

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITÉ BORDEAUX I

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

par JEAN PASCAL CAUMES

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : LASERS ET MATIÈRE DENSE

CARACTÉRISATION DE L'INDICE NONLINÉAIRE INDUIT EN PRÉSENCE DE
GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE OU DE REDRESSEMENT OPTIQUE :
APPLICATION À LA COMPENSATION DE L'INTÉGRALE DE RUPTURE.

Soutenue le 09 décembre 2002

Après avis de :

M. Alain BARTHELEMY

Directeur de Recherche
I.R.C.O.M., Université de Limoges

Rapporteurs

M. François HACHE

Directeur de Recherche
L.O.B., École polytechnique

Devant la commission d'examen formée de :

M. Laurent SARGER

Professeur à l'université Bordeaux I

Président

M. Laurent VIDEAU

Ingénieur de recherche C.E.A./C.E.S.T.A

M. Jean ETCHEPARE

Directeur de Recherche au C.N.R.S
L.O.A., École polytechnique

M. Eric FREYSZ

Directeur de recherche au C.N.R.S.
université Bordeaux I

*à Chantal,
mes parents,
et mes amis ...*

Remerciements

La thèse présentée dans ce manuscrit à été menée conjointement au Laboratoire C.P.M.O.H. de l'Université Bordeaux I et au Laboratoire de Physique du Lasers du C.E.A./C.E.S.T.A.

En premier lieu, je tiens à remercier M. Alain Barthélémy et M. François Hache pour leur implication dans le rapport de thèse ayant ainsi permis la soutenance. Merci également à M. Jean Etchepare et M. Claude Rullière d'avoir accepté de compter parmi les membres du Jury, à Laurent Sarger de l'avoir présidé. Les commentaires et les remarques apportées avant, pendant et après la soutenance constituent la perspective la plus intéressante de ce travail.

Toute ma gratitude va ensuite aux personnes qui durant les trois années de la thèse, m'ont accompagné et ont toujours su trouver un environnement favorable pour son déroulement :

- A Laurent Videau pour la confiance qu'il m'a accordée. Je tiens à le remercier pour la rigueur et l'intérêt permanent qu'il a su apporter à mon travail.
- A Eric Freysz, qui m'a encadré et formé depuis le stage de D.E.A. Ses compétences scientifiques et son dynamisme ont toujours été sources de motivation.

Je veux aussi particulièrement remercier Claude Rouyer de m'avoir fait profiter de ses immenses compétences et d'avoir toujours su m'encourager à chaque étape de la thèse. Enfin, je les remercie pour leur implication personnelle et leur disponibilité. La rigueur, l'originalité et la justesse de leurs conseils resteront bénéfiques pour moi.

Enfin, je n'oublie pas les deux laboratoires m'ayant accueilli pour mes premiers pas dans la recherche.

- Je suis arrivé dans le laboratoire L.P.L. lors de son installation sur le C.E.S.T.A. Malgré les difficultés d'une telle installation, chaque membre des groupes A.L.I.S.E., Simulations et Etudes m'ont toujours apporté leur disponibilité, leur soutien et leurs compétences. Je tiens à les citer tous, Marc Nicolaizeau, Denis Villate, Nathalie Blanchot, J.M. Sager, Luc Voisin, Isabelle et David Le Goff, Elisabeth Mazataud, Odile Trioulet, Olivier Morice, Jocelyne Raffy, Christian Le-

page, Marc Padois, J.P Leindinger, Patrick Manach, Xavier Ribeyre et Geoffroy le Touzet, pour les remercier d'avoir contribué à cette aventure.

- Au C.P.M.O.H., j'ai pu cotoyer le milieu de la recherche publique au travers d'équipes créatives et passionnées. Merci notamment à Pierre Langot, Jean Baptiste Gaudry, Sandrine Cussat-Blanc et Hugues Guillet de Chatellus pour leur disponibilité et leur joie de vivre. Je remercie spécialement Sébastien Montant avec qui j'ai eu la chance de travailler dans les deux laboratoires et qui a toujours été un guide efficace.

Cette thèse ne serait pas ce qu'elle est sans l'apport (parfois très critique mais toujours juste) d'Estelle Salmon, de Gilles Olivié, de Thibault Melsbach et bien sûr de Loïc Patissou. Ils ont contribué aux résultats mais surtout, ont permis une ambiance agréable et amicale au quotidien par leurs nombreuses compétences (chant, sifflement ou encore mécanique). Je pense également à Emmanuel Hugonnot, Ronan, Serguei Pershin, Anatoly Ivanov et Olivier Pucelle dont les rencontres m'ont marquées pendant ces trois années. Tous m'ont apporté un grand nombre de solutions aux petits et grands problèmes jalonnant la vie d'un thésard.

Merci à tous et bonne lecture...

Table des matières

Introduction	1
I Caractérisation de l'indice nonlinéaire induit en présence de redressement optique d'impulsions femtosecondes.	11
1 Caractérisation de l'indice nonlinéaire induit en présence de redressement optique d'impulsions femtosecondes.	13
1.1 Description et protocole expérimental de la mesure hétérodyne d'effet Kerr optique résolue en temps	16
1.1.1 Description du montage expérimental.	17
1.1.2 Protocole de mesure de l'indice nonlinéaire de cristaux cubiques en configuration hétérodyne.	19
1.2 Intérêt et critères de choix des cristaux $\bar{4}3m$ pour notre étude.	21
1.3 Illustration expérimentale de l'effet de cascade dû au redressement optique dans un cristal de ZnTe.	23
1.3.1 Présentation des mesures d'effet Kerr.	23
1.3.2 Evolution des signaux en fonction de la polarisation de l'onde pompe.	26
1.4 Analyse théorique de l'indice nonlinéaire : couplage d'une onde basse fréquence (THz) avec une onde haute fréquence (PHz)	31
1.4.1 Accord de Phase pour la génération d'une onde TeraHertz.	32
1.4.2 Résolution des équations de Maxwell pour la génération de l'onde TeraHertz.	34
1.4.3 Equation de propagation de l'onde pompe	35

