermination des valeurs absolues et des signes relatifs des différents coefficients non linéaires (voir

partie 1.2.5).

Prenons l'exemple du cristal de KTP de symétrie cristalline $mm2$, taillé sous forme de sphère, dont tous les coefficients non linéaires d_{15} , d_{24} , d_{31} , d_{32} et d_{33} ont été obtenus par cette méthode [75]. Du fait que la mesure ait été réalisée en SHG, la notation contractée relative aux deux derniers indices cartésiens peut être utilisée : $1 \equiv xx$, $2 \equiv yy$, $3 \equiv zz$, $4 \equiv yz = zy$, $5 \equiv xz = zx$ et $6 \equiv xy = yx$, et pour le premier indice, on utilise la convention suivante : $1 \equiv x$, $2 \equiv y$, $3 \equiv z$. Ainsi, par exemple, $d_{15} \equiv d_{xxz}$. Dans le cas de cristaux de symétrie $mm2$, le coefficient effectif s'écrit alors :

$$d_{\text{eff}} = F_{15} \cdot d_{15} + F_{24} \cdot d_{24} + F_{31} \cdot d_{31} + F_{32} \cdot d_{32} + F_{33} \cdot d_{33} \quad (2.9)$$

Rappelons que d_{eff} et les F_{ij} dépendent de $(\lambda_\omega, \lambda_\omega/2, \theta, \phi)$ et les d_{ij} uniquement de $\lambda_\omega/2$ (cf. chapitre 1). La figure 2.15 représente par exemple tous les coefficients F_{ij} de KTP calculés à partir des équations (1.31) et (1.16) le long du cône d'accord de phase de SHG de type II avec $\lambda_\omega = 1,32 \mu\text{m}$. L'échelle des ordonnées de gauche correspond à l'amplitude des coefficients F_{15} et F_{24} qui est tracée en fonction de l'angle d'accord de phase ϕ . La figure 2.15 permet de constater que F_{15} est le seul coefficient sollicité dans le plan $y-z$ ($\phi = 90^\circ$). Le même raisonnement peut être appliqué à F_{24} qui intervient seul dans le plan $x-z$ ($\phi = 0^\circ$).

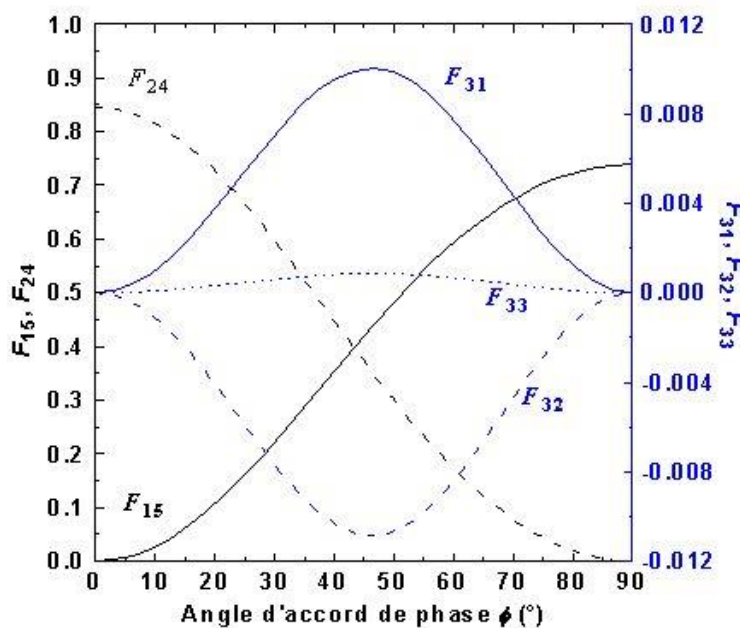


FIGURE 2.15 – Calcul des éléments F_{ij} sollicités le long du cône d'accord de phase de SHG de type II avec $\lambda_\omega = 1,32 \mu\text{m}$ [35].

Cela permet d'affirmer que le coefficient effectif de KTP (équation (2.9)) associé à la SHG de type II dépend uniquement du coefficient non linéaire d_{24} dans le plan $x-z$, et uniquement de d_{15} dans le plan $y-z$. Notons que l'échelle des ordonnées de droite correspond à l'amplitude des coefficients F_{31} , F_{32} et F_{33} : elle montre que ces trois

coefficients sont négligeables par rapport aux coefficients F_{15} et F_{24} .

Respectivement dans les plans $y - z$ et $x - z$, la mesure du paramètre ζ associé à la SHG de type II permet d'obtenir la valeur des coefficients effectifs associés $d_{\text{eff}}^{II,yz}$ et $d_{\text{eff}}^{II,xz}$, et donc de déterminer $|d_{15}|$ et $|d_{24}|$ respectivement aux longueurs d'onde générées. Ainsi, il vient à la longueur d'onde $\lambda_{\omega}/2 = 0,66 \mu\text{m}$:

$$|d_{15}| = \left| \frac{d_{\text{eff}}^{II,yz}}{F_{15}^{II,yz}} \right|, \quad |d_{24}| = \left| \frac{d_{\text{eff}}^{II,xz}}{F_{24}^{II,xz}} \right| \quad (2.10)$$

Il est possible de déterminer leur signe relatif en mesurant le paramètre ζ le long du cône d'accord de phase de SHG de type II, c'est-à-dire en fonction de l'angle d'accord de phase ϕ . Etant donné que les coefficients F_{15} et F_{24} sont prédominants par rapport à F_{31} , F_{32} et F_{33} (voir figure 2.15), le coefficient effectif associé dépend principalement des coefficients non linéaires d_{15} et d_{24} . La figure 2.16 montre la mesure de l'énergie générée, qui est proportionnelle au paramètre ζ dans cette expérience, en fonction de l'angle d'accord de phase ϕ . Le calcul dans les hypothèses où d_{15} et d_{24} sont de même signe (trait plein), ou de signe opposé (trait pointillé) est également représenté. La figure fait apparaître un excellent accord entre la mesure (cercles) et le calcul pour une seule des deux hypothèses (trait plein), ce qui permet d'affirmer de manière certaine, que d_{15} et d_{24} sont de même signe.

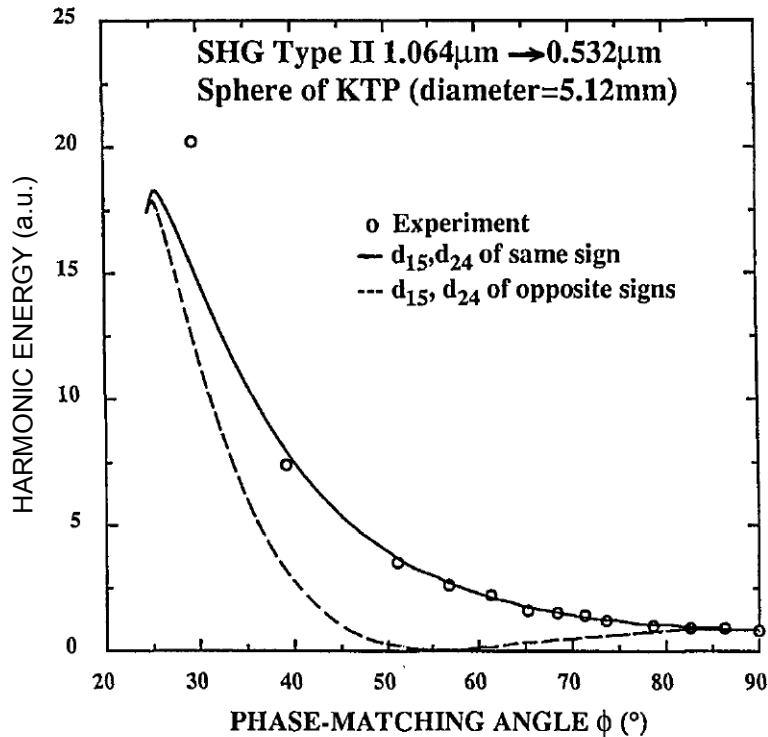


FIGURE 2.16 – Energie générée obtenue par la mesure d'une part et par le calcul en considérant les deux hypothèses sur le signe relatif de d_{15} et d_{24} d'autre part [75].

Pour la détermination des autres coefficients non linéaires de KTP, il est maintenant

nécessaire d'exploiter une autre interaction de SHG. Dans cette perspective, les coefficients F_{ij} ont été calculés le long du cône d'accord de phase de SHG de type I avec $\lambda_\omega = 1,32 \mu\text{m}$, comme le montre la figure 2.17 [35].

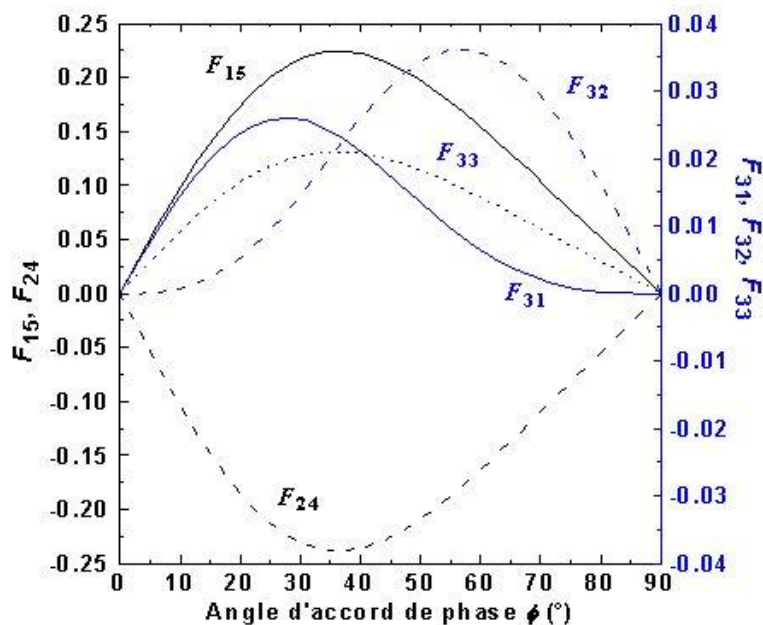


FIGURE 2.17 – Calcul des éléments F_{ij} sollicités le long du cône d'accord de phase de SHG de type I avec $\lambda_\omega = 1,32 \mu\text{m}$ [35].

La figure 2.17 montre d'abord qu'aucun élément F_{ij} n'est sollicité aux angles $\phi = 0^\circ$ et $\phi = 90^\circ$: le coefficient effectif est donc nul dans les plans principaux. Comme nous l'avons déjà vu dans le cas précédent, les coefficients F_{31} , F_{32} et F_{33} sont bien plus faibles que F_{15} et F_{24} . Etant donné qu'il reste trois coefficients non linéaires à déterminer, il est possible de simplifier l'étude en appliquant l'approximation de Kleinman qui est souvent justifiée du fait de la faible dispersion et de la transparence du cristal aux longueurs d'onde considérées. Ainsi les égalités suivantes sont vérifiées : $d_{15} = d_{31}$ et $d_{24} = d_{32}$, et le seul coefficient d_{ij} inconnu est alors d_{33} . A partir des valeurs et signes relatifs de d_{15} et d_{24} obtenus précédemment et connaissant les valeurs des F_{ij} (voir figure 2.17), il est possible de déterminer la valeur de d_{33} à partir de la mesure du rapport ζ et donc de la valeur de d_{eff}^I dans une direction d'accord de phase :

$$d_{33} = \frac{d_{eff}^I - d_{15} (F_{15}^I + F_{31}^I) - d_{24} (F_{24}^I + F_{32}^I)}{F_{33}^I} \quad (2.11)$$

Deux valeurs absolues de d_{33} sont possibles en fonction du signe relatif de d_{eff}^I et de d_{15} et d_{24} [75]. Choisissons arbitrairement par exemple d_{15} et d_{24} tout deux positifs : si d_{eff}^I est aussi positif alors $d_{33} = 39,5 \pm 2 \text{ pm/V}$, et si d_{eff}^I est négatif alors $d_{33} = 10,7 \pm 0,5 \text{ pm/V}$. Quelle que soit l'hypothèse, d_{33} s'avère positif et son signe est donc le même que celui d_{15} et d_{24} . Quant à elle, la valeur absolue peut être déterminée à partir de la mesure

du paramètre ζ de SHG de type I le long d'un cône d'accord de phase. La figure 2.18 montre que d_{eff}^I négatif est en bien meilleur accord avec les points expérimentaux : il vient alors $d_{33} = 10,7 \pm 0,5$ pm/V.

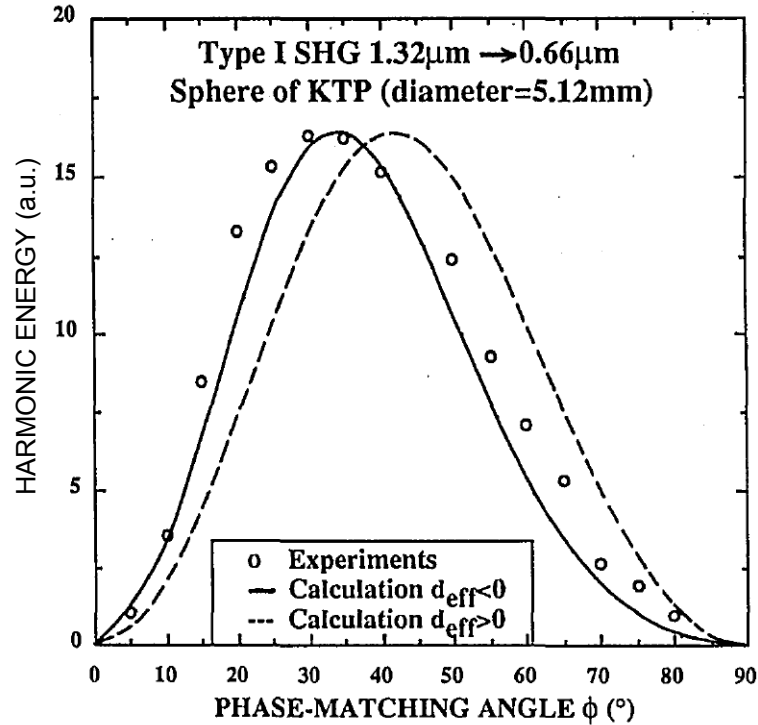


FIGURE 2.18 – Energie générée obtenue par la mesure d'une part et d'autre part par le calcul en considérant les deux hypothèses sur le signe relatif de d_{eff} et d_{15} et d_{24} [75].

En conclusion, la méthode basée sur la mesure de la SHG en accord de phase sur sphère permet de déterminer tous les coefficients non linéaires du cristal de KTP. Notons que le paramètre ζ a été mesuré dans une direction d'accord de phase particulière dans une sphère mais la lame fine aurait pu aussi être utilisée pour déterminer la valeur absolue des coefficients non linéaires de manière précise [6]. Par contre, il est nécessaire de mesurer le rapport ζ dans plusieurs directions d'accord de phase dans la sphère pour déterminer les signes relatifs. Aussi, à cause du nombre limité de configurations de polarisation pour un accord de phase par biréfringence (types I, II et III), il peut être difficile de déterminer tous les coefficients non linéaires dans certains cas. En fait, la stratégie à adopter est d'autant plus complexe que le nombre de coefficients non linéaires est important, comme nous le verrons dans le chapitre 4.

CONCLUSION

Pour conclure, la procédure d'usinage et de polissage des échantillons a été décrite, ainsi que les sources paramétriques accordables de puissance nécessaires pour l'étude des propriétés optiques des cristaux. Les tests de base, tels que le spectre de transmission et le seuil de dommage optique ainsi que l'orientation du repère diélectrique en

fonction de la longueur d'onde constituent les mesures préliminaires avant toute étude des propriétés optiques non linéaires des cristaux. Enfin, nous avons vu que la méthode de la sphère a l'avantage d'utiliser un échantillon unique en incidence normale limitant considérablement le volume de matière nécessaire : n'importe quelle direction (θ, ϕ) est obtenue par simple rotation du cristal. De plus, la méthode de la sphère est auto-suffisante pour une caractérisation complète des propriétés linéaires et non linéaires des cristaux puisqu'elle est capable de donner accès à l'orientation du repère diélectrique, aux axes optiques des cristaux biaxes, et aux directions d'accord de phase et rendements de conversion et acceptances associés. L'amplitude et la dispersion des indices de réfraction principaux sont obtenues, avec une précision relative de l'ordre de 10^{-4} , à partir de l'interpolation simultanée des mesures angulaires directes. Enfin, la comparaison entre l'étude théorique et expérimentale de l'énergie générée par SHG dans des directions d'accord de phase choisies permet la détermination de la valeur absolue et des signes relatifs des coefficients non linéaires.

Les chapitres 3 et 4 suivants portent sur les résultats expérimentaux obtenus en mettant à profit les méthodes décrites dans ce chapitre.

CHAPITRE

3

ETUDE DU CRISTAL DE LANGATATE $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Ta}_{0,5}\text{O}_{14}$ (LGT) POUR LA BANDE II

INTRODUCTION

Les cristaux de Langasite $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ (LGS), Langanite $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Nb}_{0,5}\text{O}_{14}$ (LGN) et Langatate $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Ta}_{0,5}\text{O}_{14}$ (LGT), qui appartiennent à la même famille chimique, font l'objet de nombreuses études portant essentiellement sur leurs propriétés piézo-électriques [76–78]. En effet, à température ambiante, leurs constantes piézoélectriques et électro-optiques sont significativement plus importantes que celles du α -quartz [77]. Ce dernier est pourtant le matériau piézoélectrique de référence pour des applications telles que la réalisation de capteurs de pression, force ou accélération. Les constantes diélectriques, les propriétés élastiques et la conductivité électrique de LGS, LGN et LGT ont également été étudiées [76–79]. D'autre part, les chaleurs spécifiques à 30°C d'environ 0,38 J/g.K pour LGT et 0,47 J/g.K pour LGS promettent des seuils de dommage optique importants [79]. Enfin, le cristal de LGS est prometteur en tant que commutateur électro-optique pour assurer le régime impulsionnel des lasers [79].

Nous avons identifié une seule publication portant sur l'étude des propriétés optiques non linéaires des cristaux de LGS, LGN et LGT. Elle concerne uniquement la SHG sur la base de calculs de conditions d'accord de phase. Ces calculs ont été réalisés

à partir des équations de Sellmeier préalablement déterminées par la méthode du minimum de déviation dans un prisme [77]. A notre connaissance, aucun processus quadratique n'a été mesuré, et les calculs prédisent qu'il n'y a pas d'accord de phase dans LGS, contrairement à LGN et LGT [77].

Nous avons pu réaliser la première étude expérimentale des conditions d'accord de phase ainsi que des rendements de conversion et acceptances associés dans LGT, à l'aide de la méthode de la sphère. Elle est présentée et analysée dans ce chapitre. Pour cela, nous avons bénéficié d'une collaboration avec Dmitry Roshchupkin, de l'Institute of Microelectronics Technology de Chernogolovka en Russie, qui maîtrise parfaitement la croissance de LGT.

Ce chapitre débute par un état de l'art des mesures des propriétés optiques linéaires de LGT. Les caractéristiques des lames et de la sphère de LGT réalisées et utilisées au laboratoire sont présentées. Le spectre de transmission de LGT mesuré en lumière polarisée et son seuil de dommage optique ont été déterminés sur lames. D'autre part, le coefficient non linéaire de LGT a été déterminé en comparaison au cristal de KTP à partir d'une mesure de SHG dans une lame orientée selon une direction d'accord de phase. Viennent ensuite les mesures directes sur sphère des courbes d'accord de phase dans LGT pour des processus du second ordre associés à un coefficient effectif non nul. Elles ont notamment permis d'affiner ses équations de Sellmeier. Enfin, le chapitre présente l'étude de la potentialité de LGT pour la génération d'un supercontinuum à partir de calculs. Il décrit également des expériences de génération de différence de fréquences réalisées en régime femtoseconde grâce à une collaboration avec Jean-Christophe Delagnes et Eric Cormier du CELIA à Bordeaux.

3.1 ÉTAT DE L'ART

Le cristal de LGT appartient au système trigonal 32 avec les paramètres de maille $a = b = 8,236 \text{ \AA}$ et $c = 5,128 \text{ \AA}$ [76].

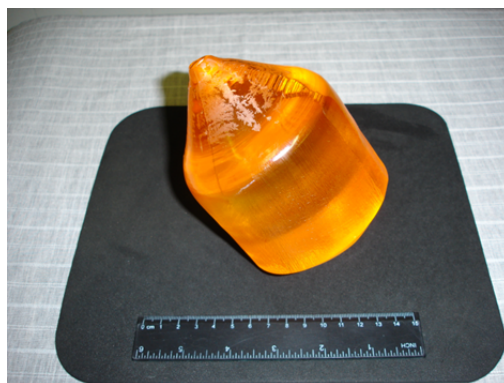


FIGURE 3.1 – Cristal de LGT obtenu par la méthode de Czochralski. Source : <http://newpiezo.com/langatate.html>

Sa croissance contrôlée par la méthode de Czochralski permet d'obtenir des échantillons de très haute qualité cristalline et de grandes dimensions (de l'ordre de 10 cm de diamètre) [77–80] comme l'indique la photographie présentée figure 3.1.

Orientation entre les repères cristallographique et diélectrique

La symétrie trigonale de LGT impose que les axes \vec{a} et \vec{b} du repère cristallographique fassent un angle de 120° entre eux et soient perpendiculaires à l'axe \vec{c} , comme le montre la figure 3.2. Par conséquent, ce repère ne peut pas correspondre au repère diélectrique qui est orthonormé : les deux repères sont liés par les axes $\vec{c} = z$, et nous avons choisi $\vec{a} = x$. Cependant, la figure 3.2 montre que si nous avons choisi $\vec{b} = x$, l'orientation entre les deux repères aurait été équivalente. En fait, les directions repérées tous les 30° dans le plan $\vec{a} - \vec{b}$ peuvent correspondre aux axes principaux diélectriques x ou y du fait de la symétrie du cristal.

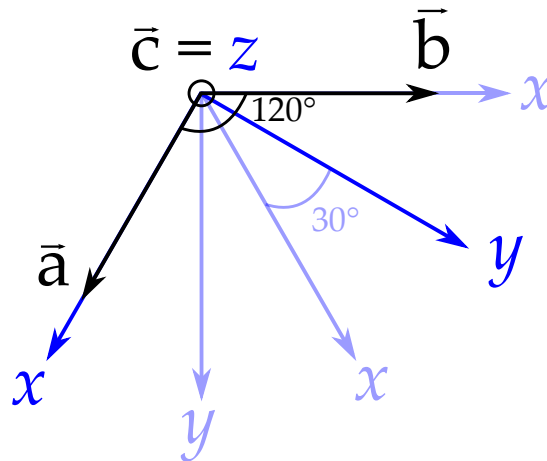


FIGURE 3.2 – Orientation entre le repère cristallographique ($\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}$) et le repère diélectrique (x, y, z) de LGT où l'axe \vec{c} correspond à z ; nous avons choisi l'axe \vec{a} parallèle à x .

Spectre de transmission

Le spectre de transmission du cristal de LGT a été mesuré en lumière non polarisée pour la première fois en 2004 entre $0,2$ et $2,4 \mu\text{m}$ à travers une lame de 2 mm d'épaisseur, taillée perpendiculairement à la direction z [79] (voir figure 3.3(a)). Il a également été mesuré entre $0,2$ et $0,7 \mu\text{m}$ à travers quatre lames de LGT de $1,5 \text{ mm}$, taillées selon y . Ces lames ont été préparées à partir de cristaux obtenus par différentes conditions de croissance, le taux d'oxygène C_O dans l'atmosphère de synthèse variant entre 0 et 2% [78]. La figure 3.3(b) présente le spectre de transmission mesuré à travers les quatre lames où C_O était de 0% (1), $<1\%$ (2), $<2\%$ (3) et 2% (4).

Les figures 3.3 montrent que, pour des longueurs d'onde supérieures à la longueur d'onde de coupure dans l'UV qui se situe entre 250 et 275 nm , le cristal de LGT possède une transmission d'environ 80% . L'écart à 100% est dû à la transmission de Fresnel.

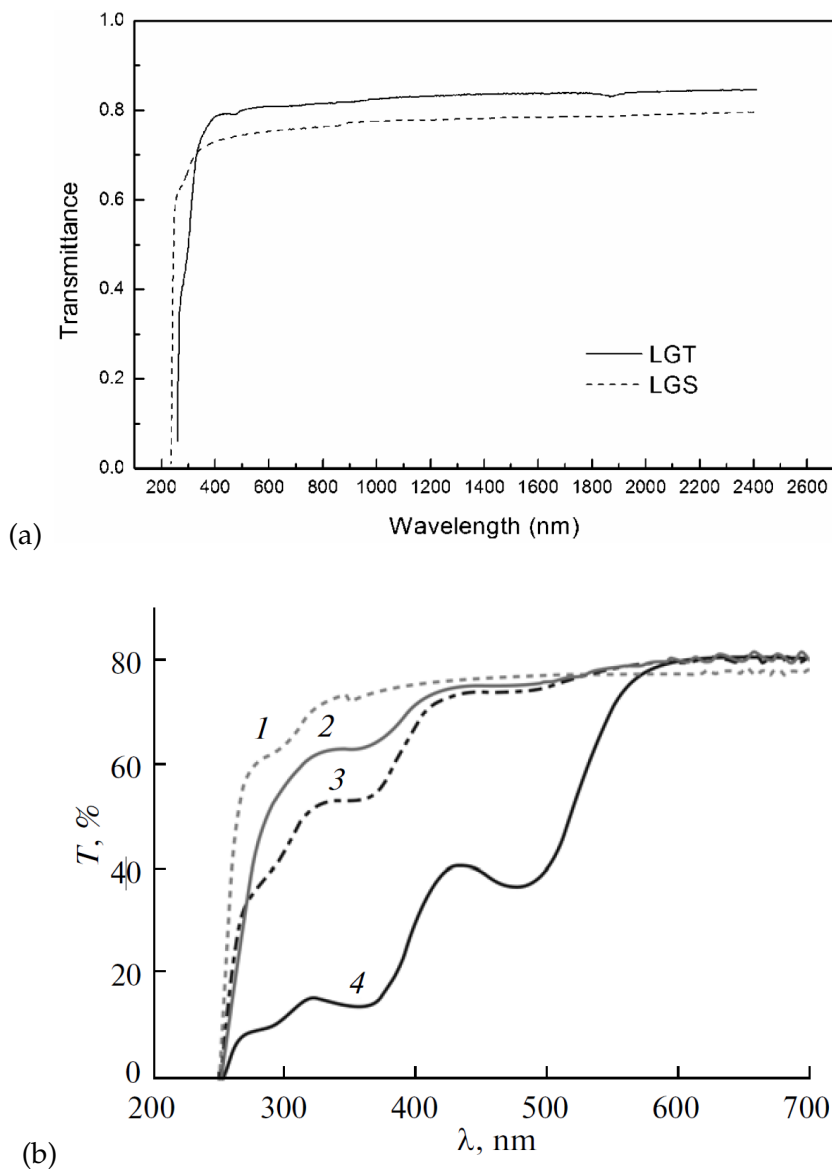


FIGURE 3.3 – Mesure du spectre de transmission de LGT en lumière non polarisée et non corrigé de la transmission de Fresnel : (a) à travers une lame taillée selon z de 2 mm d'épaisseur [79] et (b) à travers quatre lames de 1,5 mm d'épaisseur taillées selon y avec $C_O = (1) 0\%$, (2) $<1\%$, (3) $<2\%$ ou (4) 2% [78].

D'autre part, la figure 3.3(b) montre une absorption qui croît avec la concentration en oxygène. Cela explique la couleur orangée du cristal de LGT, observée dans la figure 3.1.

En ce qui concerne la longueur d'onde de coupure dans l'infrarouge, elle n'a pas été étudiée et le domaine de transparence de LGT reste donc indéterminé.

Seuil de dommage optique

La détermination du seuil de dommage optique dans une lame de LGT a été réalisée avec un laser Nd :YAG en 2004 [79]. Il vaut en densité de puissance $I_{\text{seuil}} = 650 \text{ MW/cm}^2$

mais les conditions expérimentales de mesure, telles que la durée d'impulsion, le taux de répétition du laser et la géométrie du faisceau, n'ont pas été clairement explicitées.

Indices de réfraction principaux

La mesure des indices de réfraction principaux de LGT entre 0,36 et 2,32 μm a montré qu'il appartient à la classe optique uniaxe positif [77]. Cela signifie que ses indices de réfraction principaux ordinaire n_o et extraordinaire n_e respectent la relation d'ordre $n_e > n_o$ (voir partie 1.1.5). Cette mesure a été réalisée à partir de la méthode du minimum de déviation à travers un prisme orienté, comme expliqué dans la partie 2.4.3. L'interpolation des résultats a permis d'établir les premières équations de Sellmeier modélisant la dispersion des deux indices de réfraction principaux de LGT dont la forme est [77] :

$$n_i^2(\lambda) = A_i + \frac{B_i}{\lambda^2 - C_i} - D_i\lambda^2 \quad (3.1)$$

où λ s'exprime en μm . Les coefficients de Sellmeier A_i , B_i , C_i et D_i sont donnés dans le tableau 3.1 avec $i = o$ ou e .

n_i	A_i	B_i	C_i	D_i
n_o	3,6487	0,0443	0,0267	0,0094
n_e	3,7467	0,0475	0,0272	0,0101

TABLE 3.1 – Coefficients de Sellmeier de l'équation (3.1) décrivant la dispersion des indices de réfraction principaux n_o et n_e de LGT d'après la réf. [77].

La figure 3.4 représente les points expérimentaux et leur interpolation par l'équation (3.1) et les coefficients du tableau 3.1 qui décrivent la dispersion des indices de réfraction principaux de LGT entre 0,36 et 2,32 μm [77].

Courbe d'accord de phase de SHG dans les plans principaux $x - z$ et $y - z$

Les équations de Sellmeier (3.1) ont été utilisées pour le calcul des directions d'accord de phase de SHG de type I représentées par la figure 3.5 [77]. Ce calcul concerne les plans principaux $x - z$ et $y - z$ qui sont équivalents dans les cristaux uniaxes. Aucun accord de phase de SHG de type II n'a été trouvé dans ces plans et avec ces équations de dispersion. La figure 3.5 montre également la courbe d'accord de phase de SHG de type I dans LGN d'après la réf. [77]. A notre connaissance, aucun autre résultat n'avait été publié avant nos travaux récents.

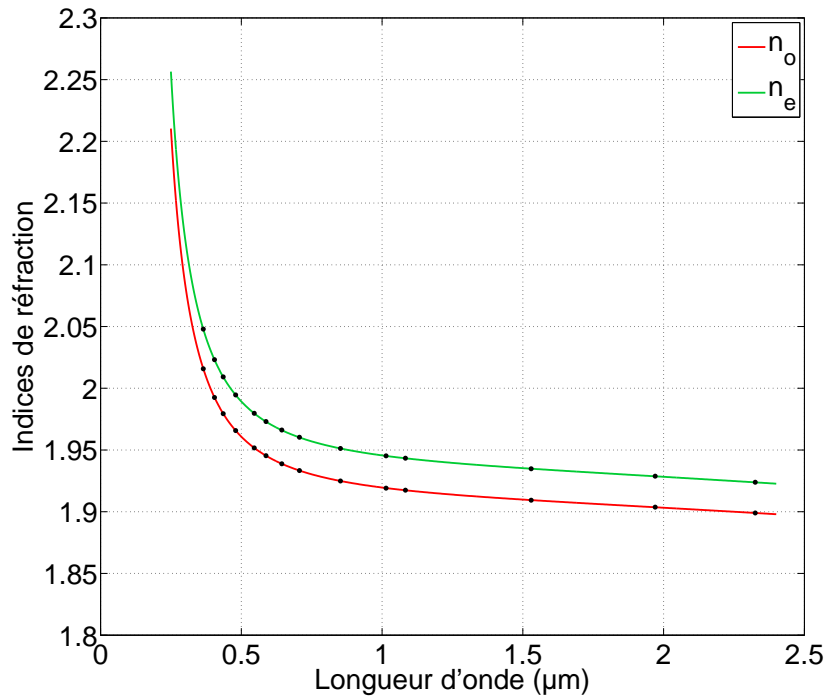


FIGURE 3.4 – Dispersion des indices de réfraction principaux n_o et n_e de LGT. Les courbes en trait plein correspondent à l'interpolation des points expérimentaux représentés en noir.

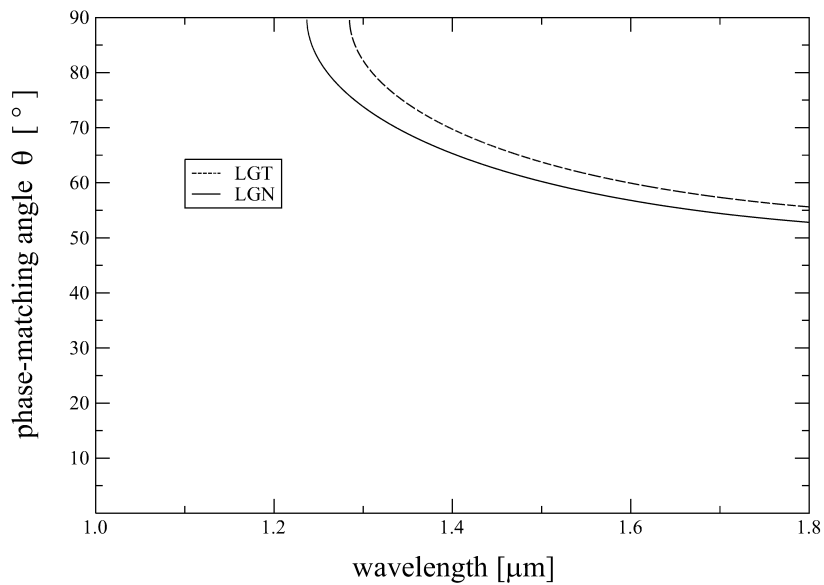


FIGURE 3.5 – Directions d'accord de phase de SHG de type I calculées dans les plans $x-z$ et $y-z$ de LGT à partir de l'équation (3.1) et des coefficients du tableau 3.1 (en trait pointillé). Le trait plein représente la courbe d'accord de phase de SHG de type I de LGN, d'après la réf. [77].

3.2 ECHANTILLONS DE LGT

Nous avons réceptionné un cristal de LGT d'excellente qualité taillé sous forme d'un cube de 10,3 mm de côté, dont une photographie est montrée à gauche de la figure 3.6. La croissance de l'échantillon étudié dans ce chapitre a été réalisée sous une atmosphère de croissance composée de 2% d'oxygène. Il est donc de couleur légèrement orangée comme l'atteste la photographie de la figure 3.6.

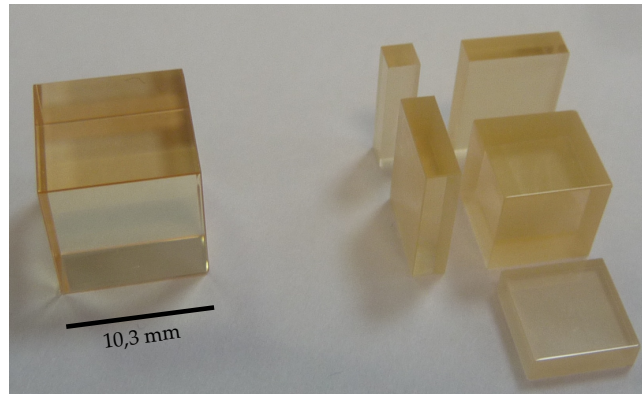


FIGURE 3.6 – Photographie du cristal de LGT réceptionné sous forme d'un cube de 10,3 mm de côté (à gauche) qui a été découpé en plusieurs parties (à droite).

Cette figure montre également, à droite de la photographie, plusieurs lames et un cube de plus faibles dimensions, extraits du cristal de LGT réceptionné. A partir du cube de droite, une sphère de 4,7 mm de diamètre, dont l'asphéricité $\Delta D/D$ est inférieure au pour cent, a été usinée et polie au laboratoire en utilisant la méthode décrite dans la partie 2.1.2. Sa photographie est présentée dans la figure 3.7.



FIGURE 3.7 – Photographie de la sphère de LGT de 4,7 mm de diamètre préparée au laboratoire.

Les autres morceaux de LGT ont été utilisés pour tailler des lames d'épaisseurs différentes et orientées dans des directions (θ, ϕ) spécifiques. Leurs caractéristiques seront précisées lors de la présentation des mesures nécessitant des lames orientées. Notons que les surfaces de tous les échantillons étudiés ont été polies à la qualité optique et n'ont pas subi de traitement antireflet.

3.3 SPECTRE DE TRANSMISSION

Nous avons mesuré le spectre de transmission en lumière polarisée à travers une lame de LGT de 2,5 mm d'épaisseur taillée perpendiculairement à l'axe diélectrique x ($\theta = 90^\circ, \phi = 0^\circ$). Elle est schématisée en encart des figures 3.8.

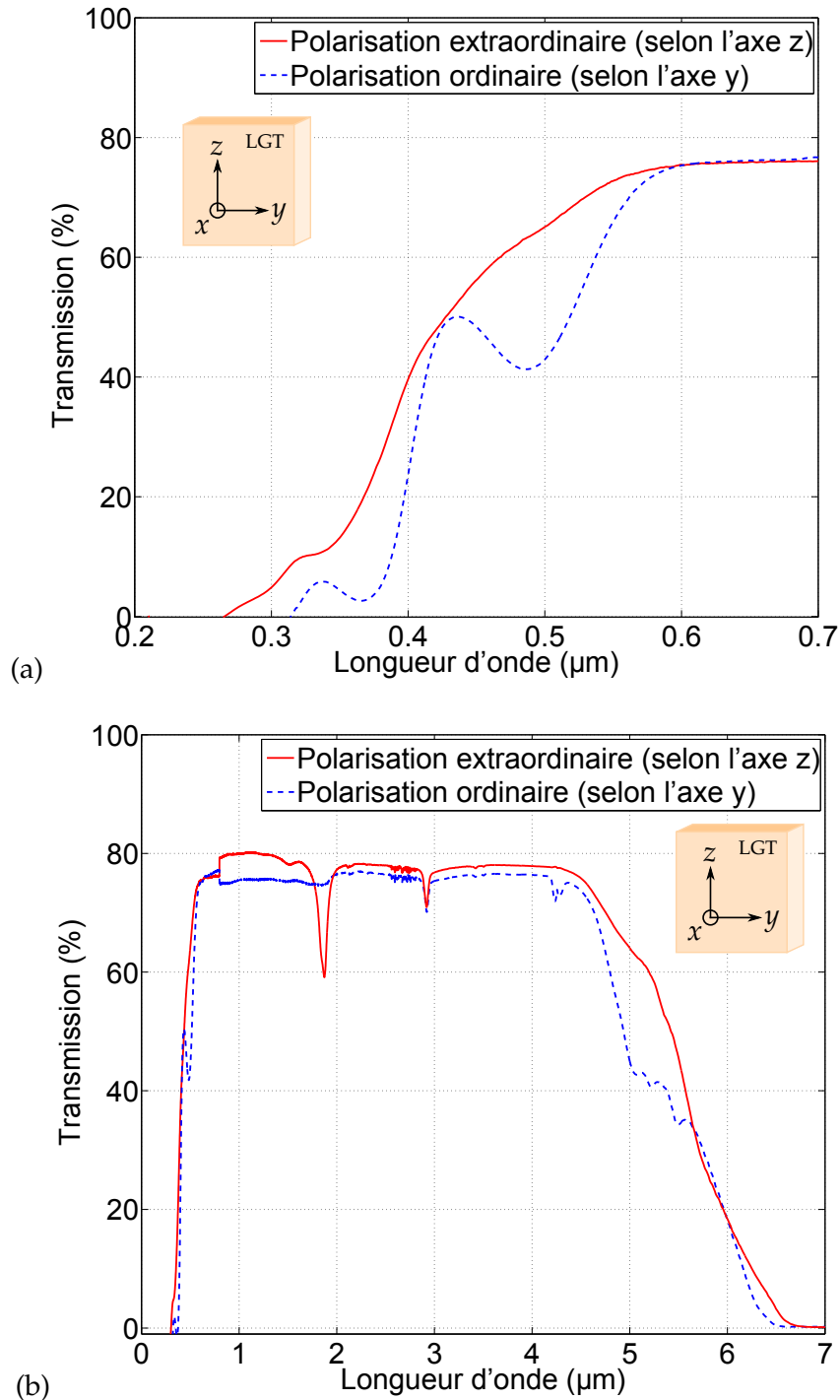


FIGURE 3.8 – Spectre de transmission du cristal de LGT en lumière polarisée et non corrigé de la transmission de Fresnel, réalisé à travers une lame non traitée antireflet de 2,5 mm d'épaisseur : (a) entre 0,2 et 0,7 μm et (b) entre 0,2 et 7 μm. L'encart de chaque figure schématise la lame de LGT taillée perpendiculairement à l'axe x .

Pour cette mesure, les deux spectromètres, décrits dans la partie 2.3.2, ont été utilisés avec leur module polarisant jusque $3 \mu\text{m}$ pour le spectromètre $\lambda 900$, et entre 3 et $7 \mu\text{m}$ pour le FTIR. Les résultats expérimentaux sont présentés figures 3.8.

Les courbes rouges correspondent à la polarisation extraordinaire, c'est-à-dire orientée parallèlement à l'axe z , et les traits pointillés bleus à la polarisation ordinaire, parallèle à l'axe y . La figure 3.8(a) correspond au zoom de la partie UV de la figure 3.8(b). Elle montre que la longueur d'onde de coupure dans l'UV de cette lame de LGT est identique à celle des figures 3.3. De plus, la courbe associée à la polarisation ordinaire est très similaire à la courbe (4) de la figure 3.3(b), ce qui est cohérent avec le fait que notre échantillon ait été préparé avec une concentration de 2% d'oxygène. Quant à elle, la figure 3.8(b) montre la totalité du domaine de transparence de LGT qui s'étend de $0,25$ à $6,50 \mu\text{m}$. Elle révèle une différence de transmission entre les deux polarisations qui est significative, en particulier autour de $2 \mu\text{m}$ où une absorption de 20% est associée à la polarisation extraordinaire uniquement. Cela sera à prendre en considération pour les mesures des propriétés optiques non linéaires à cette longueur d'onde afin d'éviter un endommagement du cristal de LGT utilisé.

3.4 SEUIL DE DOMMAGE OPTIQUE

Une estimation de l'énergie maximale à ne pas dépasser pour éviter l'endommagement des échantillons a été réalisée à partir de la mesure du seuil de dommage optique dans une lame de LGT de $500 \mu\text{m}$ d'épaisseur. Son orientation (θ, ϕ) n'a pas été identifiée puisqu'elle n'est pas importante pour cette mesure. Le seuil de dommage optique de LGT a été comparé à celui de KTP, mesuré dans les mêmes conditions. Le dispositif expérimental de cette mesure est présenté dans la figure 3.9.

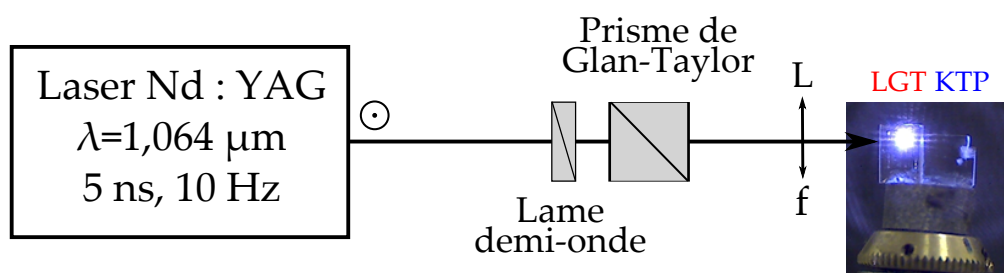


FIGURE 3.9 – Dispositif expérimental pour la mesure du seuil de dommage optique de LGT et de KTP.

Nous avons utilisé un laser Nd :YAG émettant des impulsions de 5 ns à $1,064 \mu\text{m}$, avec une fréquence de répétition de 10 Hz . L'énergie du faisceau a été mesurée avec le joulemètre Ophir PE50 et contrôlée par un atténuateur d'intensité composé d'une lame demi-onde et d'un prisme de Glan-Taylor, comme expliqué dans la partie 2.2.5. Ce système a permis de faire varier continûment l'énergie du faisceau par paliers de $0,25 \text{ mJ}$ toutes les minutes. Le faisceau est resté focalisé dans la lame par le biais d'une lentille L de 100 mm de distance focale, de sorte que son diamètre, mesuré par la

Avec le formalisme du tenseur champ, le coefficient effectif s'écrit donc d'après la partie 1.2.5 :

$$d_{\text{eff}} = d_{xxx} (F_{xxx} - F_{xyy} - F_{yyx} - F_{yxy}) \quad (3.5)$$

Les éléments F_{ijk} sont calculés à partir des équations (1.17) et (1.18) de la partie 1.1.6 : le calcul est analytique dans les plans principaux et hors des plans principaux du repère diélectrique puisque le cristal est uniaxe.

Ainsi, dans l'approximation de Kleinman, les matériaux cristallisant dans le système trigonal 32 possèdent un seul coefficient non linéaire non nul, d_{xxx} noté par la suite d_{11} en notation contractée. Il est important de rappeler que le coefficient effectif d_{eff} est donné à la longueur d'onde générée : cela signifie que sa valeur et celle de d_{11} seront différentes selon les processus de SFG, de SHG et de DFG considérés, puisque la longueur d'onde générée n'est pas la même.

Pour un cristal uniaxe positif comme LGT, les rendements de conversion des SHG de types I et II et des SFG et DFG de types I, II et III sont maximaux lorsque les conditions d'accord de phase par biréfringence (décrites par les équations (1.41) à (1.43)) du tableau 3.2 sont vérifiées. Ces conditions impliquent que le faisceau incident se propage dans la direction d'accord de phase θ_{PM} des plans $x - z$ ou $y - z$ de LGT. En effet, le cristal étant uniaxe, ces équations dépendent uniquement de l'angle d'accord de phase θ_{PM} .

Conditions d'accord de phase par biréfringence	
SHG de type I	$n^e(\lambda_\omega, \theta_{PM}) = n_o(\lambda_\omega/2)$
SFG/DFG de type I	$\frac{n^e(\lambda_1, \theta_{PM})}{\lambda_1} + \frac{n^e(\lambda_2, \theta_{PM})}{\lambda_2} = \frac{n_o(\lambda_3)}{\lambda_3}$
SHG de type II=III	$n_o(\lambda_\omega) + n^e(\lambda_\omega, \theta_{PM}) = 2n_o(\lambda_\omega/2)$
SFG/DFG de type II	$\frac{n_o(\lambda_1)}{\lambda_1} + \frac{n^e(\lambda_2, \theta_{PM})}{\lambda_2} = \frac{n_o(\lambda_3)}{\lambda_3}$
SFG/DFG de type III	$\frac{n^e(\lambda_1, \theta_{PM})}{\lambda_1} + \frac{n_o(\lambda_2)}{\lambda_2} = \frac{n_o(\lambda_3)}{\lambda_3}$

TABLE 3.2 – Conditions d'accord de phase par biréfringence, pour un cristal uniaxe positif comme LGT, des SHG de types I et II et des SFG/DFG de types I, II et III. λ_ω correspond à la longueur d'onde fondamentale de SHG, et λ_1 , λ_2 et λ_3 correspondent aux trois longueurs d'onde en interaction en SFG/DFG, avec $\lambda_1 \geq \lambda_2 > \lambda_3$.

D'après le tableau 1.1 de la partie 1.1.5, la nappe interne correspond à $n^o(\lambda)$ et la nappe externe à $n^e(\lambda, \theta_{PM})$ pour un cristal uniaxe positif. Elles s'écrivent pour toutes les directions d'accord de phase du plan $x - z$ ou $y - z$ repérées par l'angle θ_{PM} :

$$\begin{cases} n^o(\lambda) & = n_o(\lambda) \\ n^e(\lambda, \theta_{PM}) & = \left(\frac{\cos^2(\theta_{PM})}{n_o^2(\lambda)} + \frac{\sin^2(\theta_{PM})}{n_e^2(\lambda)} \right)^{-1/2} \end{cases} \quad (3.6)$$

Les expressions des coefficients effectifs associés à tous les processus de SHG, SFG et DFG de types I, II et III pour toute direction d'accord de phase (θ_{PM}, ϕ) de LGT sont reportées dans le tableau 3.3.

Coefficient effectif d_{eff}	
SHG de type I	$-d_{xxx}(\lambda_\omega/2) \cos^2[\theta_{PM} - \rho(\lambda_\omega, \theta_{PM})] \sin 3\phi$
SFG de type I	$-d_{xxx}(\lambda_3) \cos[\theta_{PM} - \rho(\lambda_1, \theta_{PM})] \cos[\theta_{PM} - \rho(\lambda_2, \theta_{PM})] \sin 3\phi$
DFG de type I	$-d_{xxx}(\lambda_1) \cos[\theta_{PM} - \rho(\lambda_1, \theta_{PM})] \cos[\theta_{PM} - \rho(\lambda_2, \theta_{PM})] \sin 3\phi$
SHG de type II=III	$d_{xxx}(\lambda_\omega/2) \cos[\theta_{PM} - \rho(\lambda_\omega, \theta_{PM})] \cos 3\phi$
SFG de type II	$d_{xxx}(\lambda_3) \cos[\theta_{PM} - \rho(\lambda_2, \theta_{PM})] \cos 3\phi$
DFG de type II	$d_{xxx}(\lambda_1) \cos[\theta_{PM} - \rho(\lambda_2, \theta_{PM})] \cos 3\phi$
SFG de type III	$d_{xxx}(\lambda_3) \cos[\theta_{PM} - \rho(\lambda_1, \theta_{PM})] \cos 3\phi$
DFG de type III	$d_{xxx}(\lambda_1) \cos[\theta_{PM} - \rho(\lambda_1, \theta_{PM})] \cos 3\phi$

TABLE 3.3 – Coefficients effectifs d_{eff} associés aux directions d'accord de phase des SHG de types I et II=III et des SFG/DFG de types I, II et III, repérées par l'angle θ_{PM} , pour un cristal de symétrie trigonal 32.

Le tableau 3.3 montre que le coefficient effectif dépend de ϕ , contrairement aux conditions d'accord de phase. Le coefficient effectif est proportionnel à $\sin 3\phi$ pour les interactions de type I, et donc maximal lorsque $\phi = 90^\circ$ (plan principal $y - z$) et $\phi = 30^\circ$; il est nul à $\phi = 0^\circ$ (plan principal $x - z$) et $\phi = 60^\circ$. A l'inverse, en ce qui

concerne les interactions de types II et III, le coefficient effectif associé est proportionnel à $\cos 3\phi$: il est donc maximal à $\phi = 0^\circ$ (plan $x - z$) et $\phi = 60^\circ$, et nul lorsque $\phi = 90^\circ$ (plan $y - z$) et $\phi = 30^\circ$. Les expressions du tableau 3.3 montrent donc qu'il n'est pas nécessaire de travailler hors des plans principaux de LGT, puisque le coefficient effectif associé à chaque interaction atteint sa valeur maximale dans les plans principaux $x - z$ et $y - z$. Elles montrent aussi que les interactions de type I pourront être mesurées dans le plan principal $y - z$, et celles de types II et III dans le plan principal $x - z$.

Les équations du tableau 3.2 montrent aussi que les deux indices de réfraction principaux de LGT peuvent être sollicités même si on se limite à ces interactions. Grâce aux sources paramétriques à notre disposition, présentées dans la partie 2.2, la longueur d'onde λ_ω est accessible entre 0,25 et 6,5 μm pour les études de SHG, couvrant ainsi tout le domaine de transparence de LGT. Pour les études de SFG et DFG, λ_2 est égale à 1,064 μm avec nos deux sources commerciales, nanoseconde et picoseconde. Par contre, elle pourra être comprise entre 1,4 et 4,4 μm si les OPO cylindriques conçus au laboratoire sont utilisés. L'autre longueur d'onde incidente (λ_1 pour la SFG et λ_3 pour la DFG) est comprise entre 0,4 et 2,4 μm . La figure 3.10 représente les domaines de longueur d'onde des indices de réfraction principaux n_o et n_e de LGT qui pourraient être sollicités si les interactions de SHG, SFG et DFG de type I dans le plan $y - z$ et celles de types II et III dans le plan $x - z$ sont mesurées avec nos sources paramétriques.

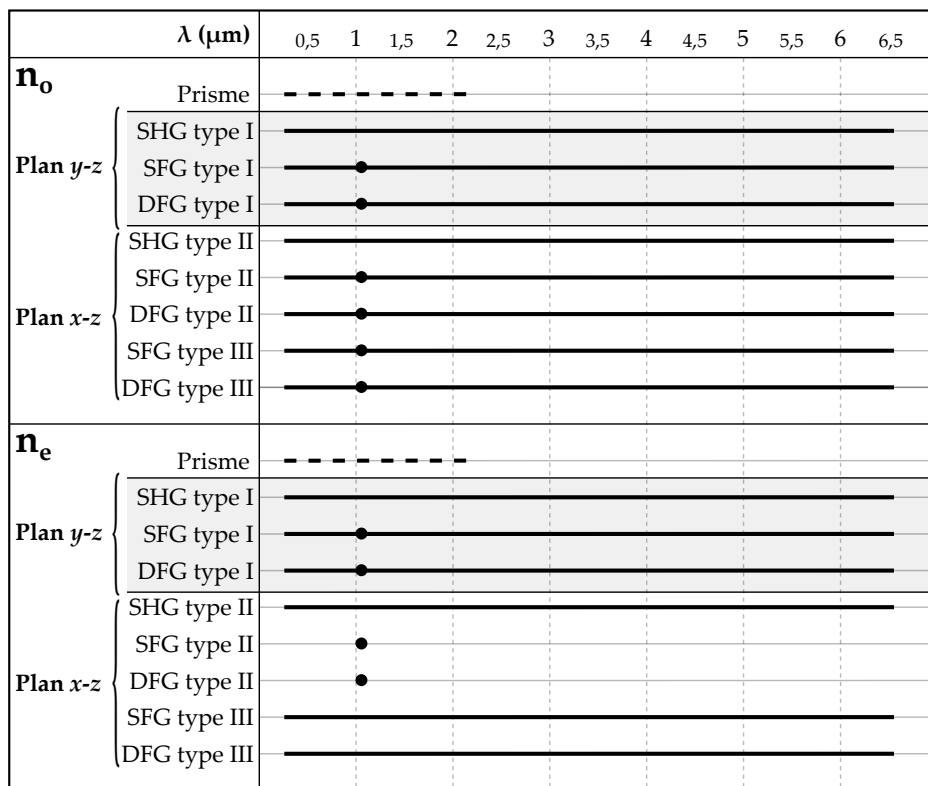


FIGURE 3.10 – Gammes de longueur d'onde des indices de réfraction principaux n_o et n_e de LGT pouvant être accessibles avec nos sources pour les mesures de SHG, SFG et DFG de types I, II et III sur sphère (traits pleins). Comparaison aux gammes accessibles par les mesures sur prisme [77] (traits pointillés).

La figure 3.10 montre que les domaines spectraux accessibles avec nos sources couvrent tout le domaine de transparence de LGT, contrairement à la méthode du minimum de déviation sur prisme de la réf. [77] limitée à $2,32 \mu\text{m}$. Elle montre également qu'il serait redondant de mesurer toutes les courbes d'accord de phase de types I, II et III dans les plans principaux $y - z$ et $x - z$. En effet, la mesure dans un seul plan devrait être suffisante pour solliciter les deux indices de réfraction principaux sur tout le domaine de transparence de LGT. Nous avons donc étudié les angles d'accord de phase de SHG, SFG et DFG de type I dans le plan $y - z$ comme indiqué par la partie grisée de la figure 3.10.

Notons que l'injection des expressions (3.6) dans les équations d'accord de phase de type I du tableau 3.2 permet d'écrire les équations analytiques, lorsqu'elles existent, des angles d'accord de phase θ_{PM} . C'est le cas pour la SHG de type I dont l'équation analytique en fonction des indices de réfraction principaux n_o et n_e de LGT et de la longueur d'onde fondamentale λ_ω est donnée dans le tableau 3.4.

Angles d'accord de phase	
SHG de type I	$\theta_{PM}^I = \arcsin \left(\sqrt{\frac{n_o^{-2}(\lambda_\omega/2) - n_o^{-2}(\lambda_\omega)}{n_e^{-2}(\lambda_\omega) - n_o^{-2}(\lambda_\omega)}} \right)$
SFG/DFG de type I	Solution numérique θ_{PM}^{num}

TABLE 3.4 – Expressions des angles d'accord de phase par biréfringence pour les processus de SHG, SFG/DFG de type I dans un cristal uniaxe positif comme LGT.

En revanche, les expressions des angles d'accord de phase associées à la SFG et la DFG de type I ne sont pas analytiques car les conditions d'accord de phase correspondantes impliquent deux indices $n^e(\lambda_u, \theta_{PM})$ (avec $u = 1, 2$ ou 3) décrits par l'équation (3.6). Dans ce cas, les solutions numériques sont obtenues à partir de la résolution de la condition d'accord de phase donnée dans le tableau 3.2.

En résumé, à partir du calcul des directions d'accord de phase associées à un rendement de conversion non nul, et donc à un coefficient effectif non nul, nous avons montré qu'il suffit de mesurer les angles d'accord de phase de SHG, SFG et DFG de type I dans le plan $y - z$ de LGT pour solliciter ses deux indices de réfraction principaux $n_o(\lambda)$ et $n_e(\lambda)$ sur tout le domaine de transparence du cristal.

3.5.2 Mesure directe des angles d'accord de phase

Les mesures ont été réalisées directement dans la sphère de LGT collée avec l'axe x vertical (voir partie 2.4.1.1), de manière à accéder à toutes les directions de propagation dans le plan $y - z$. Nous avons utilisé la méthode de la sphère décrite dans le chapitre 2. Afin de ne pas endommager l'échantillon, nous avons fixé les énergies

incidentes de nos sources paramétriques bien en dessous du seuil de dommage optique de LGT, c'est-à-dire autour de 20 μJ . Pour les mesures de SHG et DFG, nous avons utilisé l'OPG picoseconde accordable décrit dans la partie 2.2.2. Pour la SHG, seul le faisceau accordable entre 0,4 et 12 μm a été directement focalisé dans la sphère. Il a été recombinaé avec une partie du 1,064 μm (voir figure 2.3) pour étudier la DFG. La mesure de SFG a été réalisée en injectant dans la sphère les deux faisceaux émis par les OPO cylindriques, décrits dans la partie 2.2.3. La longueur d'onde d'un des OPO a été fixée à $\lambda_2 = 1,5 \mu\text{m}$ alors que la longueur d'onde λ_1 du second OPO a été accordée par rotation du cylindre partiel de PPLN, entre 1,4 et 4,4 μm . La polarisation des faisceaux a été ajustée avec des lames demi-onde achromatiques. Pour tous les processus étudiés, les angles d'accord de phase ont été mesurés avec une précision globale de $\pm 0,5^\circ$. Les longueurs d'onde ont été contrôlées par les deux spectromètres (voir partie 2.2.5) avec une précision de $\pm 1 \text{ nm}$ pour la SHG et la DFG, et $\pm 10 \text{ nm}$ pour la SFG. Les faisceaux générés par SHG, SFG et DFG ont été mesurés par les détecteurs décrits dans la partie 2.2.5 après avoir placé des filtres à la sortie du cristal afin de "bloquer" les longueurs d'onde incidentes.

Les résultats expérimentaux obtenus sont représentés par les figures 3.11, 3.13 et 3.14 où la longueur d'onde incidente est tracée en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} [81]. La figure 3.12 représente l'évolution du rapport $\zeta = \mathcal{E}(2\omega, L) / \mathcal{E}^2(\omega, 0)$ (voir équation (1.34)), normalisé à 1, en fonction (a) de la longueur d'onde fondamentale λ_ω , et (b) de l'angle θ autour du "point" d'accord de phase repéré par le point A de la figure 3.11. Les points bleus des figures 3.11 à 3.14 correspondent aux points expérimentaux et la courbe noire pointillée aux calculs à partir des équations de Sellmeier déterminées par la méthode du prisme (données par les expressions (3.1) et les coefficients du tableau 3.1) [77].

La courbe de SHG de type I (figure 3.11) a pu être mesurée pour une longueur d'onde fondamentale λ_ω comprise entre 1,33 et 3,29 μm . Aucune mesure n'est accessible au-delà de $\theta_{PM} = 80^\circ$ car le coefficient effectif associé est trop faible : $d_{\text{eff}} \propto \cos^2 \theta_{PM}$, voir tableau 3.3. La courbe de SFG mesurée exploite presque toute l'accordabilité d'un des OPO cylindriques puisque la longueur d'onde λ_1 utilisée varie entre 1,65 et 3,73 μm (voir figure 3.13). Enfin, la figure 3.14 montre qu'une génération de différence de fréquences a pu être étudiée sur tout le domaine de transparence du cristal, les points expérimentaux ayant été mesurés jusque 5,5 μm , ce qui correspond à la limite spectrale de détection de la photodiode InSb utilisée.

Finalement, les figures 3.11 à 3.14 montrent des points expérimentaux qui peuvent être utilisés tels quels pour l'étude de la génération paramétrique dans LGT. Elles représentent également des calculs à partir des équations (3.1) et des coefficients du tableau 3.1 qui sont en désaccord avec les mesures en particulier au-delà de 2 μm . Cela

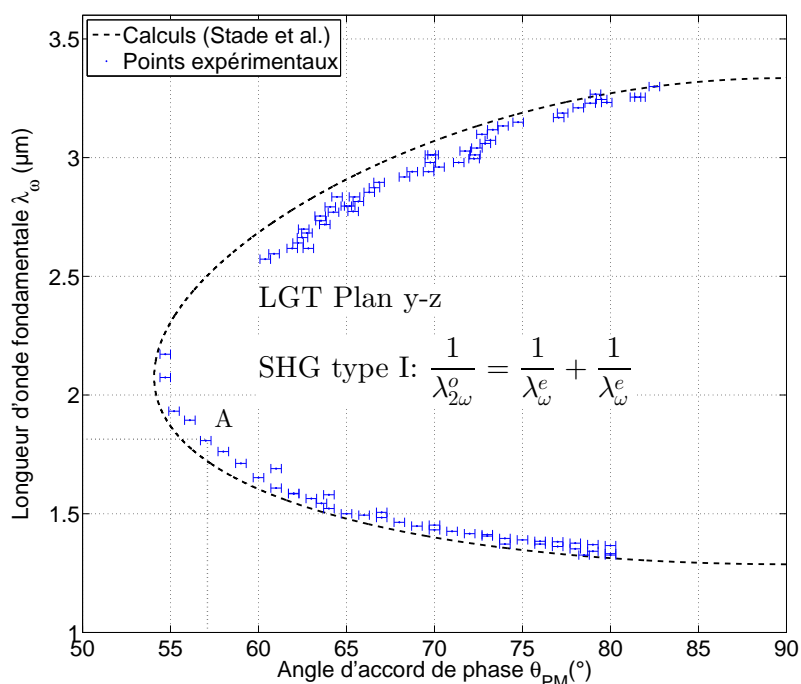


FIGURE 3.11 – Courbe d'accord de phase de SHG de type I : la longueur d'onde fondamentale λ_ω est tracée en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} . $\lambda_{2\omega}$ correspond à la longueur d'onde $\lambda_\omega/2$ générée par SHG.

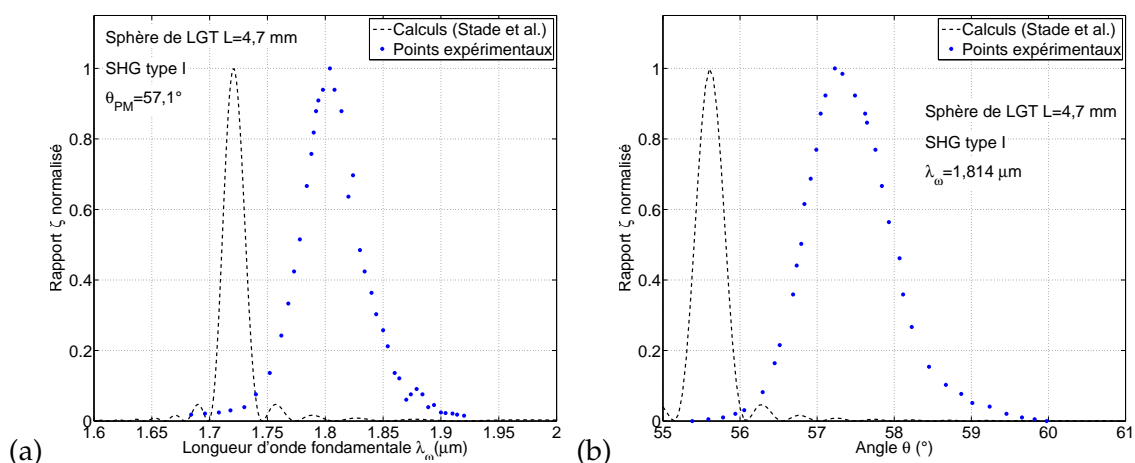


FIGURE 3.12 – Evolution du rapport $\zeta = \mathcal{E}(2\omega, L) / \mathcal{E}^2(\omega, 0)$ normalisé à 1 en fonction (a) de la longueur d'onde fondamentale λ_ω , et (b) de l'angle θ autour du "point" d'accord de phase A de la figure 3.11.

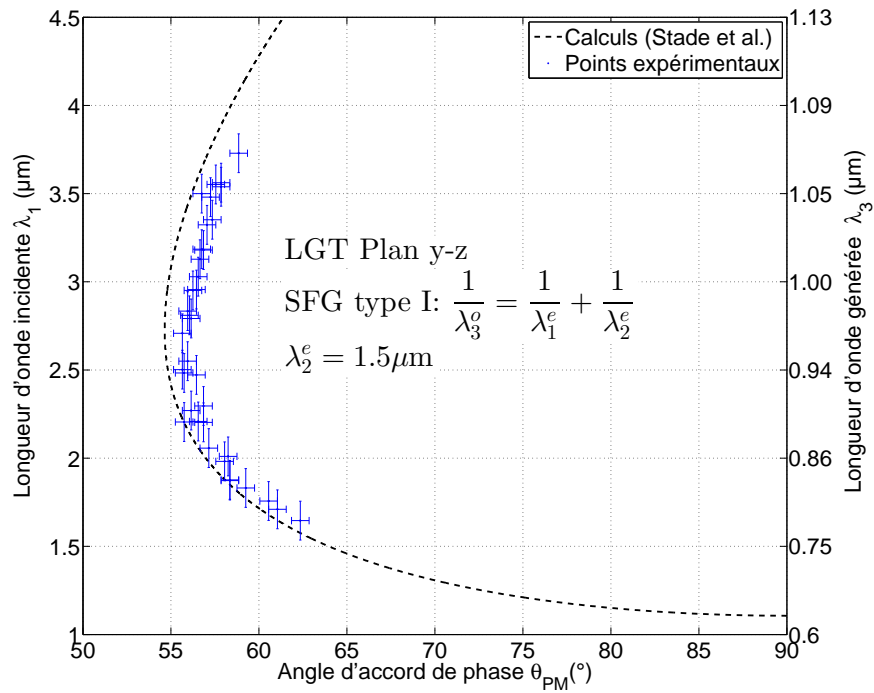


FIGURE 3.13 – Courbe d'accord de phase de SFG de type I avec $\lambda_2 = 1,5 \mu\text{m}$: la longueur d'onde λ_1 est tracée en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} . A droite, λ_3 correspond à la longueur d'onde générée par somme de fréquences.

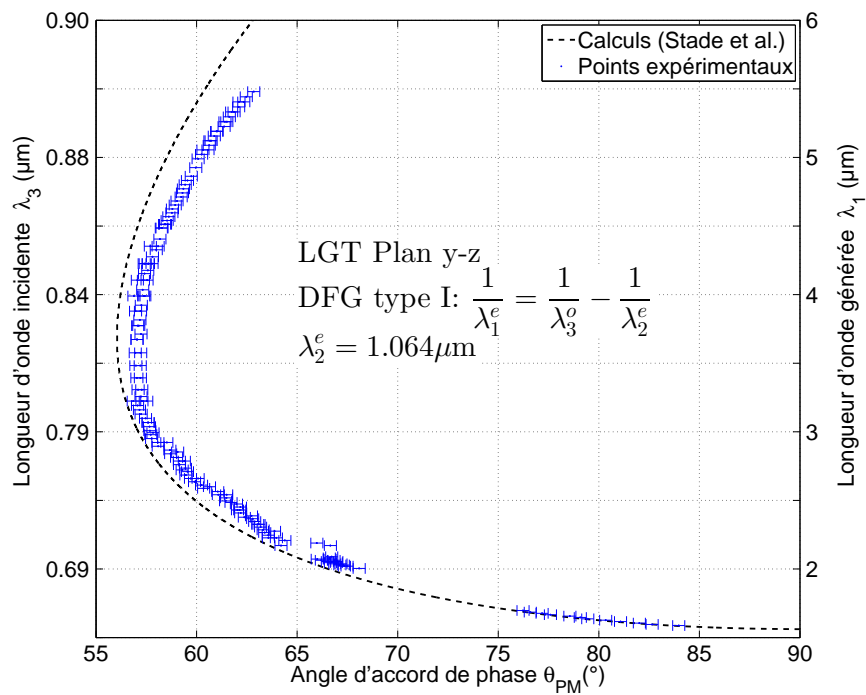


FIGURE 3.14 – Courbe d'accord de phase de DFG de type I avec $\lambda_2 = 1,064 \mu\text{m}$: λ_3 est tracée en fonction de θ_{PM} . A droite, λ_1 correspond à la longueur d'onde générée par différence de fréquences.

est expliqué par le fait que les indices de réfraction déterminés par la méthode du prisme dans la réf. [77] sont fiables uniquement jusque $2,32 \mu\text{m}$ (voir figure 3.4).

Nous avons donc tiré profit de nos mesures directes et précises d'angles d'accord de phase pour affiner les équations de Sellmeier (3.1) sur tout le domaine de transparence de LGT.

3.6 DÉTERMINATION DE LA DISPERSION DES INDICES DE RÉFRACTION À PARTIR DES MESURES DES DIRECTIONS D'ACCORD DE PHASE

L'affinement des équations de dispersion des deux indices de réfraction principaux du cristal de LGT a reposé sur l'interpolation simultanée des trois courbes d'accord de phase expérimentales (méthode expliquée dans la partie 1.1.4). Pour l'ajustement de la courbe de SHG de type I, nous avons utilisé l'expression analytique des angles d'accord de phase θ_{PM}^I du tableau 3.4. Il a fallu calculer les solutions numériques associées à toutes les directions d'accord de phase de SFG et DFG de type I pour l'interpolation des courbes mesurées.

L'interpolation simultanée de tous les résultats expérimentaux représentés dans les figures 3.11, 3.13 et 3.14 a été réalisée en testant plusieurs formes d'équations de Sellmeier, mais la meilleure interpolation a été obtenue avec l'équation (3.1). Nous avons donc utilisé cette équation avec les coefficients du tableau 3.1 comme paramètres initiaux. Nous avons obtenu de nouveaux coefficients de Sellmeier qui sont donnés dans le tableau 3.5.

n_i	A_i	B_i	C_i	D_i
n_o	3,6485	0,0444	0,0138	0,0096
n_e	3,7451	0,0360	0,2503	0,0102

TABLE 3.5 – Nouveaux coefficients de Sellmeier des indices de réfraction principaux n_o et n_e de LGT obtenus à partir de l'interpolation de nos points expérimentaux.

Les figures 3.15, 3.16, 3.17 et 3.18 font apparaître, en rouge, le résultat correspondant au calcul réalisé à partir des nouveaux coefficients donnés dans le tableau 3.5. Elles montrent aussi la comparaison avec les calculs en utilisant les coefficients du tableau 3.1 obtenus à partir de mesures sur prisme. Ainsi, elles mettent en évidence un bien meilleur accord des mesures sur sphère avec les calculs à partir de nos équations affinées (équations (3.1) et tableau 3.5) sur tout le domaine de transparence du cristal de LGT.

Les acceptances spectrale $L\delta\lambda_\omega$ et angulaire $L\delta\theta$ calculées avec les coefficients du tableau 3.5 sont aussi en meilleur accord avec nos mesures qu'en utilisant les coefficients

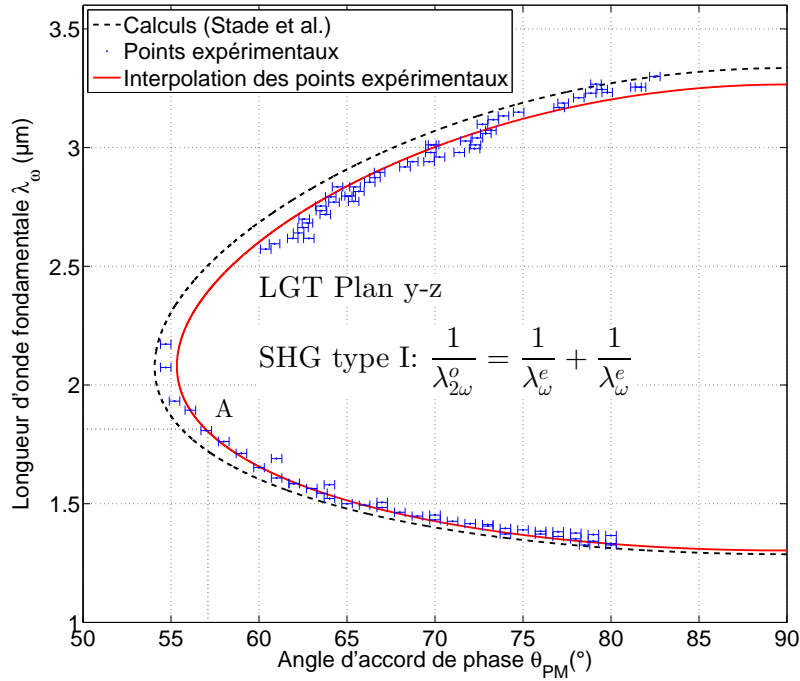


FIGURE 3.15 – Courbe d'accord de phase de SHG de type I : la longueur d'onde fondamentale λ_ω est tracée en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} .

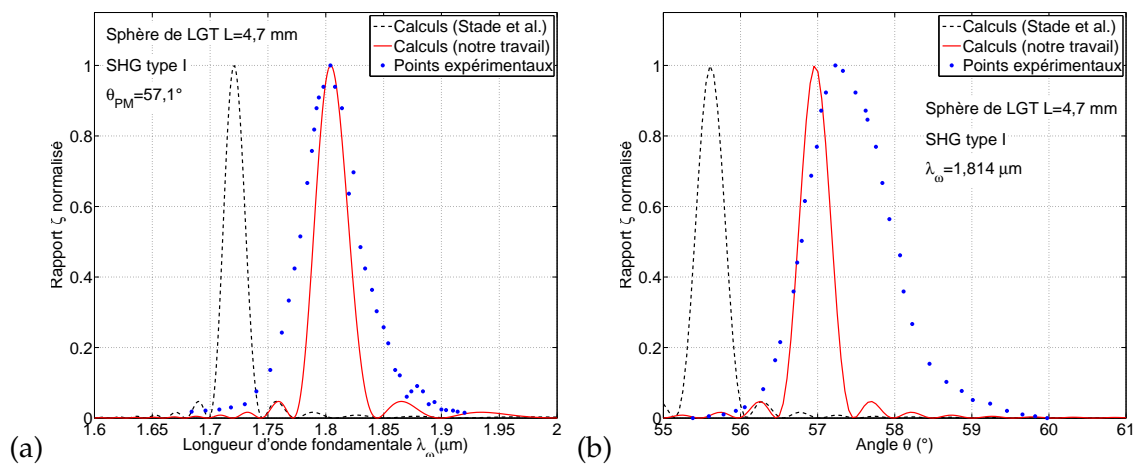


FIGURE 3.16 – Evolution du rapport $\zeta = \mathcal{E}(2\omega, L) / \mathcal{E}^2(\omega, 0)$ normalisé à 1 en fonction (a) de la longueur d'onde fondamentale λ_ω , et (b) de l'angle θ autour du "point" d'accord de phase A de la figure 3.15.

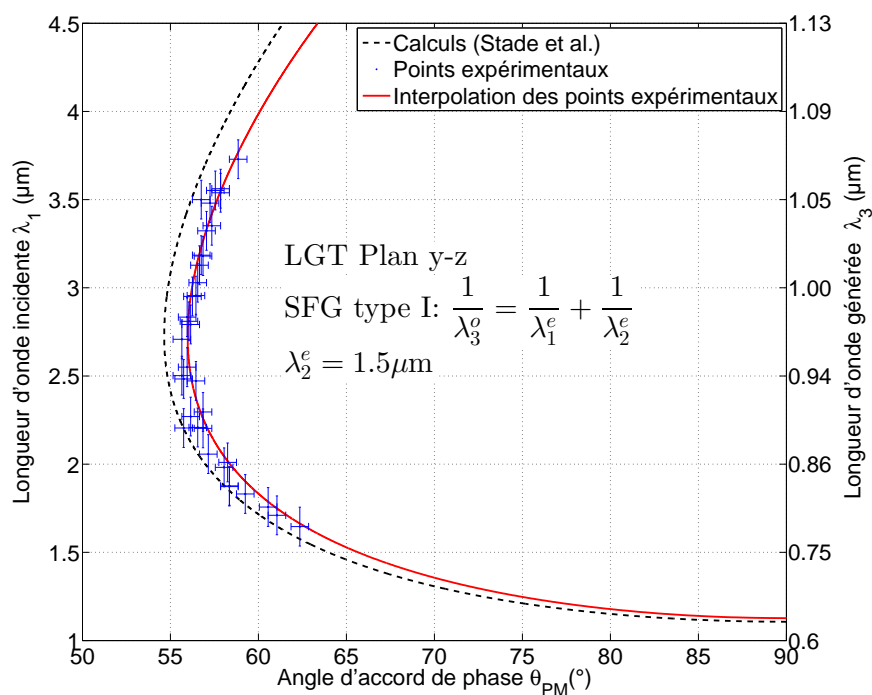


FIGURE 3.17 – Courbe d'accord de phase de SFG de type I avec $\lambda_2 = 1,5 \mu\text{m}$: λ_1 est tracée en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} . A droite, λ_3 correspond à la longueur d'onde générée par somme de fréquences.

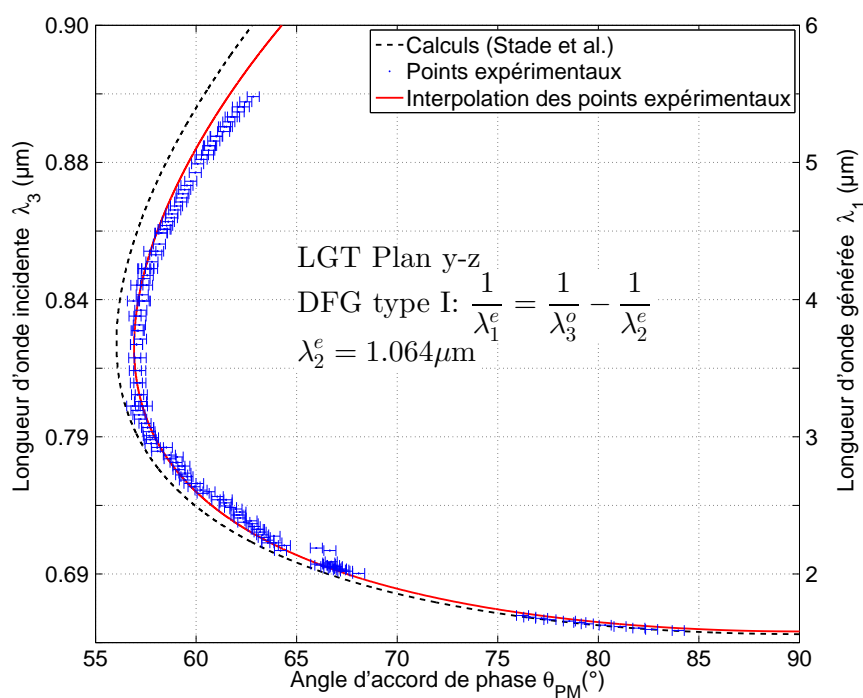


FIGURE 3.18 – Courbe d'accord de phase de DFG de type I avec $\lambda_2 = 1,064 \mu\text{m}$: λ_3 est tracée en fonction de θ_{PM} . A droite, λ_1 correspond à la longueur d'onde générée par différence de fréquences.

du tableau 3.1. Notons néanmoins que les valeurs des acceptances mesurées sont plus grandes que celles calculées, ce qui est très généralement le cas. Nous expliquons cela par le fait que la longueur d'interaction est certainement inférieure à l'épaisseur de la sphère, cela pouvant être dû à la présence de défauts dans le cristal.

Les équations de Sellmeier déterminées avec la méthode de la sphère sont valables entre 0,6 et 5,5 μm pour n_o et entre 1,064 et 5,5 μm pour n_e , comme le montre la figure 3.19. Cette dernière résume la sollicitation des deux indices de réfraction de LGT au cours des mesures sur sphère des courbes d'accord de phase de SHG, SFG et DFG de type I dans le plan $y - z$, en comparaison avec les mesures sur prisme et par rapport au domaine spectral accessible avec nos sources paramétriques.

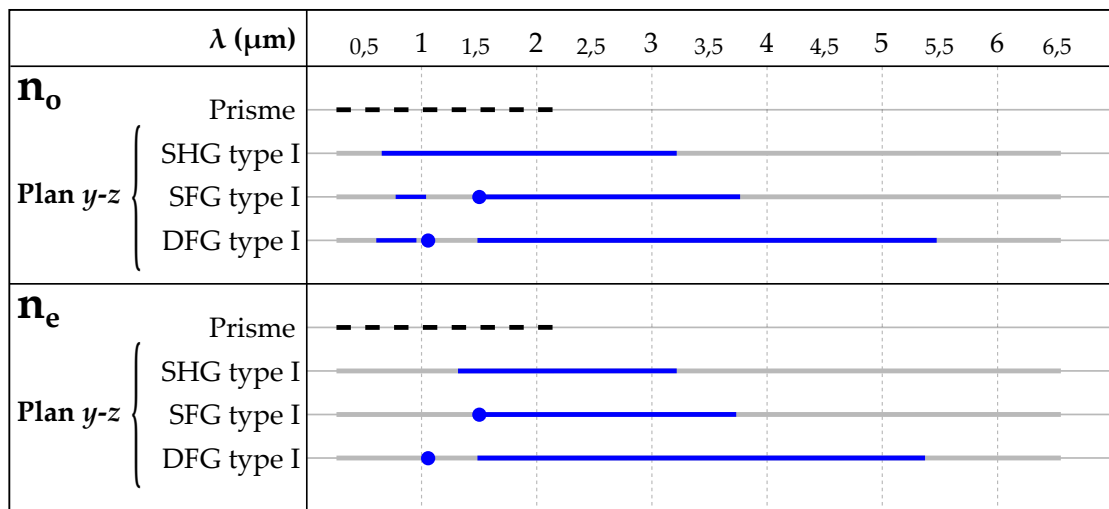


FIGURE 3.19 – Gamme de longueur d'onde sur lesquelles les indices de réfraction principaux n_o et n_e de LGT ont été sollicités lors des mesures des courbes d'accord de phase de SHG, SFG et DFG de type I sur sphère (traits pleins), en comparaison aux mesures sur prisme [77] (traits pointillés).

3.7 TENSEUR DE SUSCEPTIBILITÉ ÉLECTRIQUE DU SECOND ORDRE $\bar{\bar{d}}^{(2)}$

Le coefficient non linéaire $d_{xxx} = d_{11}$ de LGT n'ayant jamais été déterminé à notre connaissance, nous l'avons mesuré à partir de l'étude de la SHG de type I en accord de phase, comme abordé dans le chapitre 2. Comme il intervient toujours seul dans l'expression du coefficient effectif (voir tableau 3.3), il existe un grand nombre de configurations qui permettent sa détermination. Étant donné la simplicité du tenseur $\bar{\bar{d}}^{(2)}$ de LGT qui possède seulement l'élément d_{xxx} (voir matrice (3.4)), il n'est pas nécessaire de déterminer le signe de cet élément, car il intervient au carré dans l'expression de l'énergie générée (cf. équation (1.26)).

3.7.1 Principe de la mesure

Le coefficient non linéaire d_{11} de LGT a été déterminé à partir de l'étude de l'énergie générée par SHG en accord de phase de type I à travers une lame taillée dans une direction θ_{PM} du plan $y - z$ ($\phi = 90^\circ$). Comme le montre l'équation (1.26) écrite pour un processus de SHG, le coefficient effectif peut être mesuré directement à partir du rapport ζ entre l'énergie $\mathcal{E}(\lambda_\omega/2, L)$ générée à $\lambda_\omega/2$ et le carré de l'énergie $\mathcal{E}(\lambda_\omega, 0)$ incidente à λ_ω :

$$\zeta = \frac{\mathcal{E}(\lambda_\omega/2, L)}{\mathcal{E}^2(\lambda_\omega, 0)} \quad (3.7)$$

Nous avons réalisé une mesure relative du coefficient non linéaire d_{11} de LGT par rapport à la référence d_{24} du cristal de KTP, sollicitée par la SHG de type II dans le plan $x - z$ [64]. Les deux cristaux ont été étudiés dans les mêmes conditions expérimentales afin que les paramètres spatio-temporels du faisceau soient identiques dans les échantillons. Pour cela, deux lames ont été préparées avec la même épaisseur $L = 500 \mu\text{m}$ afin de pouvoir négliger l'effet de la double réfraction (voir partie 1.2.6.5), et pour assurer une propagation parallèle des faisceaux à l'intérieur des échantillons (longueur de Rayleigh beaucoup plus grande que la longueur du cristal).

Les orientations de LGT et KTP, ($\theta_{PM}^{\text{LGT}}, \phi = 90^\circ$) et ($\theta_{PM}^{\text{KTP}}, \phi = 0^\circ$) respectivement, ont été choisies afin que les longueurs d'onde fondamentales correspondantes, $\lambda_\omega^{\text{LGT}}$ et $\lambda_\omega^{\text{KTP}}$, soient très proches, i.e. $\Delta\lambda = |\lambda_\omega^{\text{KTP}} - \lambda_\omega^{\text{LGT}}| < 0,05 \mu\text{m}$. Cela a permis de s'affranchir de la transmission des différents éléments optiques du dispositif expérimental.

Ce choix a été possible en comparant les courbes d'accord de phase de SHG de type I dans le plan $y - z$ de LGT et de SHG de type II dans le plan $x - z$ de KTP représentées par la figure 3.20.

D'après la figure 3.20, nous avons usiné une lame de LGT orientée dans la direction ($\theta_{PM}^{\text{LGT}} = 79^\circ, \phi = 90^\circ$), ce qui correspond à la longueur d'onde $\lambda_\omega^{\text{LGT}} = 1,34 \mu\text{m}$ et une lame de KTP orientée dans la direction ($\theta_{PM}^{\text{KTP}} = 58,5^\circ, \phi = 0^\circ$) pour la longueur d'onde $\lambda_\omega^{\text{KTP}} = 1,32 \mu\text{m}$, soit $\Delta\lambda = 0,02 \mu\text{m}$. Les coefficients effectifs associés sont respectivement :

$$\begin{cases} d_{\text{eff}}^{\text{LGT}} &= d_{11}^{\text{LGT}}(\lambda_\omega^{\text{LGT}}/2) \cos^2[\theta_{PM}^{\text{LGT}} - \rho(\lambda_\omega^{\text{LGT}}, \theta_{PM}^{\text{LGT}})] \\ d_{\text{eff}}^{\text{KTP}} &= d_{24}^{\text{KTP}}(\lambda_\omega^{\text{KTP}}/2) \sin[\theta_{PM}^{\text{KTP}} - \rho(\lambda_\omega^{\text{KTP}}, \theta_{PM}^{\text{KTP}})] \end{cases} \quad (3.8)$$

avec $d_{24}^{\text{KTP}}(\lambda_\omega^{\text{KTP}}/2) = d_{24}^{\text{KTP}}(0,66 \mu\text{m}) = 2,37 \pm 0,17 \text{ pm/V}$ comme référence [6].

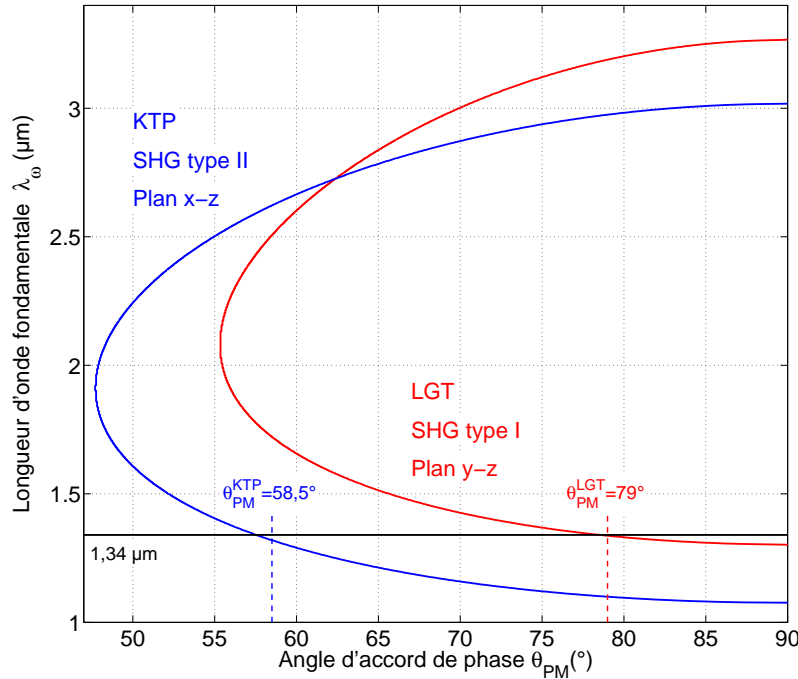


FIGURE 3.20 – Courbes d'accord de phase de SHG de type II dans le plan $x - z$ de KTP en bleu, et de SHG de type I dans le plan $y - z$ de LGT en rouge.

3.7.2 Mesure du rapport ζ dans LGT et dans KTP

Les expériences de SHG de type I dans LGT à λ_{ω}^{LGT} et de SHG de type II dans KTP à λ_{ω}^{KTP} ont pu être réalisées à l'aide de notre source paramétrique en régime picoseconde (voir partie 2.2.2). Le dispositif expérimental adapté à cette mesure est représenté par la figure 3.21 où i correspond à LGT ou KTP.

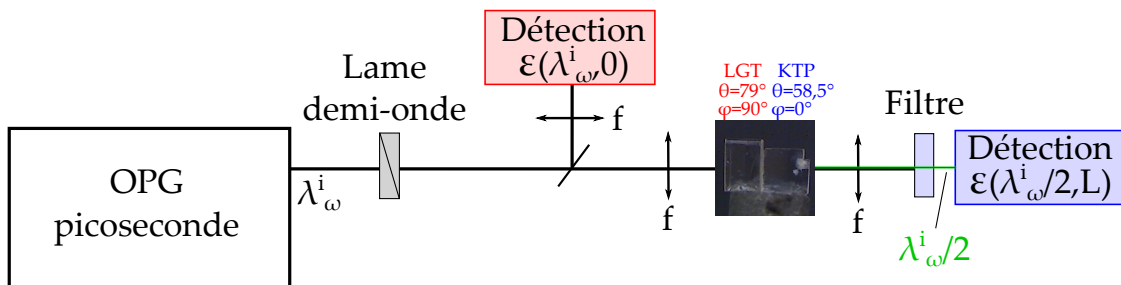


FIGURE 3.21 – Dispositif expérimental pour la mesure relative du coefficient non linéaire de LGT par rapport à KTP avec la source OPG picoseconde dont la longueur d'onde émise vaut successivement λ_{ω}^{LGT} et λ_{ω}^{KTP} .

La lame demi-onde a permis de contrôler la polarisation du faisceau incident afin d'étudier successivement la SHG de type I dans LGT puis la SHG de type II dans KTP en accord de phase. Une lame semi-réfléchissante traitée (UVFS 50/50 900-2600 nm) a été employée pour prélever la moitié de l'énergie incidente $\mathcal{E}(\lambda_{\omega}^i, 0)$ qui a été mesurée avec précision. Un filtre a été placé après chaque lame pour mesurer uniquement l'énergie $\mathcal{E}(\lambda_{\omega}^i/2, L)$ générée par SHG. La mesure simultanée des énergies incidente

et générée a permis d'évaluer le rapport ζ , défini par l'équation (3.7), dans chaque lame.

Nous nous sommes assurés que le rapport ζ était maximal, correspondant à un accord de phase par SHG, en mesurant sa variation en fonction de la longueur d'onde fondamentale autour de $\lambda_{\omega}^{\text{LGT}}$ pour LGT, puis autour de $\lambda_{\omega}^{\text{KTP}}$ pour KTP. Cette mesure a également permis d'avoir une estimation de l'acceptance spectrale, qui vaut 27 mm.nm pour LGT dans le cas de la SHG de type I comme le montre la figure 3.22. En effet, cette figure représente les points expérimentaux en comparaison aux calculs à partir des équations de Sellmeier affinées (voir partie 3.6) qui sont en excellent accord. La figure 3.22 donne aussi la position du maximum du rapport ζ qui fixe la longueur d'onde fondamentale optimale $\lambda_{\omega}^{\text{LGT}} = 1,34 \mu\text{m}$. L'amplitude de ζ associée à $\lambda_{\omega}^{\text{LGT}} = 1,34 \mu\text{m}$ va également être utilisée pour déterminer d_{11} de LGT relativement à d_{24} de KTP.

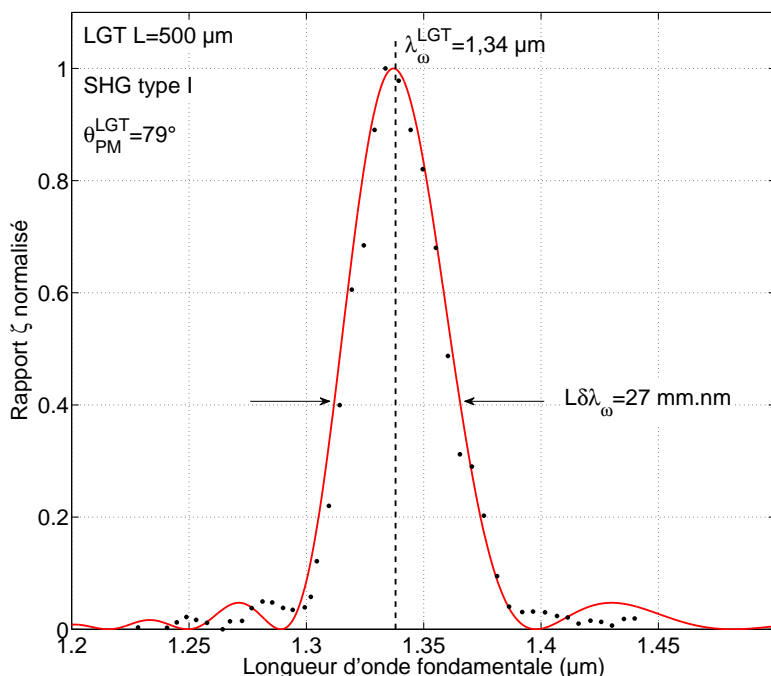


FIGURE 3.22 – Tracé du rapport ζ de SHG normalisé à 1 dans la lame de LGT autour de la longueur d'onde fondamentale $\lambda_{\omega}^{\text{LGT}}$.

Une fois la longueur d'onde fondamentale déterminée pour chaque échantillon, l'énergie incidente à la longueur d'onde λ_{ω}^i (avec $i = \text{LGT}$ ou KTP) a été mesurée avec le joulemètre Ophir PE10 et l'énergie générée à la longueur d'onde $\lambda_{\omega}^i/2$ dans LGT et KTP avec une photodiode en Silicium (Hamamatsu C2719). Cette mesure a permis de déterminer les deux paramètres ζ^{LGT} et ζ^{KTP} correspondant à LGT et à KTP respectivement.

3.7.3 Détermination de l'amplitude du coefficient non linéaire d_{11}^{LGT} de LGT

En accord de phase ($\Delta k = 0$), le rapport de l'équation (1.26) écrite pour LGT sur l'équation (1.26) écrite pour KTP permet de déterminer la valeur maximale du rapport du paramètre ζ^{LGT} sur ζ^{KTP} , soit :

$$\frac{\zeta^{\text{LGT}}}{\zeta^{\text{KTP}}} = \frac{L_{\text{LGT}}^2 \frac{\mathcal{A}^{\text{LGT}}}{(\lambda_{\omega}^{\text{LGT}})^2} G^{\text{LGT}} (d_{\text{eff}}^{\text{LGT}})^2}{L_{\text{KTP}}^2 \frac{\mathcal{A}^{\text{KTP}}}{(\lambda_{\omega}^{\text{KTP}})^2} G^{\text{KTP}} (d_{\text{eff}}^{\text{KTP}})^2} \quad (3.9)$$

Les lames de LGT et KTP étudiées ayant la même épaisseur, nous avons donc $\frac{L_{\text{LGT}}^2}{L_{\text{KTP}}^2} = 1$, de sorte que l'expression du coefficient effectif de LGT devient :

$$\left(d_{\text{eff}}^{\text{LGT}}\right)^2 = \left(d_{\text{eff}}^{\text{KTP}}\right)^2 \frac{\mathcal{A}^{\text{KTP}} \zeta^{\text{LGT}} (\lambda_{\omega}^{\text{LGT}})^2 G^{\text{KTP}}}{\mathcal{A}^{\text{LGT}} \zeta^{\text{KTP}} (\lambda_{\omega}^{\text{KTP}})^2 G^{\text{LGT}}} \quad (3.10)$$

avec (voir équation (1.27)) :

$$\mathcal{A}^{\text{LGT}} = \frac{T_o^{\text{LGT}} \left(\frac{\lambda_{\omega}^{\text{LGT}}}{2}\right) [T^{e,\text{LGT}}(\lambda_{\omega}^{\text{LGT}}, \theta_{PM}^{\text{LGT}})]^2}{n_o^{\text{LGT}} \left(\frac{\lambda_{\omega}^{\text{LGT}}}{2}\right) [n^{e,\text{LGT}}(\lambda_{\omega}^{\text{LGT}}, \theta_{PM}^{\text{LGT}})]^2} \quad (3.11)$$

et

$$\mathcal{A}^{\text{KTP}} = \frac{T_o^{\text{KTP}} \left(\frac{\lambda_{\omega}^{\text{KTP}}}{2}\right) T_o^{\text{KTP}}(\lambda_{\omega}^{\text{KTP}}) T^{e,\text{KTP}}(\lambda_{\omega}^{\text{KTP}}, \theta_{PM}^{\text{KTP}})}{n_o^{\text{KTP}} \left(\frac{\lambda_{\omega}^{\text{KTP}}}{2}\right) n_o^{\text{KTP}}(\lambda_{\omega}^{\text{KTP}}) n^{e,\text{KTP}}(\lambda_{\omega}^{\text{KTP}}, \theta_{PM}^{\text{KTP}})} \quad (3.12)$$

Dans l'équation (3.10), les paramètres G^{LGT} et G^{KTP} correspondent à l'atténuation due à la double réfraction. Les équations (1.47) pour la SHG de type I dans LGT et (1.48) pour la SHG de type II dans KTP ont permis d'estimer les valeurs $G^{\text{LGT}} = 0,9999$ et $G^{\text{KTP}} = 0,9870$. Le tableau 3.6 regroupe toutes les données mesurées et calculées qui ont été utilisées pour la détermination du coefficient non linéaire d_{11}^{LGT} de LGT, obtenue à partir de la mesure relative par rapport au d_{24}^{KTP} de KTP.

Notons l'écart important entre le coefficient effectif de LGT et celui de KTP (voir tableau 3.6). Cela est expliqué par le $\cos^2(\theta_{PM})$ qui apparaît dans l'expression du coefficient effectif de LGT alors qu'il s'agit de $\sin(\theta_{PM})$ pour KTP. Expérimentalement, l'utilisation d'une densité optique calibrée de 10^{-3} de transmission placée après la lame de KTP a permis de compenser cet écart ramenant l'énergie générée par chaque lame au même ordre de grandeur. Dans ces conditions, nous avons trouvé que la valeur absolue du coefficient non linéaire d_{11}^{LGT} de LGT vaut :

$$\left|d_{11}^{\text{LGT}} \left(\frac{\lambda_{\omega}^{\text{LGT}}}{2} = 0,67 \mu\text{m}\right)\right| = \left|\sqrt{\frac{(d_{\text{eff}}^{\text{LGT}})^2}{\cos^4(\theta_{PM}^{\text{LGT}})}}\right| = 2,4 \pm 0,4 \text{ pm/V} \quad (3.13)$$

$i =$	LGT	KTP
$(\theta_{PM}^i; \phi)$	$(79^\circ; 90^\circ)$	$(58, 5^\circ; 0^\circ)$
L_i	$500 \mu\text{m}$	$500 \mu\text{m}$
λ_ω^i	$1,34 \mu\text{m}$	$1,32 \mu\text{m}$
\mathcal{A}^i	$0,0999$	$0,1422$
ρ^i	$0,269^\circ$	$2,57^\circ$
w_0	$0,12 \text{ mm}$	
G^i	$0,9999$	$0,9870$
$\zeta^{\text{LGT}} / \zeta^{\text{KTP}}$	$1,3 \cdot 10^{-3}$	
$d_{\text{eff}}^i(\lambda_\omega^i/2)$	$7,68 \cdot 10^{-3} \text{ pm/V}$	$2,02 \text{ pm/V}$

TABLE 3.6 – Données pour la détermination du coefficient non linéaire d_{11}^{LGT} de LGT.

Les amplitudes des coefficients non linéaires de LGT et de KTP sont donc du même ordre de grandeur, contrairement à celles de leurs coefficients effectifs.

3.8 GÉNÉRATION D'UN SUPERCONTINUUM DANS LGT

Les principales propriétés optiques de LGT ayant été déterminées dans les parties précédentes, il est maintenant intéressant d'étudier la potentialité de ce matériau pour la génération d'un supercontinuum par le processus de génération paramétrique optique (OPG) (voir figure 1.9). Nous utiliserons la notation propre aux dispositifs paramétriques, c'est-à-dire $\lambda_1 = \lambda_i$ (pour l'idler), $\lambda_2 = \lambda_s$ (pour le signal) et $\lambda_3 = \lambda_p$ (pour la pompe), avec $\lambda_p < \lambda_s \leq \lambda_i$.

Un supercontinuum peut être généré uniquement lors d'une interaction de type I, c'est-à-dire (λ_i^e , λ_s^e et λ_p^o) [82]. D'autre part, la longueur d'onde de pompe λ_p^* optimale pour laquelle un spectre large bande (supercontinuum) est généré correspond à la longueur d'onde où la dispersion de l'indice de réfraction extraordinaire n^e d'un cristal uniaxe positif comme LGT présente un point d'inflexion, tel que [82, 83] :

$$\left. \frac{\partial^2 n^e(\lambda, \theta)}{\partial \lambda^2} \right|_{\lambda^* = 2\lambda_p^*} = 0 \quad (3.14)$$

En utilisant les équations de Sellmeier (3.1) et les coefficients du tableau 3.5 ainsi que l'expression (3.6) de $n^e(\lambda, \theta)$ de LGT, l'équation (3.14) impose $\lambda_p^* = 0,967 \mu\text{m}$. Cette longueur d'onde a l'avantage d'être émise par un laser titane-saphir par exemple. La courbe rouge de la figure 3.23 représente les directions d'accord de phase d'OPG de type I dans le plan $y - z$, calculées à partir des équations de Sellmeier de LGT affinées, avec $\lambda_p = \lambda_p^* = 0,967 \mu\text{m}$.

La figure 3.23 montre qu'un supercontinuum est généré entre $1,4$ et $3,0 \mu\text{m}$ si le

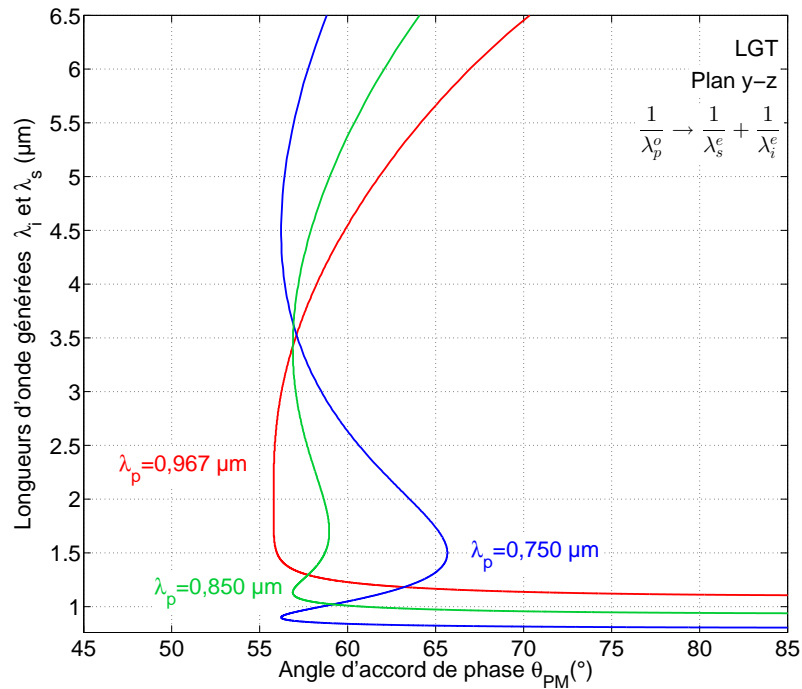


FIGURE 3.23 – Courbes d'accord de phase pour la génération paramétrique optique de type I calculées à partir de la dispersion des indices de réfraction pour les longueurs d'onde de pompe 0,967 μm , 0,750 μm et 0,850 μm .

crystal de LGT est orienté dans la direction ($\theta = 56^\circ$, $\phi = 90^\circ$) et pompé au voisinage de $\lambda_p = 0,967 \mu\text{m}$.

La figure 3.23 propose également une comparaison de la courbe d'accord de phase d'OPG de type I avec les longueurs d'onde de pompe $\lambda_p = 0,750 \mu\text{m}$ en bleu, et $\lambda_p = 0,850 \mu\text{m}$ en vert, qui peuvent aussi être émises par le laser titane-saphir. Même si tout le domaine de transparence de LGT peut également être entièrement sollicité pour ces longueurs d'onde de pompe, la variation de l'angle d'accord de phase θ_{PM} est plus importante.

Etant donné que le processus d'OPG requiert des énergies importantes pour être mesuré, il est nécessaire de réaliser l'expérience en régime femtoseconde qui offre des énergies par impulsion et des puissances instantanées suffisamment importantes. A plus basse énergie, il est également possible d'étudier la DFG qui fait l'objet de la partie suivante.

3.9 GÉNÉRATION DE DIFFÉRENCE DE FRÉQUENCES

Nous avons eu l'opportunité d'étudier la DFG de type I dans une lame de LGT orientée dans le plan $y - z$, grâce à une collaboration avec Jean-Christophe Delagnes, Giedre Archipovaite, Stéphane Petit et Eric Cormier du CELIA de Bordeaux. Ils nous

ont donné accès à la chaîne "SOLSTICE" qui est une source femtoseconde de type amplificateur à dérive de fréquence fibré (F-CPA) à haute cadence, composée de trois étages pré-amplificateurs (fibres souples en Yb) et d'un étage de puissance (fibre de type barreau en Yb). Un oscillateur titane-saphir Rainbow de Femtolasers très large bande a été utilisé. Après avoir sélectionné une partie autour de $1,030 \mu\text{m}$ et l'avoir injectée dans le système, le laser Yb fonctionne à 100 kHz, 300 fs et délivre des impulsions à $1,030 \mu\text{m}$ jusqu'à $500 \mu\text{J}$ d'énergie, soit 50 W de puissance moyenne [84]. Le système fibré permet d'obtenir un faisceau de très bonne qualité. Nous l'avons utilisé pendant trois semaines grâce à des financements provenant successivement des réseaux FEMTO et CMDO+ (Cristaux Massifs et Dispositifs pour l'Optique) de la Mission Interdisciplinaire (MI) du CNRS.

Deux configurations expérimentales ont pu être mises en place afin de caractériser la gamme de longueur d'onde pouvant être générée en condition d'accord de phase de DFG de type I dans LGT. Dans les deux expériences, trois ondes de longueurs d'onde λ_p^o , λ_s^e et λ_i^e étaient en interaction, avec des faisceaux pompe et signal injectés colinéairement dans une lame de LGT. Les deux configurations réalisées sont schématisées dans la figure 3.24 où :

- Dans la première expérience, un faisceau pompe spectralement large autour de $\lambda_p = 0,691 \mu\text{m}$ est combiné dans la lame de LGT avec un faisceau signal à $\lambda_s = 1,030 \mu\text{m}$. D'après le principe de conservation de l'énergie (équation (1.21)), une gamme de longueur d'onde λ_i devrait être générée autour de $2 \mu\text{m}$ (voir figure 3.24(a)).
- Dans le deuxième montage, le faisceau à $\lambda_p = 1,030 \mu\text{m}$ fait office de faisceau pompe et est combiné avec un faisceau signal spectralement très large autour de $\lambda_s = 1,52 \mu\text{m}$. Dans ce cas, un faisceau idler autour de $3 \mu\text{m}$ devrait être généré (voir figure 3.24(b)).

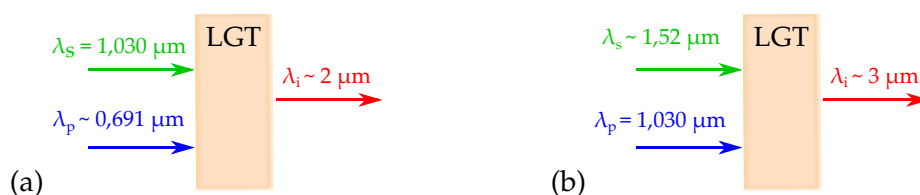


FIGURE 3.24 – Représentation schématique des deux interactions de DFG de type I que nous avons mises en place pour la génération d'un faisceau idler (a) autour de $2 \mu\text{m}$ et (b) autour de $3 \mu\text{m}$.

Notons que les longueurs d'onde λ_p de ces deux expériences encadrent la longueur d'onde optimale $\lambda_p = 0,967 \mu\text{m}$ pour la génération d'un supercontinuum.

Dans chaque cas, le montage expérimental et les caractéristiques spectrales des deux faisceaux incidents sont décrits ci-dessous. Vient ensuite la mesure de la gamme de longueur d'onde idler générée en condition d'accord de phase par DFG de type I dans la lame de LGT utilisée. Chaque courbe d'accord de phase a été identifiée à partir

de la mesure directe du spectre du faisceau idler en fonction de l'orientation de la lame de LGT. Pour cela, un monochromateur Mozza commercialisé par la société Fastlite a été utilisé : sa réponse spectrale est comprise entre 1 et 5 μm avec une précision de $\pm 1 \text{ nm}$ et une résolution de 5 cm^{-1} . Contrairement aux spectromètres classiques qui sont basés sur des réseaux optiques placés sur des platines de rotation, le monochromateur Mozza est constitué d'un cristal de TiO_2 dans lequel des effets acousto-optiques permettent de diffracter le faisceau incident. Ce fonctionnement revient à utiliser un réseau optique fixe, dont le pas est variable. Dans la première expérience visant la génération d'un faisceau idler autour de 2 μm , le spectre de ce faisceau a aussi été mesuré avec un spectromètre NIRQuest, commercialisé par la société OceanOptics, dont la réponse spectrale est comprise entre 0,9 et 2,5 μm avec une précision de l'ordre de 6 nm.

Toutes nos mesures dans la lame de LGT ont été comparées au calcul des courbes d'accord de phase de DFG de type I dans le plan $y - z$, en utilisant les équations de Sellmeier déterminées avec la méthode de la sphère (équation (3.1) et coefficients du tableau 3.5). Les conditions de propagation des trois ondes en interaction à l'extérieur puis à l'intérieur de la lame ont également été prises en considération dans le calcul. Enfin, une analyse des largeurs spectrales obtenues a été réalisée.

3.9.1 DFG de type I autour de 2 μm

3.9.1.1 Dispositif expérimental

Le figure 3.25 représente le schéma du dispositif utilisé.

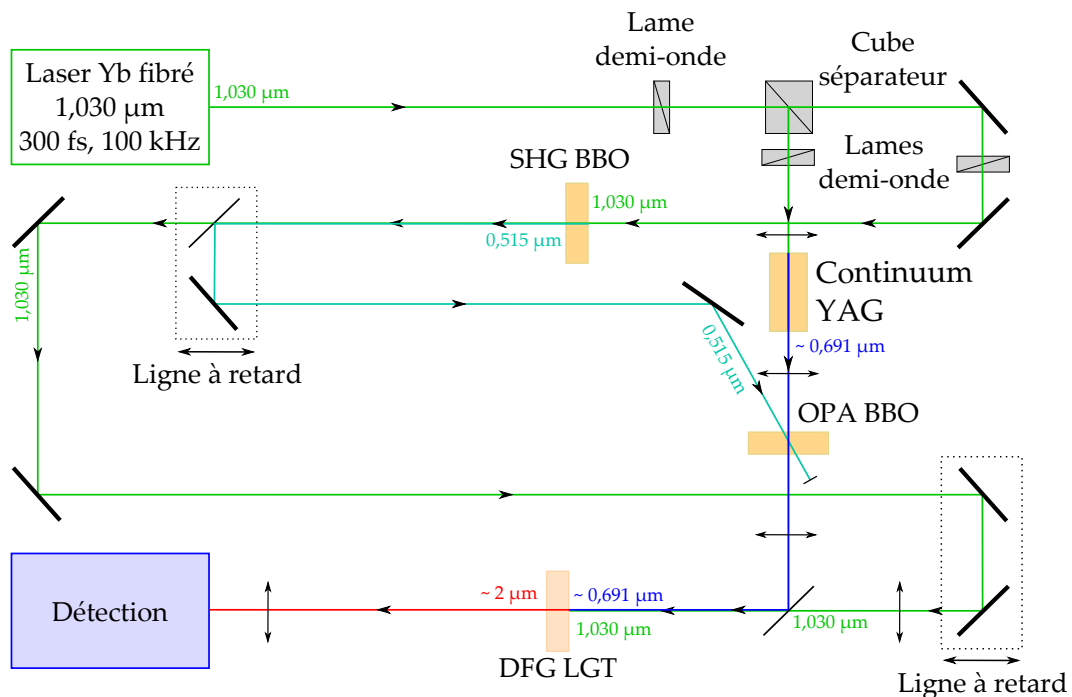


FIGURE 3.25 – Schéma du dispositif expérimental permettant d'obtenir les deux faisceaux pompe et signal, enfin recombinaés dans la lame de LGT pour générer un faisceau idler autour de 2 μm par DFG de type I.

Les faisceaux pompe et signal combinés colinéairement dans la lame de LGT sont produits de la manière suivante : le faisceau signal à $\lambda_s=1,030 \mu\text{m}$ est émis par un laser Yb fibré polarisé linéairement. Le faisceau est transmis par une lame demi-onde et un cube polarisant de manière à contrôler son énergie continûment (cf. partie 2.2.5). Son spectre mesuré avec un HR2000 est représenté figure 3.26(a) qui montre une largeur spectrale égale à 10 nm. Notons que nous prenons ici la largeur du pic à 0,405 du maximum, et non pas à mi-hauteur, car nous nous servirons de cette donnée pour calculer des acceptances spectrales de processus paramétriques.

Une partie de ce faisceau transmis est utilisée pour réaliser de la SHG dans un premier cristal de BBO : un faisceau à $0,515 \mu\text{m}$ est donc généré (voir figure 3.25). Quant à lui, le faisceau réfléchi par le cube polarisant est focalisé dans un barreau de YAG dans lequel est généré un continuum autour de $0,691 \mu\text{m}$. Le faisceau pompe à $\lambda_p \sim 0,691 \mu\text{m}$ est donc obtenu par amplification paramétrique optique (OPA) résultant d'une interaction non colinéaire dans un deuxième cristal de BBO entre le continuum autour de $0,691 \mu\text{m}$ et le faisceau à $0,515 \mu\text{m}$ (voir figure 3.25). Une première ligne à retard constituée de deux miroirs et d'une platine de translation (voir figure 3.25) assure le « délai zéro » entre les deux faisceaux incidents pour la réalisation de l'OPA. Le spectre du faisceau pompe ainsi généré à λ_p a aussi été mesuré avec le spectromètre HR2000. Il est représenté par la figure 3.26(b) qui montre une largeur spectrale à 0,405 du maximum de 96 nm.

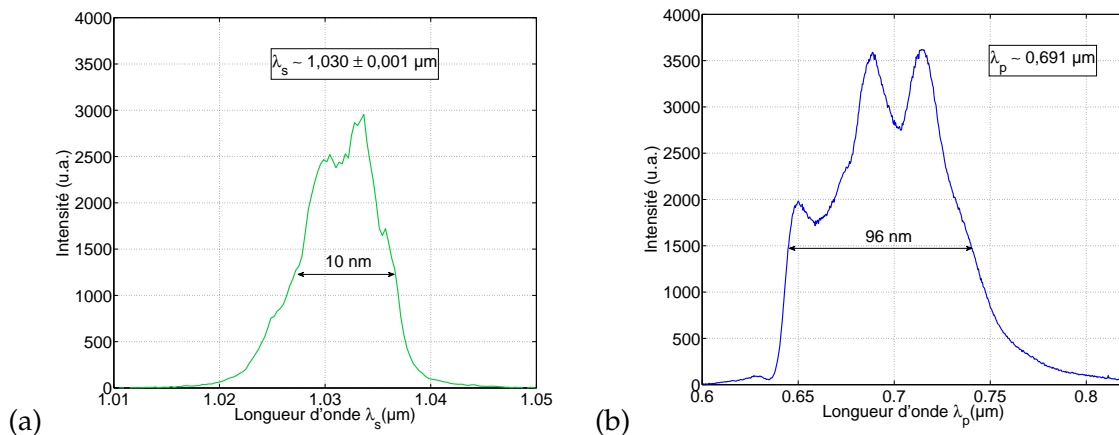


FIGURE 3.26 – (a) Spectre du faisceau signal à $1,030 \mu\text{m}$. (b) Spectre du faisceau pompe autour de $0,691 \mu\text{m}$. Leurs largeurs valent 10 nm et 96 nm respectivement.

Une deuxième ligne à retard a assuré le "délai zéro" entre les deux faisceaux à l'entrée de la lame de LGT. Les puissances moyennes à l'entrée du cristal sont égales à 17 W et 300 mW pour les faisceaux signal et pompe respectivement. Elles ont été mesurées avec un puissance-mètre Ophir.

3.9.1.2 Choix de l'échantillon de LGT

A partir des spectres caractéristiques de cette expérience (voir figure 3.26), nous avons calculé dans un premier temps les courbes d'accord de phase de DFG de type

I en interaction colinéaire, à partir des équations de Sellmeier de LGT affinées avec la méthode la sphère. La figure 3.27 montre le résultat de ce calcul avec $\lambda_s = 1,030 \mu\text{m}$. Elle représente les courbes d'accord de phase des longueurs d'onde pompe λ_p et idler λ_i en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} dans LGT. Les parties des courbes d'accord de phase surlignées dans la figure 3.27 correspondent, en bleu, aux longueurs d'onde λ_p limitées à celles du spectre du faisceau pompe (voir figure 3.26(b)) et par conséquent, en rouge, les longueurs d'onde λ_i associées. Ces dernières ont été calculées à partir de la conservation de l'énergie.

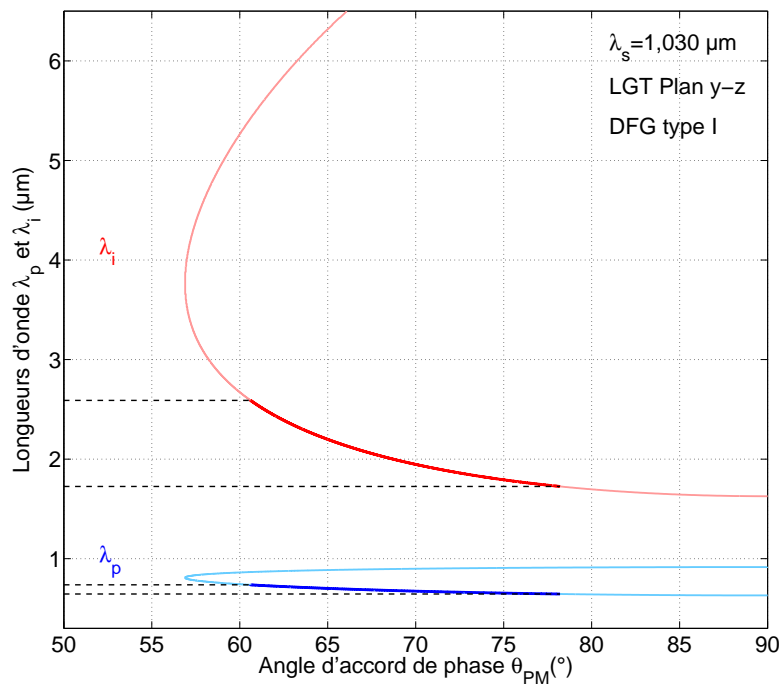


FIGURE 3.27 – Courbes d'accord de phase de DFG de type I ($\lambda_p^o, \lambda_s^e, \lambda_i^e$) dans le plan $y - z$ de LGT avec $\lambda_s = 1,030 \mu\text{m}$. Les longueurs d'onde λ_i et λ_p sont représentées en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} . Le trait gras bleu correspond à la gamme de λ_p accessible à partir du spectre de la figure 3.26(b), et le trait gras rouge à la gamme de λ_i associée.

La figure 3.27 montre qu'un très bon compromis est de tailler une lame de LGT à $\theta = 57,5^\circ$ dans le plan $y - z$ ($\phi = 90^\circ$), car une rotation de quelques degrés autour de cette orientation permettra d'étudier les conditions d'accord de phase de DFG de type I ($\lambda_p^o, \lambda_s^e, \lambda_i^e$) à partir du dispositif expérimental mis en place (voir figure 3.25).

Pour que le processus de DFG puisse être observé dans LGT, il faut que les deux impulsions incidentes soient recouvertes temporellement. Cela est d'autant plus important en régime femtoseconde où deux conditions doivent être vérifiées :

1. le chemin optique des deux impulsions pompe et signal combinées dans LGT doit être égal à la centaine de μm près pour que le recouvrement temporel soit maximal ;
2. ceci doit être vérifié aussi bien à l'entrée que sur toute l'épaisseur de la lame.

Pourtant, la différence de longueur d'onde entre les impulsions pompe et signal impose qu'elles ne se propagent pas à la même vitesse de groupe v_g dans le cristal : ce phénomène, appelé *walk-off temporel*, affecte le rendement de conversion en particulier en régime femtoseconde. Le calcul de la différence des vitesses de groupe appelée aussi GVM (pour *group-velocity mismatch*) permet de déterminer la longueur de cristal L ou le temps $\Delta\tau$ sur lesquels des impulsions de 300 fs restent recouvertes temporellement. La GVM s'écrit pour une interaction de DFG entre les faisceaux pompe et signal :

$$\text{GVM} = \left(v_g^{-1}(\lambda_p) - v_g^{-1}(\lambda_s) \right) = \frac{\Delta\tau}{L} \quad (3.15)$$

où $v_g(\lambda_p)$ et $v_g(\lambda_s)$ sont les vitesses de groupe des faisceaux pompe et signal respectivement. Pour la DFG de type I dans le plan $y - z$ de LGT, elles sont définies par :

$$\begin{cases} v_g(\lambda_p) &= \frac{\partial\omega_p}{\partial k} = c \left[n_o(\lambda_p) - \lambda_p \frac{\partial n_o(\lambda_p)}{\partial \lambda_p} \right]^{-1} \\ v_g(\lambda_s) &= \frac{\partial\omega_s}{\partial k} = c \left[n^e(\lambda_s, \theta_{PM}) - \lambda_s \frac{\partial n^e(\lambda_s, \theta_{PM})}{\partial \lambda_s} \right]^{-1} \end{cases} \quad (3.16)$$

La GVM est calculée à partir des équations (3.6) de $n_o(\lambda)$ et $n^e(\lambda, \theta)$, des équations de Sellmeier (3.1) et des coefficients du tableau 3.5 de LGT pour tous les points de la courbe d'accord de phase de la figure 3.27. Elle est représentée en fonction de λ_p dans la figure 3.28 qui montre que $\text{GVM} = \Delta\tau/L$ demeure inférieure à 78 fs/mm pour les longueurs d'onde λ_p limitées par le spectre 3.26(b). Cela signifie que la superposition temporelle entre les impulsions pompe et signal est assurée tout au long de la propagation dans le cristal de LGT de longueur L . Cela est valable tant que cette dernière ne dépasse pas 3,85 mm, si $\Delta\tau$ est supposé égal à la durée des impulsions pompe et signal, soit 300 fs.

A partir des calculs précédents, nous avons préparé au laboratoire une lame de LGT de 3,84 mm d'épaisseur taillée perpendiculairement à la direction ($\theta_{PM} = 57,5^\circ, \phi = 90^\circ$). Cette lame a été placée dans le dispositif expérimental de la figure 3.25.

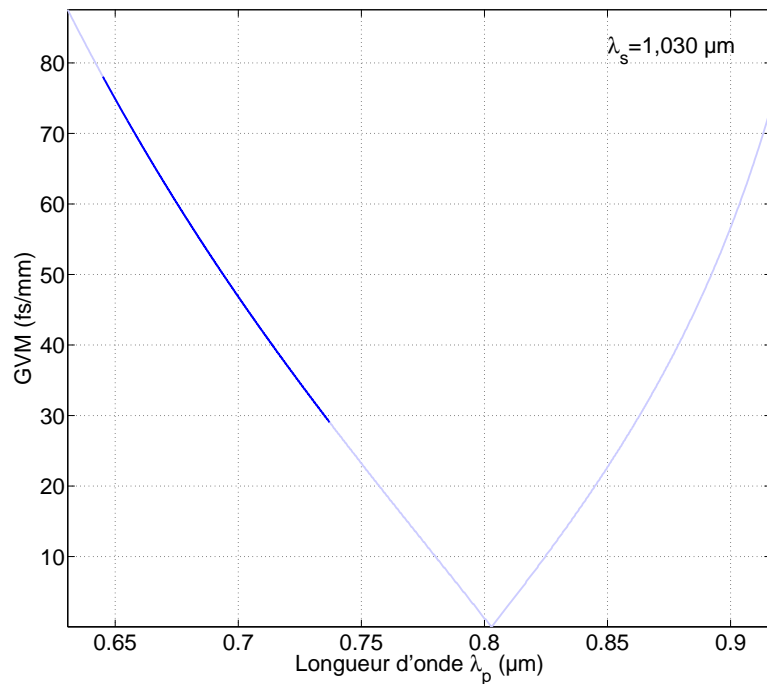


FIGURE 3.28 – Calcul de la $GVM = \Delta\tau/L$ associée à la courbe d'accord de phase de DFG de type I de la figure 3.27 en fonction de λ_p .

3.9.1.3 Mesure de la courbe d'accord de phase

A partir du dispositif expérimental présenté dans la figure 3.25, neuf spectres du faisceau idler généré par DFG de type I dans LGT ont été mesurés avec le monochromateur Mozza. Pour cela, le cristal a été tourné de manière à accéder à neuf angles d'accord de phase de la figure 3.27.

Chaque rotation du cristal de LGT a été repérée par son orientation externe décrite par l'angle θ_{ext} , comme indiqué dans la figure 3.29 : θ_{ext} correspond à l'angle entre la normale à la surface de la lame et la direction des faisceaux incidents colinéaires (pompe et signal).

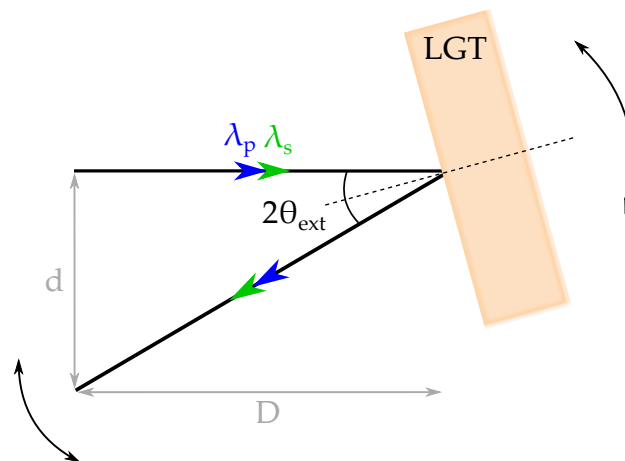


FIGURE 3.29 – Définition de l'angle de rotation du cristal θ_{ext} .

L'angle externe s'écrit $2\theta_{\text{ext}} = \arctan(d/D)$. Il est donc déterminé à partir de la mesure du rapport des distances d et D , d étant la distance entre les faisceaux incidents et réfléchis par la lame, sur un écran placé à la distance $D=100$ mm de la lame. La distance d a été mesurée pour chaque orientation du cristal, et les valeurs correspondantes de θ_{ext} ont été déterminées en degrés.

Les neuf spectres correspondants sont représentés par la figure 3.30.

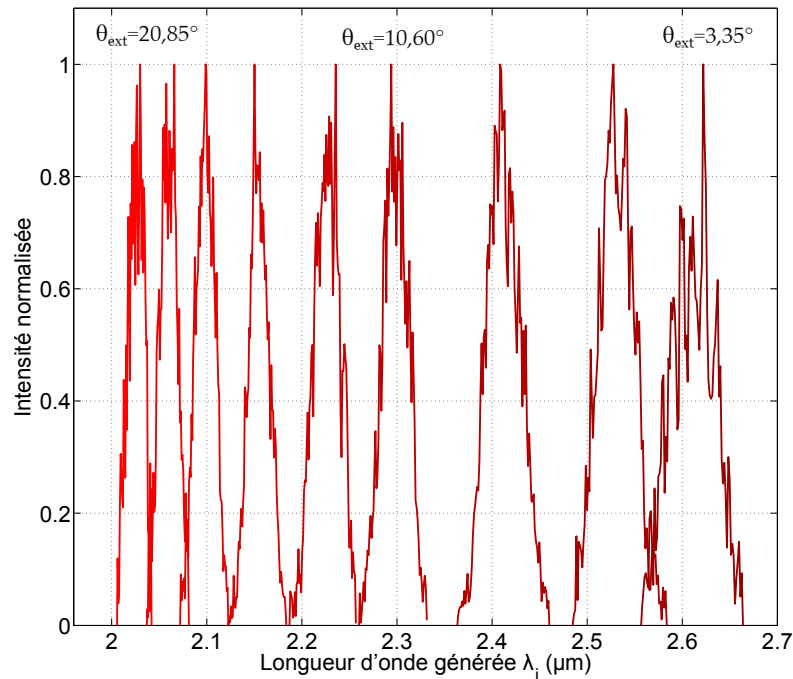


FIGURE 3.30 – Neuf spectres normalisés du faisceau idler généré par DFG et mesuré avec le monochromateur Mozza pour neuf valeurs de θ_{ext} .

Le même protocole expérimental a été utilisé pour l'enregistrement des spectres du faisceau idler généré, avec le spectromètre NIRQuest. Mais ces derniers se sont avérés de moins bonne précision que les spectres enregistrés avec le monochromateur Mozza. Les deux courbes d'accord de phase expérimentales correspondant à la longueur d'onde λ_i en fonction des angles de rotation θ_{ext} du cristal de LGT sont représentées par la figure 3.31 (points rouges et magenta).

Nos mesures ont pu être comparées aux directions d'accord de phase calculées en prenant en compte le fait que les faisceaux incidents font un angle θ_{ext} avec la normale à la lame de LGT. De fait, après réfraction, les vecteurs d'onde des faisceaux pompe et signal sont déviés à l'intérieur du cristal comme schématisé par la figure 3.32 pour un angle d'incidence θ_{ext} . Le vecteur d'onde du faisceau idler généré subit également une réfraction.

Dans la figure 3.32, les différentes sections de la surface des indices aux différentes longueurs d'onde permettent de justifier qu'à l'intérieur du cristal de LGT, les vecteurs

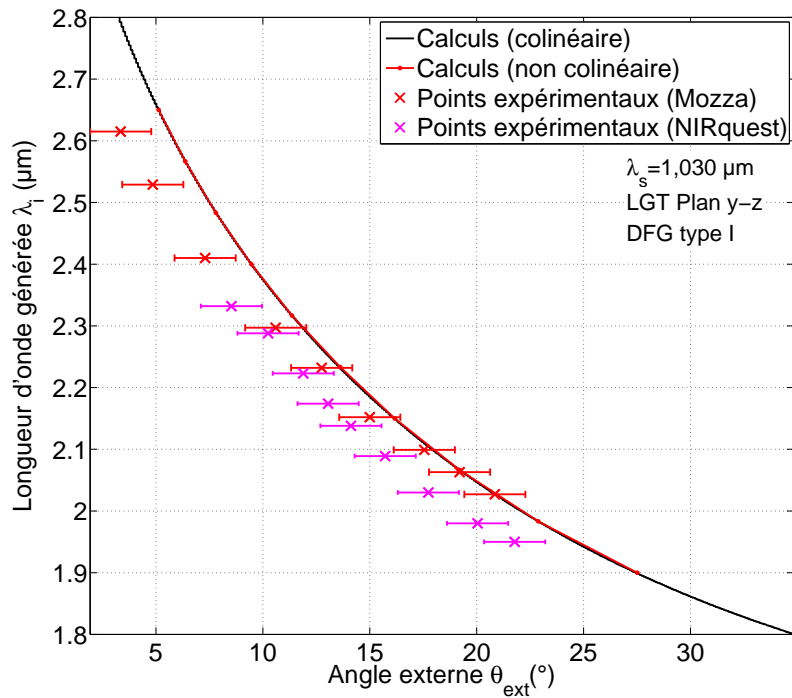


FIGURE 3.31 – Courbes d'accord de phase de DFG de type I dans le plan $y - z$ de LGT avec $\lambda_s = 1,030 \mu\text{m}$. Les points rouges et magenta correspondent aux mesures, la courbe rouge pour un accord de phase non colinéaire et la courbe noire au calcul pour un accord de phase colinéaire.

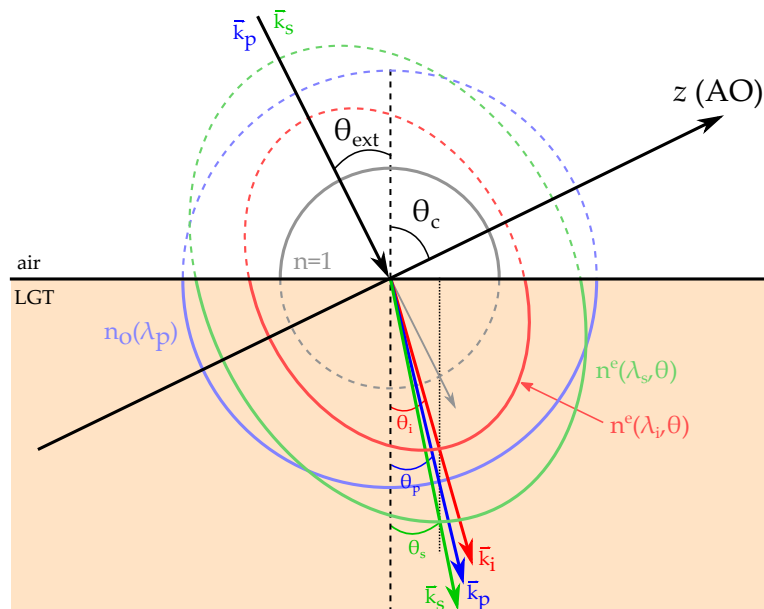


FIGURE 3.32 – Représentation schématique de la déviation de chacun des vecteurs d'onde dans le cristal de LGT pour un angle d'incidence θ_{ext} .

d'onde des trois faisceaux ne sont plus colinéaires et vérifient le schéma de la figure 1.11 : l'accord de phase dans LGT est donc forcément non colinéaire. Les angles θ_p , θ_s et θ_i correspondent aux angles entre les vecteurs d'onde déviés par réfraction et la normale au plan d'incidence. La position de l'axe z de LGT est rappelée de manière à définir l'orientation cristallographique $\theta_c = 57,5^\circ$ de la lame.

Les étapes décrivant le calcul des angles θ_p , θ_s et θ_i et des angles d'accord de phase non colinéaires θ_{ext} sont données dans l'annexe A. En suivant le protocole de cette annexe, les courbes d'accord de phase non colinéaire ont été calculées (voir figure 3.31 en rouge). Elles ont été comparées aux courbes d'accord de phase colinéaire (en noir). La figure 3.31 montre que si la différence entre les deux calculs n'est pas significative dans cette expérience, il est néanmoins important d'avoir pris en compte le schéma non colinéaire dans la lame de LGT par soucis d'exactitude. D'après la figure 3.31, l'accord entre les calculs et les mesures n'est pas aussi bon que lors des études avec la méthode de la sphère (voir figures 3.15 à 3.18) mais il pourrait être amélioré en optimisant la précision de la mesure de l'angle θ_{ext} .

3.9.1.4 Détermination de la largeur $\delta\lambda_p$ sélectionnée par la lame de LGT

Les mesures précédentes exploitent le fait que, pour chaque condition d'accord de phase, l'acceptance spectrale du cristal sélectionne une gamme de longueur d'onde λ_p du spectre du faisceau pompe de la figure 3.26(b). Dans le but de l'identifier, nous avons déterminé $\delta\lambda_p$ pour chaque valeur de l'angle θ_{ext} mesurée, à partir de la conservation de l'énergie (équation (1.21)). Il vient donc :

$$\frac{\delta\lambda_p}{\lambda_p^2} = \frac{\delta\lambda_s}{\lambda_s^2} + \frac{\delta\lambda_i}{\lambda_i^2} \quad (3.17)$$

avec $\lambda_s = 1,030 \mu\text{m}$ et $\delta\lambda_s = 10 \text{ nm}$ d'après la figure 3.26(a). Les valeurs de λ_i et $\delta\lambda_i$ sont obtenues à partir des spectres mesurés soit avec le monochromateur Mozza (voir figure 3.30) soit avec le NIRQuest. La figure 3.33 montre les différentes valeurs de $\delta\lambda_p$ obtenues en fonction de la longueur d'onde λ_i générée (en bleu). Elles sont du même ordre de grandeur quel que soit l'appareil utilisé. Cette étude montre que la largeur $\delta\lambda_p$ est de l'ordre de 9 nm, ce qui est plutôt faible par rapport à la largeur spectrale du faisceau pompe (96 nm).

D'autre part, à partir de la largeur à 0,405 du pic représentant le calcul de l'énergie générée normalisée en fonction de λ_p , nous avons déterminé la largeur $\delta\lambda_p^{\text{th}}$: elle est représentée en noir sur la figure 3.33. Comme c'est très souvent le cas, la largeur $\delta\lambda_p$ mesurée est environ deux fois supérieure à la valeur théorique $\delta\lambda_p^{\text{th}}$, que nous expliquons par le fait que la longueur d'interaction effective est certainement inférieure à l'épaisseur de l'échantillon. Finalement, nous pouvons considérer que l'évolution de $\delta\lambda_p$ en fonction de la longueur d'onde générée λ_i est similaire qu'elle ait été mesurée

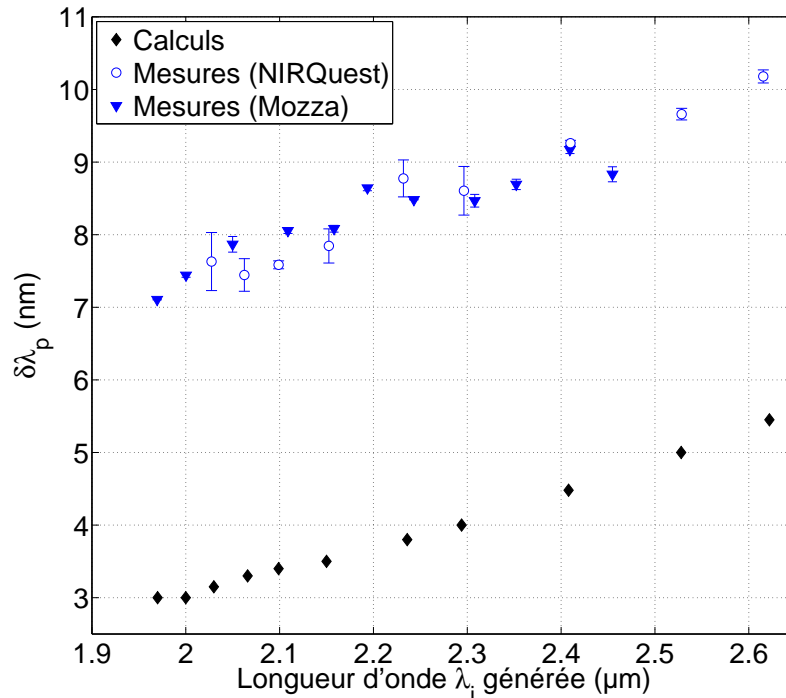


FIGURE 3.33 – Evolution de la largeur $\delta\lambda_p$ sélectionnée par le cristal en fonction de la longueur d'onde générée λ_i . Les points bleus correspondent aux largeurs associées aux mesures et les points noirs aux largeurs calculées.

ou calculée.

Cette première expérience de DFG de type I en régime femtoseconde dans une lame de LGT a confirmé qu'une génération autour de $2 \mu\text{m}$ était possible. Les mesures sont en accord avec les prédictions à partir du calcul basé sur les paramètres déterminés avec la méthode de la sphère.

3.9.2 DFG de type I autour de $3 \mu\text{m}$

3.9.2.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental présenté dans la figure 3.34 est identique à celui de la figure 3.25 utilisé pour l'étude précédente, à la différence près que la partie du faisceau à $1,030 \mu\text{m}$ devient le faisceau pompe pour la DFG dans LGT et le faisceau signal est un continuum centré à $1,52 \mu\text{m}$ généré dans un barreau de YAG.

Leurs spectres mesurés avec le spectromètre HR2000 sont présentés dans la figure 3.35 qui montre une largeur spectrale à $0,405$ du maximum de 436 nm et 10 nm pour les faisceaux signal et pompe respectivement.

La puissance moyenne à l'entrée du cristal de LGT est égale à $4,9 \text{ W}$ et autour de 20 mW pour les faisceaux pompe et signal respectivement.

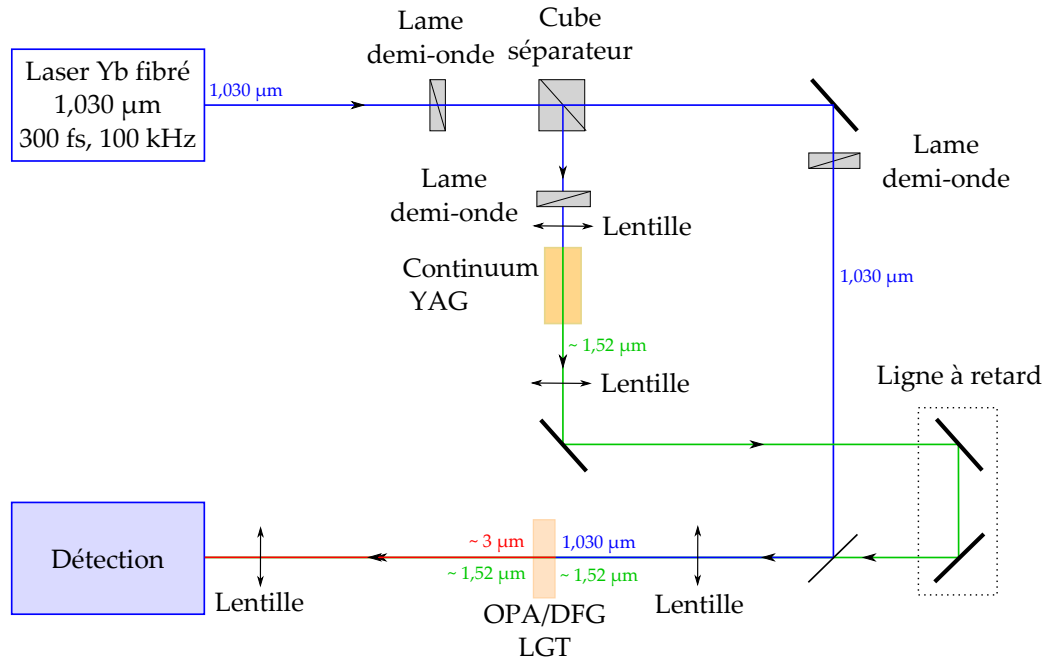


FIGURE 3.34 – Schéma du dispositif expérimental permettant d’obtenir les deux faisceaux pompe et signal. Ils sont recombinaés dans le cristal de LGT pour générer un faisceau idler autour de $3 \mu\text{m}$ par DFG.

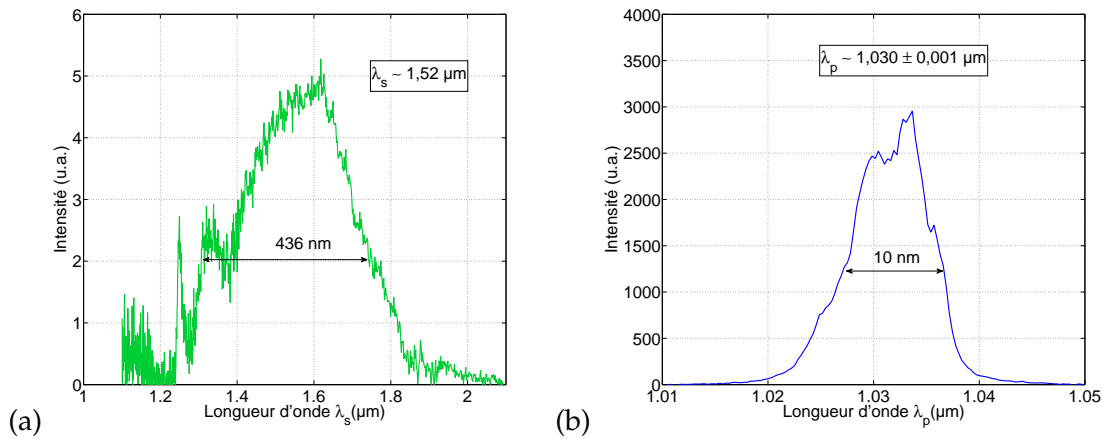


FIGURE 3.35 – (a) Spectre du faisceau signal centré à $1,52 \mu\text{m}$ (b) Spectre du faisceau pompe à $1,030 \mu\text{m}$. Leurs largeurs à $0,405$ du maximum valent 436 nm et 10 nm respectivement.

3.9.2.2 Choix de l'échantillon de LGT

A partir des spectres caractéristiques de cette nouvelle expérience (figure 3.35), nous avons calculé les nouvelles courbes d'accord de phase de DFG de type I avec $\lambda_p = 1,030 \mu\text{m}$ en utilisant les équations de Sellmeier de LGT affinées avec la méthode de la sphère. Elles sont montrées dans la figure 3.36 qui représente les longueurs d'onde signal λ_s et idler λ_i en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} dans LGT.

La courbe surlignée dans la figure 3.36 qui correspond aux longueurs d'onde λ_s du spectre 3.35(a) sélectionnées, et le calcul de la GVM associée, montrent qu'il est possible de mesurer la courbe d'accord de phase de DFG de type I dans cette nouvelle configu-

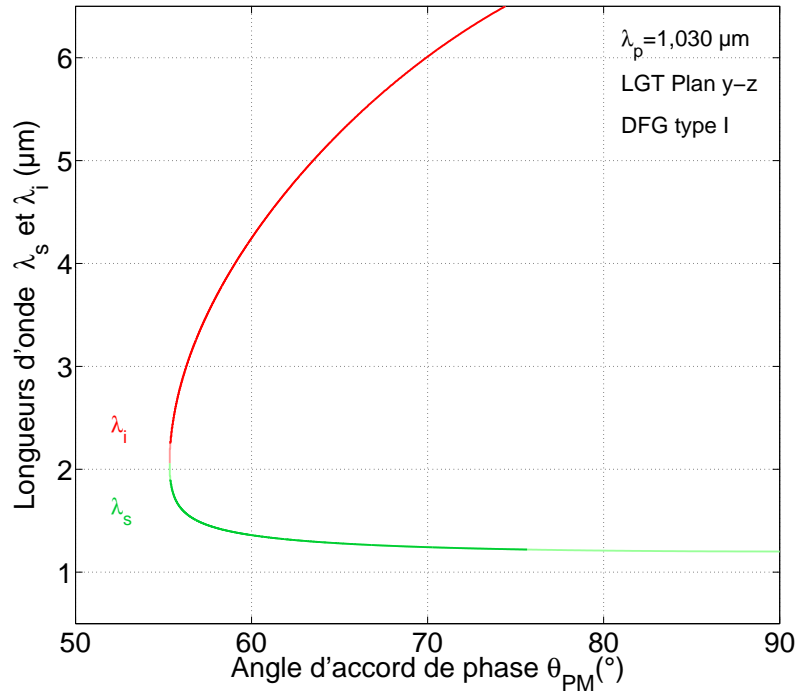


FIGURE 3.36 – Courbes d'accord de phase de DFG de type I ($\lambda_p^o, \lambda_s^e, \lambda_i^e$) dans le plan y – z de LGT avec $\lambda_p = 1,030 \mu\text{m}$.

ration en utilisant la même lame de LGT de 3,84 mm d'épaisseur taillée à ($\theta_{PM}=57,5^\circ$, $\phi=90^\circ$).

3.9.2.3 Mesure de la courbe d'accord de phase

En suivant le même protocole que dans la partie précédente, six spectres du faisceau idler généré par DFG de type I dans la lame de LGT ont été mesurés avec le monochromateur Mozza à partir du dispositif expérimental de la figure 3.34. Ils ont été obtenus en tournant le cristal de LGT afin de solliciter six conditions (λ_i, θ_{ext}) d'accord de phase et en appliquant la méthode décrite dans la partie 3.9.1.3. Les six spectres sont représentés dans la figure 3.37 qui montre qu'un faisceau idler a été généré entre 2 et 3,6 μm . Notons que les spectres sont bruités à cause de la normalisation par leur maximum, mais surtout de la faible intensité générée par DFG qui a rendu difficile l'injection dans le monochromateur Mozza.

Comme expliqué dans la partie 1.2.2, un processus de DFG stimulé par le faisceau signal est accompagné de l'OPA de ce faisceau. Dans cette expérience, nous avons aussi pu mesurer les spectres du faisceau signal amplifié à la longueur d'onde λ_s avec le monochromateur Mozza. Ils sont représentés par la figure 3.38 qui montre de manière directe les parties du spectre signal sélectionnées par l'acceptance spectrale de la lame de LGT.

En associant les mesures des spectres de λ_i et λ_s (voir figures 3.37 et 3.38) et les

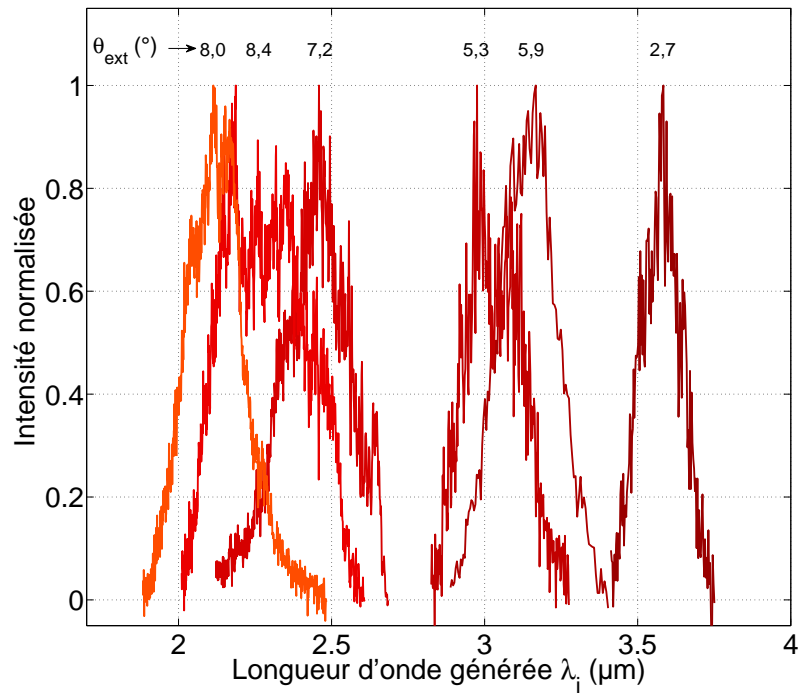


FIGURE 3.37 – Spectres idler normalisés, générés par DFG et mesurés avec le monochromateur Mozza. L'angle θ_{ext} mesuré pour chaque spectre est indiqué.

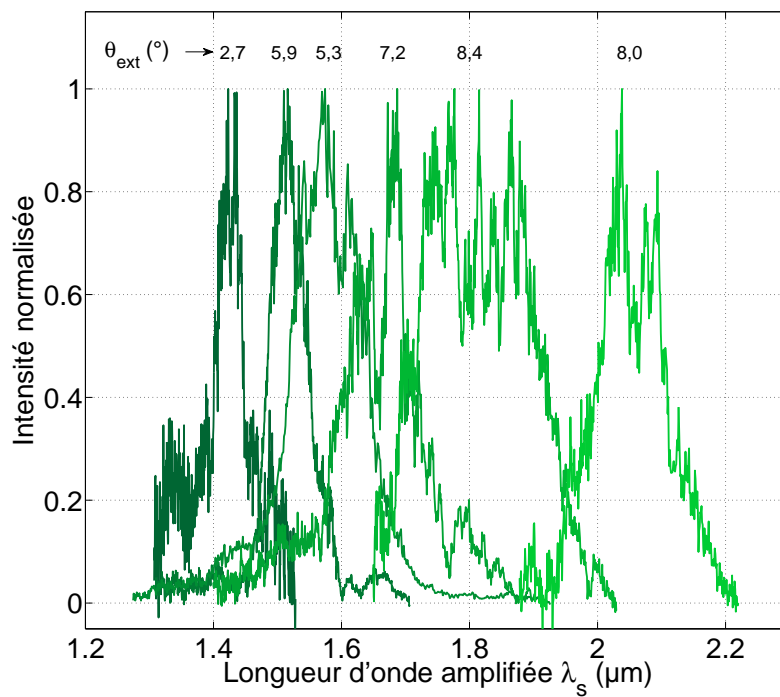


FIGURE 3.38 – Spectres signal normalisés, amplifiés par OPA et mesurés par le monochromateur Mozza. L'angle θ_{ext} mesuré pour chaque spectre est indiqué.

mesures des angles θ_{ext} correspondants, nous avons pu déterminer la courbe d'accord de phase de DFG de type I entre 1,3 et 3,6 μm . Elle est représentée par la figure 3.39 par des points rouges pour les longueurs d'onde générées λ_i , et par des points verts pour les longueurs d'onde amplifiées λ_s en fonction de l'angle d'incidence θ_{ext} . Cette figure représente aussi le calcul de la DFG de type I réalisé pour un accord de phase colinéaire (trait noir) et non colinéaire (traits rouge et vert).

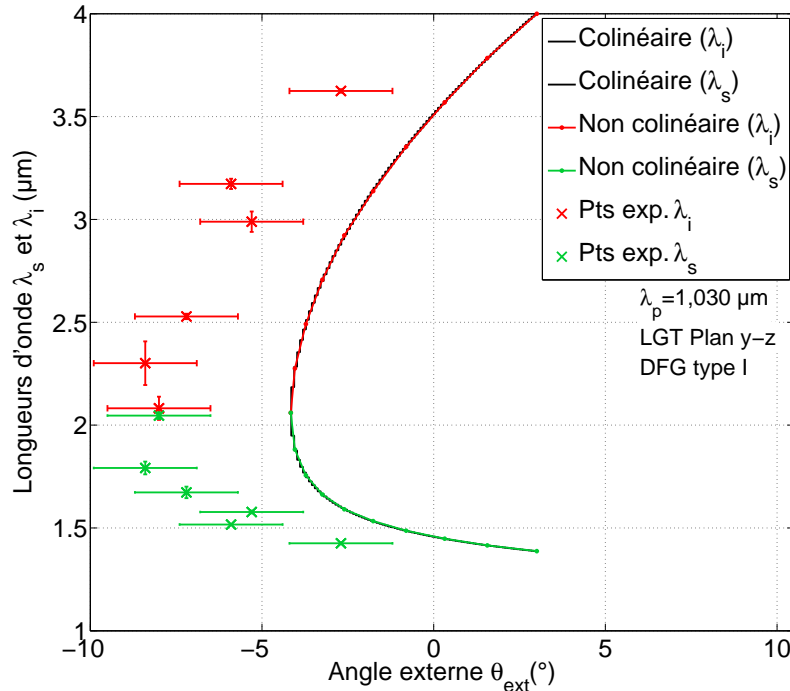


FIGURE 3.39 – Courbes d'accord de phase de DFG de type I dans le plan $y - z$ avec $\lambda_p = 1,030 \mu\text{m}$. Les points rouges (pour λ_i) et verts (pour λ_s) correspondent aux mesures, la courbe rouge (pour λ_i) et vert (pour λ_s) au calcul en considérant la non-colinéarité, et la courbe noire au calcul sans la prendre en compte.

Les deux courbes théoriques de la figure 3.39 sont superposées, ce qui signifie que la non-colinéarité à l'intérieur de LGT est négligeable pour cette expérience. La figure 3.39 montre également un accord entre les mesures et les calculs moins satisfaisant que dans la partie précédente (voir figure 3.31). Cela peut s'expliquer par le fait que les mesures avec ce montage ont été réalisées à proximité de la dégénérescence où $\lambda_s = \lambda_i = 2,060 \mu\text{m}$, ou encore par les faibles valeurs des angles externes qui ont été mesurées avec une moins bonne précision.

3.9.2.4 Interprétation de la largeur $\delta\lambda_s$ sélectionnée par la lame de LGT

La largeur $\delta\lambda_s$ sélectionnée par le cristal en fonction de la longueur d'onde λ_i générée, et représentée par la figure 3.40. Elle a été déterminée de trois manières différentes :

1. à partir du calcul de l'acceptance théorique $L\delta\lambda_s^{\text{th}}$ (points noirs),
2. à partir de la mesure des spectres du faisceau idler généré en suivant le protocole détaillé dans la partie précédente (cercles verts),

3. à partir de la mesure des spectres du faisceau signal amplifié (triangles verts).

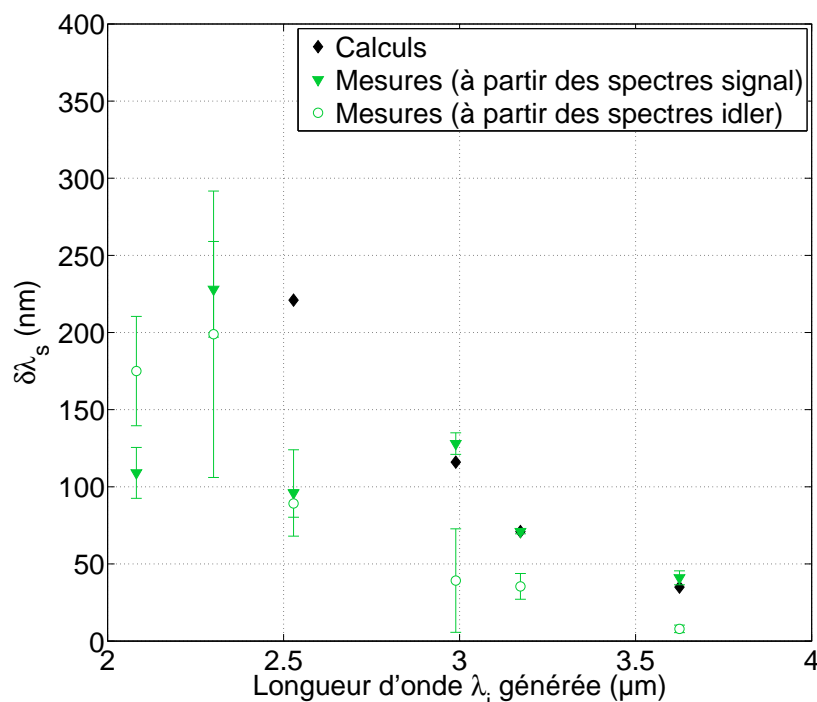


FIGURE 3.40 – Largeur $\delta\lambda_s$ sélectionnée par le cristal en fonction de la longueur d'onde générée λ_i .

La figure 3.40 donne les largeurs $\delta\lambda_s$ mesurées entre 2 et 3,6 μm (en vert) et les largeurs théoriques $\delta\lambda_s^{\text{th}}$ qui ont pu être calculées uniquement entre 2,5 et 3,6 μm (en noir) car il est difficile d'interpréter la largeur théorique à proximité de la dégénérescence ($\lambda_s = \lambda_i = 2,060 \mu\text{m}$). La figure 3.40 montre que l'accord entre l'approche théorique et l'expérimentale est satisfaisant pour des longueurs d'onde éloignées de la dégénérescence.

Cette deuxième expérience de DFG a montré que la génération autour de 3 μm était possible dans LGT. Nous avons aussi détecté l'amplification paramétrique optique (OPA) du faisceau signal, dont l'étude spectrale a été réalisée. Les résultats obtenus restent proches de nos calculs basés sur les paramètres de LGT déterminés par la méthode de la sphère.

CONCLUSION

En conclusion, nous avons réalisé pour la première fois à notre connaissance une étude expérimentale des propriétés optiques non linéaires du cristal de Langatate $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Ta}_{0,5}\text{O}_{14}$ (LGT) qui cristallise dans le système trigonal 32, après avoir montré qu'il est transparent entre 0,25 et 6,5 μm et que son seuil de dommage optique est de l'ordre de 4,34 GW/cm^2 en régime nanoseconde. L'analyse par le formalisme du tenseur champ a montré que les études de SHG de type I, SFG de type I (avec $\lambda_2=1,5 \mu\text{m}$)

et DFG de type I (avec $\lambda_2=1,064 \mu\text{m}$) dans le plan $y - z$ étaient suffisantes pour solliciter les deux indices de réfraction principaux sur tout le domaine de transparence de ce cristal uniaxe positif. Les courbes d'accord de phase de ces processus ont été mesurées directement dans le plan $y - z$ à partir d'un échantillon taillé en forme de sphère de 4,7 mm de diamètre. Les équations de dispersion des deux indices de réfraction principaux de LGT ont été affinées avec une précision relative de 10^{-4} à partir de l'interpolation simultanée de nos mesures. D'autre part, le coefficient d_{11} de LGT a été déterminé par rapport à KTP à partir de la SHG dans une lame orientée : il vaut $2,4 \pm 0,4 \text{ pm/V}$ à $\lambda = 0,67 \mu\text{m}$.

A partir des équations de Sellmeier affinées et du coefficient non linéaire de LGT, les conditions de génération d'un supercontinuum par OPG ont été calculées. Des expériences en régime femtoseconde ont permis de générer un faisceau idler autour de $2 \mu\text{m}$ puis autour de $3 \mu\text{m}$ par DFG de type I dans une lame de LGT de 3,84 mm d'épaisseur et taillée à $\theta = 57,5^\circ$. Les courbes d'accord de phase expérimentales sont en bon accord avec les calculs basés sur les paramètres de LGT que nous avons préalablement déterminés avec la méthode de la sphère.

Des expériences similaires de DFG de type I dans LGT, non présentées dans ce document, ont été réalisées à l'INRS de Varennes (Quebec) par Jean-Christophe Delagnes. Un faisceau idler a été généré entre 2,7 et $5 \mu\text{m}$ et les mesures sont également en bon accord avec les calculs [85]. Le seuil de dommage optique de LGT a aussi été estimé en régime femtoseconde grâce à une collaboration entre le CELIA et le LP3 de Marseille. Il vaut entre 33 et 50 TW/cm^2 pour une durée d'impulsion inférieure à 15 fs et s'avère être plus élevé que celui de BBO par exemple [85].

CHAPITRE

4

ETUDE DU CRISTAL DE SELENIURE BAGA₄SE₇ (BGSE) POUR LA BANDE III

INTRODUCTION

Ce chapitre rapporte la première étude exhaustive du cristal de Sélénium BaGa₄Se₇ (BGSe) pour la conversion de fréquence en conditions d'accord de phase par biréfringence à partir de processus quadratiques. Nous avons bénéficié d'une collaboration avec Valentin Petrov du Max-Born-Institute (MBI) à Berlin pour l'approvisionnement en échantillons. Ces derniers ont été élaborés au laboratoire High Technologies Laboratory à Krasnodar, en Russie, et leurs équations de Sellmeier ont précédemment été obtenues à partir de mesures des indices de réfraction sur prismes [86].

L'intérêt du cristal de Sélénium BGSe et de son isotype, le cristal de Sulfure BaGa₄S₇ (BGS), dont la synthèse a été rendue possible en 2005 [87] pour BGS et en 2010 [88] pour BGSe, est lié au fait que leur domaine de transparence est très étendu dans l'infrarouge, permettant de couvrir les bandes II (3-5 μm) et III (8-12 μm) de transmission de l'atmosphère. De plus, ils peuvent être pompés par des sources commerciales émettant autour de 1 μm , sans subir d'absorption à deux photons (TPA). Cependant, une préférence est accordée au cristal de BGSe, dont le domaine de transparence est le plus étendu [89].

Après un état de l'art sur les études antérieures dans le cristal de BGSe, ce chapitre

décrit la sphère et les lames préparées en vue d'être étudiées. Viennent ensuite des mesures de l'orientation du repère diélectrique en fonction de la longueur d'onde et du spectre de transmission de BGSe dans des lames. Elles sont complétées par les mesures directes sur sphère des directions d'accord de phase par biréfringence des processus de SHG et DFG. Notre premier objectif a été d'obtenir les équations de Sellmeier du cristal afin de pouvoir calculer les conditions optimales pour la génération d'un supercontinuum. Une dernière étude concerne la détermination des valeurs absolues et des signes relatifs des éléments non nuls et indépendants du tenseur de susceptibilité électrique du second ordre de BGSe.

4.1 ÉTAT DE L'ART

Le cristal de BGSe appartient au groupe ponctuel monoclinique m ; les valeurs de ses paramètres de maille sont $a = 7,6252 \text{ \AA}$, $b = 6,5114 \text{ \AA}$ et $c = 14,702 \text{ \AA}$, l'angle β entre les axes \vec{a} et \vec{c} mesurant $121,24^\circ$ [88, 90, 91]. Sa croissance par la méthode de Bridgman-Stockbarger [86, 88, 90, 91] permet d'obtenir des cristaux de BGSe de dimensions centimétriques de bonne qualité optique, comme illustré par la figure 4.1.

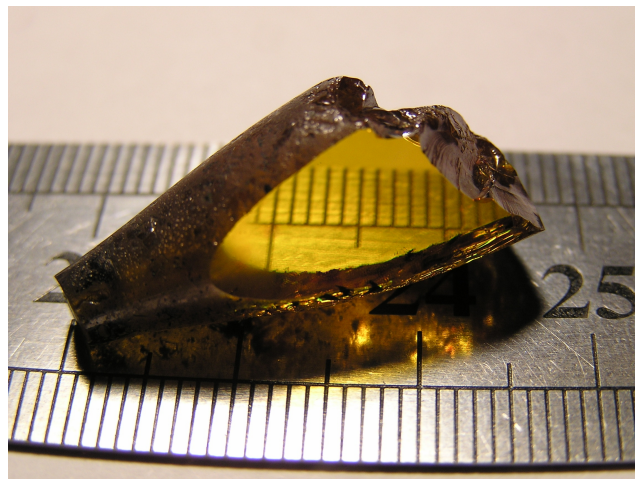


FIGURE 4.1 – Cristal de BGSe de 11,3 mm d'épaisseur obtenu par la méthode de Bridgman-Stockbarger dont deux faces ont été polies.

Le cristal de BGSe ne contient pas d'oxygène dans sa composition chimique, ce qui impacte directement son spectre de transparence qui s'étend alors au-delà de $5 \mu\text{m}$ [86]. Plusieurs travaux ont été rapportés : il s'agit de l'orientation entre les repères cristallographique et diélectrique, le spectre de transmission, le seuil de dommage optique et la dispersion des indices de réfraction principaux. Sont présentés aussi le calcul des courbes d'accord de phase de SHG, la détermination des coefficients non linéaires du cristal de BGSe et enfin l'étude de la génération de différence de fréquences [86, 88–92].

Orientation entre les repères cristallographique et diélectrique

Comme développé dans la partie 1.1.1.2, le repère diélectrique d'un cristal monoclinique a un axe commun avec le repère cristallographique. L'orientation entre ces deux repères dans BGSe a été mesurée à la longueur d'onde $\lambda_0 = 0,633 \mu\text{m}$ émise par un laser He-Ne, à partir d'une méthode conoscopique combinée à la diffraction des rayons X, comme dans la partie 2.3.1.1 [86]. Cette orientation est représentée par la figure 4.2.

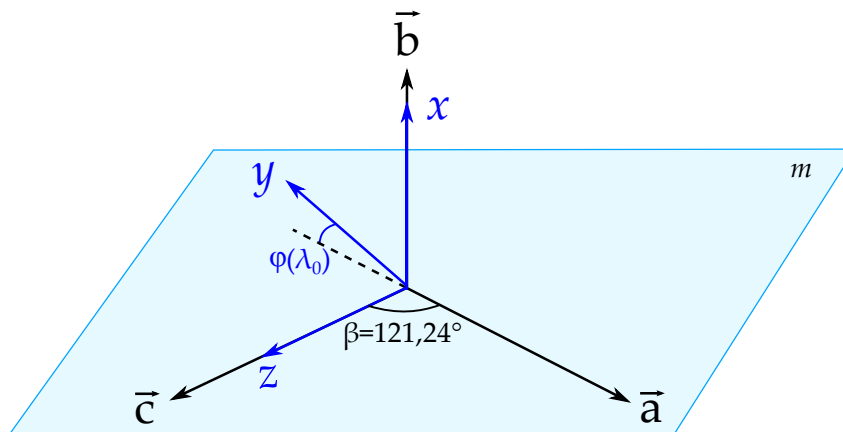


FIGURE 4.2 – Orientation entre les repères cristallographique ($\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}$) et diélectrique (x, y, z) de BGSe, repérée par l'angle φ , à $\lambda_0=0,633 \mu\text{m}$.

A cette longueur d'onde, il a été montré que l'axe spécial \vec{b} est confondu avec l'axe x du repère diélectrique [86]. Il s'avère aussi que l'axe \vec{c} est confondu avec l'axe z : ce n'est pas pour des raisons de symétrie mais du fait que la précision de mesure ne permet pas de déterminer l'angle très faible qui existe entre \vec{c} et z . Ainsi en première approximation, il est possible de considérer que les repères cristallographique et diélectrique de BGSe sont liés par deux axes à $\lambda_0=0,633 \mu\text{m}$.

Spectre de transmission

Le spectre de transmission en lumière non polarisée a fait l'objet de plusieurs études [86, 88, 89, 91]. Ces dernières ont montré qu'à travers une lame de 2 mm d'épaisseur, le cristal de BGSe est transparent entre 0,47 et 18 μm [88, 89, 91], comme illustré dans la figure 4.3 [91]. De plus, la transmission est d'environ 65 % entre 0,776 et 14,72 μm , et une forte absorption locale est observée autour de 15 μm [86, 89, 91]. Le domaine de transparence de BGSe couvre donc à la fois les bandes II (3-5 μm) et III (8-12 μm) de transmission de l'atmosphère. La longueur d'onde de coupure dans l'UV vaut 0,47 μm . Cela explique la couleur jaune du cristal (voir figure 4.1), et assure une faible absorption à deux photons si le cristal est pompé autour de $\lambda_p = 1 \mu\text{m}$.

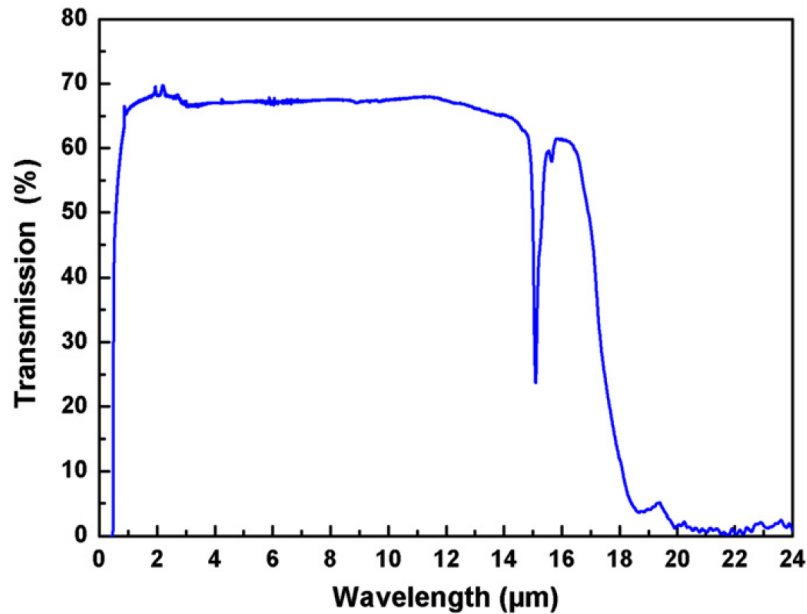


FIGURE 4.3 – Spectre de transmission mesuré en lumière non polarisée et non corrigé des pertes de Fresnel, à travers une lame de BGSe de 2 mm d'épaisseur [91].

Seuil de dommage optique

Le seuil de dommage optique de BGSe a été déterminé dans deux régimes impulsionnels différents [89, 91]. Dans le premier, un laser Nd :YAG émettant à $1,064 \mu\text{m}$, avec une durée d'impulsion de 30 ps et une fréquence de répétition de 10 Hz, a été utilisé : la seule information donnée est que le seuil de dommage optique a été estimé à $3 \text{ GW}/\text{cm}^2$ [89].

L'autre régime a été assuré par un laser Nd :YAG émettant à $1,064 \mu\text{m}$, avec une durée d'impulsion de 5 ns et une fréquence de répétition de 1 Hz [91]. Un balayage sur quarante points de la section transversale du cristal, avec un faisceau de $0,4 \text{ mm}$ de diamètre, a été réalisé pour des valeurs d'énergie croissante. D'après ces mesures, le seuil de dommage optique de BGSe vaut $557 \text{ MW}/\text{cm}^2$: il est donc supérieur à celui de AGS qui a été estimé à $150 \text{ MW}/\text{cm}^2$ dans les mêmes conditions [91].

Indices de réfraction principaux

Les indices de réfraction principaux n_x , n_y et n_z de BGSe (avec $n_x < n_y < n_z$) ont été déterminés en fonction de la longueur d'onde entre $0,48$ et $10,4 \mu\text{m}$ par la méthode de l'auto-collimation à travers trois prismes orientés de surface $10 \times 12 \text{ mm}^2$. La précision de la mesure était inférieure à $0,003$ entre 1 et $2 \mu\text{m}$, alors qu'elle était moins bonne au-delà de $2 \mu\text{m}$ [86]. L'interpolation des 34 points expérimentaux [93] a permis d'établir les premières équations de Sellmeier de BGSe dont la forme est [86] :

$$n_i^2(\lambda) = A_i + \frac{B_i}{\lambda^2 - C_i} + \frac{D_i}{\lambda^2 - E_i} \quad (4.1)$$

La longueur d'onde λ s'exprime en μm , et $i = x, y$ ou z . Les coefficients de Sellmeier A_i, B_i, C_i, D_i et E_i , correspondant à la meilleure interpolation, sont donnés dans le tableau 4.1.

n_i	A_i	B_i	C_i	D_i	E_i
n_x	7,410040	0,293340	0,051215	1896,441	1265,119
n_y	7,323096	0,292889	0,052725	1573,474	1182,324
n_z	7,764197	0,326812	0,069734	1975,857	1297,079

TABLE 4.1 – Coefficients de Sellmeier de l'équation (4.1) décrivant la dispersion des indices de réfraction principaux n_x, n_y et n_z de BGSe d'après la réf. [86].

Une autre équipe de recherche a étudié les trois indices de réfraction principaux de BGSe avec la mesure du minimum de déviation à travers des prismes orientés [90]. L'interpolation des points expérimentaux obtenus entre 0,5 et 2,6 μm a été possible à partir de nouvelles équations de Sellmeier dont la forme est la suivante [90] :

$$n_i^2(\lambda) = A_i + \frac{B_i}{\lambda^2 - C_i} - D_i\lambda^2 \quad (4.2)$$

où λ est en μm et $i = x, y$ ou z . Les coefficients de Sellmeier, correspondant à la meilleure interpolation, sont donnés dans le tableau 4.2 [90].

n_i	A_i	B_i	C_i	D_i
n_x	5,952953	0,250172	0,081614	0,001709
n_y	6,021794	0,256951	0,079191	0,001925
n_z	6,293976	0,282648	0,094057	0,002579

TABLE 4.2 – Coefficients de Sellmeier de l'équation (4.2) décrivant la dispersion des indices de réfraction principaux n_x, n_y et n_z de BGSe d'après la réf. [90].

Courbes d'accord de phase de SHG dans les plans principaux

Les équations de Sellmeier (4.1) et les coefficients du tableau 4.1 ont été utilisés pour le calcul des courbes d'accord de phase des SHG de types I et II dans les trois plans principaux de BGSe. Elles sont représentées par la figure 4.4 [86].

La figure 4.4 fait apparaître en bleu les portions des courbes associées à un coefficient effectif nul et en rouge celles associées à un coefficient effectif non nul. Elle montre deux courbes de SHG concentriques : celle de l'extérieur correspond au type I et l'autre au type II. Le schéma de polarisation associé aux conditions d'accord de phase dans chaque plan principal est rappelé à proximité des courbes. Par exemple, "oo-e" correspond à " $\lambda_\omega^o \lambda_\omega^o - \lambda_{2\omega}^e$ " où la dénomination "o" correspond à la nappe ordinaire de la surface des

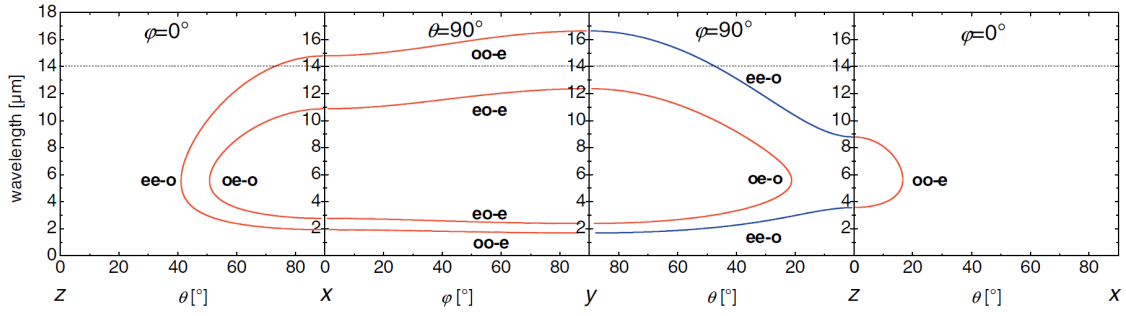


FIGURE 4.4 – Courbes d'accord de phase des SHG de types I et II calculées dans les trois plans principaux de BGSe à partir de l'équation (4.1) et des coefficients du tableau 4.1.

indices (traits pleins de la figure 1.3) et "e" à la nappe extraordinaire (traits pointillés de la figure 1.3). Les calculs des conditions d'accord de phase des SHG de types I et II de la figure 4.4 montrent que si l'accord de phase non critique angulaire existe pour les types I et II selon l'axe x , seul le type II est associé à un coefficient effectif non nul selon l'axe y et aucun n'est possible selon l'axe z .

Tenseur de susceptibilité électrique du second ordre

D'après le principe de Neumann, le tenseur de susceptibilité électrique du second ordre de BGSe se réduit à 14 éléments. Dans l'approximation de Kleinman, certains d'entre eux sont égaux, ce qui implique qu'il reste 6 coefficients non linéaires non nuls et indépendants, sachant que leur valeur peut être aussi bien positive que négative. Dans cette approximation, le tenseur de susceptibilité électrique du second ordre du cristal monoclinique de BGSe, avec l'axe spécial \vec{b} pris colinéaire à l'axe x , s'écrit :

$$\vec{\vec{d}}^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{zxx} & d_{zxx} & d_{yxx} & d_{yxx} \\ d_{yxx} & d_{yyy} & d_{yzz} & d_{zyy} & d_{zyy} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ d_{zxx} & d_{zyy} & d_{zzz} & d_{yzz} & d_{yzz} & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (4.3)$$

Les six éléments d_{ijk} indépendants, et leur notation contractée (voir partie 2.4.3.2), sont répertoriés dans le tableau 4.3.

Sur la base d'une modélisation de la structure de bandes de BGSe, les valeurs absolues et les signes relatifs de ses six coefficients non linéaires ont été calculés à $0,532 \mu\text{m}$ [88]. Ils sont donnés en pm/V dans le tableau 4.3.

Les valeurs absolues de deux coefficients de BGSe ont aussi été déterminées à $0,532 \mu\text{m}$ par SHG en hors accord de phase à partir de la méthode des franges de Maker, dont le principe est décrit dans la partie 2.3.7. Pour cela, un laser Nd :YAG émettant à $1,064 \mu\text{m}$, avec une durée d'impulsion de 10 ns et une fréquence de répétition de 10 Hz, a été utilisé [92]. La mesure a été réalisée dans une même lame de $1,76 \text{ mm}$ d'épaisseur taillée perpendiculairement à la direction d'un axe diélectrique principal. En utilisant le

d_{ijk} (pm/V)	réf. [88]	réf. [92]
$d_{yyy} = d_{22}$	18,2	$ 24,3 \pm 1,5 $
$d_{zyy} = d_{32}$	-15,2	"faible"
$d_{yxx} = d_{21}$	5,2	
$d_{yzz} = d_{23}$	-20,6	$ 20,4 \pm 1,1 $
$d_{zxx} = d_{31}$	14,3	
$d_{zzz} = d_{33}$	-2,2	"faible"

TABLE 4.3 – Coefficients non linéaires d_{ijk} de BGSe à $0,532 \mu\text{m}$: écriture en notation contractée, valeurs absolues et signes relatifs calculés d'après la réf. [88], et valeurs absolues de deux coefficients mesurés d'après la réf. [92].

schéma de polarisation adéquat, les valeurs absolues $|d_{yyy}|$ et $|d_{yzz}|$ ont été déterminées à $0,532 \mu\text{m}$, en comparaison à d_{36} du cristal de KDP. Elles sont données dans le tableau 4.3 [92]. Malgré une énergie du faisceau incident de 20 mJ, les valeurs absolues $|d_{zyy}|$ et $|d_{zzz}|$ étaient trop faibles pour être déterminées par SHG en hors accord de phase [92]. De même, il n'a pas été possible pour ces auteurs de déterminer les valeurs absolues $|d_{yxx}|$ et $|d_{zxx}|$ car elles interviennent toutes les deux dans le coefficient effectif associé [92]. Par contre, il a été possible de confirmer le signe opposé entre ces deux coefficients, ce qui est en accord avec la réf. [88].

Génération de différence de fréquences

Deux portions de la courbe d'accord de phase de DFG de type I ont été mesurées dans deux lames orientées afin d'évaluer la potentialité du cristal de BGSe [89, 90]. Elles sont représentées dans la figure 4.5 par des points rouges.

La portion inférieure de la courbe a été obtenue dans une première lame de BGSe taillée dans la direction ($\theta=54,7^\circ$, $\phi=0^\circ$) du plan $x-z$. Un laser Nd :YAG émettant à $1,064 \mu\text{m}$, avec une durée d'impulsion de 30 ps et une fréquence de répétition de 10 Hz, a été utilisé [89]. Un faisceau idler a pu être généré entre 3 et $5 \mu\text{m}$, en recombinaison le faisceau à $1,064 \mu\text{m}$ avec un faisceau accordable entre $1,352$ et $1,649 \mu\text{m}$. L'accordabilité du faisceau généré a été obtenue par la rotation de la lame [89].

La portion supérieure de la courbe d'accord de phase de DFG de type I représentée dans la figure 4.5 (points rouges) a été mesurée dans une deuxième lame de BGSe taillée dans la direction ($\theta=44^\circ$, $\phi=0^\circ$) du plan $x-z$. Dans cette expérience, des longueurs d'onde comprises entre $6,4$ et $11 \mu\text{m}$ ont été générées en recombinaison un faisceau à $1,064 \mu\text{m}$ et un faisceau accordable fin spectralement entre $1,168$ et $1,293 \mu\text{m}$ [90]. La rotation de la lame de BGSe a permis de mesurer les courbes d'accord de phase qui sont représentées entre $6,4$ et $11 \mu\text{m}$ dans la figure 4.5 [90].

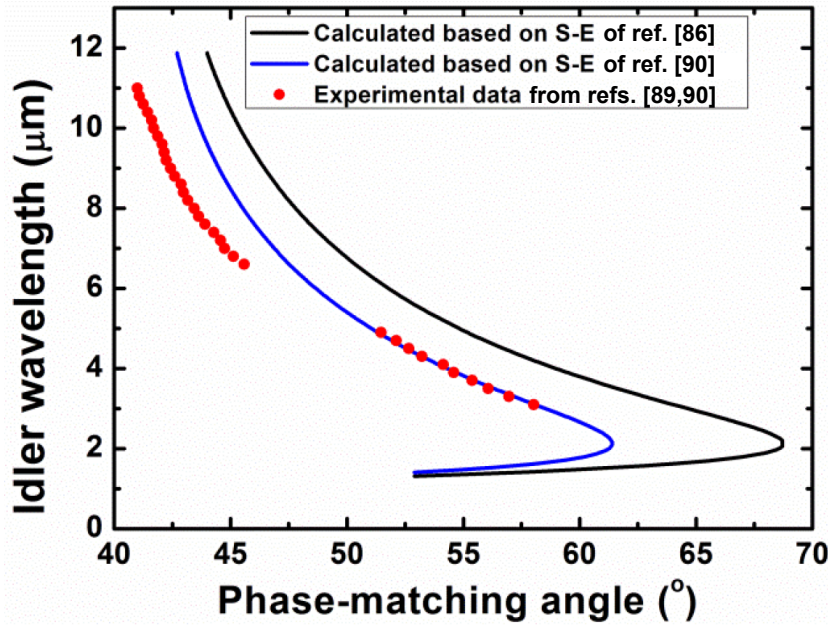


FIGURE 4.5 – Courbes d'accord de phase de DFG de type I dans BGSe d'après la réf. [90], où les mesures sont comparées aux calculs basés sur les équations de Sellmeier (4.1) de la réf. [86] et (4.2) de la réf. [90].

Les courbes d'accord de phase théoriques de la figure 4.5 montrent que les équations de Sellmeier de la réf. [90] (en bleu) sont plus fiables que celles de la réf. [86] (en noir) pour les longueurs d'onde générées entre 3 et 5 μm . En revanche, les mesures de la réf. [90] sont en désaccord avec les calculs à partir des équations de Sellmeier de la réf. [86] ou celles de la réf. [90] pour des longueurs d'onde générées entre 6,4 et 11 μm .

Après cet état de l'art, les parties suivantes portent sur notre travail réalisé sur BGSe.

4.2 ECHANTILLONS DE BGSE

Nous avons réceptionné deux échantillons de BGSe qui n'ont pas été synthétisés en même temps, et que nous nommerons lot \mathcal{A} et lot \mathcal{B} . Les deux lots ont été utilisés au laboratoire pour la mise en forme d'une sphère et de plusieurs lames orientées.

A partir du lot \mathcal{A} , une sphère de 7,55 mm de diamètre, dont l'asphéricité $\Delta D/D$ est inférieure au pour cent, a été usinée en utilisant la méthode décrite dans la partie 2.1.2. Sa photographie est montrée dans la figure 4.6(a). Une lame $L1$ de 500 μm d'épaisseur taillée perpendiculairement à la direction x a également été préparée à partir de ce lot (voir photographie figure 4.6(b)).

Le lot \mathcal{B} a été utilisé pour mettre en forme deux lames de 550 μm et 360 μm d'épaisseur, orientées perpendiculairement aux axes principaux x et y respectivement. Ce sont les lames $L2$ et $L3$ représentées dans la figure 4.6(c).

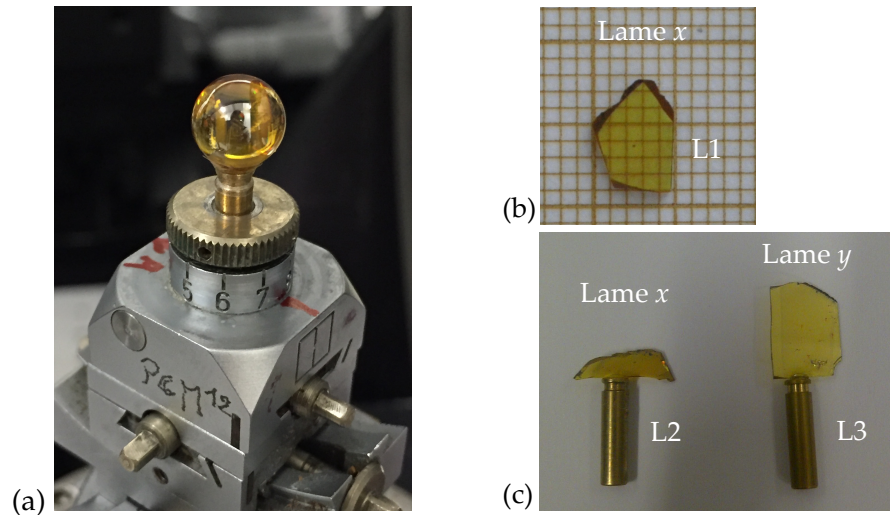


FIGURE 4.6 – Echantillons de BGSé préparés au laboratoire. (a) une sphère de 7,55 mm de diamètre, (b) une lame L1 taillée perpendiculairement à l'axe x et (c) deux lames L2 et L3 taillées perpendiculairement aux axes diélectriques x et y respectivement.

Les surfaces de tous les échantillons (sphère et lames) ont été polies à la qualité optique et n'ont pas subi de traitement antireflet.

4.3 ORIENTATION DU REPÈRE DIÉLECTRIQUE

Nous avons vu dans les parties 1.1.1.2 et 2.3.1 que, du fait de la symétrie monoclinique, le repère diélectrique peut tourner dans le plan miroir autour de l'axe spécial en fonction de la longueur d'onde [51]. Deux méthodes permettant de caractériser cette rotation sont décrites dans la partie 2.3.1 et nous avons retenu celle de Malus. Dans le cristal de BGSé, l'axe spécial étant l'axe \vec{b} du repère cristallographique et aussi l'axe x du repère diélectrique (cf. figure 4.2), la lame L1 a été utilisée pour l'étude de cette rotation.

L'orientation entre les repères cristallographique et diélectrique, représentée par l'angle φ d'après la figure 4.2, a d'abord été déterminée à la longueur d'onde $\lambda_0 = 0,633 \mu\text{m}$ en combinant les méthodes de diffraction des rayons X et de conoscopie décrites dans la partie 2.3.1. La valeur de $\varphi(\lambda_0) = 31,2^\circ$ a été obtenue avec une précision de $0,2^\circ$ comme montré dans l'encart de la figure 4.7.

Ensuite, nous avons mis à profit la méthode basée sur la loi de Malus, détaillée dans la partie 2.3.1.2, en mesurant simultanément la puissance transmise du faisceau provenant d'un laser He-Ne et celle d'un faisceau émis par notre source OPO en régime nanoseconde (cf. partie 2.2.1). La méthode de Malus donne l'angle $\Delta\varphi(\lambda)$ entre $0,7$ et $1,8 \mu\text{m}$. En combinant toutes les méthodes précédentes, la variation de l'orientation entre les repères cristallographique et diélectrique en fonction de la longueur d'onde, repérée par l'angle $\varphi(\lambda) = \varphi(\lambda_0) + \Delta\varphi(\lambda)$, a été mesurée directement.

Le résultat de nos mesures est montré dans la figure 4.7. Il correspond à une variation inférieure à $0,5^\circ$ de l'angle φ entre $0,7$ et $1,8 \mu\text{m}$. Cela permet de déduire que l'orientation du repère diélectrique de BGSe reste celle représentée dans la figure 4.2, quelle que soit la longueur d'onde, au moins jusque $1,8 \mu\text{m}$.

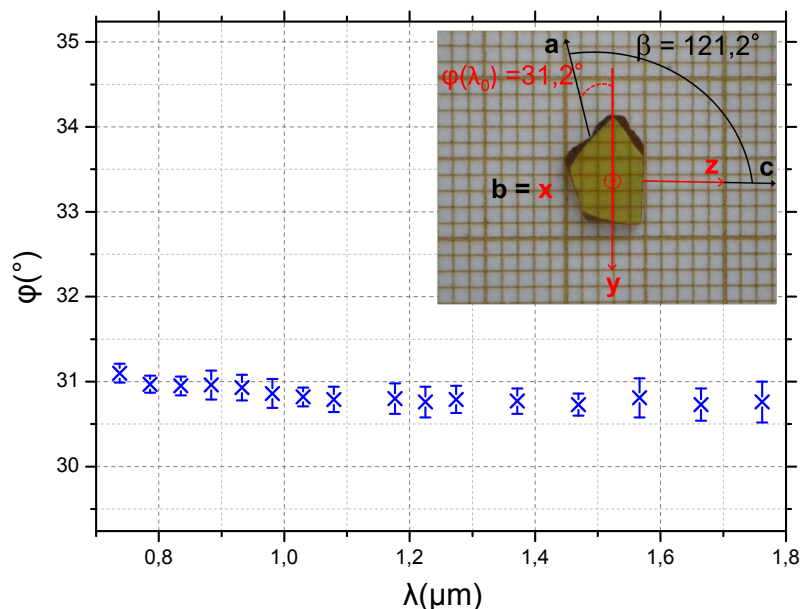


FIGURE 4.7 – Orientation entre le repère cristallographique $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$ et le repère diélectrique (x, y, z) de BGSe en fonction de la longueur d'onde. Elle a été déterminée en associant les méthodes de conoscopie et de Malus. La figure en encart correspond à la lame L1 où l'orientation entre les deux repères est rappelée à $\lambda_0 = 0,633 \mu\text{m}$.

4.4 SPECTRE DE TRANSMISSION

Le spectre de transmission en lumière non polarisée et non corrigé des pertes de Fresnel a été mesuré au Max-Born-Institute à Berlin à travers une lame de BGSe de $11,3 \text{ mm}$ d'épaisseur, taillée dans la direction y (voir photographie figure 4.1). Cette mesure a permis de retrouver les résultats des réf. [88, 89, 91] et en particulier une forte absorption autour de $15 \mu\text{m}$, comme le montre la figure 4.8 qui s'avère similaire à la figure 4.3.

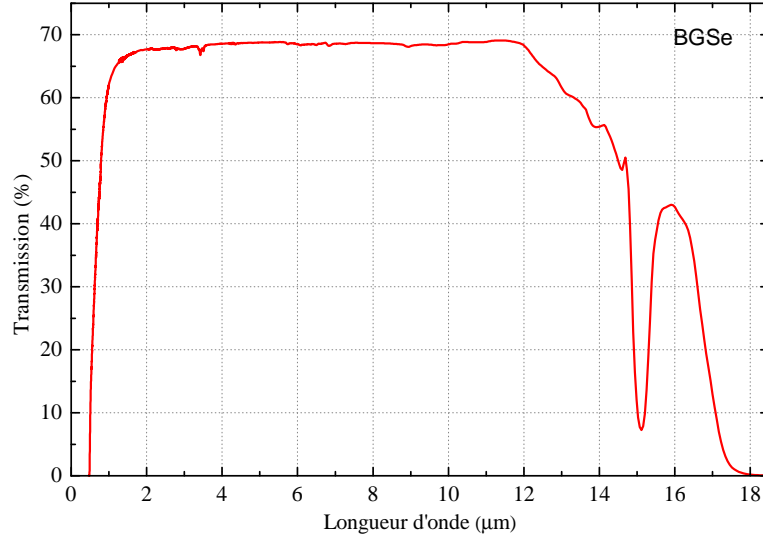


FIGURE 4.8 – Spectre de transmission mesuré en lumière non polarisée et non corrigé des pertes de Fresnel, à travers une lame de 11,3 mm d'épaisseur taillée dans la direction y .

4.5 ACCORD DE PHASE

4.5.1 Analyse par le formalisme du tenseur champ

D'après la partie 1.2.5 et l'expression (4.3) du tenseur de susceptibilité électrique de BGSe, son coefficient effectif s'écrit :

$$d_{\text{eff}} = d_{yyy} F_{yyy} + d_{zyy} (F_{zyy} + F_{yyz} + F_{yzy}) + d_{yxx} (F_{yxx} + F_{xyx} + F_{xxy}) \\ + d_{yzz} (F_{yzz} + F_{zyz} + F_{zzy}) + d_{zxx} (F_{zxx} + F_{xxz} + F_{xzx}) + d_{zzz} F_{zzz} \quad (4.4)$$

Cette expression est adaptée à tous les processus quadratiques de conversion de fréquence que nous voulons étudier. Dans les plans principaux, les 14 éléments F_{ijk} ont des expressions analytiques qui sont calculées à partir des vecteurs unitaires \vec{e}^{\pm} définis par les équations (1.17) et (1.18). Par contre, le calcul des éléments F_{ijk} hors des plans principaux est numérique, de sorte qu'il faut considérer l'équation générale (1.16).

Outre les considérations de coefficient effectif, les SHG de types I et II, ainsi que les SFG et DFG de types I, II et III sont optimales lorsque les conditions d'accord de phase données dans le tableau 4.4 sont vérifiées. Elles dépendent des angles θ_{PM} et ϕ_{PM} exprimés dans le repère diélectrique de BGSe.

Conditions d'accord de phase	
SHG de type I	$n^+(\lambda_\omega, \theta_{PM}, \phi_{PM}) = n^-(\lambda_\omega/2, \theta_{PM}, \phi_{PM})$
SFG/DFG de type I	$\frac{n^+(\lambda_1, \theta_{PM}, \phi_{PM})}{\lambda_1} + \frac{n^+(\lambda_2, \theta_{PM}, \phi_{PM})}{\lambda_2} = \frac{n^-(\lambda_3, \theta_{PM}, \phi_{PM})}{\lambda_3}$
SHG de type II	$n^+(\lambda_\omega, \theta_{PM}, \phi_{PM}) + n^-(\lambda_\omega, \theta_{PM}, \phi_{PM}) = 2n^-(\lambda_\omega/2, \theta_{PM}, \phi_{PM})$
SFG/DFG de type II	$\frac{n^-(\lambda_1, \theta_{PM}, \phi_{PM})}{\lambda_1} + \frac{n^+(\lambda_2, \theta_{PM}, \phi_{PM})}{\lambda_2} = \frac{n^-(\lambda_3, \theta_{PM}, \phi_{PM})}{\lambda_3}$
SFG/DFG de type III	$\frac{n^+(\lambda_1, \theta_{PM}, \phi_{PM})}{\lambda_1} + \frac{n^-(\lambda_2, \theta_{PM}, \phi_{PM})}{\lambda_2} = \frac{n^-(\lambda_3, \theta_{PM}, \phi_{PM})}{\lambda_3}$

TABLE 4.4 – Conditions d'accord de phase des SHG de types I et II et des SFG/DFG de types I, II et III pour le cristal de BGSe. λ_ω correspond à la longueur d'onde fondamentale de SHG, et λ_1 , λ_2 et λ_3 aux trois longueurs d'onde en interaction en SFG/DFG avec $\lambda_1 \geq \lambda_2 > \lambda_3$.

Les indices de réfraction $n^+(\lambda, \theta, \phi)$ et $n^-(\lambda, \theta, \phi)$ du tableau 4.4 sont décrits par l'expression (1.10).

Les expressions analytiques des coefficients effectifs associés aux conditions d'accord de phase du tableau 4.4 dans les plans principaux de BGSe sont données dans le tableau 4.5. λ_i correspond à la longueur d'onde générée : il s'agit de λ_3 pour la SFG et λ_1 pour la DFG. Notons aussi que :

- * $\theta'_{PM,\omega} = \theta_{PM} - \rho(\lambda_\omega, \theta_{PM})$
- * $\theta''_{PM,\omega} = \theta_{PM} + \rho(\lambda_\omega, \theta_{PM})$
- * $\phi'_{PM,\omega} = \phi_{PM} + \rho(\lambda_\omega, \phi_{PM})$
- * $\theta'_{PM,j} = \theta_{PM} - \rho(\lambda_j, \theta_{PM})$ avec $j = 1, 2$ ou 3
- * $\theta''_{PM,j} = \theta_{PM} + \rho(\lambda_j, \theta_{PM})$ avec $j = 1, 2$ ou 3
- * $\phi'_{PM,j} = \phi_{PM} + \rho(\lambda_j, \phi_{PM})$ avec $j = 1, 2$ ou 3

SHG de type I	Coefficient effectif d_{eff}
Plan $y - z$	0
Plan $x - y$	$d_{yzz}(\lambda_\omega/2) \cos(\phi'_{PM,\omega})$
Plan $x - z$ ($\theta > V_z$)	$d_{yxx}(\lambda_\omega/2) \cos^2(\theta'_{PM,\omega}) + d_{yzz}(\lambda_\omega/2) \sin^2(\theta'_{PM,\omega})$
Plan $x - z$ ($\theta < V_z$)	$d_{zyy}(\lambda_\omega/2) \sin(\theta''_{PM,\omega})$
SFG/DFG de type I	
Plan $y - z$	0
Plan $x - y$	$d_{yzz}(\lambda_i) \cos(\phi'_{PM,3})$
Plan $x - z$ ($\theta > V_z$)	$d_{yxx}(\lambda_i) \cos(\theta'_{PM,1}) \cos(\theta'_{PM,2}) + d_{yzz}(\lambda_i) \sin(\theta'_{PM,1}) \sin(\theta'_{PM,2})$
Plan $x - z$ ($\theta < V_z$)	$d_{zyy}(\lambda_i) \sin(\theta''_{PM,3})$
SHG de type II=III	
Plan $y - z$	$-d_{yxx}(\lambda_\omega/2) \cos(\theta'_{PM,\omega}) + d_{zxx}(\lambda_\omega/2) \sin(\theta'_{PM,\omega})$
Plan $x - y$	$d_{zxx}(\lambda_\omega/2) \sin^2(\phi'_{PM,\omega}) + d_{zyy}(\lambda_\omega/2) \cos^2(\phi'_{PM,\omega})$
Plan $x - z$ ($\theta > V_z$)	$d_{zyy}(\lambda_\omega/2) \sin(\theta'_{PM,\omega})$
Plan $x - z$ ($\theta < V_z$)	$d_{yxx}(\lambda_\omega/2) \cos^2(\theta''_{PM,\omega}) + d_{yzz}(\lambda_\omega/2) \sin^2(\theta''_{PM,\omega})$
SFG/DFG de type II	
Plan $y - z$	$-d_{yxx}(\lambda_i) \cos(\theta'_{PM,2}) + d_{zxx}(\lambda_i) \sin(\theta'_{PM,2})$
Plan $x - y$	$d_{zxx}(\lambda_i) \sin(\phi'_{PM,3}) \sin(\phi'_{PM,1}) + d_{zyy}(\lambda_i) \cos(\phi'_{PM,3}) \cos(\phi'_{PM,1})$
Plan $x - z$ ($\theta > V_z$)	$d_{zyy}(\lambda_i) \sin(\theta'_{PM,2})$
Plan $x - z$ ($\theta < V_z$)	$d_{yxx}(\lambda_i) \cos(\theta''_{PM,3}) \cos(\theta''_{PM,1}) + d_{yzz} \sin(\theta''_{PM,3}) \sin(\theta''_{PM,1})$
SFG/DFG de type III	
Plan $y - z$	$-d_{yxx}(\lambda_i) \cos(\theta'_{PM,1}) + d_{zxx}(\lambda_i) \sin(\theta'_{PM,1})$
Plan $x - y$	$d_{zxx}(\lambda_i) \sin(\phi'_{PM,3}) \sin(\phi'_{PM,2}) + d_{zyy}(\lambda_i) \cos(\phi'_{PM,3}) \cos(\phi'_{PM,2})$
Plan $x - z$ ($\theta > V_z$)	$d_{zyy}(\lambda_i) \sin(\theta'_{PM,1})$
Plan $x - z$ ($\theta < V_z$)	$d_{yxx}(\lambda_i) \cos(\theta''_{PM,3}) \cos(\theta''_{PM,2}) + d_{yzz} \sin(\theta''_{PM,3}) \sin(\theta''_{PM,2})$

TABLE 4.5 – Expressions des coefficients effectifs d_{eff} associés aux conditions d'accord de phase du tableau 4.4 dans les plans principaux. λ_i correspond à la longueur d'onde générée : il s'agit de λ_3 pour la SFG et λ_1 pour la DFG.

Le tableau 4.5 montre que 29 courbes d'accord de phase de SHG, SFG et DFG de types I, II et III sont associées à un coefficient effectif non nul et peuvent donc être mesurées dans les plans principaux du cristal monoclinique de BGSe. Néanmoins, nous nous limiterons à celles qui sollicitent les trois indices de réfraction principaux de BGSe sur tout son domaine de transparence. D'après le tableau 4.4, cela devrait être le cas pour les courbes d'accord de phase des SHG et DFG de types I et II dans le plan $x - z$, et des SHG et DFG de type II dans le plan $y - z$. Les expressions des angles d'accord de phase correspondants sont données dans le tableau 4.6 quand la solution est analytique.

SHG de type I	Angles d'accord de phase
Plan $x - z$	$\theta_{PM} = \arcsin \left(\sqrt{\frac{n_y^{-2}(\lambda_\omega/2) - n_x^{-2}(\lambda_\omega)}{n_z^{-2}(\lambda_\omega) - n_x^{-2}(\lambda_\omega)}} \right)$
DFG de type I	
Plan $x - z$	Solution numérique θ_{PM}^{num}
SHG de type II	
Plan $x - z$	$\theta_{PM} = \arcsin \left(\sqrt{\frac{[2n_y(\lambda_\omega/2) - n_y(\lambda_\omega)]^{-2} - n_x^{-2}(\lambda_\omega)}{n_z^{-2}(\lambda_\omega) - n_x^{-2}(\lambda_\omega)}} \right)$
Plan $y - z$	$\theta_{PM} = \arcsin \left(\sqrt{\frac{[2n_x(\lambda_\omega/2) - n_x(\lambda_\omega)]^{-2} - n_y^{-2}(\lambda_\omega)}{n_z^{-2}(\lambda_\omega) - n_y^{-2}(\lambda_\omega)}} \right)$
DFG de type II	
Plan $x - z$	$\theta_{PM} = \arcsin \left(\sqrt{\frac{[\frac{\lambda_2}{\lambda_3}n_y(\lambda_3) - \frac{\lambda_2}{\lambda_1}n_y(\lambda_1)]^{-2} - n_x^{-2}(\lambda_2)}{n_z^{-2}(\lambda_2) - n_x^{-2}(\lambda_2)}} \right)$
Plan $y - z$	$\theta_{PM} = \arcsin \left(\sqrt{\frac{[\frac{\lambda_2}{\lambda_3}n_x(\lambda_3) - \frac{\lambda_2}{\lambda_1}n_x(\lambda_1)]^{-2} - n_y^{-2}(\lambda_2)}{n_z^{-2}(\lambda_2) - n_y^{-2}(\lambda_2)}} \right)$

TABLE 4.6 – Expressions des angles d'accord de phase pour les processus de SHG et DFG de types I et II dans les plans $x - z$ et $y - z$ d'un cristal biaxe optique comme BGSe quand la solution est analytique.

4.5.2 Mesure directe des courbes d'accord de phase

La mesure directe des courbes d'accord de phase a été réalisée dans la sphère de BGSe collée successivement avec l'axe y vertical puis l'axe x vertical (voir protocole

dans la partie 2.4.1.1) afin d'explorer le plan principal $x - z$ puis le plan $y - z$.

Elle a été effectuée avec les faisceaux de la source paramétrique OPG en régime picoseconde dont l'énergie a été fortement atténuée afin que la sphère de BGSe ne soit pas endommagée. Le faisceau accordable entre $\lambda_\omega = 0,4$ et $12 \mu\text{m}$ a été injecté dans la sphère de BGSe pour les mesures de SHG. Pour l'étude de la DFG, le faisceau idler de l'OPG, accordable entre $\lambda_2 = 0,71$ et $2,4 \mu\text{m}$ (voir figure 2.3), a été recombinaé avec une partie du faisceau à $\lambda_3 = 1,064 \mu\text{m}$. Du fait que la source fonctionne en régime picoseconde, le délai optique entre ces faisceaux incidents a été contrôlé par le biais d'un prisme muni d'une translation, comme décrit dans la partie 2.2.2. La propagation des faisceaux était parallèle au diamètre de la sphère quelle que soit son orientation. Les angles d'accord de phase ont été mesurés avec une précision globale de $\pm 0,5^\circ$ et les longueurs d'onde contrôlées avec nos spectromètres à $\pm 1 \text{ nm}$ près. Les énergies des faisceaux générés par SHG et DFG ont été mesurées en utilisant les détecteurs les mieux adaptés parmi ceux présentés dans la partie 2.2.5 après avoir inséré les filtres décrits dans le tableau 2.1.

La longueur d'onde fondamentale λ_ω pour la SHG est représentée en fonction des angles d'accord de phase mesurés θ_{PM} dans les figures 4.9, 4.10 et 4.13, où la longueur d'onde $\lambda_{2\omega}$ générée par SHG correspond à $\lambda_\omega/2$. Les figures 4.11, 4.12 et 4.14 montrent la variation de la longueur d'onde λ_1 générée par DFG en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} [94]. La courbe noire pointillée des figures 4.9 à 4.14 correspond au calcul des directions d'accord de phase à partir des équations de dispersion des indices de réfraction principaux de la réf. [86] (équation (4.1) et les coefficients du tableau 4.1) et des équations du tableau 4.6. La courbe verte pointillée correspond au même calcul à partir des équations de la réf. [90] (équation (4.2) et tableau 4.2).

Nos mesures sont représentées par les points et barres d'incertitude bleus des figures 4.9 à 4.14. Celles de SHG ont pu être réalisées avec la meilleure précision possible entre 2 et $5 \mu\text{m}$. Au-delà, l'énergie du faisceau incident était significativement plus faible, par conséquent, l'énergie générée était difficilement mesurable. C'est pour cette raison qu'à partir de $5 \mu\text{m}$, les barres d'incertitude de la figure 4.9 sont plus importantes, et qu'aucun point expérimental n'est montré dans les figures 4.10 et 4.13. Les courbes de DFG des figures 4.11, 4.12 et 4.14 montrent que le faisceau généré a pu être mesuré jusque $11 \mu\text{m}$ seulement, ce qui correspond à la limite de la réponse spectrale du détecteur utilisé.

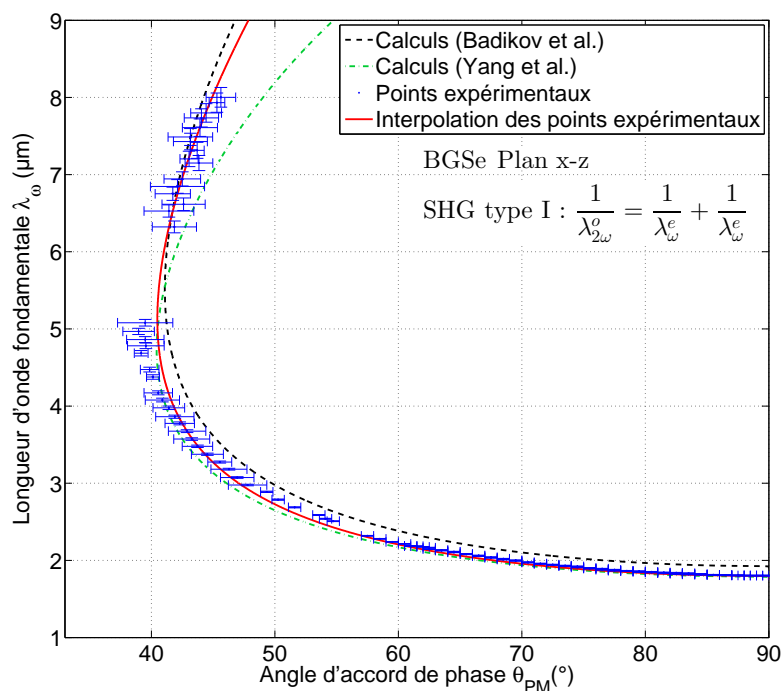


FIGURE 4.9 – Courbes d'accord de phase de SHG de type I dans le plan $x - z$ de BGSe. La longueur d'onde fondamentale λ_{ω} est tracée en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} . $\lambda_{2\omega}$ correspond à la longueur d'onde $\lambda_{\omega}/2$ générée par SHG.

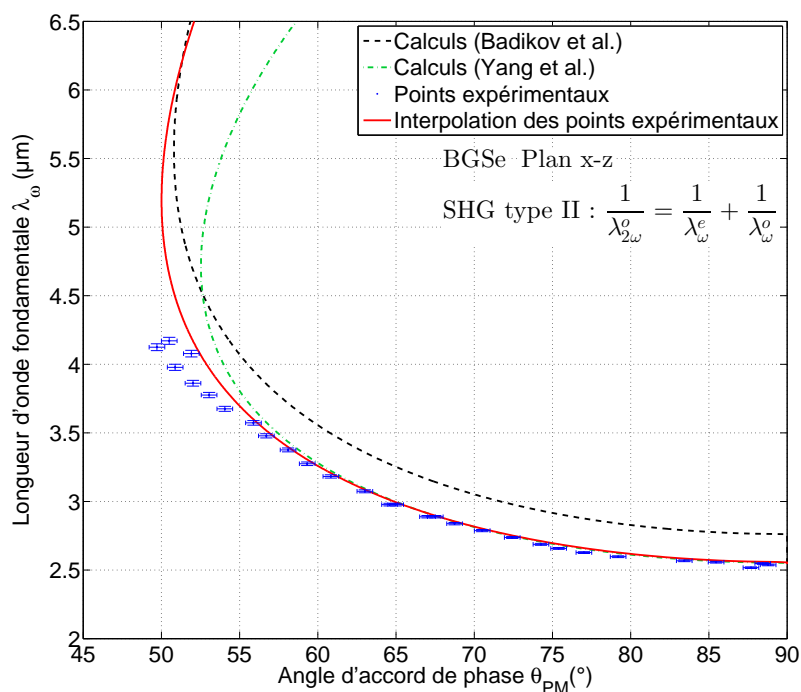


FIGURE 4.10 – Courbes d'accord de phase de SHG de type II dans le plan $x - z$ de BGSe. La longueur d'onde fondamentale λ_{ω} est tracée en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} . $\lambda_{2\omega}$ correspond à la longueur d'onde $\lambda_{\omega}/2$ générée par SHG.

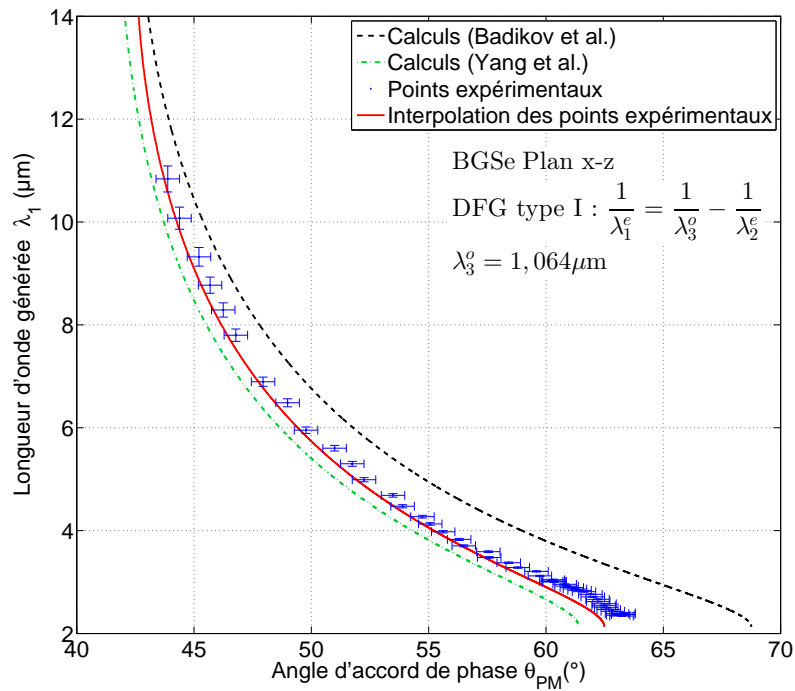


FIGURE 4.11 – Courbes d'accord de phase de DFG de type I dans le plan $x - z$ de BGSe, avec $\lambda_3=1,064 \mu\text{m}$. La longueur d'onde générée λ_1 est tracée en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} .

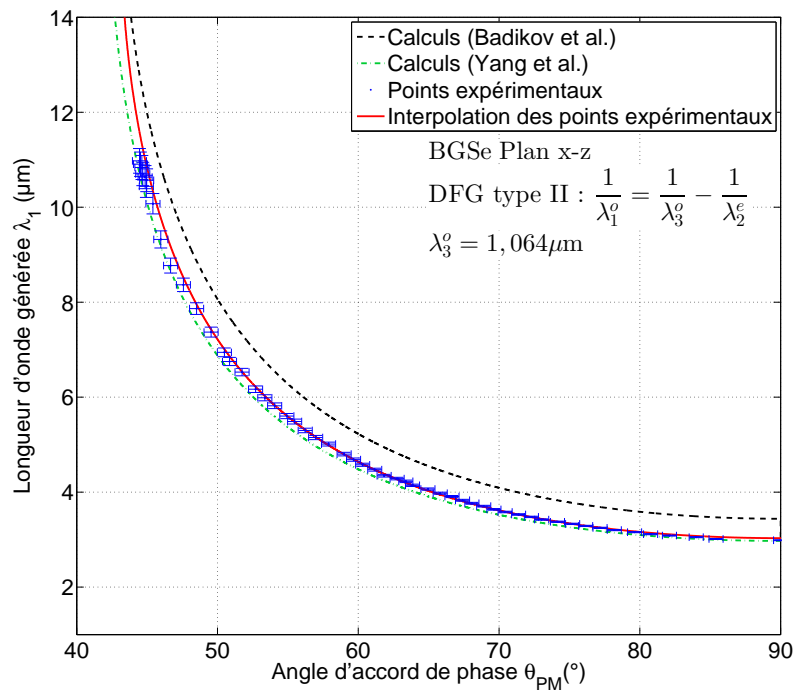


FIGURE 4.12 – Courbes d'accord de phase de DFG de type II dans le plan $x - z$ de BGSe, avec $\lambda_3=1,064 \mu\text{m}$. La longueur d'onde générée λ_1 est tracée en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} .

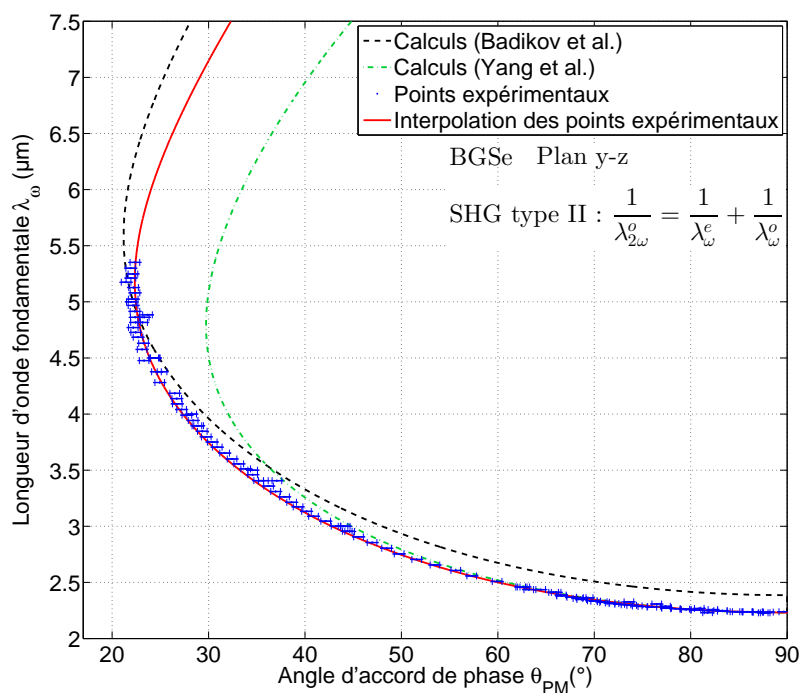


FIGURE 4.13 – Courbes d'accord de phase de SHG de type II dans le plan $y - z$ de BGSe. La longueur d'onde fondamentale λ_ω est tracée en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} . $\lambda_{2\omega}$ correspond à la longueur d'onde $\lambda_\omega/2$ générée par SHG.

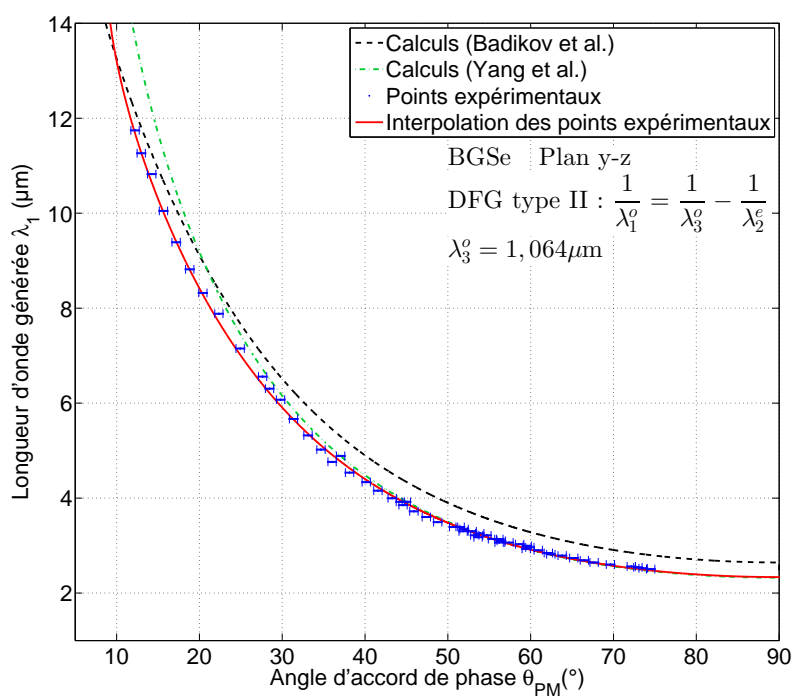


FIGURE 4.14 – Courbes d'accord de phase de DFG de type II dans le plan $y - z$ de BGSe, avec $\lambda_3=1,064 \mu\text{m}$. La longueur d'onde générée λ_1 est tracée en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} .

Les figures 4.9 à 4.14 mettent également en évidence un désaccord entre nos points expérimentaux et les calculs, aussi bien à partir des équations de dispersion de la réf. [86] que de la réf. [90]. Cela s'explique par le fait que les équations de dispersion déterminées à partir des mesures sur prisme ne sont pas fiables.

Nos mesures directes de courbes d'accord de phase sur sphère peuvent être exploitées telles quelles pour l'utilisation de BGSe dans des dispositifs paramétriques. Néanmoins, comme expliqué au chapitre 2, l'interpolation de toutes ces courbes d'accord de phase permet de fiabiliser les équations de Sellmeier : elle fait l'objet de la section suivante.

4.6 DÉTERMINATION DE LA DISPERSION DES INDICES DE RÉFRACTION À PARTIR DES MESURES DES DIRECTIONS D'ACCORD DE PHASE

Nos mesures ont également permis d'affiner les équations de dispersion des trois indices de réfraction principaux de BGSe. Pour cela, l'interpolation simultanée des six courbes expérimentales des figures 4.9 à 4.14 a été effectuée en utilisant les équations analytiques et solutions numériques des angles d'accord de phase du tableau 4.6.

Après avoir testé différentes formes d'équations de Sellmeier, la meilleure s'est avérée être l'équation (4.1) [86]. Les coefficients du tableau 4.1 ont donc été utilisés comme paramètres initiaux à l'interpolation. Nos mesures ayant été principalement réalisées au-dessus de $2 \mu\text{m}$, nous avons choisi de garder fixe la valeur de C_i du tableau 4.1. Les nouveaux coefficients de Sellmeier correspondant à la meilleure interpolation de nos résultats expérimentaux sont donnés dans le tableau 4.7.

n_i	A_i	B_i	C_i (réf. [86])	D_i	E_i
n_x	7,405114	0,225316	0,051215	1782,091	1170,528
n_y	7,388458	0,224481	0,052725	1778,441	1238,145
n_z	7,622884	0,238018	0,069734	1885,307	1303,370

TABLE 4.7 – Nouveaux coefficients de Sellmeier des indices de réfraction principaux n_x , n_y et n_z de BGSe obtenus à partir de l'interpolation de nos points expérimentaux en utilisant l'équation (4.1).

Le résultat de notre meilleure interpolation apparaît en rouge dans les figures 4.9 à 4.14 qui montrent un meilleur accord entre les mesures sur sphère et les calculs à partir des nouveaux paramètres de Sellmeier du tableau 4.7.

Les domaines de longueur d'onde sollicités pour les trois indices de réfraction principaux n_x , n_y et n_z lors des mesures des courbes d'accord de phase de SHG et DFG dans les plans $x - z$ et $y - z$ de BGSe sont montrés dans la figure 4.15. Ils correspondent donc aux domaines de validité des nouvelles équations de dispersion, à savoir entre 1

et 11 μm . La figure 4.15 montre aussi les domaines de longueur d'onde des indices de réfraction principaux sollicités lors des mesures sur prisme des réf. [86, 90].

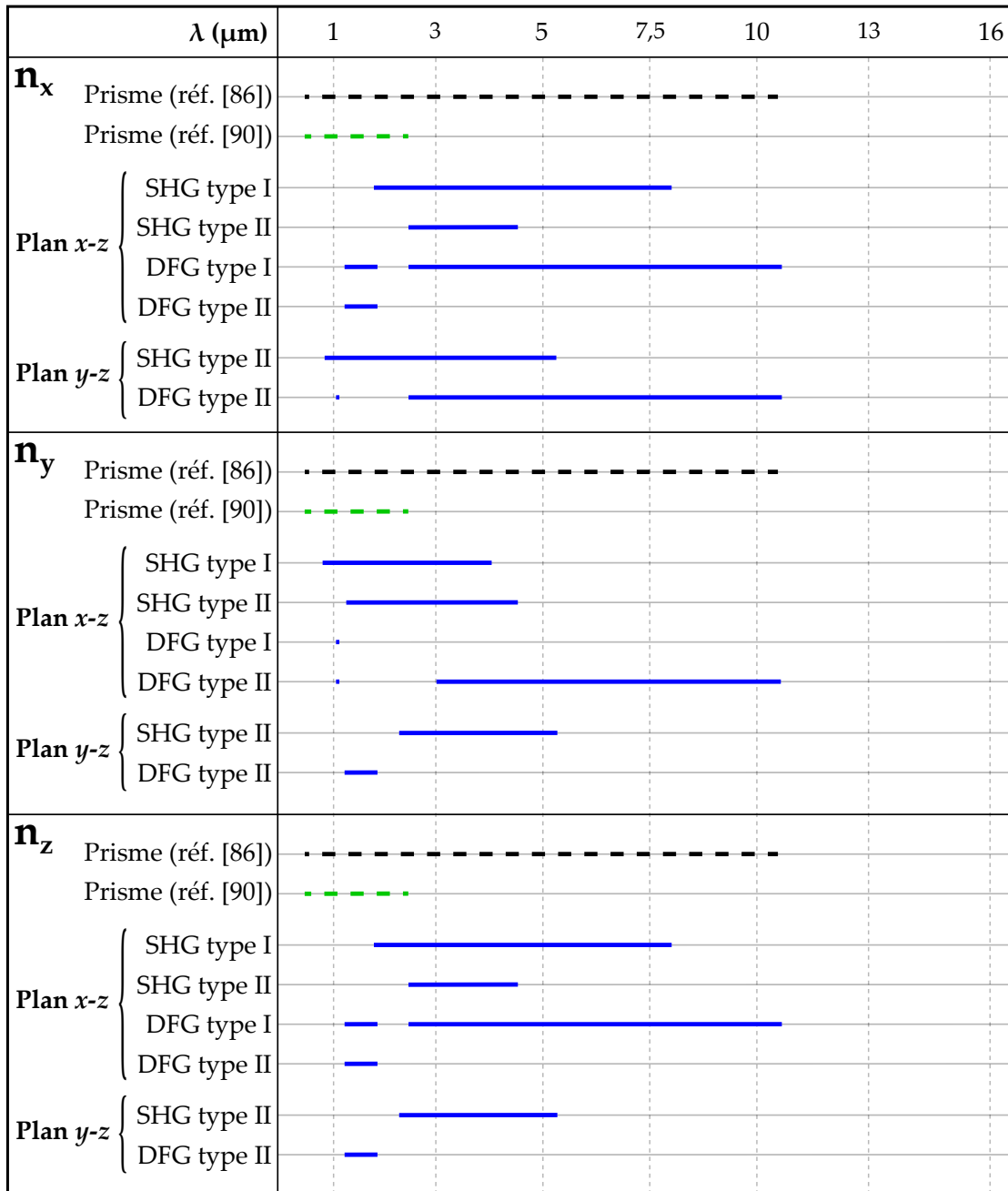


FIGURE 4.15 – Gammas de longueur d'onde sur lesquelles les indices de réfraction principaux n_x , n_y et n_z de BGSe sont sollicités lors des mesures des SHG et DFG de types I et II sur sphère (en traits pleins bleus), en comparaison aux mesures sur prismes [86, 90] (en traits pointillés noirs et verts).

4.7 GÉNÉRATION D'UN SUPERCONTINUUM DANS BGSE

Nous utiliserons dans cette partie la convention propre aux dispositifs paramétriques, c'est-à-dire $\lambda_3 = \lambda_p$ (pour la pompe), $\lambda_2 = \lambda_s$ (pour le signal) et $\lambda_1 = \lambda_i$ (pour

l'idler), avec $\lambda_p < \lambda_s \leq \lambda_i$. A partir des équations de Sellmeier de BGSe que nous avons affinées, nous avons calculé les directions d'accord de phase d'OPG de type I (λ_i^e , λ_s^e , λ_p^o) pour la génération d'un supercontinuum, comme dans la partie 3.8. D'après le tableau 4.5, ce processus est associé à un coefficient effectif non nul dans le plan $x - z$ uniquement. En suivant le protocole décrit dans les réfs. [82, 83] et dans la partie 3.8, nous avons déterminé la longueur d'onde λ_p^* pour laquelle un supercontinuum peut être généré dans ce plan.

Nous avons trouvé $\lambda_p^* = 2,37 \mu\text{m}$, ce qui a l'avantage de correspondre à la longueur d'onde émise par le laser $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ [95]. Comme le montre la courbe rouge de la figure 4.16, le supercontinuum est généré dans la direction ($\theta_{PM} = 40,6^\circ$, $\phi_{PM} = 0^\circ$) du plan $x - z$, et son extension est comprise entre 3 et $11 \mu\text{m}$.

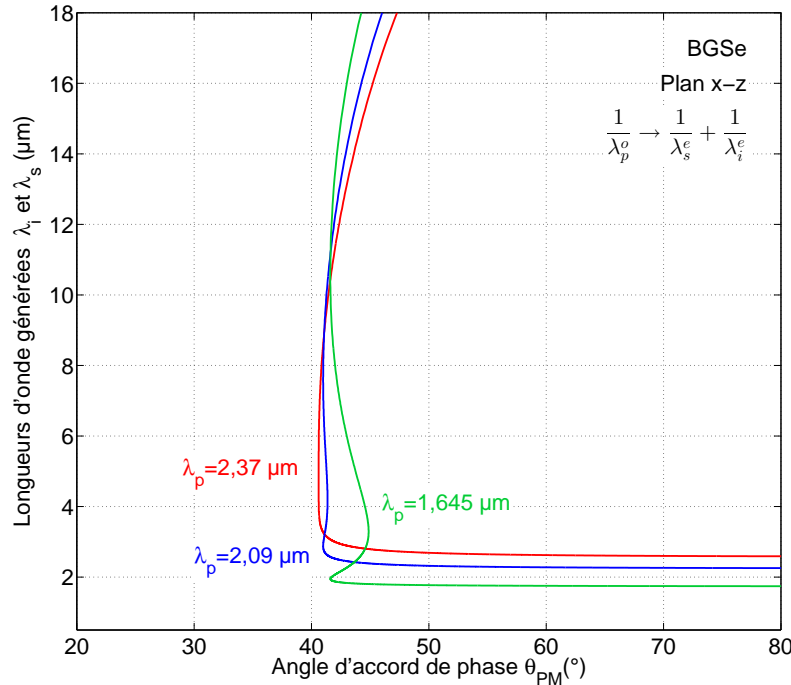


FIGURE 4.16 – Courbes d'accord de phase pour la génération paramétrique de type I calculées à partir des nouvelles équations de dispersion pour les longueurs d'onde de pompe $2,37 \mu\text{m}$, $1,645 \mu\text{m}$ et $2,09 \mu\text{m}$.

La figure 4.16 montre également le domaine spectral généré si le cristal de BGSe est pompé par un laser $\text{Er}^{3+}:\text{YAG}$ à $\lambda_p = 1,645 \mu\text{m}$ (courbe verte) ou par un laser $\text{Ho}^{3+}:\text{YAG}$ à $\lambda_p = 2,09 \mu\text{m}$ (courbe bleue). L'angle d'accord de phase θ_{PM} est alors égal à 43° et 41° respectivement, à quelques degrés près.

4.8 TENSEUR DE SUSCEPTIBILITÉ ÉLECTRIQUE DU SECOND ORDRE $\bar{\bar{d}}^{(2)}$

Rappelons que le tenseur de susceptibilité électrique du second ordre de BGSe possède six coefficients non linéaires non nuls et indépendants (cf. partie 4.1), la matrice correspondante s'écrivant :

$$\bar{\bar{d}}^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{zxx} & d_{zxx} & d_{yxx} & d_{yxx} \\ d_{yxx} & d_{yyy} & d_{yzz} & d_{zyy} & d_{zyy} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ d_{zxx} & d_{zyy} & d_{zzz} & d_{yzz} & d_{yzz} & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (4.5)$$

Afin de parvenir à sa caractérisation complète, il est nécessaire de déterminer les six valeurs absolues $|d_{ijk}|$ et les signes relatifs entre les éléments d_{ijk} . Pour cela, nous avons étudié la SHG dans différentes configurations.

D'après le tableau 4.5, les coefficients effectifs non nuls associés aux processus de SHG dans les plans principaux font intervenir, à chaque fois, deux coefficients non linéaires. Dans un premier temps, nous proposons d'isoler les coefficients non linéaires d_{yzz} , d_{zyy} et d_{zxx} qui peuvent contribuer seuls dans le coefficient effectif. C'est le cas pour les configurations de SHG de types I et II en accord de phase non critique angulaire selon les axes principaux diélectriques x ou y . D'autre part, la SHG en hors accord de phase permet de solliciter les coefficients d_{yyy} puis d_{zzz} en contrôlant la polarisation du faisceau incident, et en analysant le faisceau généré de sorte que les deux faisceaux aient tout deux la même polarisation selon y , puis selon z . Dans un second temps, l'étude de la SHG en accord de phase dans les plans principaux de BGSe permet de solliciter en même temps deux coefficients non linéaires (voir tableau 4.5) ce qui rend possible la détermination de leur signe relatif. Enfin, pour réaliser la caractérisation complète du tenseur $\bar{\bar{d}}^{(2)}$ de BGSe, il faudra étudier la SHG en accord de phase hors des plans principaux qui sollicite simultanément les six coefficients non linéaires, ce qui permettra d'obtenir tous les signes relatifs.

L'étude théorique de ces quatre étapes est présentée dans cette partie, ainsi que les résultats expérimentaux de la mesure qui concerne la SHG en accord de phase non critique angulaire sur lame. Afin d'avoir une vision claire de la méthodologie, nous avons utilisé une représentation basée sur un hexagone, comme indiqué dans la figure 4.17. Chaque sommet correspond à la valeur absolue d'un des six coefficients non linéaires de BGSe, et chaque trait reliant deux sommets représente le signe relatif entre les deux coefficients correspondants. Initialement, l'hexagone est représenté en gris mais lorsqu'une valeur absolue ou un signe relatif a été déterminé, le sommet ou le trait correspondant apparaît en couleur puis restera surligné en noir dans les étapes suivantes.

4.8.1 SHG en accord de phase non critique angulaire sur lame

4.8.1.1 Principe de la mesure

Cette première étape consiste à mesurer en accord de phase non critique angulaire le paramètre $\zeta = \mathcal{E}(\lambda_\omega/2, L)/\mathcal{E}^2(\lambda_\omega, 0)$ dans une lame taillée dans une direction prin-

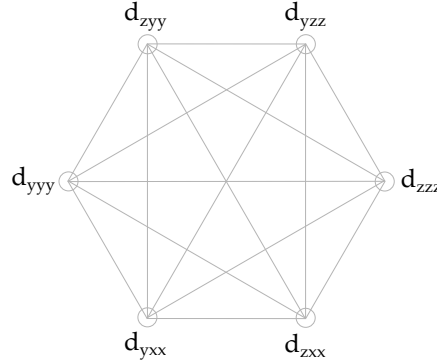


FIGURE 4.17 – Représentation du tenseur de susceptibilité électrique du second ordre : chaque sommet correspond à la valeur absolue d'un des six coefficients non linéaires de BGSe et chaque trait reliant deux sommets représente le signe relatif entre les deux coefficients correspondants.

cipale x ou y afin d'en déterminer la valeur absolue du coefficient non linéaire sollicité. Les SHG de types I et II selon l'axe x et la SHG de type II selon l'axe y permettent chacune de solliciter un coefficient non linéaire spécifique [96]. En effet, ces trois interactions sont associées aux coefficients effectifs suivants :

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{A) SHG de type I selon } x \ (\theta_{PM} = 90^\circ, \phi_{PM} = 0^\circ) \quad : \ d_{\text{eff}} = d_{yzz} \\ \text{B) SHG de type II selon } x \ (\theta_{PM} = 90^\circ, \phi_{PM} = 0^\circ) \quad : \ d_{\text{eff}} = d_{zyy} \\ \text{C) SHG de type II selon } y \ (\theta_{PM} = 90^\circ, \phi_{PM} = 90^\circ) \quad : \ d_{\text{eff}} = d_{zxx} \end{array} \right. \quad (4.6)$$

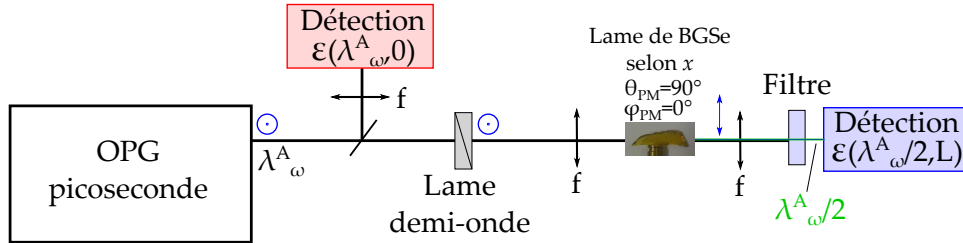
Il est à noter que l'angle de double réfraction est nul dans ces directions, de sorte que $\theta'_{PM} = \theta_{PM} = 90^\circ$ (voir tableau 4.5) et que la fonction d'atténuation G associée vaut strictement 1.

Pour les trois interactions A, B et C, nous avons réalisé une mesure relative des valeurs absolues $|d_{yzz}|$, $|d_{zyy}|$ et $|d_{zxx}|$ par rapport à d_{yzy}^{KTP} du cristal de KTP, sollicité en accord de phase par la SHG de type II dans le plan $x - z$ [6]. Cela a été possible en utilisant une lame de BGSe de $550 \mu\text{m}$ d'épaisseur taillée selon x et une autre lame de BGSe de $360 \mu\text{m}$ d'épaisseur taillée selon y , ainsi que trois lames de KTP taillées dans des directions spécifiques ($\theta_{PM}^{\text{KTP}}, \phi = 0^\circ$) [96]. Toutes ces lames ont été étudiées dans les mêmes conditions expérimentales, de sorte que les conditions spatio-temporelles du faisceau incident soient identiques. L'orientation θ_{PM}^{KTP} de chaque lame de KTP a été choisie en fonction des longueurs d'onde fondamentales de SHG mesurées dans les lames de BGSe, afin de s'affranchir de la transmission des différents éléments optiques du dispositif expérimental. Dans cette perspective, pour chaque interaction A, B et C, nous avons d'abord déterminé les longueurs d'onde fondamentales pour lesquelles le rapport ζ était maximal.

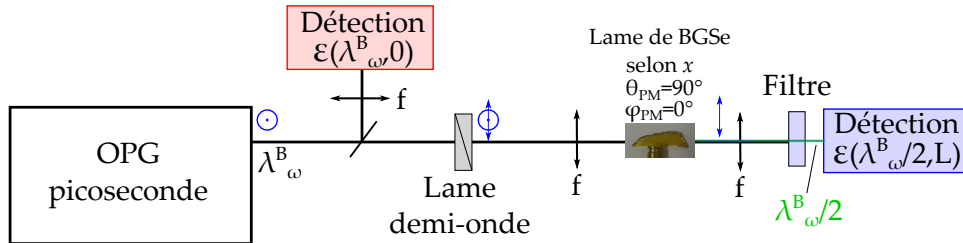
4.8.1.2 Mesure des longueurs d'onde fondamentales dans les lames de BGSe

Les mesures des SHG de types I et II dans la lame taillée selon x et de SHG de type II dans celle taillée selon y ont été réalisées avec notre source paramétrique en régime picoseconde (voir partie 2.2.2). Le dispositif expérimental et les états de polarisation adaptés aux trois interactions A, B et C sont représentés par la figure 4.18.

A) SHG type I selon x



B) SHG type II selon x



C) SHG type II selon y

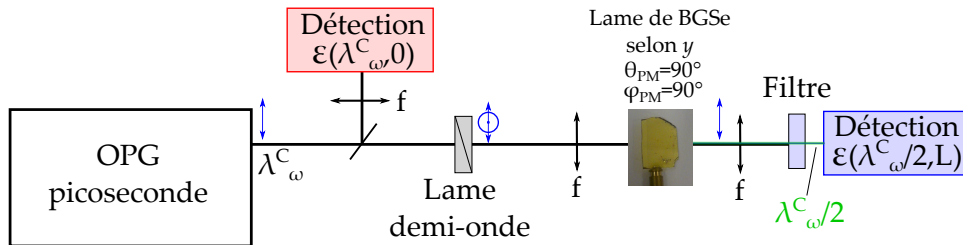


FIGURE 4.18 – Dispositif expérimental des trois configurations pour la mesure relative de la valeur absolue des coefficients non linéaires d_{yzz} , d_{zyy} et d_{zxx} de BGSe par rapport à d_{yzy}^{KTP} de KTP avec la source paramétrique en régime picoseconde.

La lame demi-onde achromatique a permis de contrôler la polarisation du faisceau incident, et la lame semi-réfléchissante traitée (UVFS 50/50 900-2600 nm) a été utilisée pour la mesure simultanée de l'énergie $\mathcal{E}(\lambda_{\omega}^i, 0)$ incidente et de l'énergie $\mathcal{E}(\lambda_{\omega}^i/2, L)$ générée par SHG où $i = A, B$ ou C . Un filtre placé devant le détecteur a permis de mesurer exclusivement l'énergie générée par SHG.

Pour chaque interaction de SHG, nous avons mesuré la variation du rapport ζ en fonction de la longueur d'onde fondamentale afin de déterminer, avec une précision de ± 5 nm, les longueurs d'onde d'accord de phase λ_{ω}^A , λ_{ω}^B et λ_{ω}^C qui correspondent au maximum de la valeur de ζ . Nous avons ensuite fixé la longueur d'onde de la source

paramétrique à celle d'accord de phase (λ_{ω}^A , λ_{ω}^B ou λ_{ω}^C) et mesuré le paramètre ζ en faisant varier l'angle externe correspondant à l'angle interne θ autour de la direction x ou y . Les résultats expérimentaux sont présentés dans les figures 4.19 à 4.24. Ils sont comparés aux calculs basés sur les équations de dispersion affinées par la méthode de la sphère (l'équation (4.1) et les coefficients du tableau 4.7).

Notons que les figures 4.19 à 4.22 montrent un très bon accord entre la mesure et le calcul du paramètre ζ en fonction de la longueur d'onde λ_{ω} ou de l'angle θ . Par contre, un désaccord important apparaît sur les figures 4.23 et 4.24, que nous pouvons expliquer par le fait que la lame de BGSe taillée selon y ne provient pas du même lot que celui de la sphère de BGSe (voir partie 4.2). Un écart de composition chimique des deux lots peut en effet être responsable de ce désaccord. Dans tous les cas, l'observation de la variation en sinc^2 des courbes montre qu'il s'agit bien d'un accord de phase. Toutes ces mesures ont donc permis de déterminer les longueurs d'onde d'accord de phase non critique angulaire λ_{ω}^A , λ_{ω}^B et λ_{ω}^C mais également les acceptances spectrale $L\delta\lambda_{\omega}$ et angulaire $L\delta\theta$ associées qui correspondent à la largeur à 0,405 du maximum des courbes. Le tableau 4.8 résume l'épaisseur des échantillons de BGSe, les longueurs d'onde λ_{ω}^A , λ_{ω}^B et λ_{ω}^C et les acceptances spectrale et angulaire mesurées dans les lames de BGSe.

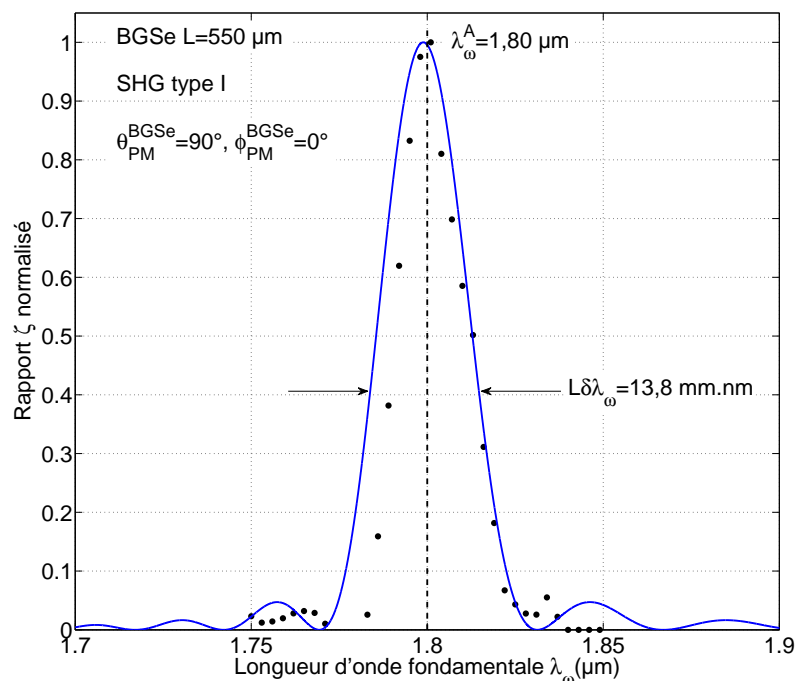


FIGURE 4.19 – Tracé du rapport ζ de SHG de type I normalisé par son maximum dans la lame de BGSe taillée selon x autour de la longueur d'onde fondamentale $\lambda_{\omega}^A = 1,8 \mu\text{m}$. Les points correspondent aux mesures et le trait plein au calcul à partir des équations de Sellmeier affinées (cf. partie 4.6).

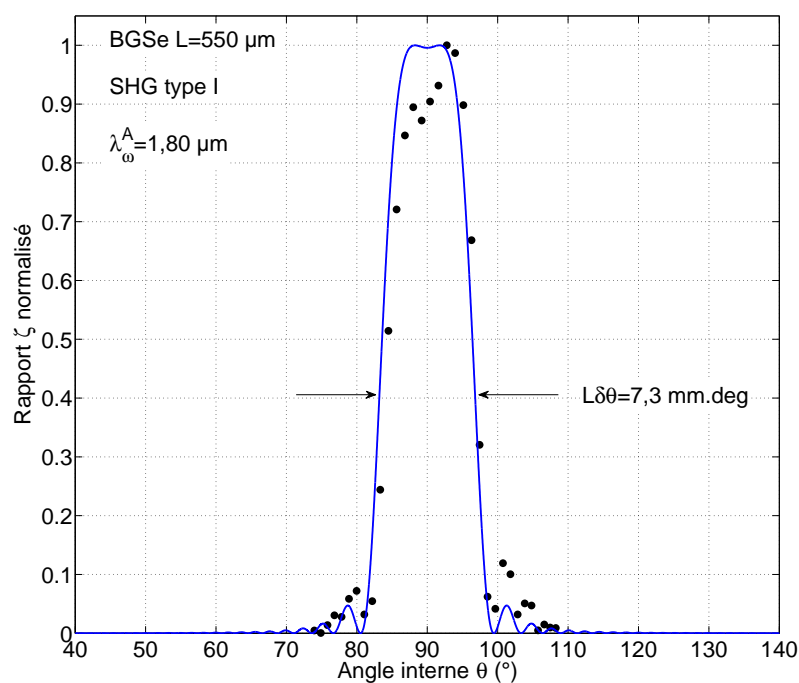


FIGURE 4.20 – Tracé du rapport ζ de SHG de type I normalisé par son maximum en fonction de l'angle interne θ autour de la direction x , à la longueur d'onde fondamentale $\lambda_{\omega}^A = 1,8 \mu\text{m}$. Les points correspondent aux mesures et le trait plein au calcul à partir des équations de Sellmeier affinées.

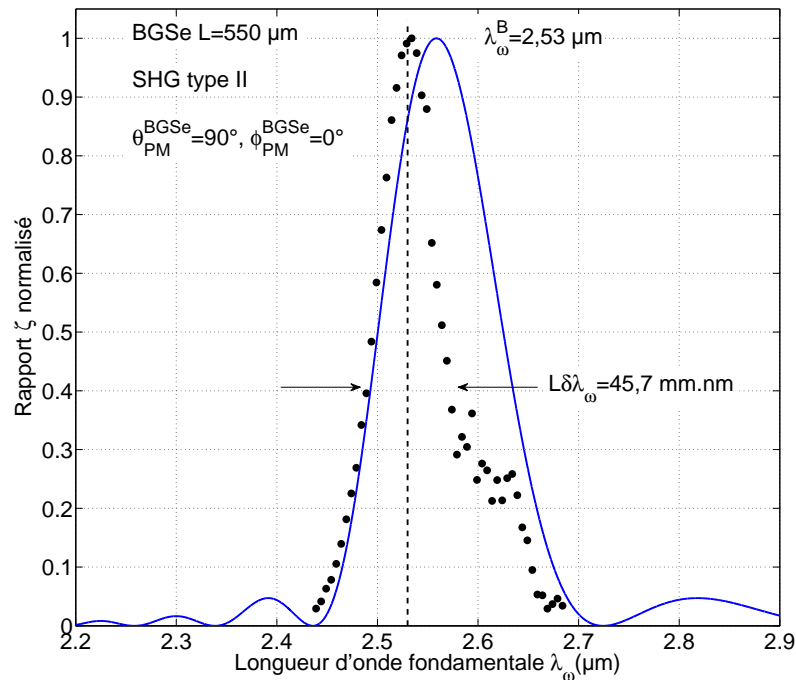


FIGURE 4.21 – Tracé du rapport ζ de SHG de type II normalisé par son maximum dans la lame de BGSe taillée selon x autour de la longueur d'onde fondamentale $\lambda_{\omega}^B = 2,53 \mu\text{m}$. Les points correspondent aux mesures et le trait plein au calcul à partir des équations de Sellmeier affinées (cf. partie 4.6).

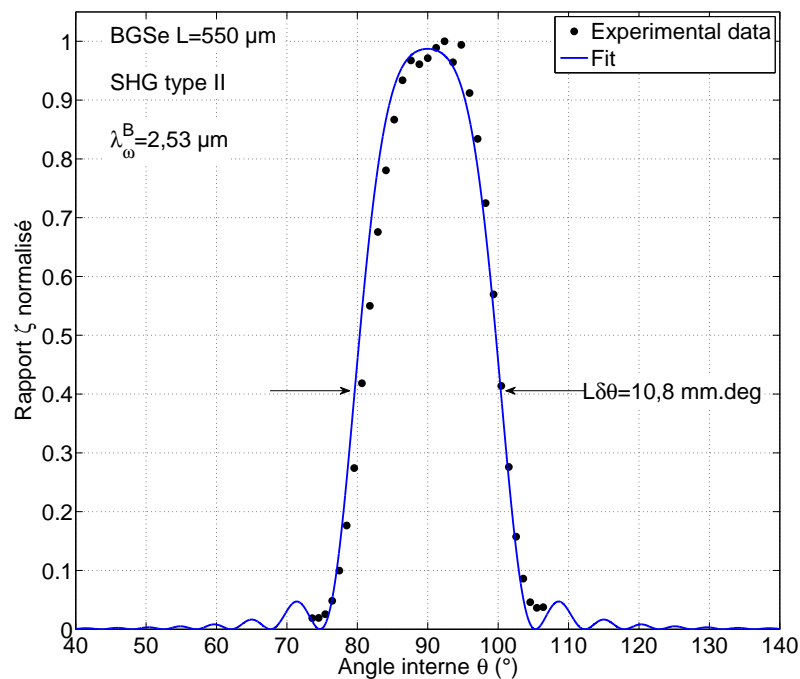


FIGURE 4.22 – Tracé du rapport ζ de SHG de type II normalisé par son maximum en fonction de l'angle interne θ autour de la direction x , à la longueur d'onde fondamentale $\lambda_{\omega}^B = 2,53 \mu\text{m}$. Les points correspondent aux mesures et le trait plein au calcul à partir des équations de Sellmeier affinées.

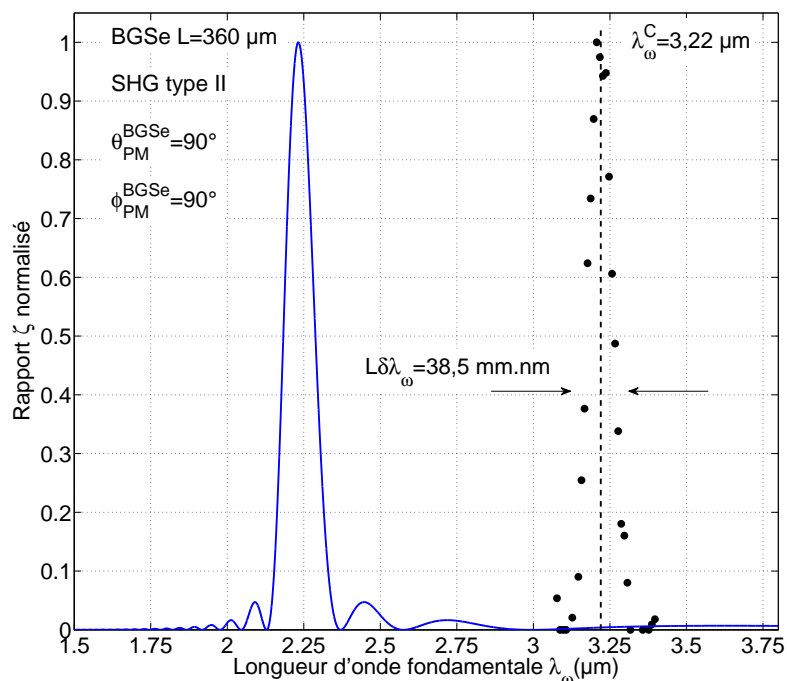


FIGURE 4.23 – Tracé du rapport ζ de SHG de type II normalisé par son maximum dans la lame de BGSe taillée selon y autour de la longueur d'onde fondamentale $\lambda_{\omega}^C = 3,22 \mu\text{m}$. Les points correspondent aux mesures et le trait plein au calcul à partir des équations de Sellmeier affinées (cf. partie 4.6).

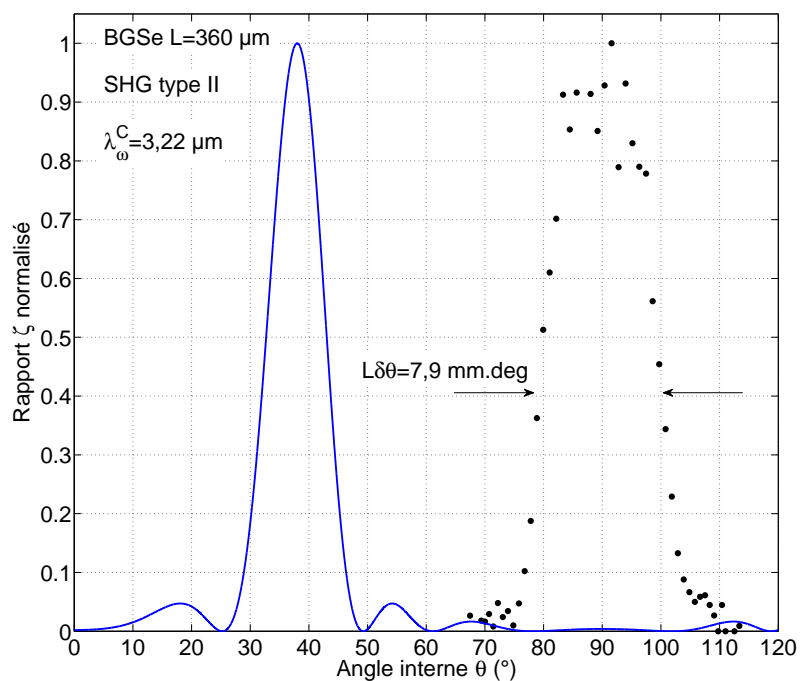


FIGURE 4.24 – Tracé du rapport ζ de SHG de type II normalisé par son maximum en fonction de l'angle interne θ autour de la direction y , à la longueur d'onde fondamentale $\lambda_{\omega}^C = 3,22 \mu\text{m}$. Les points correspondent aux mesures et le trait plein au calcul à partir des équations de Sellmeier affinées.

La courbe d'accord de phase de SHG de type II calculée dans le plan $x - z$ de KTP, montrée dans la figure 4.25, indique trois points A, B et C qui correspondent aux longueurs d'onde fondamentales λ_{ω}^A , λ_{ω}^B et λ_{ω}^C de BGSé déterminées à partir des figures 4.19, 4.21 et 4.23. Les angles d'accord de phase θ_{PM} associés correspondent aux directions dans lesquelles les lames de KTP doivent être taillées.

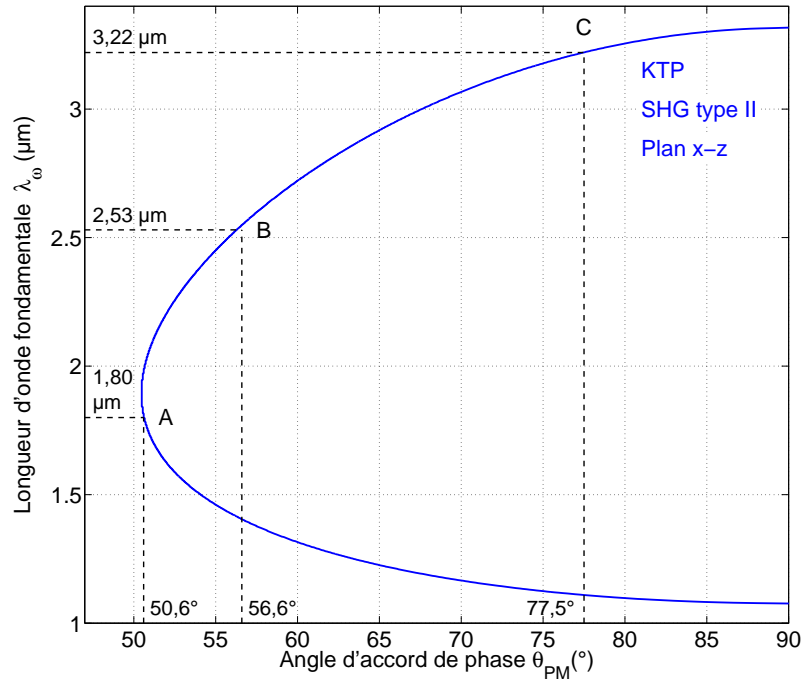


FIGURE 4.25 – Courbe d'accord de phase de SHG de type II dans le plan $x - z$ de KTP.

Le tableau 4.8 indique également l'orientation déterminée à partir de la figure 4.25 et l'épaisseur de chaque lame de KTP. Ces trois lames ont été préparées par la société Cristal Laser dans le cadre d'une collaboration.

	SHG de type I	SHG de type II	SHG de type II
	selon x	selon x	selon y
$L_{BGSé} (\mu\text{m})$	550	550	360
$\lambda_{\omega}^{i=A,B,C} (\mu\text{m})$	1,80	2,53	3,22
$L\delta\lambda_{\omega} (\text{mm.nm})$	13,8	45,7	38,5
$L\delta\theta (\text{mm.deg})$	7,3	10,8	7,9
$\theta_{PM}^{KTP} (^\circ)$	50,6	56,6	77,5
$\phi_{PM}^{KTP} (^\circ)$	0	0	0
$L_{KTP} (\mu\text{m})$	500	500	460

TABLE 4.8 – Paramètres mesurés par SHG de types I et II en accord de phase non critique dans les deux lames de BGSé. Les directions θ_{PM}^{KTP} ont été déterminées à partir de la longueur d'onde λ_{ω}^A , λ_{ω}^B et λ_{ω}^C .

Il s'agit maintenant de mesurer dans les mêmes conditions la valeur maximale du

rapport ζ dans chaque échantillon de BGSe et de KTP pour chacune des trois interactions A, B et C, afin de déterminer $|d_{yzz}|$, $|d_{zyy}|$ et $|d_{zxx}|$ par rapport à d_{yzy} de KTP.

4.8.1.3 Mesure de la valeur maximale du rapport ζ dans BGSe et KTP

L'énergie incidente à la longueur d'onde λ_ω^i et l'énergie générée à la longueur d'onde $\lambda_\omega^i/2$ (avec $i=A, B$ ou C) ont été mesurées dans les deux lames de BGSe ainsi que dans les trois lames de KTP en utilisant les dispositifs expérimentaux de la figure 4.18. Cette mesure a permis de déterminer les valeurs maximales de ζ^{BGSe} et ζ^{KTP} dans les mêmes conditions pour chaque interaction A, B et C.

4.8.1.4 Détermination de l'amplitude des coefficients non linéaires

Pour chaque interaction A, B et C de la figure 4.18, et en suivant le même raisonnement que dans la partie 3.7.3, l'expression du rapport de la valeur maximale de ζ^{BGSe} sur ζ^{KTP} permet d'écrire :

$$\left(d_{\text{eff}}^{\text{BGSe}}\right)^2 = d_{ijk}^2 = \left(d_{\text{eff}}^{\text{KTP}}\right)^2 \frac{\mathcal{A}^{\text{KTP}} \zeta^{\text{BGSe}} L_{\text{KTP}}^2 G^{\text{KTP}}}{\mathcal{A}_{I,II}^{\text{BGSe}} \zeta^{\text{KTP}} L_{\text{BGSe}}^2 G^{\text{BGSe}}} \quad (4.7)$$

avec $G^{\text{BGSe}} = 1$ car nous avons choisi de travailler selon des axes principaux de la surface des indices, et G^{KTP} calculé à partir de l'équation (1.48). Les paramètres $\mathcal{A}_{I,II}^{\text{BGSe}}$ et \mathcal{A}^{KTP} sont définis par (voir équation (1.27)) :

- pour la SHG de type I selon x dans BGSe,

$$\mathcal{A}_I^{\text{BGSe}} = \frac{T_y^{\text{BGSe}}(\frac{\lambda_\omega^A}{2}) [T_z^{\text{BGSe}}(\lambda_\omega^A)]^2}{n_y^{\text{BGSe}}(\frac{\lambda_\omega^A}{2}) [n_z^{\text{BGSe}}(\lambda_\omega^A)]^2} \quad (4.8)$$

- pour la SHG de type II selon x ou y dans BGSe,

$$\mathcal{A}_{II}^{\text{BGSe}} = \frac{T_p^{\text{BGSe}}(\frac{\lambda_\omega^i}{2}) T_p^{\text{BGSe}}(\lambda_\omega^i) T_z^{\text{BGSe}}(\lambda_\omega^i)}{n_p^{\text{BGSe}}(\frac{\lambda_\omega^i}{2}) n_p^{\text{BGSe}}(\lambda_\omega^i) n_z^{\text{BGSe}}(\lambda_\omega^i)} \quad (4.9)$$

avec $p = y$ et $i = B$ selon x , ou $p = x$ et $i = C$ selon y .

- et pour la SHG de type II dans KTP avec $i=A, B$ ou C :

$$\mathcal{A}^{\text{KTP}} = \frac{T_y^{\text{KTP}}(\frac{\lambda_\omega^i}{2}) T_y^{\text{KTP}}(\lambda_\omega^i) T^{+, \text{KTP}}(\lambda_\omega^i, \theta_{PM}^{\text{KTP}})}{n_y^{\text{KTP}}(\frac{\lambda_\omega^i}{2}) n_y^{\text{KTP}}(\lambda_\omega^i) n^{+, \text{KTP}}(\lambda_\omega^i, \theta_{PM}^{\text{KTP}})} \quad (4.10)$$

Quant à lui, le coefficient effectif associé à la SHG de type II dans KTP s'écrit :

$$d_{\text{eff}}^{\text{KTP}}(\lambda_\omega^i/2) = d_{yzy}^{\text{KTP}}(\lambda_\omega^i/2) \sin[\theta_{PM}^{\text{KTP}} - \rho(\lambda_\omega^i)] \quad (4.11)$$

où $d_{yzy}^{\text{KTP}}(0,66 \mu\text{m}) = 2,37 \pm 0,17 \text{ pm/V}$ [6], et $\rho(\lambda_\omega^i)$, l'angle de double réfraction

relatif à l'onde fondamentale. Etant donné que le coefficient non linéaire de KTP a été déterminé à $0,66 \mu\text{m}$, nous avons appliqué la relation de Miller définie par l'équation (1.20) pour calculer d_{yzy} de KTP aux longueurs d'onde $\lambda_\omega^i/2$ ($i=A, B$ ou C) générées par SHG. Son expression s'écrit :

$$d_{yzy}^{\text{KTP}} \left(\frac{\lambda_\omega^i}{2} \right) = d_{yzy}^{\text{KTP}}(0,66 \mu\text{m}) \frac{(n_y^2(\lambda_\omega^i/2) - 1)(n_z^2(\lambda_\omega^i) - 1)(n_y^2(\lambda_\omega^i) - 1)}{(n_y^2(0,66 \mu\text{m}) - 1)(n_z^2(1,32 \mu\text{m}) - 1)(n_y^2(1,32 \mu\text{m}) - 1)} \quad (4.12)$$

où $i = A, B$ ou C . L'équation (4.12) permet donc de calculer le coefficient non linéaire d_{yzy} de KTP aux longueurs d'onde λ_ω^A , λ_ω^B et λ_ω^C à partir de ses indices de réfraction principaux n_y et n_z . L'équation (4.11) donne le coefficient effectif associé à chaque interaction dans KTP qui prend donc aussi une valeur différente à λ_ω^A , λ_ω^B et λ_ω^C .

Le tableau 4.9 résume toutes les valeurs du coefficient effectif de KTP et tous les paramètres permettant de déterminer les valeurs absolues $|d_{yzz}(\lambda_\omega^A/2)|$, $|d_{zyy}(\lambda_\omega^B/2)|$ et $|d_{zxx}(\lambda_\omega^C/2)|$ à partir de la mesure des rapports des valeurs maximales $\zeta^{\text{BGSe}}/\zeta^{\text{KTP}}$ à $\lambda_\omega^i/2$ ($i = A, B$ ou C).

	SHG de type I	SHG de type II	SHG de type II
	selon x	selon x	selon y
	$\lambda_\omega^A = 1,80 \mu\text{m}$	$\lambda_\omega^B = 2,53 \mu\text{m}$	$\lambda_\omega^C = 3,22 \mu\text{m}$
$\rho^{\text{KTP}}(\lambda_\omega)$ (°)	2,6643	2,3778	1,0199
$G^{\text{KTP}}/G^{\text{BGSe}}$	0,9764	0,9812	0,9969
$L_{\text{KTP}}^2/L_{\text{BGSe}}^2$	0,8264	0,8264	1,6327
$\mathcal{A}^{\text{KTP}}/\mathcal{A}^{\text{BGSe}}$	4,2019	4,0845	4,0374
$\zeta^{\text{BGSe}}/\zeta^{\text{KTP}}$	12,465	1,1645	0,0807
$(d_{\text{eff}}^{\text{KTP}}(\lambda_\omega/2))^2$ (pm^2/V^2)	2,9107	3,0151	3,5670
$ d_{ij}(\lambda_\omega/2) $ (pm/V)	$ d_{yzz}(0,9 \mu\text{m}) $ $= 11,3 \pm 0,8$	$ d_{zyy}(1,265 \mu\text{m}) $ $= 3,7 \pm 0,4$	$ d_{zxx}(1,61 \mu\text{m}) $ $= 1,4 \pm 0,3$

TABLE 4.9 – Données pour la détermination de la valeur absolue des coefficients non linéaires d_{yzz} , d_{zyy} et d_{zxx} de BGSe.

En appliquant, comme dans l'équation (4.12), la relation de Miller aux coefficients d_{yzz} , d_{zyy} et d_{zxx} de BGSe, il a été possible de les comparer aux valeurs déterminées par la mesure des franges de Maker [92] à la longueur d'onde $0,532 \mu\text{m}$ (voir partie 4.1). L'écart entre notre valeur de $|d_{yzz}|$ et celle de la réf. [92] est probablement dû au fait que le spectre des franges de Maker est souvent difficile à exploiter du fait du caractère

non colinéaire de l'interaction en incidence oblique.

@ 0,532 μm	$ d_{yzz} $ (pm/V)	$ d_{zyy} $ (pm/V)	$ d_{zxx} $ (pm/V)
Notre travail	$14,2 \pm 0,8$	$5,0 \pm 0,4$	$2,0 \pm 0,3$
Référence [92]	$20,4 \pm 1,1$	"faible"	-

TABLE 4.10 – Comparaison entre les valeurs absolues obtenues avec la méthode de la SHG en accord de phase non critique angulaire et celles à partir des franges de Maker [92] à la longueur d'onde 0,532 μm .

La mesure relative de la SHG en accord de phase non critique angulaire réalisée sur deux lames de BGSe par rapport à KTP a donc permis de déterminer $|d_{yzz}|$, $|d_{zyy}|$ et $|d_{zxx}|$. Ainsi, trois sommets de la figure 4.26 qui représente l'hexagone correspondant au tenseur $\bar{d}^{(2)}$ de BGSe ont été coloriés. Ils resteront surlignés en noir dans les paragraphes suivants.

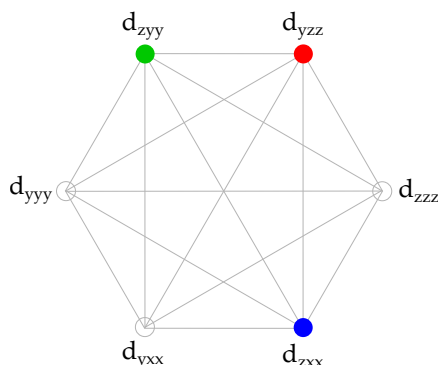


FIGURE 4.26 – Représentation du tenseur de susceptibilité électrique du second ordre : les trois sommets correspondant à $|d_{yzz}|$, $|d_{zyy}|$ et $|d_{zxx}|$ sont coloriés car ils ont été déterminés par la mesure de SHG en accord de phase non critique angulaire sur deux lames de BGSe.

4.8.2 SHG en hors accord de phase non critique angulaire sur lame

4.8.2.1 Principe de la mesure

Etant donné que les coefficients d_{yyy} et d_{zzz} ne peuvent pas être sollicités par accord de phase par biréfringence, nous proposons de les mesurer par le biais de la SHG en hors accord de phase. Comme pour la partie 4.8.1, cette méthode passe aussi par la mesure du rapport ζ dans une lame de BGSe. Si cette lame est taillée dans la direction x et si la polarisation des faisceaux incident et généré est parallèle à l'axe y , alors seul le coefficient d_{yyy} est sollicité. D'autre part, le coefficient d_{zzz} pourra être aussi sollicité dans la même lame quand tous les états de polarisation seront parallèles à l'axe z .

Contrairement à la mesure des franges de Maker décrite dans la partie 2.3.7, nous proposons de mesurer l'énergie générée par SHG en hors accord de phase en fonction de la longueur d'onde fondamentale. Cela permet de rester en incidence normale et

donc de s'affranchir de la non-colinéarité entre les vecteurs d'onde dans la lame. Le dispositif expérimental pourrait être mis en place à partir de ceux de la figure 4.18. Pour chaque configuration de polarisation (parallèle à y , puis parallèle à z), l'interprétation de la mesure est aussi plus aisée si une mesure relative des valeurs absolues $|d_{yyy}|$ et $|d_{zzz}|$ est réalisée, par exemple, par rapport à d_{zzz}^{KTP} du cristal de KTP. La mesure relative permet de s'affranchir des paramètres spatiaux du faisceau incident, comme nous l'avons vu dans la partie 4.8.1. Elle n'a pas pu être réalisée par manque de temps mais nous avons calculé l'évolution du paramètre ζ en fonction de la longueur d'onde dans la direction x pour les deux configurations de polarisation de SHG que nous venons de décrire.

4.8.2.2 Calcul des franges en longueur d'onde dans BGSe

A partir de l'équation (1.26) et en utilisant le fait que $\text{sinc}(u) = \sin(u)/u$, le rapport ζ s'écrit :

$$\zeta = \frac{\mathcal{E}(\lambda_\omega/2, L)}{\mathcal{E}^2(\lambda_\omega, 0)} \propto \frac{4d_{\text{eff}}^2(\lambda_\omega/2)}{\Delta k^2} \sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \quad (4.13)$$

avec, pour chaque configuration de polarisation :

$$\begin{cases} d_{\text{eff}}(\lambda_\omega/2) = d_{yyy}(\lambda_\omega/2) \text{ et } \Delta k = \frac{4\pi}{\lambda_\omega} (n_y(\lambda_\omega/2) - n_y(\lambda_\omega)) \\ d_{\text{eff}}(\lambda_\omega/2) = d_{zzz}(\lambda_\omega/2) \text{ et } \Delta k = \frac{4\pi}{\lambda_\omega} (n_z(\lambda_\omega/2) - n_z(\lambda_\omega)) \end{cases} \quad (4.14)$$

A partir des indices de réfraction affinés par la méthode de la sphère (cf. partie 4.6), il est possible de tracer l'expression (4.13) en fonction de la longueur d'onde λ_ω . Pour le calcul, nous avons utilisé les valeurs des coefficients d_{yyy} et d_{zzz} de la réf. [88] données dans le tableau 4.3, auxquelles nous avons appliqué la relation de Miller (telle que l'équation (4.12)) pour modéliser leur évolution en fonction de la longueur d'onde. La figure 4.27 représente les franges en longueur d'onde associées au coefficient d_{yyy} entre 1 et 4 μm lors de la propagation dans une lame de $L = 550 \mu\text{m}$ d'épaisseur taillée dans la direction x . Un grand nombre d'oscillations peut donc être observé, et il sera suffisant de limiter la mesure entre 2 et 2,35 μm par exemple, comme le montre l'encart de la figure 4.27. Cette gamme spectrale correspond à une partie accessible avec nos sources (l'OPG en régime picoseconde ou l'OPO en régime nanoseconde).

Le même raisonnement pour les franges en longueur d'onde associées au coefficient d_{zzz} est montré figure 4.28. De la même manière, nous avons sélectionné la gamme 2 - 2,35 μm pour effectuer la mesure. Les oscillations, observées dans les figures 4.27 et 4.28, correspondent au terme $\sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)$ de l'équation (4.13), alors que le trait pointillé associé à l'enveloppe est décrit par le terme proportionnel à $4d_{\text{eff}}^2(\lambda_\omega/2)/\Delta k^2$.

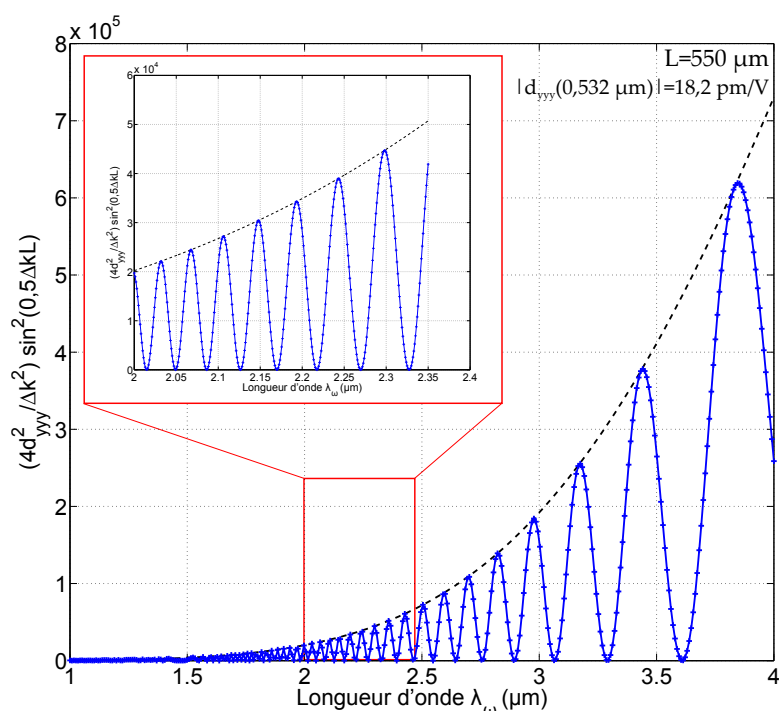


FIGURE 4.27 – Evolution du rapport ζ avec la longueur d'onde fondamentale λ_ω pour la détermination de $|d_{yyy}(\lambda_\omega/2)|$ dans une lame de BGSe de $L = 550 \mu\text{m}$ d'épaisseur, taillée perpendiculairement à la direction x . L'encart de la figure représente les franges que nous proposons de mesurer entre 2 et 2,35 μm .

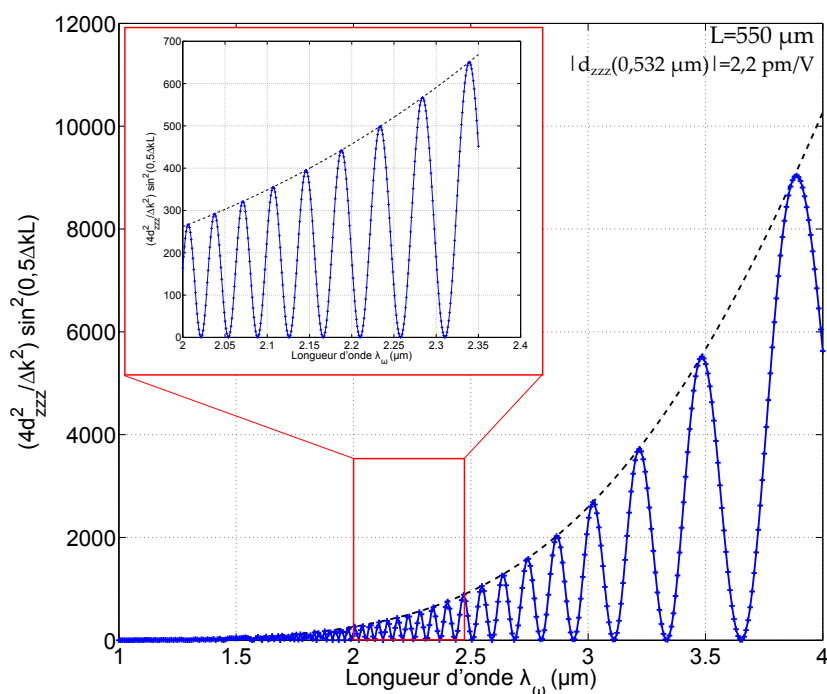


FIGURE 4.28 – Evolution du rapport ζ avec la longueur d'onde fondamentale λ_ω pour la détermination de $|d_{zzz}(\lambda_\omega/2)|$ dans une lame de BGSe de $L = 550 \mu\text{m}$ d'épaisseur, taillée perpendiculairement à la direction x . L'encart de la figure représente les franges que nous proposons de mesurer entre 2 et 2,35 μm .

4.8.2.3 Mesure du rapport ζ dans BGSe et KTP

Le rapport $\zeta(\lambda_\omega)$ peut être déterminé à partir de la mesure de l'énergie incidente et de l'énergie générée par SHG en hors accord de phase. Comme dans les figures 4.27 et 4.28, les franges sont enregistrées en fonction de la longueur d'onde aussi bien dans KTP que pour chaque configuration de polarisation dans BGSe.

4.8.2.4 Détermination de l'amplitude des coefficients non linéaires

Pour chaque configuration de polarisation, le rapport avec $\Delta k \neq 0$ de l'équation (1.26) écrite pour BGSe sur l'équation (1.26) écrite pour KTP permet d'exprimer le coefficient effectif associé au cristal de BGSe. Il s'écrit :

$$\left(d_{\text{eff}}^{\text{BGSe}}\right)^2 = \left(d_{iii}^{\text{BGSe}}\right)^2 = \frac{\zeta^{\text{BGSe}}}{\zeta^{\text{KTP}}} \frac{\mathcal{A}^{\text{KTP}}}{\mathcal{A}^{\text{BGSe}}} \left(\frac{\Delta k^{\text{BGSe}}}{\Delta k^{\text{KTP}}}\right)^2 \frac{\sin^2(0,5\Delta k^{\text{KTP}}L)}{\sin^2(0,5\Delta k^{\text{BGSe}}L)} G^{\text{KTP}} \left(d_{zzz}^{\text{KTP}}\right)^2 \quad (4.15)$$

avec $i = y$ ou z suivant l'une ou l'autre configuration de polarisation. La fonction d'atténuation due au phénomène de double réfraction G^{KTP} est calculée à partir de l'équation (1.48), et le coefficient non linéaire de KTP vaut $d_{zzz}^{\text{KTP}}(0,66 \mu\text{m}) = 10,6$ pm/V [6] auquel il sera nécessaire d'appliquer la relation de Miller. A partir de la mesure de la variation de ζ dans les lames de BGSe et KTP sur la même gamme de longueur d'onde λ_ω et en connaissant la dispersion des indices de réfraction des deux cristaux, il sera possible de déterminer les valeurs absolues $|d_{yyy}|$ et $|d_{zzz}|$ de BGSe.

Par rapport à la partie 4.8.1, cette mesure nécessite de connaître avec précision la dispersion des indices de réfraction de BGSe, ce qui est notre cas d'après la partie 4.6. La figure 4.29 rappelle en noir les sommets qui correspondent aux valeurs absolues préalablement déterminées dans la partie 4.8.1 et en couleur les valeurs absolues $|d_{yyy}|$ et $|d_{zzz}|$ déterminées dans cette partie.

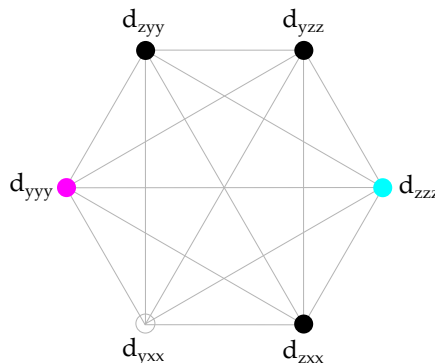


FIGURE 4.29 – Représentation du tenseur de susceptibilité électrique du second ordre de BGSe : les deux sommets correspondant à $|d_{yyy}|$ et $|d_{zzz}|$ sont coloriés car ils ont été déterminés dans cette partie.

Finalement, lorsque cette mesure sera réalisée, cinq valeurs absolues sur les six coefficients non linéaires de BGSe seront déterminées, comme le montre la figure 4.29.

4.8.3 SHG en accord de phase dans les plans principaux sur sphère

4.8.3.1 Principe de la mesure

La SHG en accord de phase dans les plans principaux repose sur la mesure du rapport ζ pour chaque direction d'accord de phase et cela implique d'utiliser la sphère de BGSe. D'après le tableau 4.5, les coefficients effectifs associés sollicitent deux coefficients non linéaires de BGSe et nous allons exploiter les processus de SHG suivants :

- la SHG de type I dans le plan principal $x - z$ (avec $\theta > V_z$),
- la SHG de type II dans le plan principal $y - z$,
- la SHG de type II dans le plan principal $x - y$.

En effet, nous verrons dans cette partie que la mesure du rapport ζ le long des directions d'accord de phase dans ces trois plans va permettre de déterminer le carré du coefficient effectif associé puis la valeur absolue du dernier coefficient non linéaire d_{yxx} ainsi que le signe relatif entre tous les coefficients non linéaires sollicités. Cela ne nécessite pas de comparaison avec un cristal de référence, contrairement aux parties 4.8.1 et 4.8.2. Cette mesure n'a pas pu être réalisée expérimentalement dans le cadre de la thèse faute de temps. Mais les calculs permettant de préparer l'expérience sont présentés à partir de l'évolution du coefficient effectif au carré le long des courbes d'accord de phase.

4.8.3.2 Calcul de l'évolution du coefficient effectif le long des courbes d'accord de phase

Etant donné que le coefficient effectif associé aux trois courbes de SHG dans les plans principaux dépend de deux coefficients non linéaires, il est nécessaire de prendre en compte leur signe relatif qui pourra être déterminé. Nous avons calculé, pour les trois interactions de SHG sélectionnées ci-dessus, l'évolution du carré du coefficient effectif en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} ou ϕ_{PM} dans les hypothèses où les coefficients non linéaires sollicités sont de même signe ou de signe opposé.

SHG de type I dans le plan principal $x - z$

Le coefficient effectif associé à la SHG de type I dans le plan $x - z$ ($\theta > V_z$) s'écrit, d'après le tableau 4.5 et l'équation (4.4) :

$$\begin{aligned} d_{\text{eff}} &= |d_{yxx}|F_{yxx} \pm |d_{yzz}|F_{yzz} \\ &= |d_{yxx}(\lambda_\omega/2)| \cos^2(\theta'_{PM,\omega}) \pm |d_{yzz}(\lambda_\omega/2)| \sin^2(\theta'_{PM,\omega}) \end{aligned} \quad (4.16)$$

Le signe "+" correspond au cas où les coefficients d_{yxx} et d_{yzz} sont de même signe, et le signe "-" à celui où ils sont de signe opposé.

La figure 4.30 donne de nouveau la courbe d'accord de phase de SHG de type I dans le plan $x - z$ que nous avons mesurée entre 1,8 et 8 μm dans la partie 4.5.2.

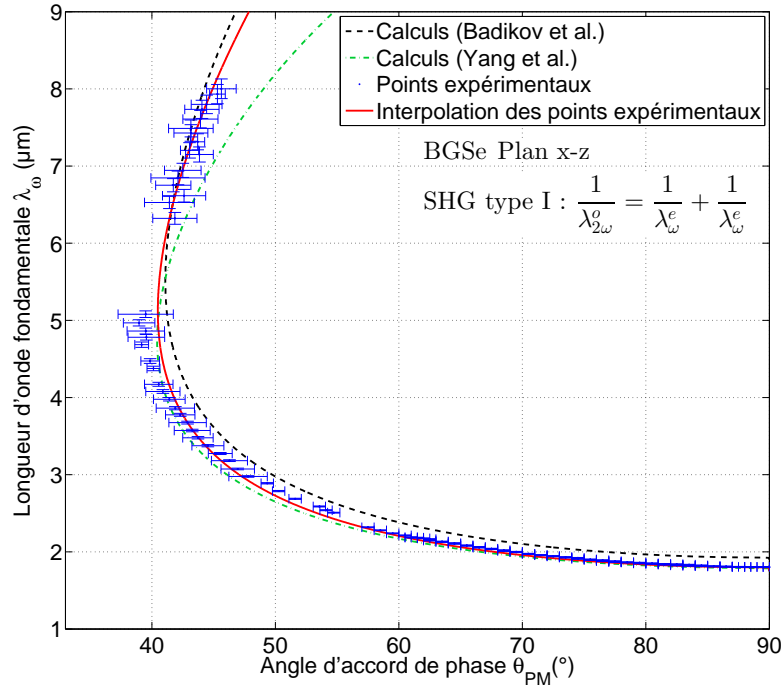


FIGURE 4.30 – Courbe d'accord de phase de SHG de type I mesurée dans le plan principal $x - z$ entre 1,8 et 8 μm (cf. figure 4.9).

La figure 4.31(a) correspond au calcul des facteurs champ F_{yxx} et F_{yzz} le long de la courbe d'accord de phase entre 1,8 et 8 μm (θ_{PM} entre 40 et 90°). Elle montre qu'à $\theta_{PM} = 90^\circ$ (selon x), seul l'élément F_{yzz} contribue au coefficient effectif et il vaut 1 : ce cas a justement été étudié dans la partie 4.8.1. Autour de $\theta_{PM} = 45^\circ$, les éléments F_{yxx} et F_{yzz} sont de même valeur donc ils contribuent autant dans le coefficient effectif. Ce dernier sera par exemple nul dans cette direction si les coefficients non linéaires associés d_{yxx} et d_{yzz} sont de même amplitude et de signe opposé. Au contraire s'ils sont de même signe, le coefficient effectif ne sera jamais nul. C'est ce que montre la figure 4.31(b) à partir des courbes en trait pointillé et en trait plein respectivement, qui représentent le carré du coefficient effectif associé à la figure 4.30. Pour ce calcul, nous avons utilisé les valeurs absolues $|d_{yxx}(0,532 \mu\text{m})| = 5,2 \text{ pm/V}$ de la réf. [88] et $|d_{yzz}(0,9 \mu\text{m})| = 11,3 \text{ pm/V}$ déterminée dans la partie 4.8.1. Nous leur avons appliqué la relation de Miller (comme l'équation (4.12)) pour chaque longueur d'onde d'accord de phase λ_ω , à partir des indices de réfraction de BGSe affinés dans la partie 4.6.

La figure 4.31(b) montre que si les coefficients d_{yxx} et d_{yzz} sont de signe opposé, le carré du coefficient effectif atteint un minimum. Il est situé au rebroussement, observé dans la figure 4.30 autour de $\lambda_\omega = 5 \mu\text{m}$ et $\theta_{PM} \sim 40^\circ$, qui apparaît également sur les deux courbes de la figure 4.31(b) pour la même valeur d'angle d'accord de phase. Etant donné que les valeurs absolues $|d_{yxx}|$ et $|d_{yzz}|$ utilisées pour le calcul ne sont pas égales, le minimum du coefficient effectif ne se situe pas autour de $\theta_{PM} = 45^\circ$. En effet, à partir

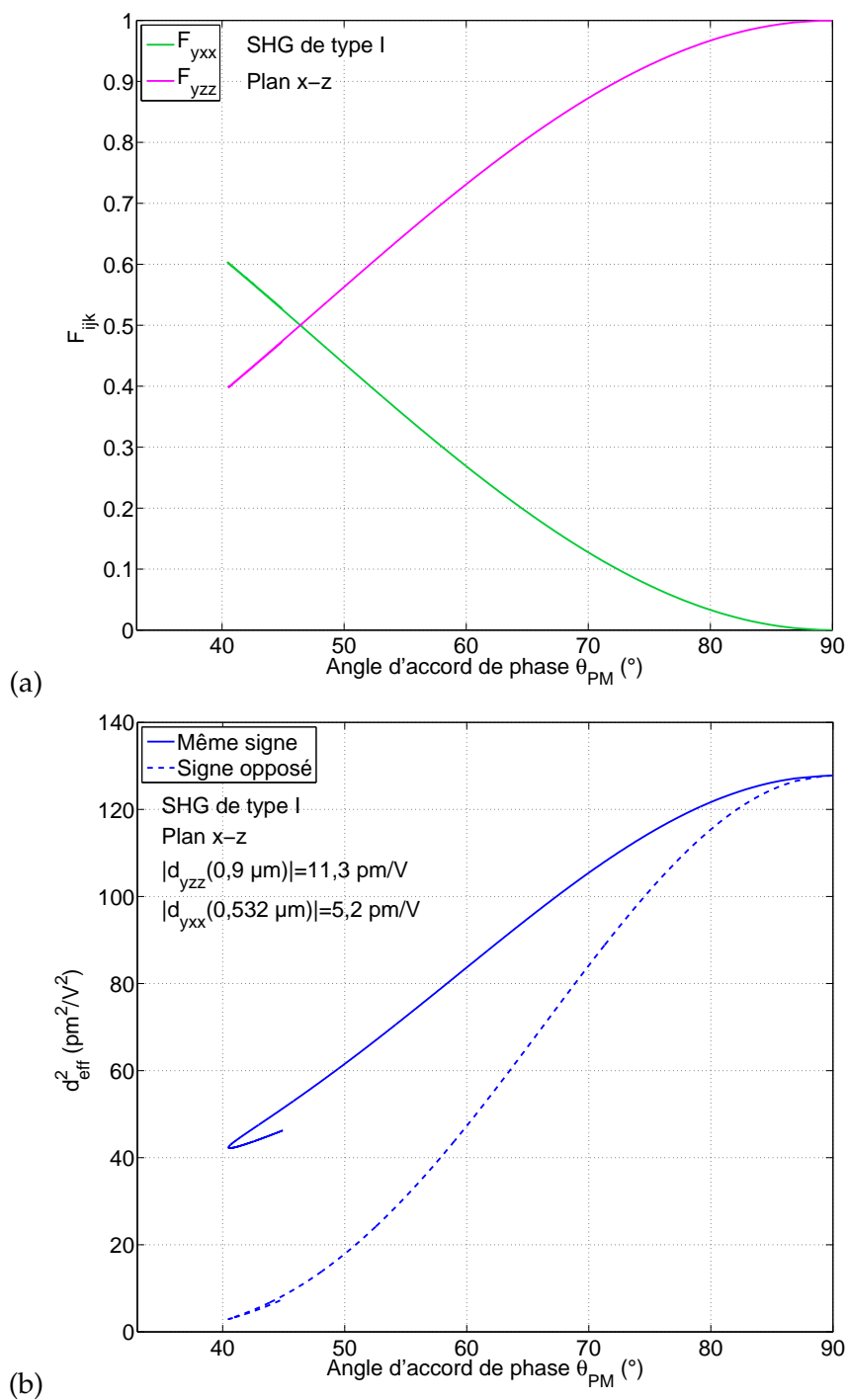


FIGURE 4.31 – (a) Facteurs champ F_{yxx} et F_{yzz} le long de la courbe d'accord de phase de SHG de type I dans le plan $x - z$ mesurée entre 1,8 et 8 μm . (b) Evolution du carré du coefficient effectif associé calculé dans les cas où les coefficients non linéaires d_{yxx} et d_{yzz} sont de même signe (en trait plein) ou de signe opposé (en trait pointillé).

de l'équation (4.16), la position θ_{PM}^{\min} de ce minimum associé à la longueur d'onde λ_{ω}^{\min} s'écrit :

$$\tan^2 \left(\theta_{PM}^{\min} \right) = \frac{|d_{yxx}(\lambda_{\omega}^{\min}/2)|}{|d_{yzz}(\lambda_{\omega}^{\min}/2)|} \quad (4.17)$$

L'équation (4.17) montre que la position θ_{PM}^{\min} dépend uniquement du rapport des valeurs absolues $|d_{yxx}|$ et $|d_{yzz}|$. Par conséquent, sa mesure permet de déterminer $|d_{yxx}|$ à la longueur d'onde générée $\lambda_{\omega}^{\min}/2$, connaissant la valeur absolue $|d_{yzz}|$ à la même longueur d'onde (voir partie 4.8.1). La figure 4.30 montre que les angles d'accord de phase sont compris entre 40° et 90° donc, d'après l'équation (4.17), $|d_{yxx}|$ doit être supérieure à $7,3$ pm/V pour que la position θ_{PM}^{\min} corresponde à un angle d'accord de phase.

Finalement, si le minimum du carré du coefficient effectif est mesuré à la position θ_{PM}^{\min} , la valeur absolue $|d_{yxx}|$ peut être déterminée et il est possible d'affirmer que les deux coefficients non linéaires d_{yxx} et d_{yzz} sont de signe opposé. Par contre, si ce minimum ne peut pas être mesuré, deux hypothèses sont possibles : soit les coefficients d_{yxx} et d_{yzz} sont de signe opposé mais $|d_{yxx}| < 7,3$ pm/V, soit ils sont de même signe. Une des deux hypothèses pourra être validée en étudiant la dérivée de d_{eff}^2 le long de la courbe d'accord de phase.

La figure 4.32 montre, en rouge, le sommet correspondant à $|d_{yxx}|$ et, par le biais du trait rouge, le signe relatif entre d_{yxx} et d_{yzz} que nous pouvons déterminer avec cette mesure. Les sommets en noir correspondent aux valeurs absolues déterminées dans les parties 4.8.1 et 4.8.2.

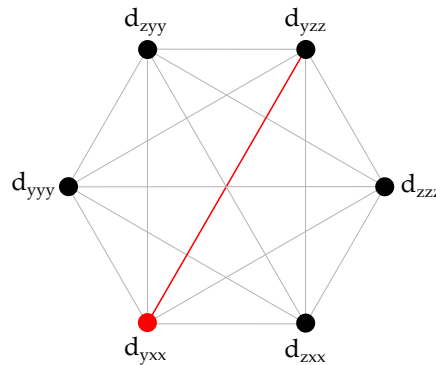


FIGURE 4.32 – Représentation du tenseur de susceptibilité électrique du second ordre de BGSe : le sommet en rouge correspond à $|d_{yxx}|$ et le trait rouge au signe relatif entre d_{yxx} et d_{yzz} qui peuvent être déterminés par la mesure de la SHG de type I dans le plan $x - z$.

SHG de type II dans le plan principal $y - z$

Le coefficient effectif associé à la SHG de type II dans le plan $y - z$ s'écrit, d'après le tableau 4.5 et l'équation (4.4) :

$$\begin{aligned}
d_{\text{eff}} &= |d_{yxx}|F_{yxx} \pm |d_{zxx}|F_{zxx} \\
&= -|d_{yxx}(\lambda_\omega/2)| \cos(\theta'_{PM,\omega}) \pm |d_{zxx}(\lambda_\omega/2)| \sin(\theta'_{PM,\omega})
\end{aligned} \tag{4.18}$$

Avec le signe "+" qui correspond au cas où les coefficients d_{yxx} et d_{zxx} sont de signe opposé, et le signe "-" s'ils sont de même signe.

La figure 4.33 donne de nouveau la courbe d'accord de phase de SHG de type II dans le plan $y-z$ que nous avons mesurée entre 2,2 et 5,4 μm dans la partie 4.5.2.

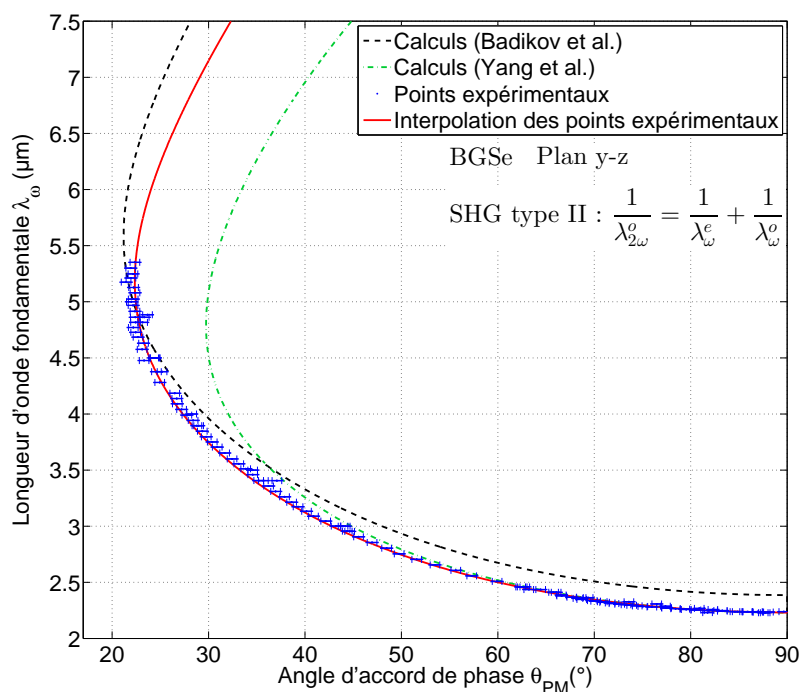


FIGURE 4.33 – Courbe d'accord de phase de SHG de type II mesurée dans le plan principal $y-z$ entre 2,2 et 5,4 μm (cf. figure 4.13).

La figure 4.34(a) correspond au calcul des facteurs F_{zxx} et F_{yxx} le long de la courbe d'accord de phase entre 2,2 et 5,4 μm (θ_{PM} entre 22 et 90°). Elle montre que l'élément F_{zxx} vaut 1 à $\theta_{PM} = 90^\circ$ (selon y) et intervient donc seul dans le coefficient effectif : ce cas a également été étudié dans la partie 4.8.1. Les éléments F_{zxx} et F_{yxx} sont de même valeur mais de signe opposé autour de $\theta_{PM} = 45^\circ$. Ainsi, le coefficient effectif sera nul si les coefficients non linéaires d_{zxx} et d_{yxx} associés sont de même signe et d'amplitude égale. Inversement, il n'atteindra jamais zéro si les coefficients non linéaires associés sont de signe opposé. C'est ce que montre la figure 4.34(b) au travers des courbes en trait plein et trait pointillé respectivement, qui représentent le carré du coefficient effectif associé à la courbe de la figure 4.33. Pour ce calcul, nous avons utilisé les valeurs absolues $|d_{yxx}(0,532 \mu\text{m})| = 5,2 \text{ pm/V}$ de la réf. [88] et de $|d_{zxx}(1,61 \mu\text{m})| = 1,4 \text{ pm/V}$ d'après notre mesure décrite dans la partie 4.8.1. Nous avons aussi appliqué la relation de Miller pour chaque longueur d'onde d'accord de phase λ_ω . Sur la figure 4.34(b), le coefficient effectif atteint zéro autour de $\theta_{PM} = 70^\circ$ et non pas $\theta_{PM} = 45^\circ$ car les valeurs

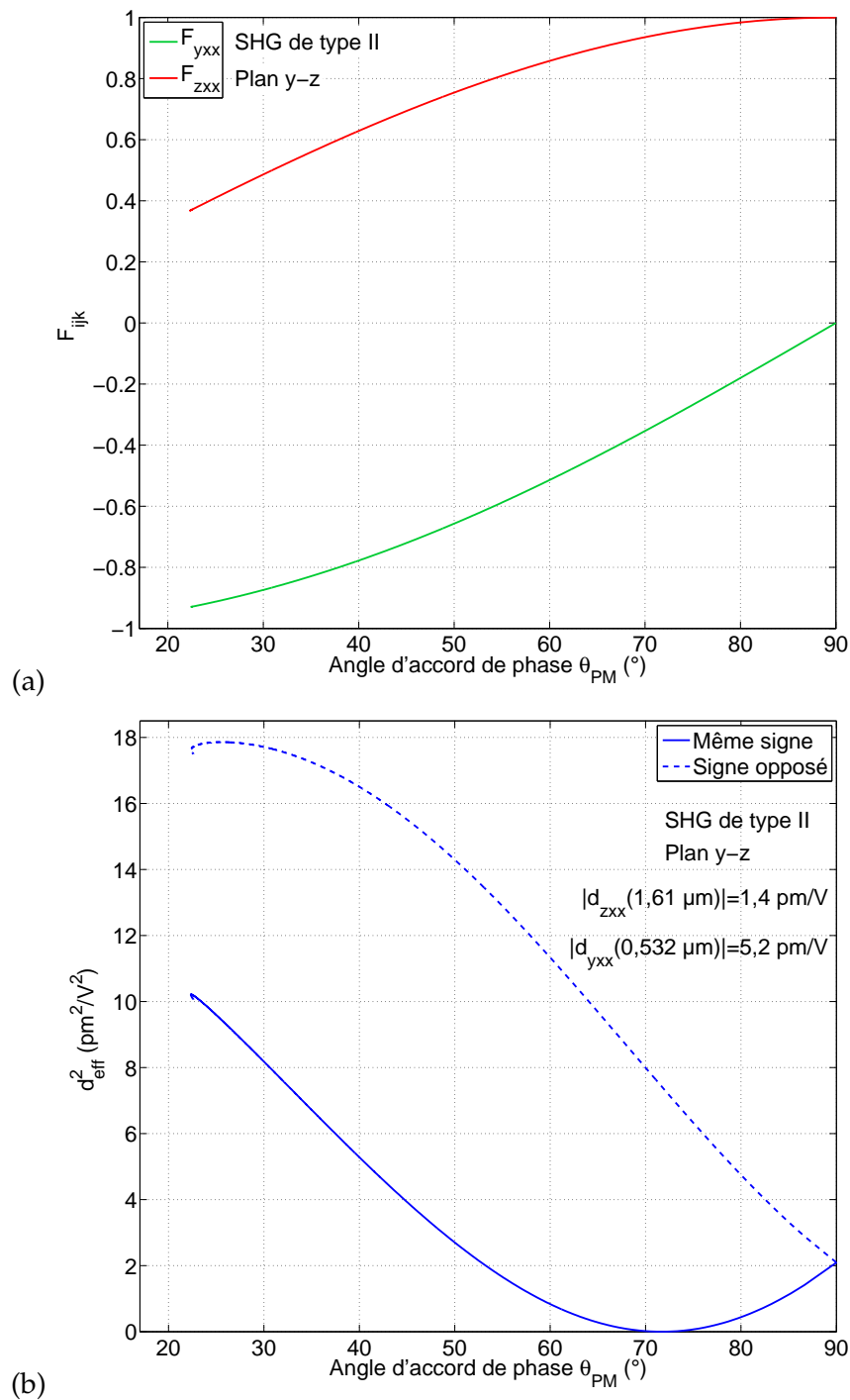


FIGURE 4.34 – (a) Facteurs champ F_{yxx} et F_{zxx} le long de la courbe d'accord de phase de SHG de type II dans le plan $y - z$ mesurée entre 2,2 et 5,4 μm . (b) Evolution du carré du coefficient effectif le long de la courbe d'accord de phase selon que les coefficients non linéaires d_{yxx} et d_{zxx} sont de même signe (en trait plein) ou de signe opposé (en trait pointillé).

absolues des coefficients non linéaires ne sont pas égales.

La figure 4.34(b) montre que si les coefficients d_{yxx} et d_{zxx} sont de même signe, le carré du coefficient effectif atteint zéro à la position θ_{PM}^{\min} . A partir de l'équation (4.18), la position θ_{PM}^{\min} du minimum s'écrit :

$$\tan\left(\theta_{PM}^{\min}\right) = \frac{|d_{yxx}(\lambda_{\omega}^{\min}/2)|}{|d_{zxx}(\lambda_{\omega}^{\min}/2)|} \quad (4.19)$$

Comme pour la SHG de type I dans le plan $x - z$, la mesure de θ_{PM}^{\min} permet de déterminer $|d_{yxx}|$ à la longueur d'onde générée $\lambda_{\omega}^{\min}/2$. D'après la figure 4.33, les angles d'accord de phase sont compris entre 22 et 90° . Ainsi, d'après l'équation (4.19) et connaissant la valeur de $|d_{zxx}|$, il apparaît que $|d_{yxx}|$ doit être supérieure à $0,55$ pm/V pour que le minimum corresponde à un angle d'accord de phase.

Comme dans le paragraphe précédent, si ce minimum est mesuré, il est alors possible de déterminer la valeur absolue $|d_{yxx}|$ et d'affirmer que les deux coefficients d_{yxx} et d_{zxx} sont de même signe. La valeur limite de $|d_{yxx}|$ étant très faible ($0,55$ pm/V), il sera possible d'affirmer avec certitude que les coefficients d_{yxx} et d_{zxx} sont de signe opposé uniquement si θ_{PM}^{\min} n'est pas mesuré. De plus, l'étude de la dérivée de d_{eff}^2 peut aisément déterminer ce signe relatif car les dérivées associées aux deux hypothèses sont de signe opposé (voir figure 4.34(b)).

Cette étude théorique montre que la mesure de la SHG de type II dans le plan $y - z$ sur la sphère de BGSe est plus propice à la détermination de la valeur absolue $|d_{yxx}|$ que la mesure de la SHG de type I dans le plan $x - z$. De plus, le signe relatif entre les coefficients d_{yxx} et d_{zxx} devrait être déterminé sans difficulté. En le combinant avec celui déterminé dans le paragraphe précédent, il sera également possible de déterminer le signe relatif entre d_{yzz} et d_{zxx} par déduction. La figure 4.35 met en évidence les informations obtenues lors de cette mesure : le sommet en bleu associé à $|d_{yxx}|$, le trait bleu associé au signe relatif entre d_{yxx} et d_{zxx} , et le trait pointillé violet correspondant au signe relatif entre d_{yzz} et d_{zxx} obtenu par déduction.

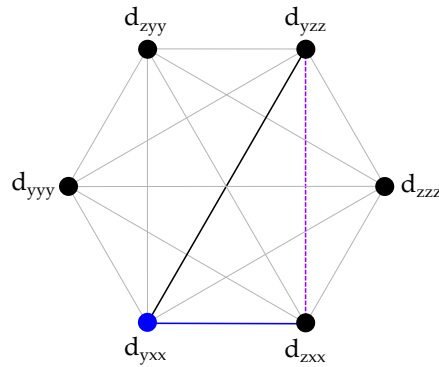


FIGURE 4.35 – Représentation du tenseur de susceptibilité électrique du second ordre de BGSe. Le sommet en bleu correspond à $|d_{yxx}|$ qui peut être déterminée lors de cette mesure. Le trait bleu concerne le signe relatif entre d_{yxx} et d_{zxx} et le trait pointillé violet correspond au signe relatif entre d_{zxx} et d_{yzz} .

SHG de type II dans le plan principal $x - y$

Le coefficient effectif associé à la SHG de type II dans le plan $x - y$ s'écrit, d'après le tableau 4.5 et l'équation (4.4) :

$$\begin{aligned} d_{\text{eff}} &= |d_{zxx}|F_{zxx} \pm |d_{zyy}|F_{zyy} \\ &= |d_{zxx}(\lambda_\omega/2)| \sin^2(\phi'_{PM,\omega}) \pm |d_{zyy}(\lambda_\omega/2)| \cos^2(\phi'_{PM,\omega}) \end{aligned} \quad (4.20)$$

Avec le signe "+" qui correspond au cas où les coefficients d_{zxx} et d_{zyy} sont de même signe et le signe "-" s'ils sont de signe opposé.

La figure 4.36 représente la courbe d'accord de phase de SHG de type II dans le plan $x - y$ calculée entre 2,23 et 2,56 μm .

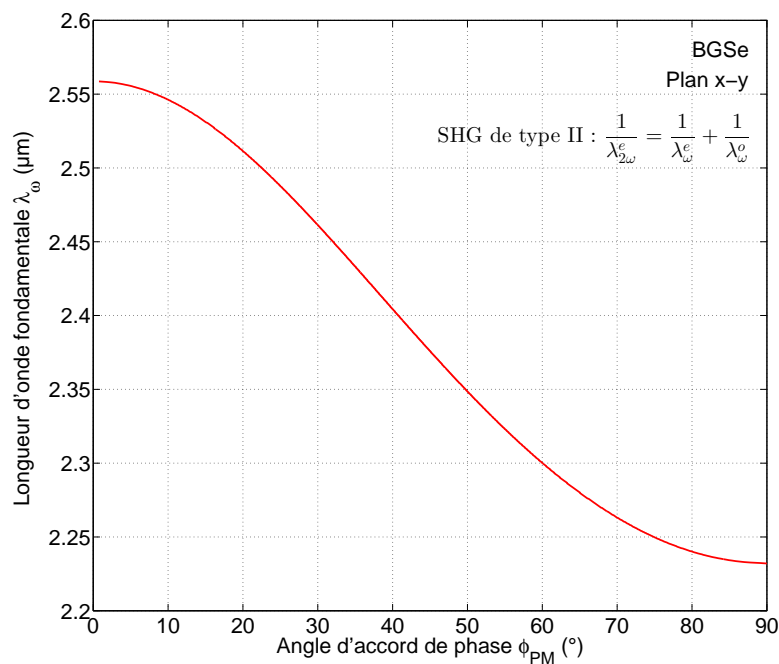


FIGURE 4.36 – Courbe d'accord de phase de SHG de type II calculée dans le plan principal $x - y$ entre 2,23 et 2,56 μm .

La figure 4.38(a) correspond au calcul des facteurs champ F_{zxx} et F_{zyy} le long de la courbe d'accord de phase de la figure 4.36. Elle fait de nouveau apparaître l'élément F_{zxx} qui vaut 1 selon y ($\phi_{PM} = 90^\circ$), comme dans le paragraphe précédent. Elle montre aussi que les éléments F_{zxx} et F_{zyy} sont égaux autour de $\phi_{PM} = 45^\circ$: le coefficient effectif sera alors nul si les coefficients non linéaires d_{zxx} et d_{zyy} sont égaux et de signe opposé. La figure 4.38(b) correspond au calcul du carré du coefficient effectif associé à la figure 4.36, selon que les coefficients non linéaires d_{zxx} et d_{zyy} sont de même signe ou de signe opposé. Pour ce calcul, nous avons utilisé les valeurs absolues de $|d_{zxx}(1,61 \mu\text{m})| = 1,4 \text{ pm/V}$ et de $|d_{zyy}(1,265 \mu\text{m})| = 3,7 \text{ pm/V}$ d'après nos mesures décrites dans la partie 4.8.1, auxquelles nous avons appliqué la relation de Miller.

La figure 4.38(b) montre que si les coefficients d_{zxx} et d_{zyy} sont de signe opposé, le carré du coefficient effectif atteint zéro à la position ϕ_{PM}^{\min} . A partir de l'équation (4.20), la position ϕ_{PM}^{\min} du minimum s'écrit :

$$\tan^2(\phi_{PM}^{\min}) = \frac{|d_{zyy}(\lambda_{\omega}^{\min}/2)|}{|d_{zxx}(\lambda_{\omega}^{\min}/2)|} \quad (4.21)$$

Etant donné que nous avons déterminé les valeurs absolues $|d_{zxx}|$ et $|d_{zyy}|$ dans la partie 4.8.1, nous pouvons affirmer cette fois-ci que le minimum de d_{eff}^2 se situe autour de $\phi_{PM}^{\min} = 58^\circ$ s'ils sont de signe opposé. Comme dans les paragraphes précédents, l'observation de ce minimum permettra de confirmer cette hypothèse, sinon cela signifie qu'ils sont de même signe. En combinant cette information sur le signe relatif entre d_{zxx} et d_{zyy} et les trois signes relatifs précédemment déterminés, il sera possible de déduire le signe relatif entre d_{zyy} et d_{yxx} , de même que celui entre d_{zyy} et d_{yzz} , comme le montre la figure 4.37.

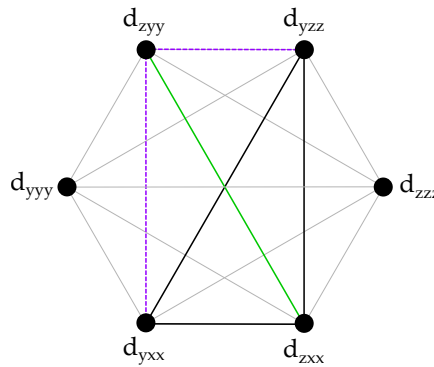


FIGURE 4.37 – Représentation du tenseur de susceptibilité électrique du second ordre de BGSe : le trait vert concerne le signe relatif entre d_{zxx} et d_{yxx} qui peut être déterminé et, par déduction, les traits pointillés violets correspondent aux signes relatifs entre d_{yxx} et d_{zyy} , et entre d_{yzz} et d_{zyy} .

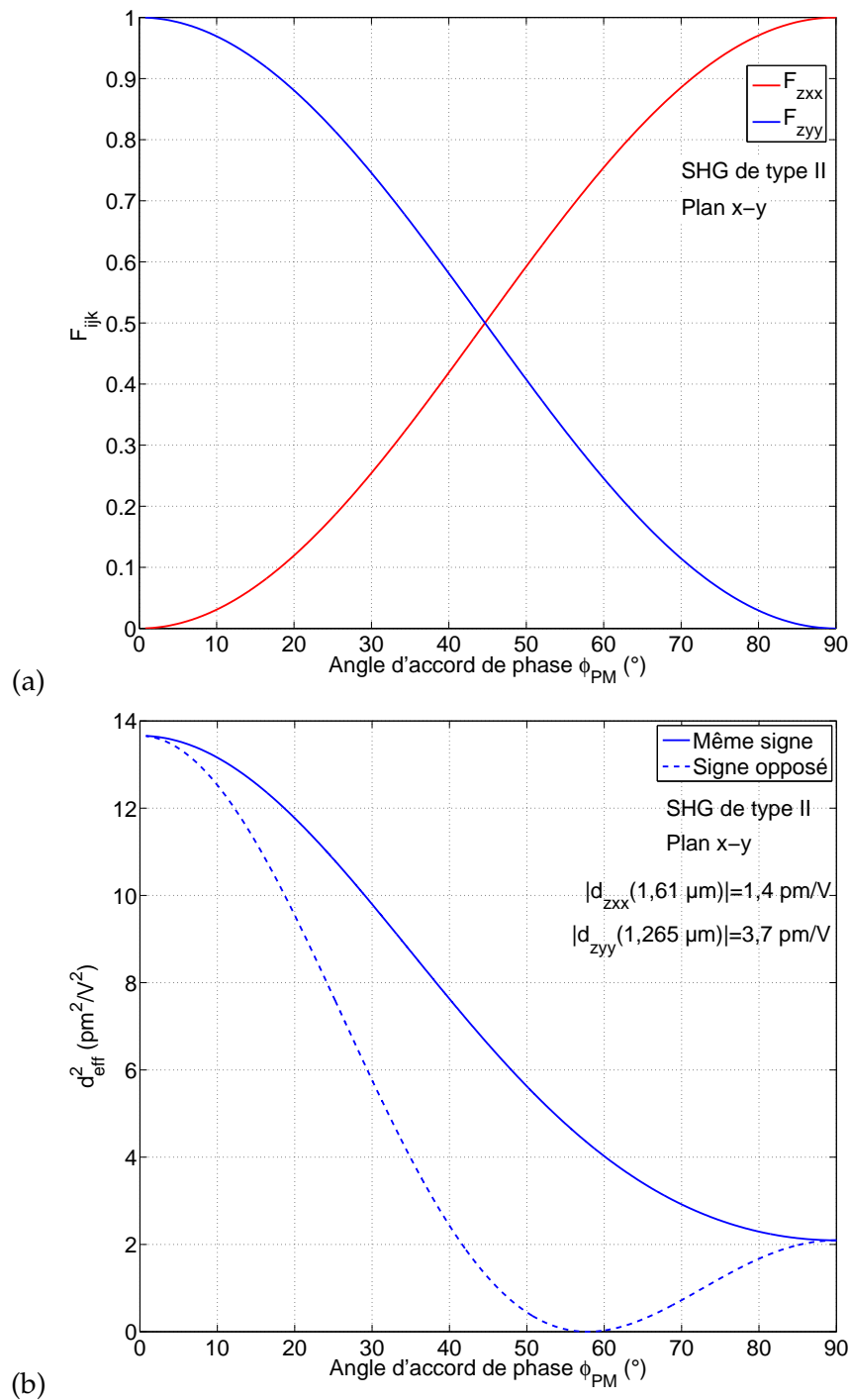


FIGURE 4.38 – (a) Facteurs champ F_{zxx} et F_{zyy} le long de la courbe d'accord de phase de SHG de type II dans le plan $x - y$. (b) Evolution du carré du coefficient effectif le long de la courbe d'accord de phase théorique selon que les coefficients non linéaires d_{zxx} et d_{zyy} sont de même signe (en trait plein) ou de signe opposé (en trait pointillé).

4.8.4 SHG en accord de phase hors des plans principaux sur sphère

4.8.4.1 Principe de la mesure

Les coefficients effectifs ont été étudiés dans les plans principaux pour des configurations où seulement certains coefficients non linéaires sont sollicités (cf. parties 4.8.1, 4.8.2 et 4.8.3). L'étude du coefficient effectif en accord de phase hors des plans principaux sollicitera tous les coefficients non linéaires de BGSe en même temps. Comme pour les mesures précédentes, cela implique de mesurer le rapport ζ le long des cônes d'accord de phase. Finalement, en combinant les études dans les plans principaux et hors des plans principaux, il va être possible de déterminer les signes relatifs entre tous les coefficients non linéaires de BGSe. Nous avons, dans un premier temps, calculé les cônes d'accord de phase (voir partie 2.4.2.4) des SHG de types I et II puis, le coefficient effectif associé hors des plans principaux. Comme dans le paragraphe précédent, différentes hypothèses en fonction des signes relatifs ont été considérées.

4.8.4.2 Calcul des directions d'accord de phase hors des plans principaux

Pour calculer les directions d'accord de phase des SHG de types I et II hors des plans principaux, rappelons qu'il faut résoudre l'équation $\Delta k = 0$ telle que dans les équations (1.41) et (1.42) avec $\lambda_1 = \lambda_2 = \lambda_\omega$ que nous avons fixé à $3 \mu\text{m}$. Le calcul numérique des directions d'accord de phase (θ_{PM}, ϕ_{PM}) a été réalisé à partir des expressions de $n^+(\theta, \phi, \lambda)$ et $n^-(\theta, \phi, \lambda)$ de l'équation (1.10) et des équations de dispersion des indices de réfraction principaux de BGSe (équation (4.1) et coefficients du tableau 4.7). La figure 4.39 représente les cônes d'accord de phase de SHG de types I et II calculés à la longueur d'onde $\lambda_\omega = 3 \mu\text{m}$ où l'angle d'accord de phase θ_{PM} est tracé en fonction de ϕ_{PM} .

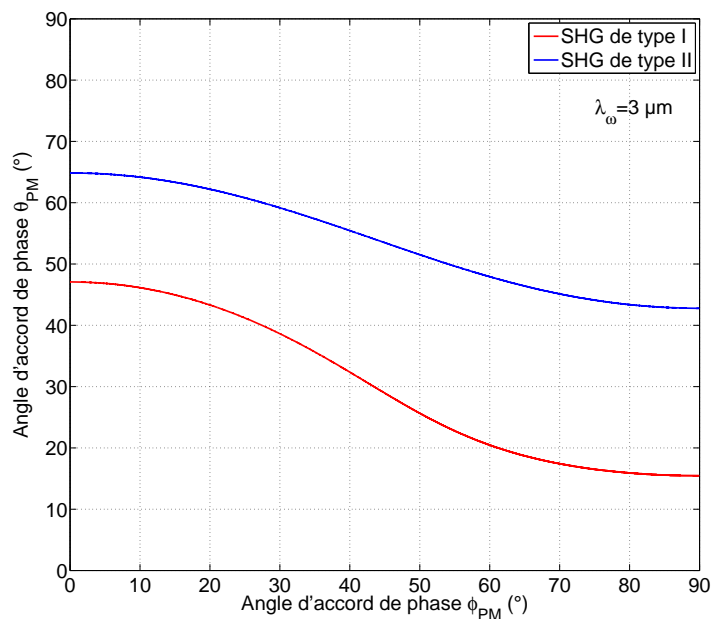


FIGURE 4.39 – Cône d'accord de phase des SHG de types I et II calculé hors des plans principaux de BGSe à la longueur d'onde fondamentale $\lambda_\omega = 3 \mu\text{m}$.

4.8.4.3 Coefficient effectif associé

Le coefficient effectif associé à ces cônes d'accord de phase est décrit, dans l'approximation de Kleinman, par l'équation (4.4) où chaque élément F_{ijk} du tenseur champ est calculé numériquement à partir de l'expression (1.16). Hors des plans principaux, tous les éléments F_{ijk} sont *a priori* non nuls, ce que montrent les figures 4.40 et 4.41 qui représentent respectivement les éléments F_{ijk} associés aux SHG de types I et II en fonction de l'angle d'accord de phase ϕ_{PM} . L'approximation de Kleinman ayant été appliquée, nous avons regroupé les termes F_{ijk} associés au même coefficient non linéaire d_{ijk} (voir équation (4.4)). Ces figures montrent que le coefficient effectif associé dépend des six coefficients non linéaires de BGSe, sauf lorsque $\phi_{PM} = 0^\circ$ ou $\phi_{PM} = 90^\circ$ c'est-à-dire dans les plans principaux $x - z$ ou $y - z$ respectivement, comme nous l'avons vu dans la partie 4.8.3.

L'interprétation de la mesure du coefficient effectif devient donc complexe car il faut prendre en compte les valeurs absolues et les signes relatifs de tous les coefficients non linéaires. En effet, dans l'hypothèse où toutes les valeurs absolues des six coefficients sont connues et aucun signe relatif n'a été déterminé, l'évolution du coefficient effectif le long des cônes d'accord de phase peut être décrite de 32 manières différentes.

Ce nombre de possibilités peut être réduit à 4 en utilisant les 6 signes relatifs déterminés dans la partie 4.8.3. En effet, il est possible de montrer que si le signe relatif entre d_{yyy} et d_{zzz} et, par exemple, celui entre d_{yyy} et d_{yzz} sont déterminés, alors le tenseur du susceptibilité électrique du second ordre est complètement caractérisé. Dans cet exemple, les quatre possibilités sont les suivantes :

- (1) d_{yyy} , d_{zzz} et d_{yzz} sont tous de même signe,
- (2) d_{zzz} et d_{yzz} sont de même signe, mais de signe opposé avec d_{yyy} ,
- (3) d_{yyy} et d_{yzz} sont de même signe, mais de signe opposé avec d_{zzz} ,
- (4) d_{yyy} et d_{zzz} sont de même signe, mais de signe opposé avec d_{yzz} .

La figure 4.42 représente l'évolution du coefficient effectif des SHG de types I et II le long des cônes d'accord de phase de la figure 4.39 correspondant à ces quatre hypothèses. Pour ce calcul, nous avons utilisé les valeurs absolues $|d_{yyy}|$, $|d_{zzz}|$ et $|d_{yxx}|$ de la réf. [88] et les valeurs absolues $|d_{yzz}|$, $|d_{zyy}|$ et $|d_{zxx}|$ de la partie 4.8.1. La relation de Miller a également été appliquée pour connaître ces six valeurs absolues à la longueur d'onde $\lambda_\omega/2 = 1,5 \mu\text{m}$. Quant aux signes relatifs, ceux donnés dans la réf. [88] ont été utilisés. Certains d'entre eux ont été modifiés pour étudier les possibilités (1) à (4).

La figure 4.42 montre que les trois possibilités (1), (2) et (4) sont associées à des coefficients effectifs dont les allures sont très différentes les unes des autres. Cela signifie qu'elles permettent d'obtenir facilement des informations sur les signes relatifs

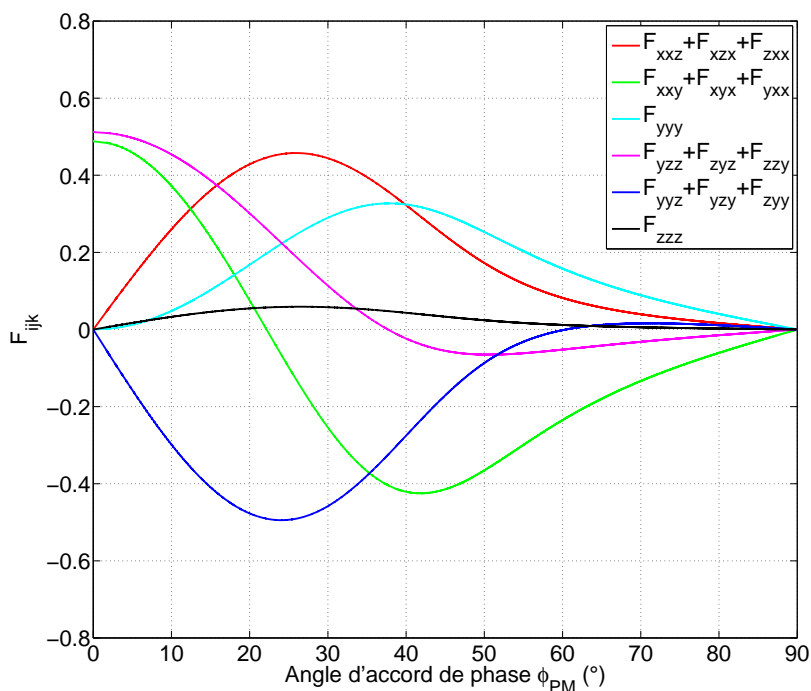


FIGURE 4.40 – Facteurs champ F_{ijk} le long du cône d'accord de phase de SHG de type I avec $\lambda_\omega = 3 \mu\text{m}$, dans l'approximation de Kleinman.

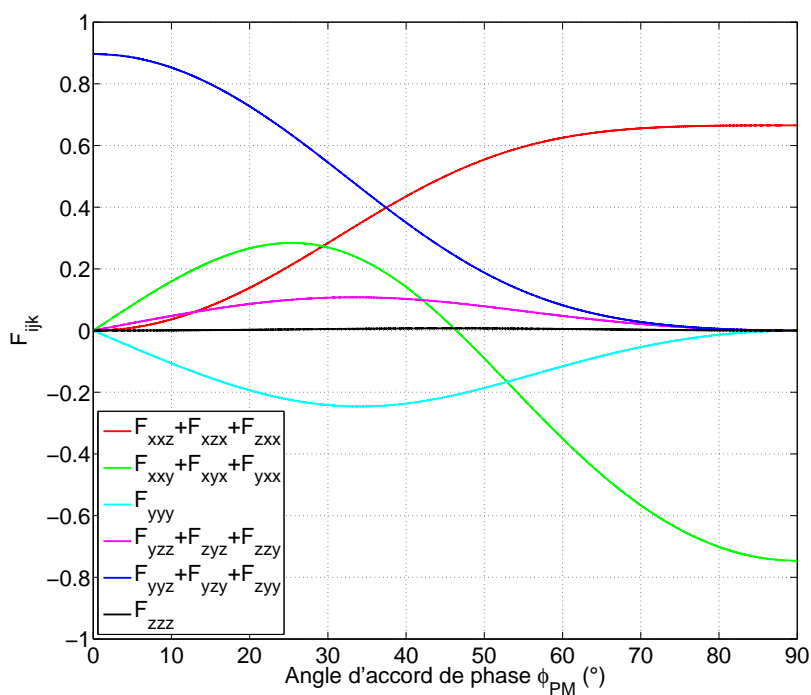


FIGURE 4.41 – Facteurs champ F_{ijk} le long du cône d'accord de phase de SHG de type II avec $\lambda_\omega = 3 \mu\text{m}$, dans l'approximation de Kleinman.

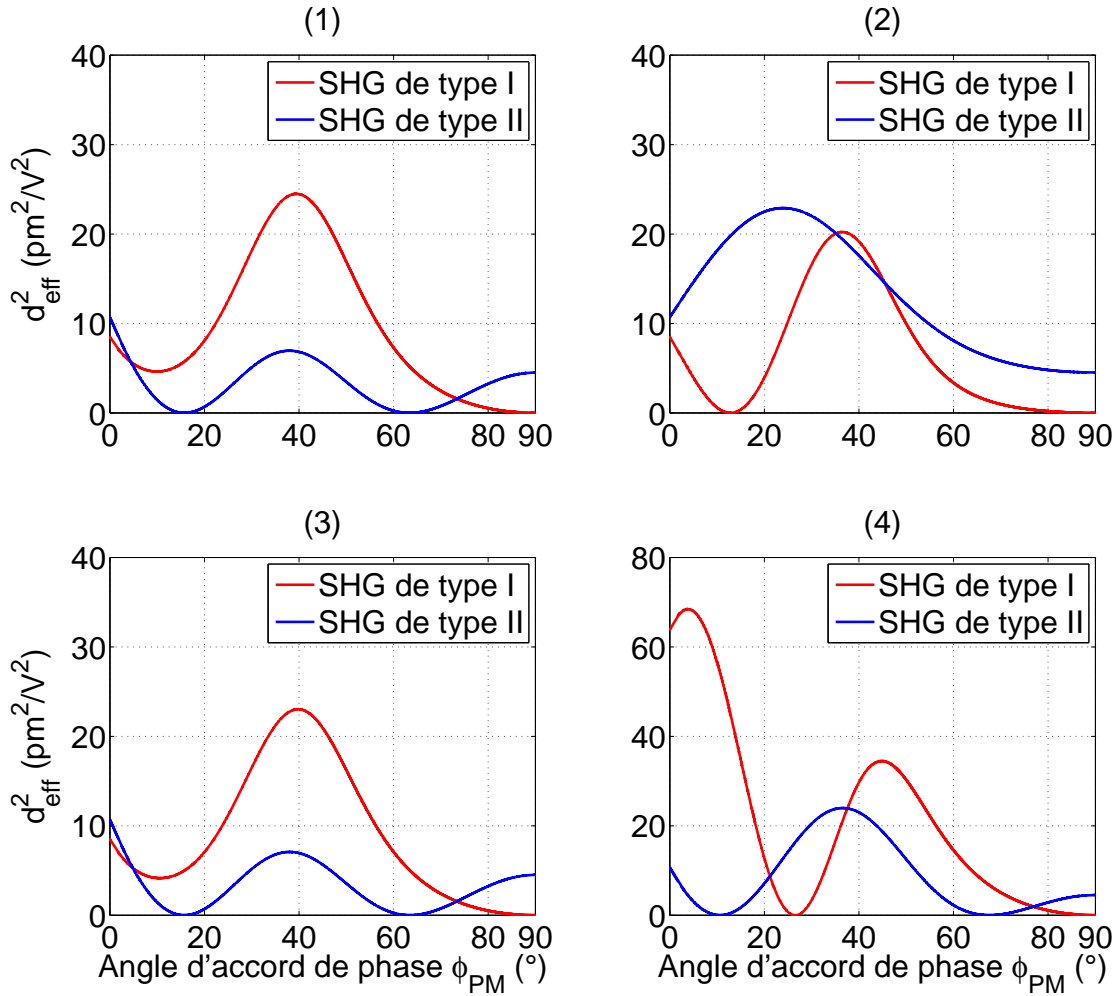


FIGURE 4.42 – Evolution du coefficient effectif associé aux SHG de types I (en rouge) et II (en bleu) en fonction de l'angle d'accord de phase ϕ_{PM} , à $\lambda_{\omega} = 3 \mu\text{m}$. Chaque figure correspond à une des quatre possibilités (1), (2), (3) ou (4).

entre d_{yyy} , d_{zzz} et d_{yzz} . Par exemple, si les coefficients effectifs mesurés le long des cônes d'accord de phase de SHG de types I et II présentent la même allure que la figure 4.42(2), il sera possible d'affirmer que d_{zzz} et d_{yzz} sont de même signe et de signe opposé avec d_{yyy} . Par contre, s'il s'agit de la même allure que les figures 4.42(1) ou 4.42(3), on pourra seulement affirmer que les coefficients d_{yyy} et d_{yzz} sont de même signe, mais leur signe relatif avec d_{zzz} restera indéterminé. La similitude entre les figures 4.42(1) et 4.42(3) s'explique par le fait que la contribution du coefficient F_{zzz} dans le coefficient effectif est très faible, comme le montrent les figures 4.40 et 4.41.

Finalement, la mesure du rapport ζ , directement relié au coefficient effectif, permettra de déterminer les deux derniers signes relatifs qui compléteront la caractérisation du tenseur de susceptibilité électrique du second ordre de BGS_e, comme l'indique la figure 4.43. Notons néanmoins que, suivant le résultat de la mesure, il ne sera pas possible de déterminer le signe relatif entre les coefficients non linéaires et d_{zzz} .

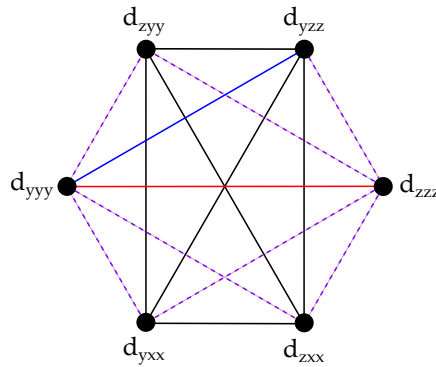


FIGURE 4.43 – Représentation du tenseur de susceptibilité électrique du second ordre de BGSe complètement caractérisé. Le trait rouge concerne le signe relatif entre d_{yyy} et d_{zzz} et le trait bleu au signe relatif entre d_{zyy} et d_{yzz} . Les traits pointillés violets correspondent aux signes relatifs restants, obtenus par déduction.

CONCLUSION

En conclusion, nous avons réalisé la première étude exhaustive à notre connaissance des propriétés optiques non linéaires du cristal de Séléniure BaGa₄Se₇ (BGSe), transparent entre 0,47 et 18 μm , qui cristallise dans la classe de symétrie d'orientation monoclinique m . L'étude de l'orientation du repère diélectrique en fonction de la longueur d'onde a montré qu'elle reste fixe entre 0,7 et 1,8 μm . L'analyse par le formalisme du tenseur champ a montré que les études de SHG et de DFG de types I et II dans le plan principal $x - z$ et de SHG et de DFG de type II dans le plan principal $y - z$ étaient suffisantes pour solliciter les trois indices de réfraction principaux n_x , n_y et n_z sur tout le domaine de transparence du cristal de BGSe. Les courbes d'accord de phase de ces processus ont été mesurées successivement dans les plans $x - z$ et $y - z$ à partir d'un échantillon taillé en forme de sphère de 7,55 mm de diamètre. Les équations de dispersion des trois indices de réfraction principaux de BGSe ont été affinées avec une précision relative de 10^{-4} à partir de l'interpolation simultanée de nos mesures. Ces équations ont permis de calculer les conditions de génération d'un supercontinuum par OPG de type I. L'étude théorique par le formalisme du tenseur champ a montré une stratégie pouvant être appliquée pour la détermination des valeurs absolues et des signes relatifs des six coefficients non linéaires de BGSe : elle est très complexe et doit faire appel à différentes mesures. Il a déjà été possible de réaliser la mesure de la SHG en accord de phase non critique angulaire sur lames afin de déterminer les valeurs absolues $|d_{yzz}(0,9 \mu\text{m})| = 11,3 \pm 0,8 \text{ pm/V}$, $|d_{zyy}(1,265 \mu\text{m})| = 3,7 \pm 0,4 \text{ pm/V}$ et $|d_{zxx}(1,61 \mu\text{m})| = 1,4 \pm 0,3 \text{ pm/V}$. L'étude théorique va être très utile pour les mesures à venir qui devraient conduire à la description complète du tenseur de susceptibilité électrique de second ordre de BGSe.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Ce travail de thèse a été consacré à l'étude de nouveaux cristaux à propriétés optiques non linéaires pour la génération de lumière paramétrique infrarouge, couvrant les bandes II (3 - 5 μm) et III (8 - 12 μm) de transmission de l'atmosphère. Dans ce cadre, nous avons limité nos études aux processus non linéaires du second ordre en accord de phase par biréfringence. L'intérêt a été porté aux cristaux de Langatate $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Ta}_{0,5}\text{O}_{14}$ (LGT) pour la bande II et de Séléniture BaGa_4Se_7 (BGSe) pour la bande III, obtenus grâce à des collaborations internationales. A partir de la mise en place des éléments de méthodologie expérimentale donnés dans le chapitre 2, nous avons étudié leurs propriétés optiques non linéaires. Nous avons utilisé la méthode de la sphère, qui permet de mesurer directement les angles d'accord de phase ainsi que les acceptances angulaires et spectrales et les rendements de conversion associés avec une très grande précision dans un seul échantillon. Les données expérimentales peuvent être utilisées telles quelles pour la conception de dispositifs paramétriques. Leur analyse permet aussi de déterminer les équations de dispersion en longueur d'onde des indices de réfraction ainsi que les éléments du tenseur de susceptibilité électrique de second ordre.

Les propriétés optiques non linéaires du cristal de LGT, connu pour ses propriétés piézoélectriques, ont été expérimentalement étudiées pour la première fois à notre connaissance. Grâce à la mesure des directions d'accord de phase des générations de somme et différence de fréquences dans une sphère de 4,7 mm de diamètre, les équations de dispersion des indices de réfraction principaux de LGT ont pu être affinées jusque 5,5 μm avec une précision relative de 10^{-4} . Son unique coefficient non linéaire a également été déterminé à partir de la mesure relative de l'énergie générée par SHG par rapport à KTP : il vaut $d_{11}(0,67 \mu\text{m}) = 2,4 \pm 0,4 \text{ pm/V}$. Il est donc du même ordre de grandeur que d_{24} de KTP. Le seuil de dommage optique à 1,064 μm en régime

nanoseconde a été mesuré et vaut $4,34 \text{ GW/cm}^2$. LGT est donc moins robuste que KTP, mais cet aspect peut être compensé par l'utilisation de cristaux de très grandes dimensions, comme peut le permettre sa croissance par la méthode de Czochralski. De plus, son domaine de transparence ($0,25 - 6,5 \mu\text{m}$) est plus étendu dans l'infrarouge que celui de KTP ($0,35 - 4,5 \mu\text{m}$).

Le cristal de LGT étant comparable à celui de KTP, nous nous sommes ensuite intéressés à la différence de fréquences et à l'amplification paramétrique dans LGT en régime femtoseconde : des faisceaux autour de $2 \mu\text{m}$ et $3 \mu\text{m}$ ont pu être générés par DFG. Ces mesures ont permis de confirmer nos calculs basés sur les équations de dispersion affinées.

Nous avons également montré qu'un supercontinuum d'extension $1,4 - 3,0 \mu\text{m}$ peut être généré lorsque le cristal de LGT est orienté dans la direction ($\theta = 56^\circ$, $\phi = 90^\circ$) et pompé à $\lambda_p = 0,967 \mu\text{m}$. En ce qui concerne le cristal de KTP, aucun supercontinuum ne peut être généré car le coefficient effectif associé au type I est toujours nul. Par contre, une interaction d'OPG de type II est possible dans KTP. La figure 4.44 représente en bleu la courbe d'accord de phase correspondante dans KTP, calculée à partir des équations de Sellmeier de la réf. [6] avec $\lambda_p = 1,064 \mu\text{m}$. En comparaison, la courbe d'OPG de type I dans LGT est donnée en rouge. La figure 4.44 montre que le cristal de LGT permet, du fait que l'interaction soit de type I, une accordabilité sur tout son domaine de transparence et bien plus étendue que celle de KTP. Le cristal de LGT constitue donc une vraie alternative à KTP.

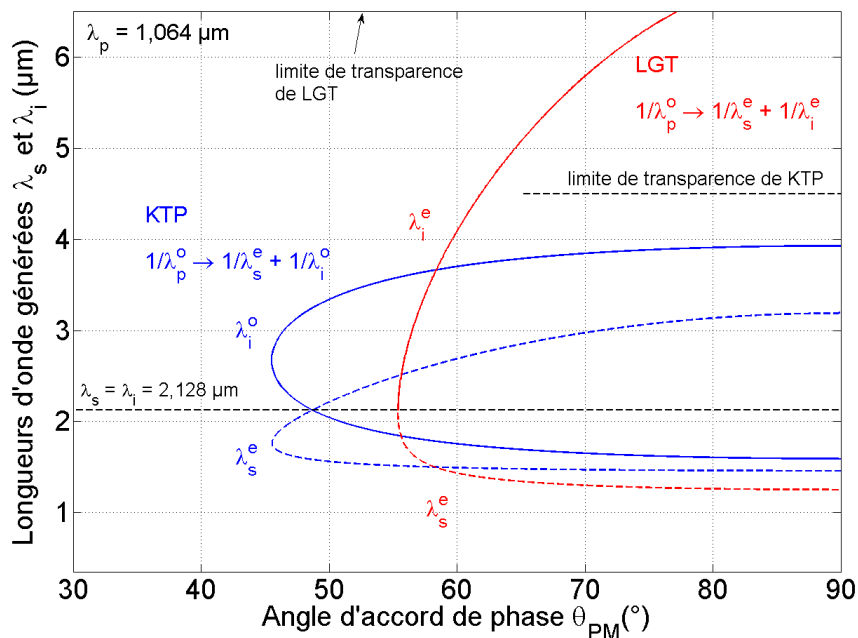


FIGURE 4.44 – Courbes d'accord de phase d'OPG de type II dans le plan $x - z$ de KTP (en bleu) et de type I dans le plan $y - z$ de LGT (en rouge) lorsque les deux cristaux sont pompés à $\lambda_p = 1,064 \mu\text{m}$.

Le cristal monoclinique de BGSe, dont la croissance est maîtrisée depuis peu, a

également été étudié. Après avoir montré que l'orientation de son repère diélectrique reste fixe en fonction de la longueur d'onde, la mesure de six courbes d'accord de phase dans une sphère de 7,55 mm de diamètre a permis d'affiner les équations de dispersion de ses trois indices de réfraction principaux entre 1 et 11 μm . L'étude de son tenseur de susceptibilité électrique du second ordre est complexe, du fait du grand nombre de coefficients, et nous avons montré qu'il est nécessaire d'allier différentes méthodes afin de déterminer les valeurs absolues et les signes relatifs des six coefficients non linéaires du cristal de BGSe. Il a été possible de déterminer les valeurs absolues $|d_{yzz}(0,9 \mu\text{m})| = 11,3 \pm 0,8 \text{ pm/V}$, $|d_{zyy}(1,265 \mu\text{m})| = 3,7 \pm 0,4 \text{ pm/V}$ et $|d_{zxx}(1,61 \mu\text{m})| = 1,4 \pm 0,3 \text{ pm/V}$ grâce à des mesures de SHG en accord de phase non critique angulaire sur lames fines. La détermination des autres coefficients, incluant amplitudes et signes relatifs, sera effectuée dans la continuité de ce travail, sur la base de la méthode que nous avons établie. Même si toutes les amplitudes des coefficients non linéaires n'ont pas encore été obtenues, elles s'avèrent moins élevées que celles de ZGP ou CSP. En contre partie, le domaine de transparence du cristal de BGSe est plus étendu dans l'infrarouge, puisqu'il transmet jusque 18 μm . De plus, étant transparent à partir 0,47 μm , BGSe a l'avantage de pouvoir être pompé à 1,064 μm .

A partir des équations de Sellmeier de BGSe, nous avons pu montrer qu'un supercontinuum peut être généré au moins entre 3 et 10 μm lorsque le cristal, taillé perpendiculairement à la direction ($\theta = 40,6^\circ$, $\phi = 0^\circ$), est pompé avec un laser $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ ($\lambda_p = 2,37 \mu\text{m}$). Il est représenté de nouveau dans la figure 4.45 en rouge. La figure 4.45 permet aussi de faire la comparaison avec le cristal de ZGP qui doit être pompé à $\lambda_p = 2,63 \mu\text{m}$ pour générer un supercontinuum entre 3,5 et 9 μm , d'après le calcul à partir des équations de Sellmeier de la réf. [97]. La figure 4.45 montre donc que BGSe permet de générer un spectre plus large.

Le cristal de BGSe peut donc devenir une réelle alternative au cristal de ZGP, d'autant qu'il peut aussi être pompé à $\lambda_p = 2,09 \mu\text{m}$ par un laser $\text{Ho}^{3+}:\text{YAG}$ ou à $\lambda_p = 1,645 \mu\text{m}$ par un laser $\text{Er}^{3+}:\text{YAG}$. C'est ce que montre par exemple la figure 4.46 qui donne les courbes d'accord de phase d'OPG de type I avec $\lambda_p = 1,645 \mu\text{m}$ dans BGSe (en rouge) et dans ZGP (en bleu). Cette dernière longueur d'onde de pompe permet d'avoir la meilleure accordabilité dans les deux cristaux. La courbe rouge, correspondant au cristal de BGSe, s'étend sur tout son domaine de transparence sans discontinuité, contrairement à ZGP.

Le cristal de BGSe devrait également être bien approprié pour la SHG d'un laser CO_2 ($\lambda_\omega = 10,6 \mu\text{m}$) du fait de sa haute transmission dans cette gamme spectrale. Il pourrait donc remplacer le cristal de AGSe. Enfin, il pourrait également être une alternative au cristal de AGS généralement utilisé pour être pompé à 1,064 μm . En effet, AGS présente un seuil de dommage optique très bas, de l'ordre de 150 MW/cm^2 , alors

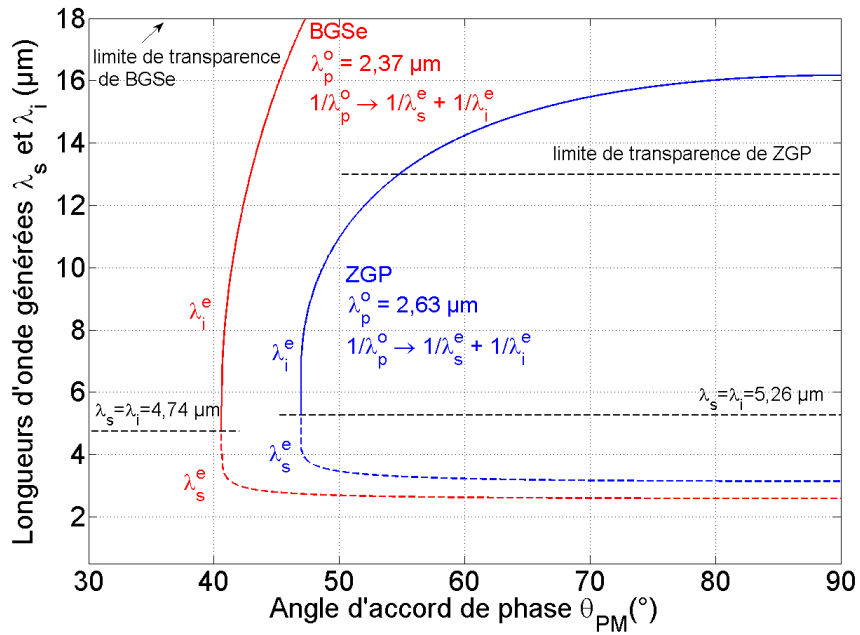


FIGURE 4.45 – Courbes d'accord de phase d'OPG de type I dans BGSe (en rouge) avec $\lambda_p = 2,37 \mu\text{m}$ et dans ZGP (en bleu) avec $\lambda_p = 2,63 \mu\text{m}$.

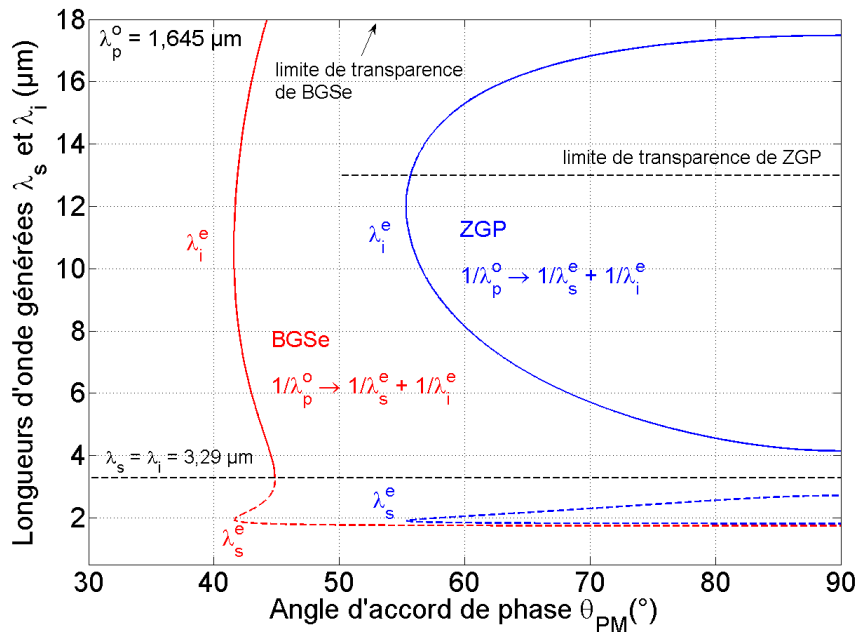


FIGURE 4.46 – Courbes d'accord de phase d'OPG de type I dans BGSe (en rouge) et dans ZGP (en bleu) lorsque les deux cristaux sont pompés à $\lambda_p = 1,645 \mu\text{m}$.

que celui de BGSe vaut 557 MW/cm^2 [91].

Une meilleure comparaison avec les cristaux actuels de la bande III implique une étude complète sur le cristal de BGSe sur la base des mesures proposées dans ce document pour caractériser tous les coefficients non linéaires, et le seuil de dommage optique. Enfin, le cristal de BGSe sera placé dans un dispositif paramétrique de type OPO ou OPG pour étudier expérimentalement ses performances.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] Q. Clément. *Sources paramétriques optiques pour la détection de gaz à distance dans l'infrarouge lointain*. PhD thesis, 2015.
- [2] M. Razeghi, S. Slivken, Y. Bai, B. Gokden, and S. Darvish. High power quantum cascade lasers. *New Journal of Physics*, 11 :0–13, 2009.
- [3] DAYLIGHT Solution. www.daylightsolutions.com/technology/qcl_technology.htm.
- [4] J. Peltola, M. Vainio, T. Hieta, J. Uotila, S. Sinisalo, M. Siltanen, and L. Halonen. High sensitivity trace gas detection by cantilever-enhanced photoacoustic spectroscopy using a mid-infrared continuous-wave optical parametric oscillator. *Optics Express*, 21(8) :2103–2109, 2013.
- [5] F. C. Zumsteg, J. D. Bierlein, and T. E. Gier. $KxRb_{1-x}TiOPO_4$: A new nonlinear optical material. *Journal of Applied Physics*, 47(11) :4980–4985, 1976.
- [6] B. Boulanger, J. P. Fève, G. Marnier, C. Bonnin, P. Villeval, and J. J. Zondy. Absolute measurement of quadratic nonlinearities from phase-matched second-harmonic generation in a single KTP crystal cut as a sphere. *Journal of the Optical Society of America B*, 14(6) :1380–1386, 1997.
- [7] R. J. Bolt and M. Van der Mooren. Single shot bulk damage threshold and conversion efficiency measurements on flux grown $KTiOPO_4$ (KTP). *Optics Communications*, 100 :399–410, 1993.
- [8] Raicol Crystals Ltd. <http://raicol.com/wp-content/uploads/catalog.pdf>.

- [9] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, and D. N. Nikogosyan. *Handbook of nonlinear optical crystals*. Springer Series in Optical Sciences, 1991.
- [10] M. M. Choy and R. L. Byer. Accurate second-order susceptibility measurements of visible and infrared nonlinear crystals. *Physical Review B*, 14(4) :1693 – 1706, 1976.
- [11] R. L. Byer, Y. K. Park, R. S. Feigelson, and W. L. Kway. Efficient second-harmonic generation of Nd :YAG laser radiation using warm phasematching LiNbO₃. *Applied Physics Letters*, 39(1) :17–19, 1981.
- [12] A. Boucon, B. Hardy-Baranski, and F. Bretenaker. Compact infrared continuous-wave double-pass single-frequency doubly-resonant OPO. *Optics Communications*, 333 :53–57, 2014.
- [13] B. Hardy, A. Berrou, S. Guilbaud, M. Raybaut, A. Godard, and M. Lefebvre. Compact, single-frequency, doubly resonant optical parametric oscillator pumped in an achromatic phase-adapted double-pass geometry. *Optics letters*, 36(5) :678–680, 2011.
- [14] C. Chen, Y. Wu, A. Jiang, B. Wu, G. You, R. Li, and S. Lin. New nonlinear-optical crystal : LiB₃O₅. *Journal of the Optical Society of America B*, 6(4) :616–621, 1989.
- [15] S. Lin, Z. Sun, B. Wu, and C. Chen. The nonlinear optical characteristics of a LiB₃O₅ crystal. *Journal of Applied Physics*, 67(2) :634–638, 1990.
- [16] F. Kienle, P. S. Teh, D. Lin, S. Alam, J. H. V. Price, D. C. Hanna, D. J. Richardson, and D. P. Shepherd. High-power, high repetition-rate, green-pumped, picosecond LBO optical parametric oscillator. *Optics Express*, 20(7) :7008–7014, 2012.
- [17] H. Nakatani, W. R. Bosenberg, L. K. Cheng, and C. L. Tang. Laser-induced damage in beta-barium metaborate. *Applied Physics Letters*, 53(26) :2587–2589, 1988.
- [18] W. R. Bosenberg, W. S. Pelouch, and C. L. Tang. High-efficiency and narrow-linewidth operation of a two-crystal β -BaB₂O₄ optical parametric oscillator. *Applied Physics Letters*, 55(19) :1952–1954, 1989.
- [19] P. B. Phua, R. F. Wu, T. C. Chong, and B. X. Xu. Nanosecond AgGaS₂ optical parametric oscillator with more than 4 micron output. *Japanese Journal of Applied Physics, Part 2 : Letters*, 36(12 B) :L1661–L1664, 1997.
- [20] A. Harasaki and K. Kato. New data on the nonlinear optical constant, phase-matching, and optical damage of AgGaS₂. *Japanese Journal of Applied Physics*, 36(2) :700–703, 1997.
- [21] Y. X. Fan, R. C. Eckardt, R. L. Byer, R. K. Route, and R. S. Feigelson. AgGaS₂ infrared parametric oscillator. *Applied Physics Letters*, 45(4) :313–315, 1984.

- [22] Z. Zhang, D. T. Reid, S. C. Kumar, M. Ebrahim-Zadeh, P. G. Schunemann, K. T. Zawilski, and C. R. Howle. Femtosecond-laser pumped CdSiP₂ optical parametric oscillator producing 100 MHz pulses centered at 6.2 μm . *Optics Letters*, 38(23) :5110–5113, 2013.
- [23] H. Kildal and J. C. Mikkelsen. The nonlinear optical coefficient, phasematching, and optical damage in the chalcopyrite AgGaSe₂. *Optics Communications*, 9(3) :315–318, 1973.
- [24] A. A. Boyko, G. M. Marchev, V. Petrov, V. Pasiskevicius, D. B. Kolker, A. Zukauskas, and N. Y. Kostyukova. Intracavity-pumped, cascaded AgGaSe₂ optical parametric oscillator tunable from 5.8 to 18 μm . *Optics Express*, 23(26) :33460–33465, 2015.
- [25] G. A. Verozubova, A. I. Gribenyukov, V. V. Korotkova, O. Semchinova, and D. Uffmann. Synthesis and growth of ZnGeP₂ crystals for nonlinear optical applications. *Journal of Crystal Growth*, 213 :334–339, 2000.
- [26] G. D. Boyd, E. Buehler, and F. G. Storz. Linear and nonlinear optical properties of ZnGeP₂ and CdSe. *Applied Physics Letters*, 18(7) :301–304, 1971.
- [27] A. Hildenbrand, C. Kieleck, A. Tyazhev, G. Marchev, G. Stöppler, M. Eichhorn, P. G. Schunemann, and V. Petrov. Laser damage studies of CdSiP₂ and ZnGeP₂ nonlinear crystals with nanosecond pulses at 1064 and 2090 nm. *Optical Engineering*, 53(12) :122511, 2014.
- [28] Q. Clément, J. M. Melkonian, J. Barrientos-Barria, J. B. Dherbecourt, M. Raybaut, and A. Godard. Tunable optical parametric amplification of a single-frequency quantum cascade laser around 8 μm in ZnGeP₂. *Optics letters*, 38(20) :4046–4049, 2013.
- [29] K. T. Zawilski, P. G. Schunemann, T. C. Pollak, D. E. Zelmon, N. C. Fernelius, and F. K. Hopkins. Growth and characterization of large CdSiP₂ single crystals. *Journal of Crystal Growth*, 312(8) :1127–1132, 2010.
- [30] V. Petrov, F. Noack, I. Tunchev, P. G. Schunemann, and K. T. Zawilski. The nonlinear coefficient d_{36} of CdSiP₂. *Proceedings of SPIE*, 7197 :71970M, 2009.
- [31] S. C. Kumar, J. Krauth, A. Steinmann, K. T. Zawilski, P. G. Schunemann, H. Giessen, and M. Ebrahim-Zadeh. High-power femtosecond mid-infrared optical parametric oscillator at 7 μm based on CdSiP₂. *Optics Letters*, 40(7) :1398–1401, 2015.
- [32] B. Boulanger and J. Zyss. Nonlinear optical properties. In *International Tables of Crystallography*, chapter D, pages 178–219. 2006.
- [33] J. F. Nye. *Physical properties of crystals : their representation by tensors and matrices*. Oxford University Press, 1985.

- [34] H. Wondratschek and U. Müller. Symmetry relations between space groups. In *International Tables for Crystallography*, chapter A1. 2006.
- [35] B. Boulanger and J. P. Fève. Méthodes de caractérisation des propriétés optiques non linéaires de conversion de fréquence des cristaux. In *Cristaux massifs et en couches minces pour l'optique. Elaboration et caractérisation*, pages 99–132. EDP Sciences, 2005.
- [36] J. Q. Yao and T. S. Fahlen. Calculations of optimum phase match parameters for the biaxial crystal KTiOPO_4 . *Journal of Applied Physics*, 55(1) :65–68, 1984.
- [37] A. Yariv and P. Yeh. *Optical Waves in Crystals : Propagation and Control of Laser Radiation*. New York : Wiley, 1984.
- [38] P. Segonds, B. Boulanger, L. Ferrier, B. Ménaert, and J. Zaccaro. Refractive indices determination of a small-size nonlinear biaxial crystal by use of double-refraction measurements with a laser beam. *Journal of the Optical Society of America B*, 23(5) :852–856, 2006.
- [39] D. A. Kleinman. Nonlinear dielectric polarization in optical media. *Physical review*, 126(6) :1977–1979, 1962.
- [40] R. C. Miller. Optical second harmonic generation in piezoelectric crystals. *Applied Physics Letters*, 5(1) :17–19, 1964.
- [41] B. Boulanger. *Course : Parametric nonlinear optics*. 2015.
- [42] B. Boulanger and G. Marnier. Field factor calculation for the study of the relationships between all the three-wave nonlinear optical interactions in uniaxial and biaxial crystals. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 3(43) :8327–8350, 1991.
- [43] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric. *Physical review*, 127(6) :1918–1939, 1962.
- [44] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R.L. Byer. Quasi phase-matching second harmonic generation : tuning and tolerances. *IEEE Journal of quantum electronics*, 28(11) :2631–2654, 1992.
- [45] J. J. Zondy. Comparative theory of walkoff-limited type-II versus type-I second harmonic generation with gaussian beams. *Optics Communications*, 81(6) :427–440, 1991.
- [46] V. Kemlin, D. Jegouso, J. Debray, P. Segonds, B. Boulanger, B. Menaert, H. Ishizuki, and T. Taira. Widely tunable optical parametric oscillator in a 5 mm thick 5%MgO :PPLN partial cylinder. *Optics Letters*, 38(6) :860–862, 2013.
- [47] O. Pacaud. *Oscillateurs paramétriques optiques basés sur des cristaux de géométrie cylindrique*. PhD thesis, 2001.

- [48] G. S. Settles. *Visualizing Phenomena in Transparent Media. Schlieren and Shadowgraph Techniques*. 2001.
- [49] A. R. Lang and G. Meyrick. Dislocation structures observed in high-purity re-crystallized aluminium by X-ray diffraction. *Philosophical Magazine*, 4(43) :878–880, 1959.
- [50] V. Kemlin, D. Jegouso, J. Debray, E. Boursier, P. Segonds, B. Boulanger, H. Ishizuki, T. Taira, G. Mennerat, J. M. Melkonian, and A. Godard. Dual-wavelength source from 5%MgO :PPLN cylinders for the characterization of nonlinear infrared crystals. *Optics Express*, 21(23) :28886–28891, 2013.
- [51] Y. Petit, S. Joly, P. Segonds, and B. Boulanger. Recent advances in monoclinic crystal optics. *Laser and Photonics Reviews*, 7(6) :920–937, 2013.
- [52] C. Traum, P. L. Inácio, C. Félix, P. Segonds, A. Peña, J. Debray, B. Boulanger, Y. Petit, D. Rytz, G. Montemezzani, P. Goldner, and A. Ferrier. Direct measurement of the dielectric frame rotation of monoclinic crystals as a function of the wavelength. *Optical Materials Express*, 4(1) :57–62, 2013.
- [53] A. N. Winchell. *Elements of optical mineralogy. Part I : Principles and methods*. John Wiley & Sons Inc., 5th edition, 1965.
- [54] M. Born and E. Wolf. *Principles of optics*. 6th edition, 1980.
- [55] O. Pikoul. Determination of the optical sign of a crystal by a conoscopic method. *Journal of Applied Crystallography*, 43 :955–958, 2010.
- [56] RP Photonics Encyclopedia. <https://www.rp-photonics.com/polarizers.html>.
- [57] E. Hecht. *Optics*. Addison Wesley, 3rd edition, 1998.
- [58] ISO 11254-1. Determination of laser-induced threshold of optical surfaces —Part 1 : 1-on-1 test, 2000.
- [59] ISO 11254-2. Determination of laser-induced threshold of optical surfaces —Part 2 : S-on-1 test, 2001.
- [60] D. R. Skinner and R. E. Whitcher. Measurement of the radius of a high-power laser beam near the focus of a lens. *J. Phys. E : Sci. Instrum.*, 5 :237–238, 1972.
- [61] I. Shoji, A. Kitamoto, T. Kondo, and R. Ito. Absolute scale of the second-order nonlinear optical coefficients. *Journal of the Optical Society of America B*, 14(9) :2268–2294, 1997.
- [62] G. Marnier and B. Boulanger. The sphere method : a new technique in linear and non-linear crystalline optical studies. *Optics Communications*, 72(3) :139–143, 1989.

- [63] P. Brand. *Study of 5%MgO :PPLN and CdSiP₂ for infrared parametric generation*. PhD thesis, 2010.
- [64] B. Boulanger, J. P. Fève, G. Marnier, G. M. Loiacono, D. N. Loiacono, and C. Bonnin. SHG and internal conical refraction experiments in CsTiOAsO₄, comparison with KTiOPO₄ and KTiOAsO₄, for 1.32- μ m type II SHG. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 33(6) :945–949, 1997.
- [65] A. E. Siegman. *Lasers*. University Science Books, 1986.
- [66] B. Boulanger, J. P. Fève, G. Marnier, and B. Ménaert. Methodology for optical studies of nonlinear crystals : application to the isomorph family KTiOPO₄, KTiOAsO₄, RbTiOAsO₄ and CsTiOAsO₄. *Pure and Applied Optics : Journal of the European Optical Society Part A*, 7(2) :239–256, 1998.
- [67] D. L. Portigal and E. Burstein. Internal Conical Refraction. *Journal of the Optical Society of America*, 59(12) :1567–1573, 1969.
- [68] J. P. Fève, B. Boulanger, and G. Marnier. Experimental study of internal and external conical refractions in KTP. *Optics Communications*, 105(3-4) :243–252, 1994.
- [69] B. Boulanger and G. Marnier. Study of the wave propagation near optical axes of KTiOPO₄ by the sphere method. *Optics Communications*, 72(3-4) :144–147, 1989.
- [70] P. Segonds, B. Boulanger, J. P. Fève, B. Ménaert, J. Zaccaro, G. Aka, and D. Pelenc. Linear and nonlinear optical properties of the monoclinic Ca₄YO(BO₃)₃ crystal. *Journal of the Optical Society of America B*, 21(4) :765–769, 2004.
- [71] J. P. Fève, B. Boulanger, O. Pacaud, I. Rousseau, B. Ménaert, G. Marnier, P. Villeval, C. Bonnin, G. M. Loiacono, and D. N. Loiacono. Phase-matching measurements and Sellmeier equations over the complete transparency range of KTiOAsO₄, RbTiOAsO₄, and CsTiOAsO₄. *Journal of the Optical Society of America B*, 17(5) :775–780, 2000.
- [72] V. Kemlin, P. Brand, B. Boulanger, P. Segonds, P. G. Schunemann, K. T. Zawilski, B. Ménaert, and J. Debray. Phase-matching properties and refined Sellmeier equations of the new nonlinear infrared crystal CdSiP₂. *Optics Letters*, 36(10) :1800–1802, 2011.
- [73] W. L. Bond. Measurement of the refractive indices of several crystals. *Journal of Applied Physics*, 36(5) :1674–1677, 1965.
- [74] H. P. Gavin. people.duke.edu/~hpgavin/ce281/lm.pdf.
- [75] B. Boulanger, J. P. Fève, G. Marnier, B. Ménaert, X. Cabirol, P. Villeval, and C. Bonnin. Relative sign and absolute magnitude of d(2) nonlinear coefficients of KTP

- from second-harmonic-generation measurements. *Journal of the Optical Society of America B*, 11(5) :750–757, 1994.
- [76] J. Bohm, E. Chilla, C. Flannery, H. J. Frohlich, T. Hauke, R. B. Heimann, M. Hengst, and U. Straube. Czochralski Growth and Characterization of Piezoelectric Single Crystals with Langasite Structure : $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ (LGS), $\text{La}_3\text{Ga}_5.5\text{Nb}_{0.5}\text{O}_{14}$ (LGN), and $\text{La}_3\text{Ga}_5.5\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$ (LGT). Part II. *Journal of Crystal Growth*, 216 :293–298, 2000.
- [77] J. Stade, L. Bohaty, M. Hengst, and R. B. Heimann. Electro-optic, Piezoelectric and Dielectric Properties of Langasite ($\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$), Langanite ($\text{La}_3\text{Ga}_5.5\text{Nb}_{0.5}\text{O}_{14}$) and Langataite ($\text{La}_3\text{Ga}_5.5\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$). *Crystal Research and Technology*, 37(10) :1113–1120, 2002.
- [78] O. A. Buzanov, N. S. Kozlova, E. V. Zabelina, A. P. Kozlova, and N. A. Siminel. Optical transmission spectra and electrical properties of langasite and langatate crystals as dependent on growth conditions. *Russian Microelectronics*, 40(8) :562–566, 2011.
- [79] H. Kong, J. Wang, H. Zhang, X. Yin, X. Cheng, Y. Lin, X. Hu, X. Xu, and M. Jiang. Growth and characterization of $\text{La}_3\text{Ga}_5.5\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$ crystal. *Crystal Research and Technology*, 39(8) :686–691, 2004.
- [80] H. Kawanaka, H. Takeda, K. Shimamura, and T. Fukuda. Growth and characterization of $\text{La}_3\text{Ta}_{0.5}\text{Ga}_{5.5}\text{O}_{14}$ single crystals. *Journal of Crystal Growth*, 183 :274–277, 1998.
- [81] E. Boursier, P. Segonds, B. Boulanger, C. Félix, J. Debray, D. Jegouso, B. Ménaert, D. Roshchupkin, and I. Shoji. Phase-matching directions, refined Sellmeier equations, and second-order nonlinear coefficient of the infrared Langatate crystal $\text{La}_3\text{Ga}_5.5\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$. *Optics Letters*, 39(13) :4033–4036, 2014.
- [82] V. Petrov, M. Ghotbi, O. Kokabee, A. Esteban-Martin, F. Noack, A. Gaydardzhiev, I. Nikolov, P. Tzankov, I. Buchvarov, K. Miyata, A. Majchrowski, I.V. Kityk, F. Rothermund, E. Michalski, and M. Ebrahim-Zadeh. Femtosecond nonlinear frequency conversion based on BiB_3O_6 . *Laser & Photonics Reviews*, 4(1) :53–98, 2010.
- [83] V. Kemlin. *Parametric infrared generation : from crystals to devices*. PhD thesis, 2013.
- [84] C. Hazera. *NOPCPA ultracourt pompé par CPA fibré haute cadence*. PhD thesis, 2014.
- [85] Communication privée avec Jean-Christophe Delagnes.
- [86] V. Badikov, D. Badikov, G. Shevyrdyaeva, A. Tyazhev, G. Marchev, V. Panyutin, V. Petrov, and A. Kwasniewski. Phase-matching properties of BaGa_4S_7 and BaGa_4Se_7 : Wide-bandgap nonlinear crystals for the mid-infrared. *Physica Status Solidi - Rapid Research Letters*, 5(1) :31–33, 2011.

- [87] C. Hidaka, M. Goto, M. Kubo, and T. Takizawa. Phase diagrams of the pseudo-Binary Systems of BaS–In₂S₃ and BaS–Ga₂S₃. *Journal of Crystal Growth*, 275(1-2) :e439–e443, 2005.
- [88] J. Yao, D. Mei, L. Bai, Z. Lin, W. Yin, P. Fu, and Y. Wu. BaGa₄Se₇ : A new congruent-melting IR nonlinear optical material. *Inorganic Chemistry*, 49(20) :9212–9216, 2010.
- [89] F. Yang, J. Yao, H. Xu, K. Feng, W. Yin, F. Li, J. Yang, S. Du, Q. Peng, J. Zhang, D. Cui, Y. Wu, C. Chen, and Z. Xu. High efficiency and high peak power picosecond mid-infrared optical parametric amplifier based on BaGa₄Se₇ crystal. *Optics Letters*, 38(19) :3903–3905, 2013.
- [90] F. Yang, J. Yao, H. Xu, F. Zhang, N. Zhai, Z. Lin, N. Zong, Q. Peng, J. Zhang, D. Cui, Y. Wu, C. Chen, and Z. Xu. Midinfrared Optical Parametric Amplifier With 6.4–11 μm Range Based on BaGa₄Se₇. *IEEE Photonics Technology Letters*, 27(10) :1100–1103, 2015.
- [91] J. Yao, W. Yin, K. Feng, X. Li, D. Mei, Q. Lu, Y. Ni, Z. Zhang, Z. Hu, and Y. Wu. Growth and characterization of BaGa₄Se₇ crystal. *Journal of Crystal Growth*, 346(1) :1–4, 2012.
- [92] X. Zhang, J. Yao, W. Yin, Y. Zhu, Y. Wu, and C. Chen. Determination of the nonlinear optical coefficients of the BaGa₄Se₇ crystal. *Optics Express*, 23(1) :552–558, 2015.
- [93] Communication privée avec Valentin Petrov.
- [94] E. Boursier, P. Segonds, B. Ménaert, V. Badikov, V. Panyutin, D. Badikov, V. Petrov, and B. Boulanger. Phase-matching directions and refined Sellmeier equations of the monoclinic acentric crystal BaGa₄Se₇. *Optics Letters*, 41(12) :2731–2734, 2016.
- [95] A. Godard. Infrared (2–12 μm) solid-state laser sources : a review. *Comptes Rendus Physique*, 8 :1100–1128, 2007.
- [96] E. Boursier, P. Segonds, J. Debray, P. L. Inácio, V. Panyutin, V. Badikov, D. Badikov, V. Petrov, and B. Boulanger. Angle noncritical phase-matched second-harmonic generation in the monoclinic crystal BaGa₄Se₇. *Optics Letters*, 40(20) :4591–4594, 2015.
- [97] D. E. Zelmon, E. A. Hanning, and P. G. Schunemann. Refractive-index measurements and Sellmeier coefficients for zinc germanium phosphide from 2 to 9 μm with implications for phase matching in optical frequency-conversion devices. *Journal of the Optical Society of America B*, 18(9) :1307, 2001.

ANNEXES

- Annexe A : Calcul des courbes d'accord de phase en configuration non colinéaire
- Annexe B : Liste des publications et des communications

ANNEXE

A

CALCUL DES DIRECTIONS D'ACCORD DE PHASE NON COLINÉAIRES

Pour calculer les directions d'accord de phase en configuration non colinéaire, il faut d'abord considérer l'angle externe θ_{ext} (voir figure 3.32). L'objectif est de trouver sa valeur pour laquelle les vecteurs d'onde \vec{k}_p , \vec{k}_s et \vec{k}_i sont en accord de phase pour un jeu de longueurs d'onde $(\lambda_p, \lambda_s, \lambda_i)$ donné.

L'algorithme du calcul est présentée dans la figure A.1. Pour un triplet de longueurs d'onde $(\lambda_p, \lambda_s, \lambda_i)$ donné, le programme fait varier θ_{ext} entre 0 et 90° . Pour chaque valeur de θ_{ext} , les trois angles θ_p , θ_s et θ_i (voir figure 3.32) sont calculés à partir des trois équations suivantes :

$$\begin{cases} \sin \theta_p = (\sin \theta_{\text{ext}}) / n_o(\lambda_p) \\ (n_o^{-2}(\lambda_s) + \sin^2(\theta_c + \theta_s) [n_e^{-2}(\lambda_s) - n_o^{-2}(\lambda_s)])^{-1/2} \sin \theta_s = \sin \theta_{\text{ext}} \\ (n_o^{-2}(\lambda_i) + \sin^2(\theta_c + \theta_i) [n_e^{-2}(\lambda_i) - n_o^{-2}(\lambda_i)])^{-1/2} \sin \theta_i = \sin \theta_{\text{ext}} \end{cases} \quad (\text{A.1})$$

Ces équations ont été obtenues à partir de la loi de Snell-Descartes appliquée à chaque vecteur d'onde. Les équations relatives à θ_s et θ_i ne sont pas analytiques car l'indice de réfraction associé varie en fonction de l'angle θ_{ext} . Elles doivent donc être

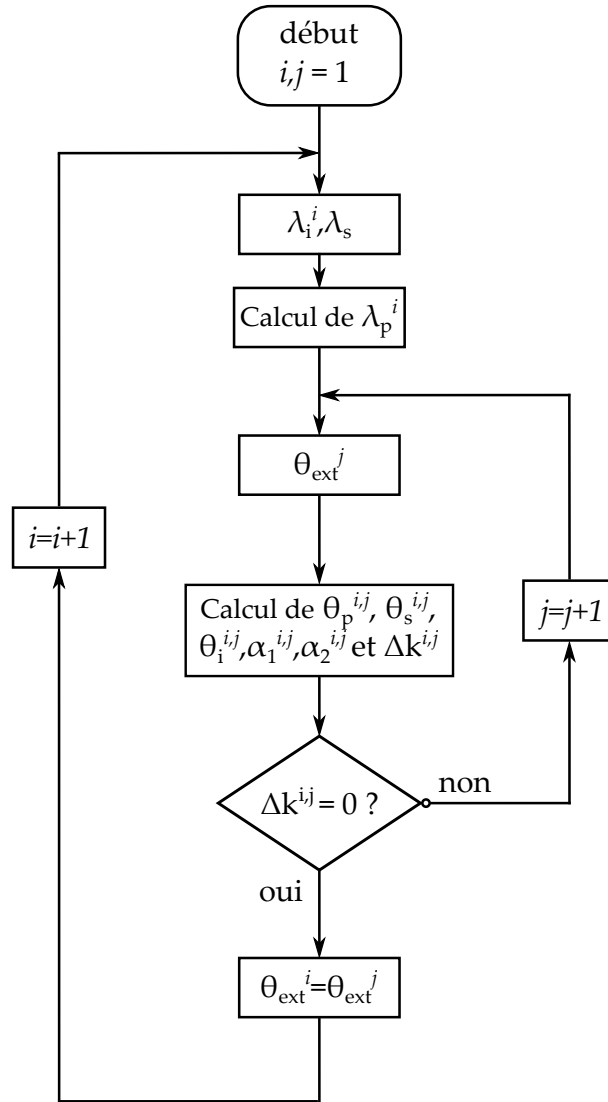


FIGURE A.1 – Algorithme explicitant le calcul des directions d'accord de phase lorsque la non-colinéarité des vecteurs d'onde à l'intérieur de LGT est prise en compte. Le programme permet de tracer la longueur d'onde générée λ_i en fonction des angles d'incidence θ_{ext} pour lesquels l'accord de phase est vérifié.

résolues numériquement.

Une fois que les valeurs de θ_p , θ_s et θ_i ont été obtenues pour chaque valeur de θ_{ext} , le programme calcule les angles α_1 et α_2 de la figure 1.11 correspondants, définis par :

$$\begin{cases} \alpha_1 = |\theta_p - \theta_i| \\ \alpha_2 = |\theta_p - \theta_s| \end{cases} \quad (\text{A.2})$$

Dans un troisième temps, le désaccord de phase non colinéaire de DFG de type I est calculé pour chaque valeur de θ_{ext} , c'est-à-dire pour chaque valeur de θ_p , θ_s , θ_i , α_1 et α_2 . Une fois projeté selon la direction de propagation, il s'écrit :

$$\Delta k = \frac{n_o(\lambda_p)}{\lambda_p} - \frac{n^e(\theta_c + \theta_s, \lambda_s)}{\lambda_s} \cos(\alpha_2) - \frac{n^e(\theta_c + \theta_i, \lambda_i)}{\lambda_i} \cos(\alpha_1) \quad (\text{A.3})$$

où θ_c correspond à l'orientation cristalline de l'échantillon (voir figure 3.32).

Toute solution de $\Delta k = 0$ correspond à la condition d'accord de phase non colinéaire où les trois vecteurs sont en accord de phase. Si cette condition est vérifiée, elle correspond à une valeur particulière de θ_{ext} pour un jeu de longueurs d'onde $(\lambda_p, \lambda_s, \lambda_i)$.

La courbe d'accord de phase en configuration non colinéaire est obtenue en appliquant le protocole précédent pour une multitude de triplets de longueurs d'onde $(\lambda_p, \lambda_s, \lambda_i)$. Ce protocole est résumé par l'algorithme de la figure A.1 où la longueur d'onde λ_i varie, la longueur d'onde λ_s reste fixe, et la variation de λ_p est calculée à partir de la conservation de l'énergie (équation (1.21)).

ANNEXE

B

LISTE DES PUBLICATIONS ET DES COMMUNICATIONS

PUBLICATIONS

1. V. Kemlin, D. Jegouso, J. Debray, **E. Boursier**, P. Segonds, B. Boulanger, H. Ishizuki, T. Taira, G. Mennerat, J. M. Melkonian, and A. Godard. "Dual-wavelength source from 5%MgO :PPLN cylinders for the characterization of nonlinear infrared crystals", *Optics Express*, **21**(23) :28886-28891, 2013.
2. **E. Boursier**, P. Segonds, B. Boulanger, C. Félix, J. Debray, D. Jegouso, B. Ménaert, D. Roshchupkin, and I. Shoji. "Phase-matching directions, refined Sellmeier equations, and second-order nonlinear coefficient of the infrared Langatate crystal $\text{La}_3\text{Ga}_5.5\text{Tao.5O}_{14}$ ", *Optics Letters*, **39**(13) :4033-4036, 2014.
3. **E. Boursier**, P. Segonds, J. Debray, P. L. Inacio, V. Panyutin, V. Badikov, D. Badikov, V. Petrov and B. Boulanger, "Angle noncritical phase-matched second-harmonic generation in the monoclinic crystal BaGa_4Se_7 ", *Optics Letters* **40**(20) :4591-4594, 2015.
4. **E. Boursier**, P. Segonds, B. Ménaert, V. Badikov, V. Panyutin, D. Badikov, V. Petrov, and B. Boulanger. "Phase-matching directions and refined Sellmeier equations of the monoclinic acentric crystal BaGa_4Se_7 ", *Optics Letters*, **41**(12) : 2731-2734, 2016.

Les publications 2., 3. et 4. sont données à la fin de cette annexe.

COMMUNICATIONS ORALES ¹

1. V. Kemlin, D. Jegouso, J. Debray, **E. Boursier**, P. Segonds, B. Boulanger, H. Ishizuki, T. Taira, G. Mennerat, "Widely and independently tunable cylindrical OPOs for difference frequency generation experiments", Non Linear Optics, Hawaii, USA, July 16 – 21, 2013.
2. V. Kemlin, D. Jegouso, J. Debray, **E. Boursier**, P. Segonds, B. Boulanger, H. Ishizuki, T. Taira, G. Mennerat, "All-parametric dual-wavelength source for difference frequency generation experiments", Advanced Solid-State Lasers, Paris, France, October 27 – November 01, 2013.
3. **E. Boursier**, P. Segonds, C. Félix, B. Ménaert, J. Debray, B. Boulanger, D. Roshchupkin, "Phase-matched frequency conversion in the Langatate LGT", Advanced Solid-State Lasers, Paris, France, October 27 – November 01, 2013.
4. **E. Boursier**, P. Segonds, J. Debray., P. L. Inacio, V. Panyutin, V. Petrov, B. Boulanger, "Génération de second harmonique en accord de phase angulaire non critique dans BaGa₄Se₇", Optique Bretagne, Rennes, France, 6-9 Juillet 2015.
5. **E. Boursier**, P. Segonds, J. Debray., P. L. Inacio, V. Panyutin, V. Petrov, B. Boulanger, "Angular noncritical phase-matching second harmonic generation in BaGa₄Se₇", Non Linear Optics, Hawaii, USA, 21-26 July 2015.
6. P. Segonds, B. Boulanger, **E. Boursier**, J. Debray, B. Ménaert, C. Félix, D. Jegouso, A. Pena, V. Boutou, "Full characterization of the nonlinear optical properties of new crystals for the infrared parametric generation", International Conference on Advanced Laser Technologies ALT'15, Faro, Portugal 7-11 September 2015 (Conférence invitée)
7. **E. Boursier**, P. Segonds, J. Debray., P. L. Inacio, V. Panyutin, V. Badikov, D. Badikov, V. Petrov, B. Boulanger, "Angular noncritical phase-matched second harmonic generation in BaGa₄Se₇", Advanced Solid-State Lasers, Berlin, Germany, October 4 – 9, 2015.
8. **E. Boursier**, P. Segonds, B. Ménaert, J. Debray, V. Badikov, V. Panyutin, D. Badikov, V. Petrov, B. Boulanger, "Phase-matching measurements and refinement of Sellmeier equations of the new nonlinear crystal BaGa₄Se₇", Mid-Infrared Coherence Sources, Long Beach, USA, March 20-22, 2016.

1. Le nom du présentateur est souligné

COMMUNICATIONS PAR AFFICHE ²

1. **E. Boursier**, P. Segonds, C. Félix, B. Ménaert, J. Debray, B. Boulanger, D. Roshchupkin, "Phase-matching properties of the Langatate $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$: a new potential nonlinear crystal generating up to $6 \mu\text{m}$ ", 6th EUROPHOTON, Neuchâtel, Switzerland, 24-29 August 2014.
2. **E. Boursier**, P. Segonds, J. Debray, P. L. Inacio, V. Panyutin, V. Badikov, D. Badikov, V. Petrov, B. Boulanger, "Angle noncritical phase-matched second harmonic generation in BaGa_4Se_7 ", 7th International Symposium on Optical Materials, Lyon, France, February 29th to March 4th , 2016.

2. Le nom du présentateur est souligné

Phase-matching directions, refined Sellmeier equations, and second-order nonlinear coefficient of the infrared Langatate crystal $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$

Elodie Boursier,¹ Patricia Segonds,^{1,*} Benoit Boulanger,¹ Corinne Félix,¹ Jérôme Debray,¹ David Jegouso,¹ Bertrand Ménaert,¹ Dmitry Koshchupkin,² and Ichiro Shoji³

¹Institut Néel Centre National de la Recherche Scientifique—Université Joseph Fourier BP 166, F38402 Grenoble Cedex 9, France

²Institute of Microelectronics Technology, Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432, Russia

³Department of Electrical, Electronic, and Communication Engineering Chuo University Kasuga, Bunkyo-ku, Tokyo 112-8551, Japan

*Corresponding author: patricia.segonds@neel.cnrs.fr

Received April 14, 2014; revised May 23, 2014; accepted May 26, 2014;

posted May 27, 2014 (Doc. ID 210046); published June 30, 2014

We directly measured phase-matching directions of second harmonic, sum, and difference frequency generations in the Langatate $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$ (LGT) uniaxial crystal. The simultaneous fit of the data enabled us to refine the Sellmeier equations of the ordinary and extraordinary principal refractive indices over the entire transparency range of the crystal, and to calculate the phase-matching curves and efficiencies of LGT for infrared optical parametric generation. © 2014 Optical Society of America

OCIS codes: (190.2620) Harmonic generation and mixing; (190.4400) Nonlinear optics, materials; (190.4975) Parametric processes.

<http://dx.doi.org/10.1364/OL.39.004033>

Frequency down conversion in nonlinear crystals pumped above $0.5\ \mu\text{m}$ is a preferred route for the design of tunable solid state sources emitting between 2 and $4.5\ \mu\text{m}$, which covers Band II of transparency of the atmosphere. KTP (KTiOPO_4) and periodically poled lithium niobate (PPLN) are the two main crystals for that purpose [1]. But we recently identified Langatate $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$ (LGT) as a possible alternative because very high quality crystals up to 10 cm can be grown using the Czochralski method [2–4]. Up to now LGT has been used for its remarkable piezoelectric properties that can compete with quartz [3–5]. LGT belongs to the 32 trigonal point group [3,5], leading to four nonzero and independent coefficients of the second-order electric susceptibility tensor. And under the Kleinmann assumption, it comes $d_{xxx} = -d_{xyy} = -d_{yyx} = -d_{yxx}$ ($= d_{11}$), where d_{11} stands for the contracted notation [6]. Ordinary and extraordinary principal refractive indices, n_o and n_e , respectively, have been previously determined as a function of the wavelength between 0.36 and $2.32\ \mu\text{m}$ using an oriented prism. This proved that LGT is a positive uniaxial crystal ($n_o < n_e$), and their Sellmeier equations had been used to calculate birefringence phase-matching directions of second harmonic generation [3]. The transparency range of LGT was reported up to $2.4\ \mu\text{m}$ [2,4]; no value of d_{11} has been determined yet, and a damage threshold of $0.65\ \text{GW}/\text{cm}^2$ was measured at $1.064\ \mu\text{m}$ [4].

In this Letter, we report for the first time to the best of our knowledge a complete study of second harmonic generation (SHG), sum frequency generation (SFG), and difference frequency generation (DFG) properties of LGT over its complete transparency range. We started with the direct measurement of the phase-matching directions, which allowed us to refine the Sellmeier equations of the crystal. We also determined the absolute value of d_{11} , pinpointed the optical damage threshold, and worked out calculations for an infrared optical parametric generation (OPG) device using LGT.

The stoichiometric LGT crystal was grown using the Czochralski method. The deviation of concentration of La, Ga, and Ta along the growth axis does not exceed 0.4%, which corresponds to the deviation of an interplanar spacing of $\Delta d/d \sim 10^{-5}$. An oxygen concentration of about 2% was chosen in an argon-oxygen atmosphere in order to reduce the yellow color of the crystal, leading to a reduction of the absorption at the ultraviolet cutoff. Transmission spectra (shown in Fig. 1) were measured in polarized light using a 2.50 mm thick slab oriented along the x axis and polished to optical quality. We used a 0.175 – $3.300\ \mu\text{m}$ Perkin-Elmer Lambda 900 spectrometer associated with a photomultiplier tube from 0.175 to $0.800\ \mu\text{m}$, and a Peltier cooled PbS photodiode from 0.800 to $3.300\ \mu\text{m}$. The part of the spectrum above $3.3\ \mu\text{m}$ was measured by a Bruker FT-IR spectrometer,

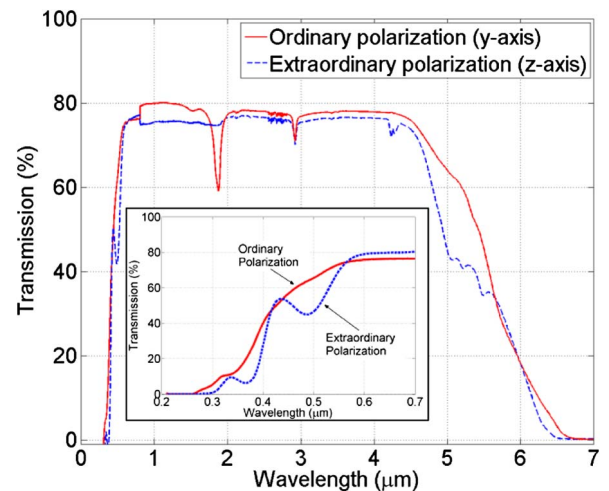


Fig. 1. LGT transmission spectra in polarized light as a function of the wavelength, through a 2.50 mm thick uncoated slab oriented along the x axis. The insert corresponds to a zoom of the ultraviolet edge.

the detection being done with a nitrogen-cooled photodetector made of mercury cadmium telluride (MCT).

We used the sphere method for the phase-matching studies [7]. By shaping the LGT crystal as a sphere with a diameter of 4.70 mm, as shown in the insert of Fig. 2, we were able to accurately perform the direct measurement of any phase-matching direction, the orientation of the sphere being the only data that is mandatory to know. The sphere was polished to optical quality, oriented, and stuck on a goniometric head with an accuracy of orientation better than 0.5° using the Laue method. From the previously published Sellmeier equations of [3], we found that type I SHG ($1/\lambda_o^e + 1/\lambda_o^e = 1/\lambda_{2o}^o$), type I SFG ($1/\lambda_1^e + 1/\lambda_2^e = 1/\lambda_3^o$), and type II DFG ($1/\lambda_3^o - 1/\lambda_2^e = 1/\lambda_1^e$) phase-matching conditions were allowed in the (y, z) plane of LGT with nonzero effective coefficients; exponents o and e stand for the ordinary and extraordinary polarizations, and $\lambda_3 < \lambda_2 < \lambda_1$. Then in order to consider these interactions, the LGT sphere was stuck along the x axis and mounted at the center of an automatic goniometric kappa circle: by this way, a rotation of the sphere around this axis allows any fixed laser beam to propagate in the (y, z) plane of the crystal.

For SHG measurements, only one incoming beam is necessary, while two beams are considered for SFG and DFG experiments. Using a 100 mm focal lens of CaF_2 , the beams were properly focused in the sphere in order to keep the propagation parallel to its diameter for any orientation of the sample [7]. In the cases of SHG and DFG, we used a 15 ps width pulse (FWHM) Excel Technology Nd:YAG laser at 1.064 μm pumping an OPG from Light Conversion tunable between 0.6 and 2.4 μm . For the SHG experiments, we used the OPG beam alone or combined with the 1.064 μm beam in a AgGaS_2 crystal in order to generate between 2.5 and 12 μm . For the DFG measurements, the OPG and 1.064 μm beams were directly combined in the sphere. In the case of SFG, we used our homemade dual optical parametric oscillator (OPO) based on two cylindrical 5% MgO:PPLN crystals simultaneously pumped by a 5-ns-width (FWHM) pulse Nd:YAG laser at 1.064 μm ; it provides two independently tunable beams ranging from 1.4 to 4.4 μm [8]. They were focused in the LGT sphere, the wavelength of one of the two

beams being set at 1.5 μm . The incoming beams directions being fixed, the LGT sphere was rotated on itself, and any SHG, SFG, or DFG phase-matching direction can be measured by detecting the optimum of conversion efficiency. The corresponding angle was directly read on the kappa circle with an accuracy of $\pm 0.5^\circ$. The generated beam was detected thanks to a nitrogen-cooled InSb Hamamatsu detector efficient between 1 and 5.5 μm . The wavelength values were controlled between 0.4 and 1.7 μm using a HR 4000 spectrometer and a NIRquest 512 Ocean Optics spectrometer; the accuracy was ± 1 nm for SHG and DFG, while it was ± 10 nm for SFG. Different achromatic half-wave-plates were used according to the configurations of polarization that had to be considered for the different types of phase-matching.

The measured SHG, SFG, and DFG phase-matching curves giving the generated wavelength as a function of the phase-matching angle θ_{PM} are shown in Figs. 2, 3, and 4, respectively. These figures also give in dashed lines the phase-matching curves calculated using Sellmeier equations of [3]. It highlights a strong discrepancy with our experimental data at long wavelengths, which is probably due to the fact that Sellmeier equations of [3] are not reliable in this spectral range.

Using the Levenberg–Marquardt algorithm, we fitted simultaneously all the experimental data using the proper phase-matching relations, i.e., $n_e(\lambda_o, \theta_{\text{PM}}) = n_o(\lambda_{2o})$ for SHG and $n_o(\lambda_3)\lambda_3^{-1} - n_e(\lambda_2, \theta_{\text{PM}})\lambda_2^{-1} - n_e(\lambda_1, \theta_{\text{PM}})\lambda_1^{-1} = 0$ for SFG and DFG. We tested different forms of Sellmeier equations, and the best result was obtained with that given in [3], i.e.,

$$n_j^2(\lambda) = A_j + \frac{B_j}{\lambda^2 - C_j} - D_j\lambda^2, \quad (1)$$

where λ is in μm , and j stands for o and e . The corresponding fitting parameters A_j , B_j , C_j , and D_j are given in Table 1.

As expected, Figs. 2–4 clearly show that the interpolated tuning curves are much better in agreement with the experimental data than the calculations based on Sellmeier equations of [3]. It can be explained by the fact

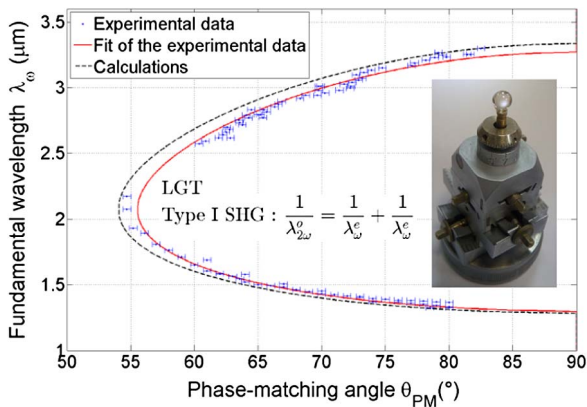


Fig. 2. Type I SHG tuning curve of LGT. λ_o is plotted as a function of the phase-matching angle θ_{PM} ; the calculations were done from the Sellmeier equations of [3]. The picture shows the 4.70-mm-diameter LGT sphere stuck on a goniometric head.

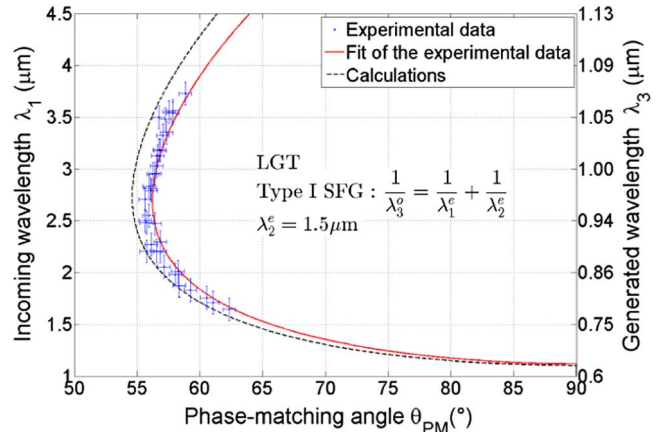


Fig. 3. Type I SFG tuning curve of LGT. λ_1 and λ_3 are plotted as a function of the phase-matching angle θ_{PM} ; calculations were done from Sellmeier equations of Ref. [3].

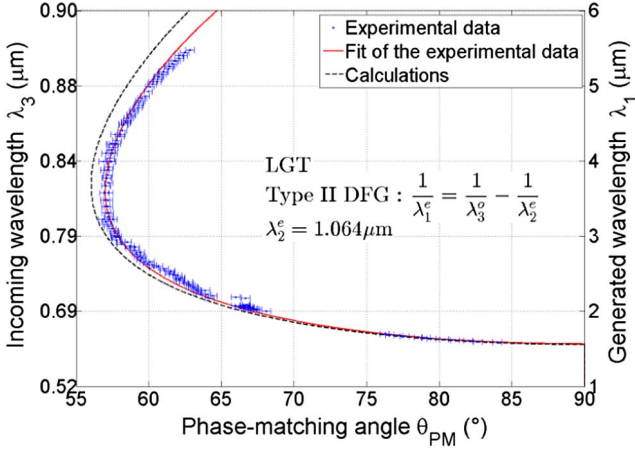


Fig. 4. Type II DFG tuning curve of LGT. λ_3 and λ_1 are plotted as a function of the phase-matching angle θ_{PM} ; calculations were done from Sellmeier equations of Ref. [3].

that the precision of our angular measurements, i.e., $\pm 0.5^\circ$, leads to an accuracy $\Delta n_{o,e}/n_{o,e}$ better than 10^{-4} , while it typically is about 10^{-3} when using the prism method. Figure 5 shows the range of validity of our Sellmeier equations; it corresponds to the range of the sphere measurements, i.e., 0.55–1.6 μm for n_o and 1–5.5 μm for n_e , which enables the calculation of the phase-matching angles over the entire transparency range of the crystal.

From SHG in the (y, z) plane we determined the absolute value of d_{11} of LGT, the corresponding effective coefficient being $d_{\text{eff}}^{\text{LGT}} = d_{11}^{\text{LGT}}(\lambda_{2\omega_1})\cos^2(\theta_{PM_1})$. We performed a relative measurement using as a reference type II SHG ($1/\lambda_{\omega_2}^e + 1/\lambda_{\omega_2}^o = 1/\lambda_{\omega_2}^o$) in the (x, z) plane of KTP. The LGT and KTP crystals were cut as slabs with the same thickness $L = 500 \mu\text{m}$. We chose fundamental wavelengths the closest as possible, i.e., $\lambda_{\omega_1} = 1.34 \mu\text{m}$ for LGT and $\lambda_{\omega_2} = 1.32 \mu\text{m}$ for KTP, in order to get rid of the spectral response of the setup. The corresponding phase-matching angle is $(\theta_{PM_2} = 58.5^\circ, \varphi_{PM_2} = 0^\circ)$ for KTP, where the effective coefficient that is involved is $d_{\text{eff}}^{\text{KTP}} = d_{24}^{\text{KTP}}(\lambda_{2\omega_2})\sin(\theta_{PM_2})$ with $d_{24}^{\text{KTP}}(\lambda_{2\omega_2} = 0.66 \mu\text{m}) = 2.37 \pm 0.17 \text{ pm/V}$ [7]. The LGT slab was cut at $(\theta_{PM_1} = 79^\circ, \varphi_{PM_1} = 90^\circ)$, according to the phase-matching curve of Fig. 2 previously determined using the sphere method, which then enables the determination of $d_{11}^{\text{LGT}}(\lambda_{2\omega_1} = 0.67 \mu\text{m})$.

The incoming beam delivered by the OPG was focused in the two slabs with a 75 mm focal lens of CaF_2 . It corresponds to a beam waist diameter $w_o = 120 \mu\text{m}$ leading to a spatial walk-off attenuation that is negligible for LGT

Table 1. Refined Sellmeier Coefficients Relative to the Ordinary (n_o) and Extraordinary (n_e) Principal Refractive Indices of $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$

Sellmeier Coefficients	$j = o$	$j = e$
A_j	3.6485	3.7451
B_j	0.0444	0.0360
C_j	0.0138	0.2503
D_j	0.0096	0.0102

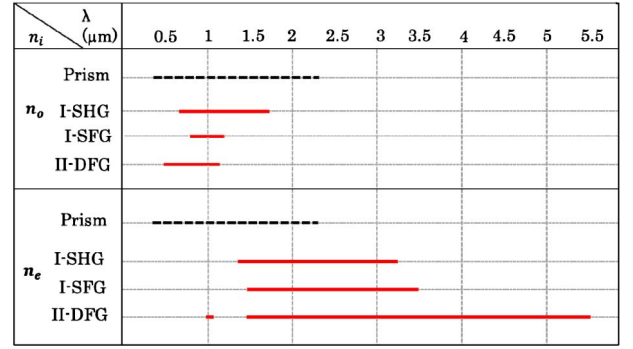


Fig. 5. Wavelength ranges over which the ordinary (n_o) and extraordinary (n_e) principal refractive indices were solicited by our type I SHG, I SFG and II DFG sphere measurements (continuous lines) and the prism method of [3] (dotted lines).

as well as for KTP, i.e., $G(L, w_o, \rho) = 0.999$ for LGT and 0.987 for KTP, where ρ is the walk-off angle [6]. The corresponding Rayleigh length is $Z_r = 30 \text{ mm}$; it is much longer than the thickness L of the two slabs, which ensures a propagation in the parallel beam approximation. The fundamental energy was measured with an Ophir PE10 energy-meter. It was set around 20 μJ , in order to remain in the undepleted pump approximation [6]. The second harmonic energy was detected by an amplified Si Hamamatsu C2719 photodiode. It was necessary to use an optical density $D = 10^{-3}$ for KTP in order to have a signal of same order of magnitude than for LGT.

From the conversion efficiency measurements we found the following ratio between figures of merit FOM^{LGT} of LGT and FOM^{KTP} of KTP,

$$\frac{\text{FOM}^{\text{LGT}}}{\text{FOM}^{\text{KTP}}} = 1.3 \times 10^{-3} \cdot \frac{T_o^{\text{KTP}}(\lambda_{2\omega_2})T_o^{\text{KTP}}(\lambda_{\omega_2})T_e^{\text{KTP}}(\lambda_{\omega_2})\lambda_{\omega_1}^2}{T_o^{\text{LGT}}(\lambda_{2\omega_1})[T_e^{\text{LGT}}(\lambda_{\omega_1})]^2\lambda_{\omega_2}^2} = 1.5 \times 10^{-3}, \quad (2)$$

with

$$\text{FOM}^{\text{KTP}} = \frac{(d_{\text{eff}}^{\text{KTP}})^2}{n_o^{\text{KTP}}(\lambda_{2\omega_2})n_e^{\text{KTP}}(\lambda_{\omega_2}, \theta_{PM_2})n_o^{\text{KTP}}(\lambda_{\omega_2})} \quad (3)$$

and

$$\text{FOM}^{\text{LGT}} = \frac{(d_{\text{eff}}^{\text{LGT}})^2}{n_o^{\text{LGT}}(\lambda_{2\omega_1})[n_e^{\text{LGT}}(\lambda_{\omega_1}, \theta_{PM_1})]^2}, \quad (4)$$

where n_o and n_e are the calculated ordinary and extraordinary refractive indices at $\lambda_{\omega_1} = 1.34 \mu\text{m}$ for LGT or $\lambda_{\omega_2} = 1.32 \mu\text{m}$ for KTP at the phase-matching angles θ_{PM_1} and θ_{PM_2} defined above, and T_o and T_e are the corresponding Fresnel transmission coefficients. As an example, we give in Fig. 6 the normalized second harmonic energy measured at the output of the LGT slab as a function of the wavelength around the value λ_{ω_1} . The corresponding spectral acceptance $L \cdot \delta\lambda_\omega = 27 \text{ cm} \cdot \text{nm}$ is in very good agreement with the calculation performed with our refined Sellmeier equations. From Eqs. (2)–(4) we find that $|d_{11}(0.67 \mu\text{m})| = 2.4 \pm 0.4 \text{ pm/V}$, which

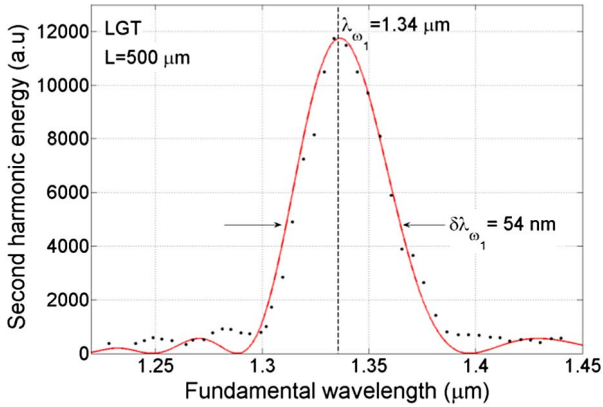


Fig. 6. Second harmonic energy as a function of the fundamental wavelength λ_{ω} at the exit of a 500 μm thick LGT slab oriented at $\theta_{\text{PM}} = 79^\circ$ and $\varphi_{\text{PM}} = 90^\circ$. Dots correspond to experiments and the continuous line to calculation from our improved Sellmeier equations.

leads to a Miller index of $\delta_{11} = 0.205 \text{ pm}/\text{V}$: it is two times lower than that of δ_{24} of KTP [7,9]. Note that the figure of merit of LGT is particularly weak in the present experiment, i.e., $\text{FOM}^{\text{LGT}} = 1.1 \times 10^{-3} \text{ pm}^2/\text{V}^2$, because the trigonometric function $\cos^2(\theta_{\text{PM}_1} = 79^\circ)$ is not favorable in the considered phase-matching direction.

Finally, the optical damage was studied by illuminating the 500 μm thick LGT slab with a 5 ns (FWHM)/10 Hz repetition rate Nd:YAG laser at 1.064 μm . Focused on the sample with a 100-mm-focal lens, the beam waist diameter was 220 μm at the crystal input surface. The optical damage threshold was determined from the observation of the early stage damage of the input surface after several one-minute shootings, the energy being increased by 0.25 mJ increments between two successive shootings, and measured using an Ophir P50 energy-meter. A surface damage appeared at 8.25 mJ, corresponding to a peak power density of 4.34 GW/cm^2 at 1.064 μm . We were not able to damage the input surface of KTP studied in the same conditions when reaching 14 mJ corresponding to the maximal value of input energy and to a power density of 7.36 GW/cm^2 at its surface.

Using our refined Sellmeier equations, type II and III OPG tuning curves associated with maximal conversion efficiency have been calculated. Figure 7 gives the idler (λ_i) and signal (λ_s) wavelengths as a function of the phase-matching angle θ_{PM} , with $\lambda_p < \lambda_s < \lambda_i$ and $\lambda_s^{-1} + \lambda_i^{-1} = \lambda_p^{-1}$. We selected several pump wavelengths emitted by a femtosecond Ti:sapphire laser, i.e., $\lambda_p = 0.750$, 0.850, and 0.964 μm . Figure 7 shows that it is possible to generate up to 6.5 μm by tuning the phase-matching angle in the type II configuration, as well as to emit a super continuum when LGT is pumped at $\lambda_p = 0.964 \mu\text{m}$ and oriented at ($\theta_{\text{PM}} = 56^\circ$, $\varphi_{\text{PM}} = 90^\circ$); it corresponds to the highest value of the spectral acceptance in this crystal, which may lead to a super continuum ranging between 1.5 and 3.5 μm . Furthermore, the figure of merit associated with type II OPG reaches $0.027 \text{ pm}^2/\text{V}^2$ and it is almost two times higher than that of type III OPG. However, it is worse when the two other pump wavelengths are considered.

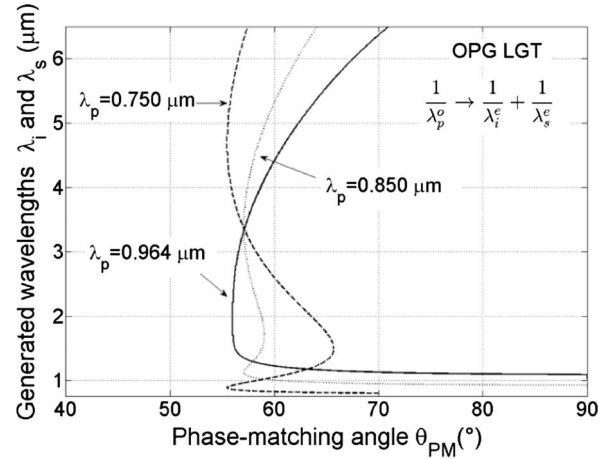


Fig. 7. Calculated type II OPG ($\lambda_p^o, \lambda_s^e, \lambda_i^e$) tuning curves in the (y, z) plane of LGT with a pump wavelength λ_p of 0.750, 0.850, and 0.964 μm . λ_i and λ_s are the idler and signal wavelengths, respectively.

In conclusion, we determined the full transmission spectra in polarized light, the phase-matching angles, and wavelength ranges of SHG, SFG, and DFG in the Langatate crystal $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$ (LGT). Our experimental data can be used *per se* but they also allowed us to refine the Sellmeier equations.

From SHG conversion efficiency measurements, we found that the second-order nonlinearity of LGT is very close to that of KTP, and the damage threshold of LGT is high but lower than that of KTP. From our refined Sellmeier equations, we showed that LGT can generate a super continuum between 1.5 and 3.5 μm when pumped at 0.964 μm . All these good indicators put LGT as a new promising nonlinear crystal for the near infrared, and especially above 2 μm that covers Band II of transparency of the atmosphere. Furthermore, LGT can be grown to about 10 cm with very high purity enabling us to work with laser beams of large diameter that permits to work at high energies while remaining below the damage threshold power density of the crystal.

References

1. A. Godard, C. R. Phys. **8**, 1100 (2007).
2. O. A. Buzanov, N. S. Kozlova, E. V. Zabelina, A. P. Kozlova, and N. A. Siminel, Russ. Microelectron. **40**, 562 (2011).
3. J. Stadel, L. Bohaty, M. Hengst, and R. B. Heimann, Cryst. Res. Technol. **37**, 1113 (2002).
4. H. Kong, J. Wang, H. Zhang, X. Yin, X. Cheng, Y. Lin, X. Hu, X. Xu, and M. Jiang, Cryst. Res. Technol. **39**, 686 (2004).
5. J. Bohm, E. Chilla, C. Flannery, H.-J. Fröhlich, T. Hauke, R. B. Heimann, M. Hengst, and U. Straube, J. Cryst. Growth **216**, 293 (2000).
6. B. Boulanger and J. Zyss, in *International Tables for Crystallography*, A. Authier, ed., Vol. D of Physical Properties of Crystals (Kluwer Academic, 2004), pp. 178–219.
7. B. Boulanger, J. P. Fève, G. Marnier, C. Bonnin, P. Villeval, and J. J. Zondy, J. Opt. Soc. Am. B **14**, 1380 (1997).
8. V. Kemlin, D. Jegouso, J. Debray, E. Boursier, P. Segonds, B. Boulanger, H. Ishizuki, T. Taira, G. Mennerat, J. M. Melkonian, and A. Godard, Opt. Express **21**, 28886 (2013).
9. R. C. Miller, Appl. Phys. Lett. **5**, 17 (1964).

Optics Letters

Angle noncritical phase-matched second-harmonic generation in the monoclinic crystal BaGa₄Se₇

ELODIE BOURSIER,^{1,2} PATRICIA SEGONDS,^{1,2,*} JÉRÔME DEBRAY,^{1,2} PATRICIA L. INÁCIO,^{1,2} VLADIMIR PANYUTIN,³ VALERIY BADIKOV,⁴ DMITRII BADIKOV,⁴ VALENTIN PETROV,³ AND BENOÎT BOULANGER^{1,2}

¹Université Grenoble Alpes, Institut NEEL, F-38042 Grenoble, France

²CNRS, Institut NEEL, F-38042 Grenoble, France

³Max-Born-Institute for Nonlinear Optics and Ultrafast Spectroscopy, Max-Born-Str. 2A, 12489 Berlin, Germany

⁴High Technologies Laboratory, Kuban State University, 149 Stavropolskaya Str., 350040 Krasnodar, Russia

*Corresponding author: patricia.segonds@neel.cnrs.fr

Received 11 August 2015; accepted 6 September 2015; posted 10 September 2015 (Doc. ID 247372); published 5 October 2015

We performed a complete study of angle noncritical phase-matched second-harmonic generation in BaGa₄Se₇ in the mid-infrared region. We measured the dielectric frame orientation and showed that it does not rotate as a function of wavelength. We determined the phase-matching wavelengths and the associated spectral and angular acceptances along the x and y axes of the dielectric frame. We also estimated the magnitude of the nonlinear coefficients involved. © 2015 Optical Society of America

OCIS codes: (190.2620) Harmonic generation and mixing; (190.4400) Nonlinear optics, materials; (190.4975) Parametric processes.

<http://dx.doi.org/10.1364/OL.40.004591>

Coherent light sources emitting in transparency band III of the atmosphere (8–12 μm) can be designed using frequency down-conversion in nonlinear optical crystals. Desirable properties are large quadratic nonlinear coefficients, wide transparency ranges, and high damage thresholds. A potential alternative is the newly developed BaGa₄Se₇ (BGSe). Compared with other well-known selenide crystals with similar transparency ranges, such as AgGaSe₂ (AGSe) and GaSe, the advantages of BGSe include a wider bandgap leading to a higher damage threshold, improved thermomechanical properties, as well as the capability to be pumped at 1064 nm without two-photon absorption [1]. BGSe is transparent between 0.47 and 18 μm and can be grown in a large size by the Bridgman–Stockbarger method [2]. It belongs to the m monoclinic point group and the special axis perpendicular to the mirror plane m is parallel to the x axis of the dielectric frame [3]. Consequently, the six non-zero and independent components of the second-order electric susceptibility tensor defined in this frame are the following under Kleinman assumption and using the contracted notation: d_{23} , d_{31} , d_{32} , d_{21} , d_{22} , and d_{33} . Sellmeier's equations of the three principal refractive indices n_x , n_y , and n_z have been determined using two oriented prisms [3]. They were used

to calculate the birefringence phase-matching directions of second-harmonic generation (SHG) [3]. The magnitude and sign of all nonlinear coefficients of BGSe have been calculated from the electronic band structure [4]. Experimental values of d_{22} and d_{23} have been determined at 0.532 μm using the Maker fringes method and KDP as a reference [5].

In this Letter, we determined the orientation of the dielectric frame (x, y, z) of BGSe and showed that it does not rotate as a function of wavelength. From this result, we studied type-I and type-II angle noncritical phase-matched (NCPM) SHG along x and y axes. We measured the corresponding fundamental wavelengths and the associated conversion efficiencies as well as spectral and angular acceptances. We also determined the magnitude of the nonlinear coefficients d_{31} , d_{32} , and d_{23} of BGSe relative to d_{24} of KTP.

By convention, the \mathbf{b} axis of the crystallographic frame ($\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c}$) of BGSe is taken as the special (monoclinic) axis. It is then perpendicular to the mirror plane m containing the two other axes, i.e., \mathbf{a} and \mathbf{c} , making an angle of $\beta = 121.2^\circ$ between them. Consequently, the crystallographic frame does not correspond to the orthogonal dielectric frame (x, y, z): x axis is parallel to \mathbf{b} , whereas y axis and z axis are located in the mirror plane m .

We measured the relative orientation between the dielectric and crystallographic frames by combining x -ray backscattered Laue geometry and conoscopy at 0.633 μm . We used a sample cut as a slab with two polished faces perpendicular to \mathbf{b} . We found that z axis is collinear with \mathbf{c} and that the angle between \mathbf{a} and y axis is $\alpha = 31.2 \pm 0.5^\circ$, as shown in the insert in Fig. 1.

As for any monoclinic crystal, we had to verify if the relative orientation between the crystallographic and dielectric frames varied as a function of wavelength. For that purpose, the BGSe slab was inserted between two crossed polarizers. It was rotated around its \mathbf{b} axis while illuminated by light. We used a tunable 5 ns pulse duration (FWHM) and a 10 Hz repetition rate optical parametric oscillator (OPO) from Continuum. The transmitted intensity follows Malus' law where the positions of the

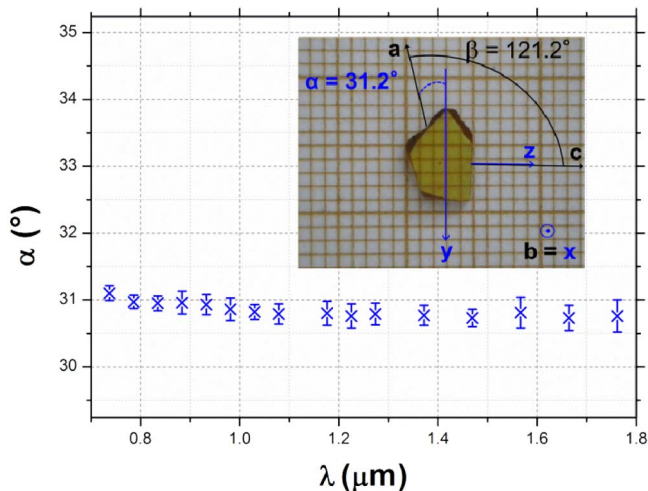


Fig. 1. Variation of angle α between the dielectric frame (x, y, z) and the crystallographic frame (**a, b, c**) as a function of wavelength. A picture of a BGSe sample used for the measurement is shown in the insert.

minima directly indicate the orientation of the dielectric frame axes [6]. By tuning the OPO, we had direct access to the dispersion of the angle between the dielectric and crystallographic frames as a function of wavelength. As shown in Fig. 1, α remains constant up to $\lambda = 1.8 \mu\text{m}$ within the accuracy of our measurements. Then we do not expect any rotation of the dielectric frame of BGSe in the mid-infrared.

Angle NCPM corresponds to propagation along the dielectric axes. It has the advantage of a vanishing walk-off angle and a wide angular acceptance. In the case of BGSe, the effective nonlinear coefficient is nonzero in the case of type-I SHG ($z^\omega z^{2\omega} - y^{2\omega}$) and type-II SHG ($y^\omega z^\omega - y^{2\omega}$) for propagation along x axis, and for type-II SHG ($x^\omega z^\omega - x^{2\omega}$) along y axis, where $x^\omega, 2\omega$, $y^\omega, 2\omega$, and z^ω stand for the directions of polarization of the fundamental (ω) and second-harmonic (2ω) waves in the dielectric frame.

We used two BGSe slabs cut along x and y axes with thicknesses of L equal to 0.55 and 0.36 mm, respectively. All the samples were stuck on a goniometric head with the z axis in the rotation plane. They were successively placed at the center of the Euler circle. The angular accuracy of the goniometric setup is $\pm 0.1^\circ$. The fundamental beam was tunable between 0.4 and 10 μm : it was emitted by a 15 ps pulse duration (FWHM) and 10 Hz repetition rate optical parametric generator (OPG) from Light Conversion, in conjunction with a difference frequency generation (DFG) stage based on a AgGaS₂ (AGS) crystal. The OPG and DFG beams were polarized linearly. They were focused through a 100 mm focal length CaF₂ lens. The beam waist diameter was about 90 μm over the wavelength range that was considered for the present experiments, i.e., from 1.7 to 3.6 μm . The corresponding Rayleigh length is equal to 10 mm, which is larger than the samples' thickness by more than one order of magnitude, ensuring parallel beam propagation inside the crystals. For type-I SHG, the polarization of the fundamental beam was oriented along z axis. For type-II SHG, the polarization was rotated by 45° , thanks to an achromatic half-wave plate (HWP). The experimental setup is shown in Fig. 2.

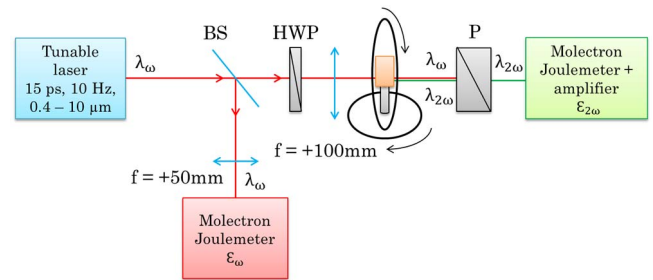


Fig. 2. Experimental setup used for the study of angle NCPM SHG.

The fundamental and second-harmonic energies ϵ_ω and $\epsilon_{2\omega}$ were simultaneously measured at λ_ω and $\lambda_{2\omega} = \lambda_\omega/2$, respectively. A J4-09 Molelectron pyroelectric joulemeter with a beam splitter (BS) and a 50 mm focal length CaF₂ lens was used for measuring ϵ_ω . A polarizer (P) allowed us to remove the residual fundamental beam for the type-I SHG experiment, whereas a cutoff filter was added for type-II SHG. A J3-05 Molelectron joulemeter combined with a PEM531 amplifier was placed after the polarizer to measure $\epsilon_{2\omega}$.

The SHG conversion efficiency $\eta = \epsilon_{2\omega}/\epsilon_\omega$ was directly recorded as a function of the fundamental wavelength for each configuration. The corresponding experimental data are shown in Figs. 3–8 for type-I and type-II SHG along x axis and type-II SHG along y axis. The continuous lines correspond to a sinc² fit. They are compared with calculations using Sellmeier's equations from [3].

The phase-matching wavelengths λ_ω listed in Table 1 correspond to the maxima of the curves in Figs. 3, 5, and 7. The accuracy is ± 5 nm. These experimental data are compared with the theoretical fundamental phase-matching wavelengths, λ_ω^{th} , calculated using Sellmeier's equations from [3]. It appears that all the experimental data are shifted from the calculated ones, indicating that Sellmeier's equations do not have sufficient accuracy.

Figures 3–8 allowed us to measure the spectral acceptances, $L\delta\lambda_\omega$, and angular acceptances, $L\delta\theta$, from the widths of the

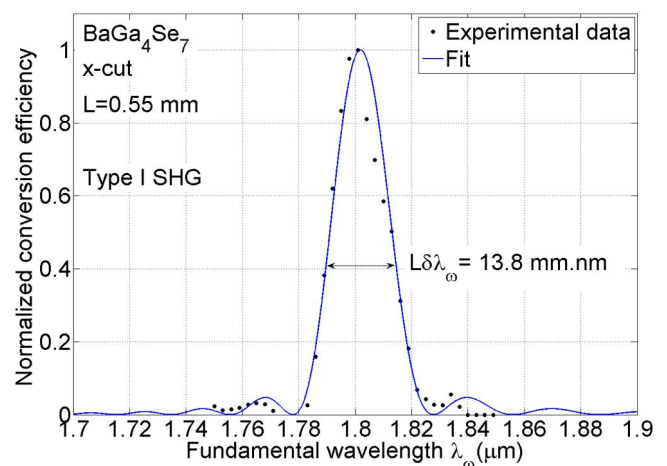


Fig. 3. Normalized conversion efficiency of angle NCPM type-I SHG in an x -cut BGSe crystal as a function of the fundamental wavelength λ_ω .

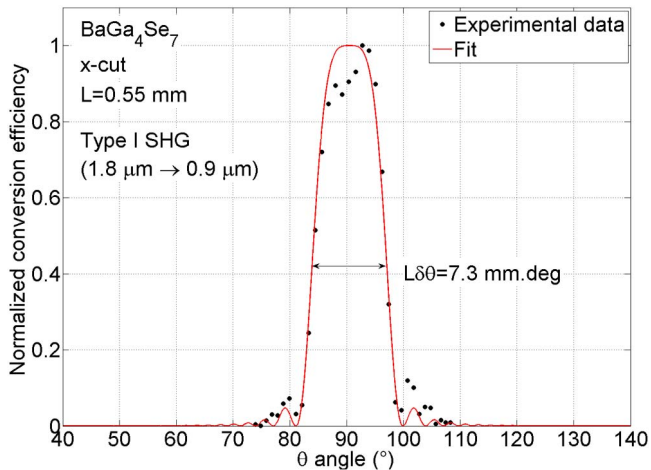


Fig. 4. Normalized conversion efficiency of angle NCPM type-I SHG in an x -cut BGSe crystal as a function of angle θ around 90° in the (x, z) plane.

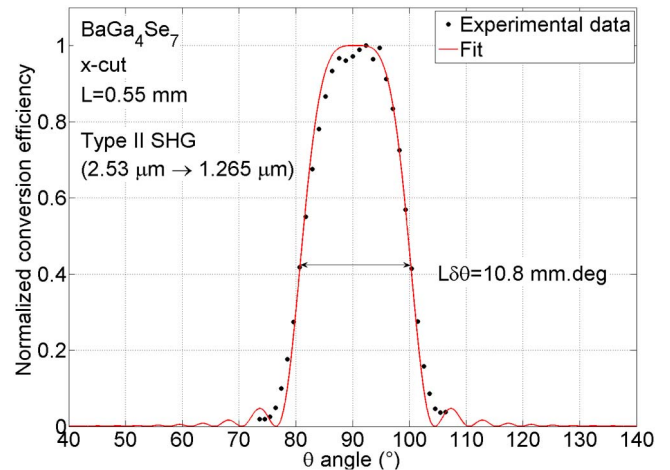


Fig. 6. Normalized conversion efficiency of angle NCPM type-II SHG in an x -cut BGSe crystal as a function of angle θ around 90° in the (x, z) plane.

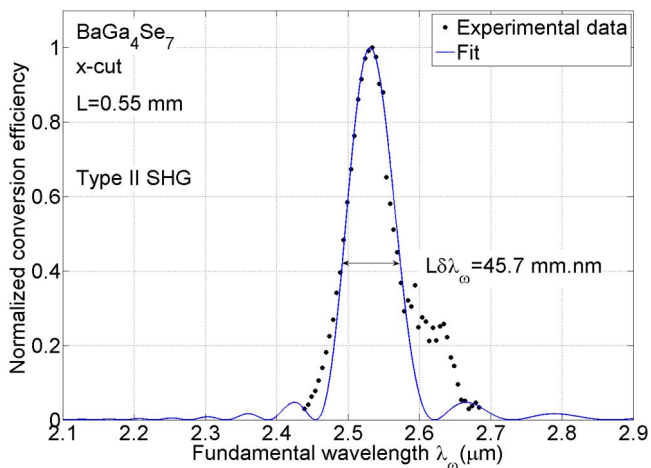


Fig. 5. Normalized conversion efficiency of angle NCPM type-II SHG in an x -cut BGSe crystal as a function of the fundamental wavelength λ_ω .

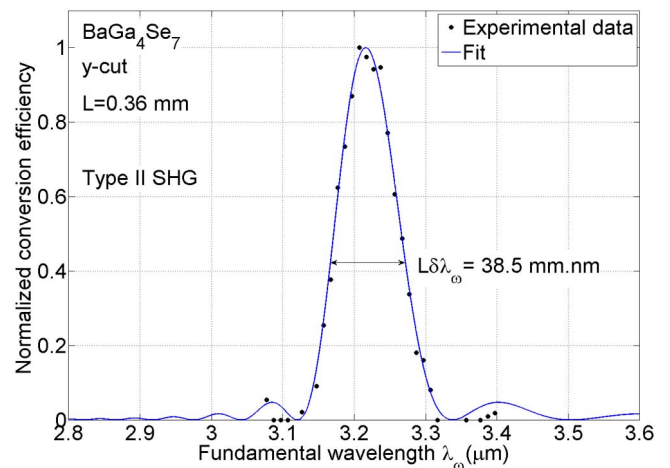


Fig. 7. Normalized conversion efficiency of angle NCPM type-II SHG in a y -cut BGSe crystal as a function of the fundamental wavelength λ_ω .

phase-matching peaks at 0.405 of their maximum. They are summarized in Table 1.

The angle NCPM SHG wavelengths and acceptances can be used *per se* for applications. But the peak values of the conversion efficiency can also be used for the determination of the absolute value of several nonlinear coefficients of BGSe: d_{23} and d_{32} along x axis from type-I and type-II SHG, respectively, and d_{31} from type II along y axis. Their magnitude was determined relative to the nonlinear coefficient d_{24}^{KTP} of KTP from type-II phase-matched SHG.

We performed each set of relative measurements at the same wavelength in order to get rid of the experimental setup spectral response. This was possible by cutting three slabs of KTP at the proper SHG phase-matching angles calculated using Sellmeier's equations from [7]: two 0.5-mm-thick slabs cut at $(\theta = 50.6^\circ, \varphi = 0^\circ)$ for $\lambda_\omega = 1.80 \mu\text{m}$ and $(\theta = 56.6^\circ, \varphi = 0^\circ)$ for $\lambda_\omega = 2.53 \mu\text{m}$, and one 0.46-mm-thick slab cut at

$(\theta = 77.5^\circ, \varphi = 0^\circ)$ for $\lambda_\omega = 3.22 \mu\text{m}$. The associated effective nonlinear coefficient is $d_{\text{eff}}^{\text{KTP}} = d_{24}^{\text{KTP}}(\lambda_{2\omega}) \sin(\theta)$. We took as a reference of $d_{24}^{\text{KTP}}(0.66 \mu\text{m}) = 2.37 \pm 0.17 \text{ pm/V}$ [7]. Then we used Miller's rule in order to determine d_{24}^{KTP} at the second-harmonic wavelength corresponding to each of our measurements.

The conversion efficiencies of the BGSe and KTP slabs, η_{BGSe} and η_{KTP} , respectively, were recorded at the same phase-matching wavelength. From their measurement at low conversion, in order to avoid saturation, it was possible to calculate the magnitude of the nonlinear coefficient that is excited using

$$d_{ij}^2 = \frac{A_{\text{LII}} \eta_{\text{BGSe}} L_{\text{KTP}}^2}{A_{\text{KTP}} \eta_{\text{KTP}} L_{\text{BGSe}}^2} \frac{G_{\text{BGSe}}}{G_{\text{KTP}}} [d_{24}^{\text{KTP}} \sin(\theta)]^2. \quad (1)$$

G_{BGSe} and G_{KTP} are the attenuation functions due to the spatial walk-off in the considered directions of propagation. $G_{\text{BGSe}} = 1$ since the walk-off angle vanishes along x and y axes

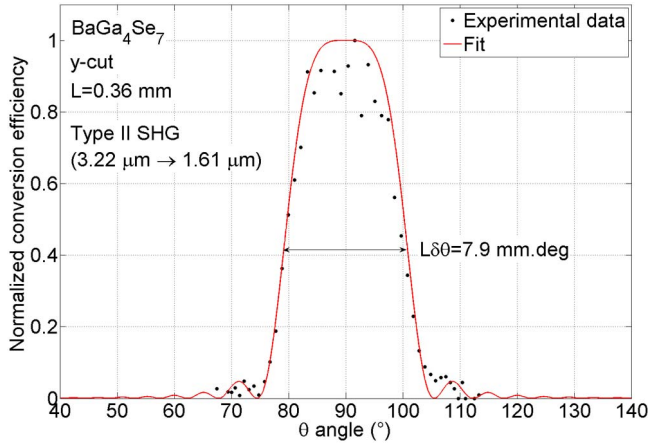


Fig. 8. Normalized conversion efficiency of angle NCPM type-II SHG in a y -cut BGSe crystal as a function of angle θ around 90° in the (x, z) plane.

Table 1. Parameters of Angle NCPM SHG in BGSe

Sample	x -cut	x -cut	y -cut
NCPM Type	I	II	II
L (mm)	0.55	0.55	0.36
λ_ω (μm)	1.80	2.53	3.22
$\lambda_\omega^{\text{th}}$ (μm) [3]	1.93	2.76	2.39
$L\delta\lambda_\omega$ (mm-nm)	13.8	45.7	38.5
$L\delta\theta$ (mm-deg)	7.3	10.8	7.9
$\lambda_{2\omega}$ (μm)	$ d_{23} $ (pm/V)	$ d_{32} $ (pm/V)	$ d_{31} $ (pm/V)
0.532 [5]	20.4	Low	—
0.532 (this work)	14.2 ± 0.8	5.0 ± 0.4	2.0 ± 0.3
5.3 (this work)	9.5 ± 0.5	3.3 ± 0.3	1.3 ± 0.2

and $G_{\text{KTP}} = 0.98$ due to the small thickness of the samples. The factors A are given by

$$A_{\text{KTP}} = \left[\frac{n_y^{\text{KTP}}(\lambda_{2\omega}) n_y^{\text{KTP}}(\lambda_\omega) n_{xz}^{\text{KTP}}(\lambda_\omega, \theta)}{T_y^{\text{KTP}}(\lambda_{2\omega}) T_y^{\text{KTP}}(\lambda_\omega) T_{xz}^{\text{KTP}}(\lambda_\omega, \theta)} \right], \quad (2)$$

$$A_{\text{I,II}} = \left[\frac{n_p^{\text{BGSe}}(\lambda_{2\omega}) n_q^{\text{BGSe}}(\lambda_\omega) n_{q,p}^{\text{BGSe}}(\lambda_\omega)}{T_p^{\text{BGSe}}(\lambda_{2\omega}) T_q^{\text{BGSe}}(\lambda_\omega) T_{q,p}^{\text{BGSe}}(\lambda_\omega)} \right], \quad (3)$$

where $n_p^{\text{BGSe}}(\lambda_{2\omega})$, $n_q^{\text{BGSe}}(\lambda_{2\omega})$, and $n_{p,q}^{\text{BGSe}}(\lambda_\omega)$ stand for the principal refractive indices of BGSe: $(p, q) = (y, z)$ for propagation along x axis and $(p, q) = (x, z)$ along y axis. $T_p^{\text{BGSe}}(\lambda_{2\omega})$, $T_q^{\text{BGSe}}(\lambda_{2\omega})$, and $T_{p,q}^{\text{BGSe}}(\lambda_\omega)$ are the corresponding transmission coefficients (per surface). These data were calculated from the principal refractive indices of BGSe and KTP [3,7].

From the measurement of the ratio $\eta_{\text{BGSe}}/\eta_{\text{KTP}}$ and from Eqs. (1)–(3), we found the following: $|d_{23}(0.9 \mu\text{m})| = 11.3 \pm 0.8 \text{ pm/V}$, $|d_{32}(1.265 \mu\text{m})| = 3.7 \pm 0.4 \text{ pm/V}$, and $|d_{31}(1.61 \mu\text{m})| = 1.2 \pm 0.3 \text{ pm/V}$, the indicated wavelength being the second harmonic one, i.e., $\lambda_{2\omega}$. After applying Miller's rule, these coefficients can be compared to those

measured previously [5] at $0.532 \mu\text{m}$, as shown in Table 1. There is a disagreement for d_{23} . Possible explanations could be the difference of methods that are used, i.e., phase-matching in this work versus Maker fringes, as well as the different reference crystals employed: we used KTP whose nonlinearity is closer to that of BGSe, as compared with KDP used in [5] for which $d_{36} = 0.39 \text{ pm/V}$.

Since the main application potential of BGSe is in the mid-infrared [8,9], we also provided in Table 1 the magnitude of d_{23} , d_{32} , and d_{31} for SHG at a fundamental wavelength of $10.6 \mu\text{m}$ (CO_2 laser emission). The magnitude of d_{23} at this wavelength is a few times lower compared with the nonlinearity of AgGaSe_2 (AGSe) (the main crystal used for SHG at $\lambda_\omega = 10.6 \mu\text{m}$) as expected from the bandgap values [1]. However, from the comparison with AGS [2], one can expect almost an order of magnitude higher damage threshold. Moreover, in contrast to the chalcopyrite compounds AGS and AGSe, BGSe exhibits only weak anisotropy of the thermal expansion, which is essential for the growth of large-size high-optical-quality samples [2].

In conclusion, we measured the orientation of the dielectric frame of BGSe and we showed that it does not rotate as a function of wavelength. Based on that result, we measured the conversion efficiencies of type-I and type-II angle NCPM SHG along x and y axes as a function of the fundamental wavelength and crystal orientation around the dielectric axes. From our data, we determined the corresponding NCPM wavelengths and the associated spectral and angular acceptances. We also determined the magnitude of the nonlinear coefficients d_{23} , d_{32} , and d_{31} . All these data clearly indicate that BGSe is a very promising nonlinear crystal for mid-infrared.

Funding. Russian Foundation for Basic Research (13-02-96500).

Acknowledgment. The authors wish to thank S. A. Cristal who gracefully provided the KTP slabs used as references for the measurements of the nonlinear coefficients.

REFERENCES

- V. Petrov, Prog. Quantum Electron. **42**, 1 (2015).
- J. Yao, W. Yin, K. Feng, X. Li, D. Mei, Q. Lu, Y. Ni, Z. Zhang, Z. Hu, and Y. Wu, J. Cryst. Growth **346**, 1 (2012).
- V. Badikov, D. Badikov, G. Shevyrdyaeva, A. Tyazhev, G. Marchev, V. Panyutin, V. Petrov, and A. Kwasniewski, Phys. Status Solidi RRL **5**, 31 (2011).
- J. Yao, D. Mei, L. Bai, Z. Lin, W. Yin, P. Fu, and Y. Wu, Inorg. Chem. **49**, 9212 (2010).
- X. Zhang, J. Yao, W. Yin, Y. Zhu, Y. Wu, and C. Chen, Opt. Express **23**, 552 (2015).
- C. Traum, P. L. Inacio, C. Félix, P. Segonds, A. Pena, J. Debray, B. Boulanger, Y. Petit, D. Rytz, G. Montemezzani, P. Goldner, and A. Ferrier, Opt. Mater. Express **4**, 57 (2014).
- B. Boulanger, J. P. Fève, G. Marnier, C. Bonnin, P. Villeval, and J. J. Zondy, J. Opt. Soc. Am. B **14**, 1380 (1997).
- F. Yang, J. Yao, H. Xu, K. Feng, W. Yin, F. Li, J. Yang, S. Du, Q. Peng, J. Zhang, D. Cui, Y. Wu, C. Chen, and Z. Xu, Opt. Lett. **38**, 3903 (2013).
- F. Yang, J. Y. Yao, H. Y. Xu, F. F. Zhang, N. X. Zhai, Z. H. Lin, N. Zong, Q. J. Peng, J. Y. Zhang, D. F. Cui, Y. C. Wu, and C. T. Chen, IEEE Photon. Technol. Lett. **27**, 1100 (2015).

Optics Letters

Phase-matching directions and refined Sellmeier equations of the monoclinic acentric crystal BaGa₄Se₇

ÉLODIE BOURSIER,^{1,2} PATRICIA SEGONDS,^{1,2,*} BERTRAND MÉNAERT,^{1,2} VALERIY BADIKOV,³ VLADIMIR PANYUTIN,⁴ DMITRII BADIKOV,³ VALENTIN PETROV,⁴ AND BENOÎT BOULANGER^{1,2}

¹Université Grenoble Alpes, Institut Néel, F38402 Grenoble Cedex 9, France

²CNRS, Institut Néel, F38402 Grenoble Cedex 9, France

³High Technologies Laboratory, Kuban State University, 149 Stavropolskaya Str., 350040 Krasnodar, Russia

⁴Max-Born-Institute for Nonlinear Optics and Ultrafast Spectroscopy, Max-Born-Str. 2A, 12489 Berlin, Germany

*Corresponding author: patricia.segonds@neel.cnrs.fr

Received 1 April 2016; accepted 3 May 2016; posted 16 May 2016 (Doc. ID 262444); published 8 June 2016

We directly measured the phase-matching directions of second-harmonic and difference frequency generation in the principal planes of the biaxial BaGa₄Se₇ (BGSe) crystal using the sphere method. The simultaneous fit of the data allowed us to refine the Sellmeier equations of the three principal refractive indices of BGSe, and to calculate the tuning curves for infrared optical parametric generation. © 2016 Optical Society of America

OCIS codes: (190.2620) Harmonic generation and mixing; (190.4400) Nonlinear optics, materials.

<http://dx.doi.org/10.1364/OL.41.002731>

Optical parametric generation of coherent radiation in bands II (3–5 μm) and III (8–12 μm) of the transmission of the atmosphere is needed for various applications such as trace gas monitoring and laser surgery, but there is still a lack of suited nonlinear crystals. A real alternative is the newly developed BaGa₄Se₇ (BGSe) transparent from 0.47 to 18 μm [1–3]. The transmission spectrum is shown in Fig. 1, pointing out a high transparency until 12 μm.

BGSe belongs to the monoclinic point group *m* and, hence, to the optical biaxial class. The principal refractive indices $n_x < n_y < n_z$ have been previously determined as a function of the wavelength between 0.48 and 10.40 μm using three oriented prisms, and the corresponding fitted Sellmeier equations have been used to calculate birefringence phase-matching directions of second-harmonic generation (SHG) in the three principal planes of BGSe [2]. An alternative set of Sellmeier equations obtained in a similar manner between 0.5 and 2.6 μm showed only limited agreement with experimental 1.064 μm pumped optical parametric amplification (OPA) and difference frequency generation (DFG) phase-matching angles [3]. The crystallographic frame of BGSe does not correspond to the orthogonal dielectric frame (*x, y, z*): the *x*-axis is taken parallel to the **b**-axis, so that the *a*-, *c*-, *y*-, and *z*-axes are located in the

mirror plane. Furthermore, the *z*- and *c*-axes coincide at λ = 0.633 μm [2]. We recently studied angle noncritical phase-matched (NCPM) SHG along the *x*- and *y*-axes of BGSe after checking that the dielectric frame does not rotate about the special **b**-axis in the considered wavelengths range [4]. The corresponding NCPM wavelengths and associated spectral and angular acceptances were measured. From our data, we also determined the magnitude of the nonlinear coefficients d_{23} , d_{32} , and d_{31} [4].

In this Letter, we report for the first time, to the best of our knowledge, an exhaustive study of all possible SHG and DFG phase-matching directions of BGSe cut as a sphere. They were directly measured between 2 and 11 μm, in the (*x, z*) and (*y, z*) principal planes of the spherical crystal, which allowed us to refine more reliable Sellmeier equations in this spectral range.

According to the crystal symmetry of BGSe, and by using previously published Sellmeier equations from [2,3], we found that all possible quadratic processes that can be phase matched

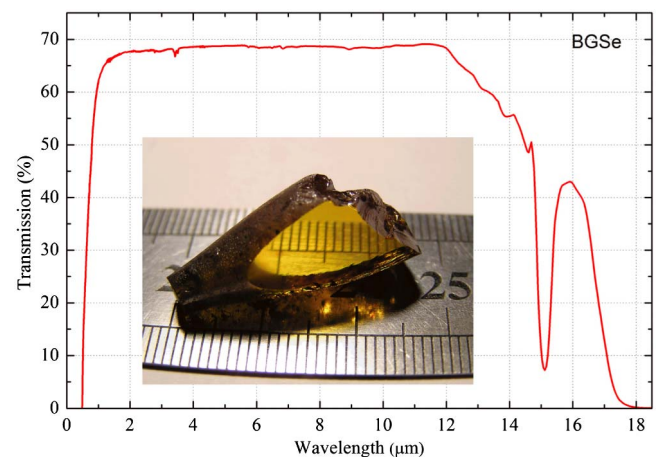


Fig. 1. Unpolarized transmission of a 11.3 mm thick *y*-cut BGSe sample. The inset shows a polished part of a BGSe boule.

in the (x, z) plane with nonzero effective coefficients are the following: type I SHG ($1/\lambda_{2\omega}^o = 1/\lambda_{\omega}^e + 1/\lambda_{\omega}^e$), type II SHG ($1/\lambda_{2\omega}^o = 1/\lambda_{\omega}^o + 1/\lambda_{\omega}^e$), type I DFG ($1/\lambda_i^e = 1/\lambda_p^o - 1/\lambda_s^e$) and type II DFG ($1/\lambda_i^o = 1/\lambda_p^o - 1/\lambda_s^e$). In the (y, z) plane, they are as follows: type II SHG ($1/\lambda_{2\omega}^o = 1/\lambda_{\omega}^o + 1/\lambda_{\omega}^e$) and type II DFG ($1/\lambda_i^o = 1/\lambda_p^o - 1/\lambda_s^e$). Superscripts o and e stand for the ordinary and extraordinary waves, respectively. λ_{ω}^k and $\lambda_{2\omega}^k$ (with k being o or e) are the fundamental and second-harmonic wavelengths, respectively. λ_p^k and λ_s^k are the pump and signal input wavelengths; λ_i^k is the corresponding idler wavelength generated by DFG, with the following relation of order: $\lambda_p^k < \lambda_s^k \leq \lambda_i^k$.

The corresponding phase-matching conditions were studied by using the sphere method [5]. The crystal was cut as a polished sphere with a diameter of $D = 7.55$ mm and an asphericity $\Delta D/D$ below 1%. It was stuck and oriented on a goniometric head first along the y - and then along the x -axis, with an accuracy better than 0.5° using x-ray diffraction. Then it was mounted at the center of an Euler circle inserted between two 100 mm focal length lenses, as shown in Fig. 2. In this way, any fixed incoming beam properly focused can propagate in any direction of (x, z) and (y, z) planes of BGSe successively, the propagation being parallel to the sphere diameter for any orientation of the sample.

Two incoming beams were necessary for DFG, whereas only one was considered for SHG. We used a 15 ps (FWHM) pulse width and a 10 Hz repetition rate Excel Technology Nd:YAG laser at 1.064 μm pumping by its third harmonic a LightConversion optical parametric generator (OPG) tunable between 0.4 and 2.4 μm . The long-wave OPG output was mixed with a part of the 1.064 μm beam, as shown in Fig. 2. Both beams were linearly polarized. For DFG measurements, the two incoming beams (at λ_p and λ_s) were directly and collinearly combined inside the BGSe sphere. For SHG measurements, DFG in a AgGaS₂ crystal was employed to produce one tunable fundamental beam between 2.5 and 11 μm sent into the sphere.

SHG or DFG phase-matching directions were directly measured in the BGSe sphere by detecting the optimum of the conversion efficiency. The associated angles were directly read on the Euler circle with an accuracy of $\pm 0.5^\circ$. The energy of the tunable incoming beam was measured using a J4-09 Moletron pyroelectric joulemeter with a beam splitter and a 50 mm focal length CaF₂ lens. Simultaneously, we used a J3-05 Moletron joulemeter combined with a PEM531 amplifier placed after filters to detect the generated beam (see Fig. 2). The DFG wavelength was controlled by measuring the OPG output wavelength with a NIRquest 512 Ocean Optics

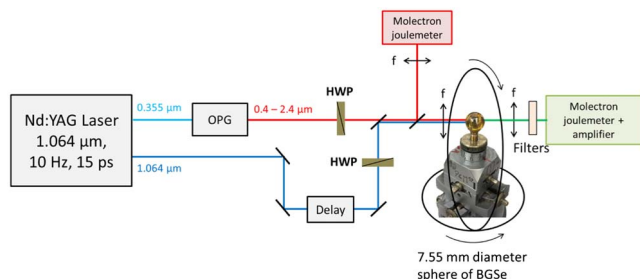


Fig. 2. Experimental setup used for the direct measurement of SHG and DFG phase-matching angles in the BGSe sphere.

spectrometer with an accuracy of ± 3 nm. Different achromatic half-wave plates (HWP) were used to adjust the polarizations required for the different phase-matching configurations.

We measured the phase-matching angle θ_{PM} between 2 and 11 μm in the (x, z) and (y, z) principal planes of BGSe. Figures 3 and 4 show type I and II SHG phase-matching curves in the (x, z) plane. Tuning curves of type I and II DFG are shown in Figs. 5 and 6. Finally, Figs. 7 and 8 correspond to type II SHG and type II DFG phase-matching measurements in the (y, z) plane. Note that there is a significant decreasing accuracy of the SHG phase-matching angle for fundamental wavelengths longer than 4 μm , the generated energy being very low. That is why large error bars are reported in Fig. 3 in this spectral range. We did not measure type I SHG between 5 and 6 μm because of a lack of filters (see Fig. 3), and the incoming beam energy was too weak for type II SHG measurements above 4.3 μm in the (x, z) plane (see Fig. 4), as well as above 5.4 μm in the (y, z) plane (see Fig. 7).

Figures 3–8 also show black dashed and green dashed-dotted lines corresponding to phase-matching curves calculated with Sellmeier equations from [2] and [3], respectively. This highlights a discrepancy between the experimental data and calculations, especially at long-wavelengths, which can be explained by the limited reliability of the Sellmeier equations from [2,3] in this spectral range.

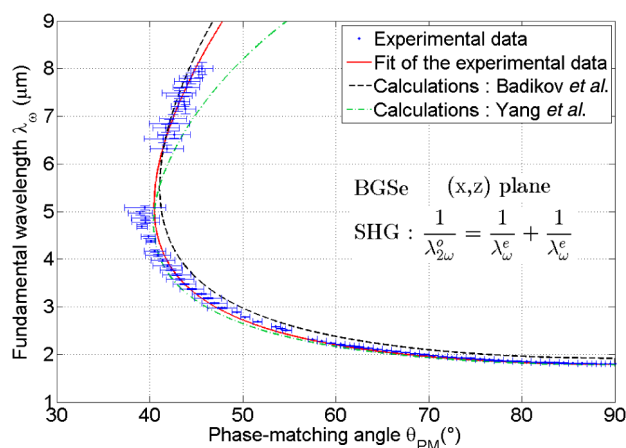


Fig. 3. Type I SHG tuning curve of BGSe in the (x, z) plane.

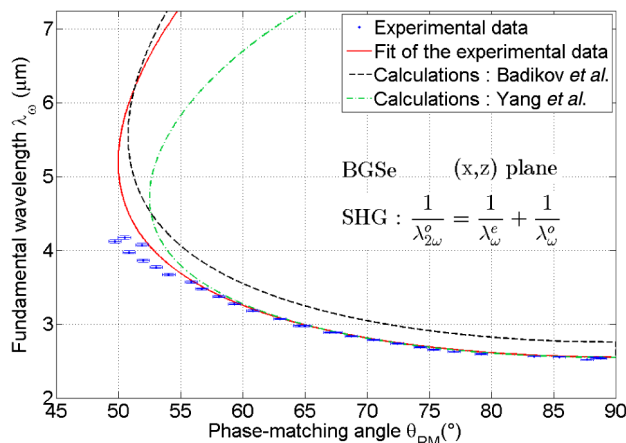


Fig. 4. Type II SHG tuning curve of BGSe in the (x, z) plane.

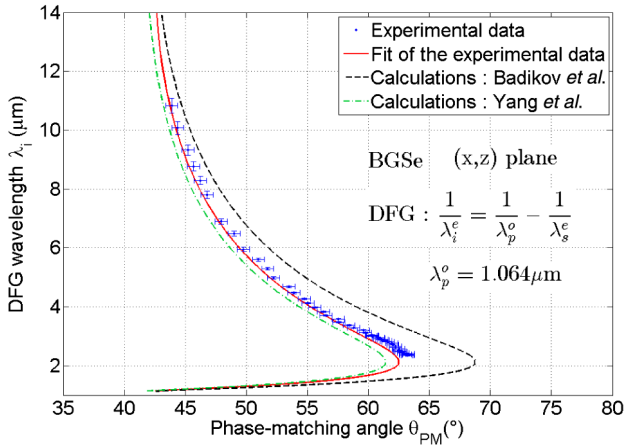


Fig. 5. Type I DFG tuning curve of BGSe with $\lambda_p = 1.064 \mu\text{m}$ in the (x, z) plane.

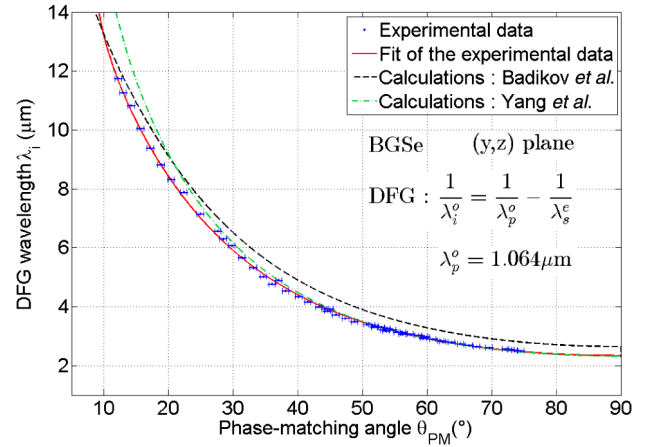


Fig. 8. Type II DFG tuning curve of BGSe with $\lambda_p = 1.064 \mu\text{m}$ in the (y, z) plane.

We performed a simultaneous fit of the SHG and DFG experimental data of all the tuning curves measured in the (x, z) and (y, z) planes of BGSe, using the Levenberg–Marquardt algorithm. It corresponds to the red solid curves shown in

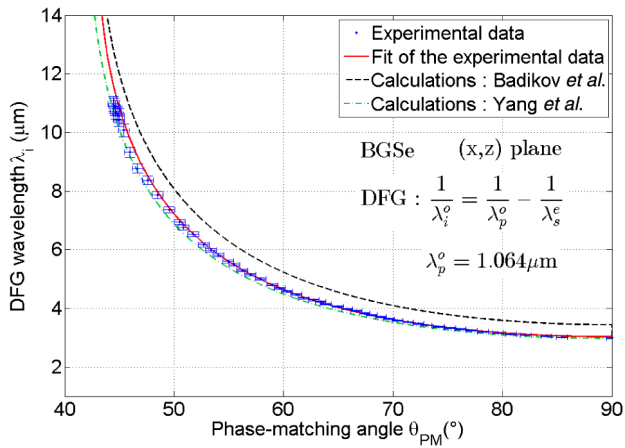


Fig. 6. Type II DFG tuning curve of BGSe with $\lambda_p = 1.064 \mu\text{m}$ in the (x, z) plane.

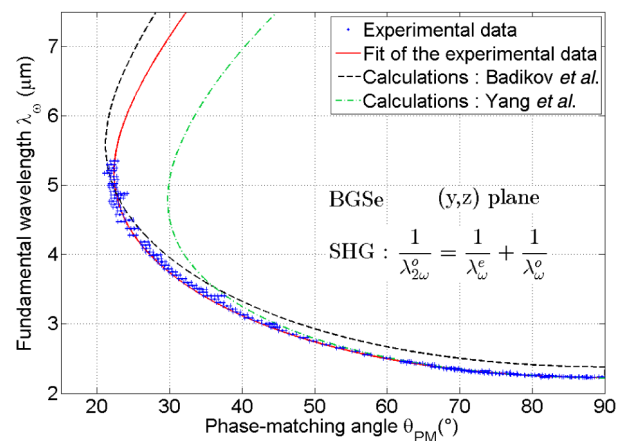


Fig. 7. Type II SHG tuning curve of BGSe in the (y, z) plane.

Figs. 3–8. We assumed that the dispersion of BGSe is well described by a dual oscillator model, and we used the same form of equation as in [2] to fit each of the three principal refractive indices, i.e.,

$$n_i^2(\lambda) = A_1^i + \frac{A_2^i}{(\lambda^2 - A_3^i)} + \frac{A_4^i}{(\lambda^2 - A_5^i)}. \quad (1)$$

The index i corresponds to x , y or z ; λ is expressed in μm . Since we did not measure phase-matching directions at shorter wavelengths below $2 \mu\text{m}$, we fixed the values of the UV poles A_3^i previously determined in [2]. The best result was established with the final values of the fitting parameters A_1^i , A_2^i , A_3^i , A_4^i , and A_5^i , summarized in Table 1.

Figures 3–8 clearly show a much better agreement of the computed tuning curves using the new dispersion relations for BGSe with the experimental data than with the calculations from [2,3]. Taking into account all accuracies discussed previously, we can assert that the relative accuracy $\Delta n_i/n_i$ of the refined BGSe refractive indices is better than 10^{-4} . Figure 9 shows the spectral range of reliability of the three principal refractive indices, which corresponds to the spectral range over which the phase-matching angles were measured. It is compared to those accessible from the prism method used in [2,3].

Types I and II SHG phase-matching curves of Figs. 3 and 4 give, in particular, the fundamental wavelengths at $\theta_{\text{PM}} = 90^\circ$ in the (x, z) plane of BGSe, which corresponds to angle NCPM SHG along the x -axis. It is in excellent agreement with the previous measurement in a BGSe x -cut thin slab [4]: in both experiments, we find $\lambda_\omega^{\text{NCPM}} = 1.80 \mu\text{m}$ for type I SHG and $\lambda_\omega^{\text{NCPM}} = 2.53 \mu\text{m}$ for type II SHG.

Table 1. Refined Sellmeier Coefficients for the Three Principal Refractive Indices n_x , n_y , and n_z of BaGa_4Se_7

n_i	n_x	n_y	n_z
A_1^i	7.405114	7.388458	7.622884
$A_2^i [\mu\text{m}^2]$	0.225316	0.224481	0.238018
$A_3^i [\mu\text{m}^2]$ ref. [2]	0.051215	0.052725	0.069734
$A_4^i [\mu\text{m}^2]$	1782.091	1778.441	1885.307
$A_5^i [\mu\text{m}^2]$	1170.528	1238.145	1303.370

n	λ (μm)				
		1	5	10	16
n_x	Prism [2]	-----			
	Prism [3]	-----			
	SHG I XZ	-----			
	SHG II XZ	-----			
	SHG II YZ	-----			
	DFG II XZ	-----			
	DFG I XZ	-----			
	DFG II YZ	-----			
n_y	Prism [2]	-----			
	Prism [3]	-----			
	SHG I XZ	-----			
	SHG II XZ	-----			
	SHG II YZ	-----			
	DFG II XZ	-----			
	DFG I XZ	-----			
	DFG II YZ	-----			
n_z	Prism [2]	-----			
	Prism [3]	-----			
	SHG I XZ	-----			
	SHG II XZ	-----			
	SHG II YZ	-----			
	DFG II XZ	-----			
	DFG I XZ	-----			
	DFG II YZ	-----			

Fig. 9. Wavelength ranges of reliability of the principal refractive indices from sphere measurements (continuous lines) and prism methods (dashed lines) from [2] and [3].

According to a UV cutoff located at $0.47 \mu\text{m}$ [1], parametric downconversion can be performed in BGSe without two photon absorption when pumped at $1.064 \mu\text{m}$. Then a type I DFG phase-matching curve displayed in Fig. 5, as well as type II DFG curves of Figs. 6 and 8 can be used directly to implement an OPG or an optical parametric oscillator (OPO) pumped by a Nd:YAG laser. Type I DFG is of particular interest since a broadband spectral output can be generated between 1 and $14 \mu\text{m}$, using an internal angle variation of $\pm 10^\circ$ around $\theta_{\text{PM}} = 52^\circ$ in the (x, z) plane of BGSe.

Reliable BGSe-OPG tuning curves at any other pump wavelength can be calculated using our refined Sellmeier equations. Broadband supercontinuum can be generated for type I interaction in the (x, z) principal plane of BGSe. The magic pump wavelength [6] is $\lambda_p = 2.37 \mu\text{m}$ (available from $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ lasers) because the group-velocity dispersion (GVD) for the e-wave vanishes at $4.74 \mu\text{m}$ for the calculated phase-matching angle. This means that a supercontinuum can be generated with a reasonable crystal length. Indeed, the calculated inverse group velocity mismatch between the pump wave at $2.37 \mu\text{m}$ and the degenerate signal/idler at $4.74 \mu\text{m}$ amounts to only 11.5 fs/mm . Therefore, samples of $\sim 1 \text{ cm}$ length could be applied, even for femtosecond pump pulse durations to ensure sufficient parametric gain. The spectral extension of the generated supercontinuum can be even larger when the phase-matching angle slightly deviates from the calculated $\theta_{\text{PM}} = 41^\circ$ at $\lambda_p = 2.37 \mu\text{m}$. This is shown in Fig. 10 by the curve corresponding to $\lambda_p = 2.09 \mu\text{m}$ (Ho:YAG laser) which covers the entire transmission range of BGSe in the mid-infrared. In fact, thanks to its extended transmission (Fig. 1), BGSe may become, in general, an alternative to ZnGeP_2 in Ho:YAG laser pumped OPOs, and it can be pumped at intermediate

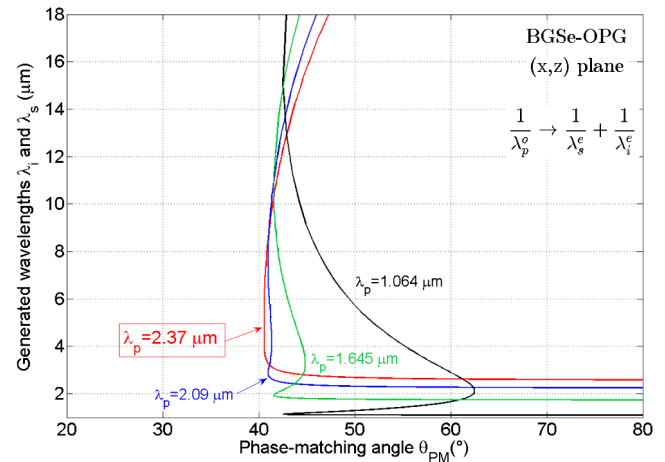


Fig. 10. Calculated type I OPG tuning curves in the (x, z) plane of BGSe with a pump wavelength λ_p of 1.064, 1.645, 2.09, and $2.37 \mu\text{m}$. λ_i and λ_s are the idler and signal wavelengths, respectively.

wavelengths by the emerging diode-pumped Er-lasers emitting at $1.645 \mu\text{m}$, as shown in Fig. 10. Finally, the good transmission of BGSe renders it also suitable for SHG of CO_2 lasers at $10.6 \mu\text{m}$, as an alternative to AgGaS_2 . Thus BGSe might substitute the commercial chalcopyrite crystals AgGaS_2 classically employed in $1.064 \mu\text{m}$ pumped OPOs that is chemically unstable and has a lower damage threshold: 557 MW/cm^2 for BGSe versus 150 MW/cm^2 for AgGaS_2 from [7].

In conclusion, we performed a complete study of the phase-matching properties of SHG and $1.064 \mu\text{m}$ pumped DFG in the (x, z) and (y, z) principal planes of the monoclinic nonlinear crystal BGSe. These results allowed us to refine the Sellmeier equations of this new material which exhibits the typical for selenides extended transmission in the mid-infrared. The $1.064 \mu\text{m}$ pumped DFG phase-matching experimental angles can be used *per se* to implement a BGSe-OPG pumped by a Nd:YAG laser. However, using our refined Sellmeier equations, we found reliable DFG phase-matching curves showing that a BGSe-OPG can generate a supercontinuum when pumped near $2 \mu\text{m}$. Ongoing work will lead to the determination of the absolute values and relative signs of all the $d^{(2)}$ nonlinear coefficients, in particular, using the sphere method out of the principal planes of BGSe.

REFERENCES

- J. Yao, D. Mei, L. Bai, Z. Lin, W. Yin, P. Fu, and Y. Wu, *Inorg. Chem.* **49**, 9212 (2010).
- V. Badikov, D. Badikov, G. Shevyrdyaeva, A. Tyazhev, G. Marchev, V. Panyutin, V. Petrov, and A. Kwasniewski, *Phys. Status Solidi RRL* **5**, 31 (2011).
- F. Yang, J. Yao, H. Xu, F. Zhang, N. Zhai, Z. Lin, N. Zong, Q. Peng, J. Zhang, D. Cui, Y. Wu, C. Chen, and Z. Xu, *IEEE Photon. Technol. Lett.* **27**, 1100 (2015).
- E. Boursier, P. Segonds, J. Debray, P. L. Inácio, V. Panyutin, V. Badikov, D. Badikov, V. Petrov, and B. Boulanger, *Opt. Lett.* **40**, 4591 (2015).
- B. Boulanger, J. P. Fève, G. Marnier, C. Bonnin, P. Villeval, and J. J. Zondy, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 1380 (1997).
- V. Petrov, *Prog. Quantum Electron.* **42**, 1 (2015).
- J. Yao, W. Yin, K. Feng, X. Li, D. Mei, Q. Lu, Y. Ni, Z. Zhang, Z. Hu, and Y. Wu, *J. Cryst. Growth* **346**, 1 (2012).

Génération paramétrique infrarouge dans les cristaux de $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Ta}_{0,5}\text{O}_{14}$ et BaGa_4Se_7

Il y a actuellement un réel besoin de sources lasers tout solide capables d'émettre un rayonnement cohérent dans l'infrarouge pour des applications variées comme la spectroscopie et la détection de molécules d'intérêt atmosphérique par exemple. La meilleure alternative est l'optique non linéaire paramétrique du second ordre permettant la conversion de fréquence d'un laser monochromatique dans un cristal massif aux propriétés optiques adaptées. Cependant il faut trouver de nouveaux matériaux car ceux déjà identifiés ne donnent pas satisfaction, leur grande faiblesse étant un seuil de dommage optique trop bas pour des applications à haute énergie. Dans ce contexte, la thèse porte sur l'étude des propriétés optiques non linéaires de deux nouveaux cristaux, LGT et BGSe, dans le but de concevoir des sources de lumière de type Oscillateur Paramétrique Optique (OPO) ou Générateur Paramétrique Optique (OPG) accordables dans l'infrarouge, et plus énergétiques que les sources actuelles.

Mots-clés :

INFRAROUGE ; CRISTAUX ; OPTIQUE NON LINEAIRE ; LASER

Parametric infrared generation in $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Ta}_{0,5}\text{O}_{14}$ and BaGa_4Se_7 crystals

Nowadays, there is a real need in all solid-state lasers able to emit a coherent light in the infrared for various applications like spectroscopy and the detection of molecules from the atmosphere for example. The best alternative is the generation of parametric light from second order nonlinear processes in a crystal with appropriate optical properties, leading to frequency conversion of laser emitting a monochromatic light. However, there is a real need of new materials since those already identified are not satisfying, their most important weakness being a too low optical damage threshold for high-energy applications. In this context, this PhD work is devoted to the study of nonlinear optical properties of two new crystals, LGT and BGSe, in order to conceive new kinds of light sources like Optical Parametric Oscillators (OPO) or Optical Parametric Generators (OPG) tunable in the infrared that are more energetic than available sources.

Keywords :

INFRARED ; CRYSTALS ; NONLINEAR OPTICS ; LASER