1.4.4	Génération de l'onde TeraHertz à partir d'une impulsion pompe femtoseconde.	35
1.4.5	Couplage de l'onde TeraHertz avec une onde optique.	39
1.4.6	Evolution de l'onde sonde en présence d'une onde TeraHertz . . .	40
1.4.7	Description analytique du signal Kerr Hétérodyne.	42
1.5	Résultats expérimentaux : mise en évidence et caractérisation de l'indice nonlinéaire dû à l'onde THz	44
1.6	Conclusion	47

II Caractérisation de l'indice nonlinéaire induit durant la génération de second harmonique d'impulsions femtosecondes. 51

2	Caractérisation de la nonlinéarité induite durant la génération de second harmonique d'impulsions femtosecondes par des mesures d'intensité.	57
2.1	Mesure de l'intégrale B induit par effet de cascade par auto-diffraction spectrale.	59
2.1.1	Principe de base de l'auto-diffraction spectrale.	59
2.1.2	Dispositif expérimental.	61
2.1.3	Mesure de l'intégrale B à $\Delta k = 0$ par auto-diffraction spectrale.	63
2.1.4	Compétition entre la nonlinéarité d'ordre trois et les phénomènes de cascade.	66
2.1.5	Description analytique.	67
2.1.6	Discussion des résultats.	72
2.1.7	Conclusion.	74
2.2	Mesure de l'intégrale B induit par effet de cascade par auto-diffraction spatiale.	75
2.2.1	Principes de base de l'auto-diffraction spatiale.	76
2.2.2	Dispositif expérimental.	78
2.2.3	Origine des tâches de diffractions mesurées.	80
2.2.4	Caractérisation des ondes diffractées : auto-corrélations d'ordres supérieurs.	84
2.2.5	Conclusion.	90

3	Caractérisation de la nonlinéarité induite durant la génération de second harmonique d'impulsions femtosecondes par des mesures de phase.	93
3.1	Caractérisation de la phase spectrale induite par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux.	95
3.1.1	Comment une phase nonlinéaire temporelle peut-elle être mesurée par interférométrie spectrale ?	96
3.1.2	Dispositif expérimental d'interférométrie spectrale.	103
3.1.3	Caractérisation expérimentale de la phase nonlinéaire spectrale induite par cascade d'effets d'ordre deux dans un cristal de KDP.	107
3.1.4	Evolution spectrale de la phase nonlinéaire en fonction de Δk	109
3.1.5	Comparaison entre les cristaux de KDP et de BBO.	111
3.1.6	Etude de l'indice nonlinéaire $n_2^{(GSH)}$ induit par effet de cascade.	113
3.1.7	Description analytique de l'effet de cascade en régime non-colinéaire.	116
3.1.8	Limites de la mesure de la phase spectrale par interférométrie.	123
3.1.9	Conclusion.	123
3.2	Caractérisation de la lentille spatiale induite par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux.	125
3.2.1	Lentille nonlinéaire induite par une nonlinéarité d'ordre trois.	125
3.2.2	Analogie avec la lentille nonlinéaire induite par cascade de nonlinéarité d'ordre deux.	127
3.2.3	Caractérisation de la lentille spatiale induite par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux.	128
3.2.4	Mesure de la nonlinéarité n_2^{GSH} par mesure de front d'onde.	133
III	Démonstration de la compensation d'une intégrale B positive par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux.	141
4	Démonstration de la compensation d'une intégrale B positive par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux.	143
4.1	Description du dispositif expérimental.	144
4.2	Mesure de la nonlinéarité Kerr induite dans un verre de silice.	145

4.3	Etude expérimentale de la compensation d'un n_2^{Kerr} positif par un $n_2^{cascade}$ négatif.	147
4.4	Conclusion.	151
	Conclusion	153
IV	Annexes.	159

Introduction

Contexte de l'étude.

Le développement des lasers de puissance a permis d'accroître considérablement la densité d'énergie disponible sur cible lors des interactions laser-matière. La technique généralement utilisée est l'amplification par dérive de fréquence plus communément dénommée par son acronyme anglais C.P.A.¹. Celle-ci a très largement contribué à l'amélioration des performances des amplificateurs lasers. Les fortes densités de puissances permettent aujourd'hui d'envisager d'utiliser des sources lasers pour réaliser la fusion par confinement inertiel (FCI). Dans ce but, plusieurs grands projets sont lancés à travers le monde. La France a ainsi démarré la construction du laser Mégajoule (LMJ) au CEA-CESTA. Ce projet est réalisé en collaboration avec les Etats-Unis, qui sont eux aussi engagés dans un projet similaire : le National Ignitor Facility (NIF).

Pour atteindre des puissances de l'ordre du mégajoule de nombreux problèmes techniques doivent être parfaitement maîtrisés. La Ligne d'Intégration Laser (LIL), récemment mise en place au CEA-CESTA, a été réalisée pour faire un tour exhaustif de ces différents problèmes. Cette ligne matérialise une étape importante puisqu'elle est constituée de 8 des 240 faisceaux qui constitueront le futur LMJ. Sur de nombreux plans - physique du laser, organisation, expériences - la construction de ce laser kilojoule permettra d'appréhender concrètement les réelles difficultés. La compréhension et la maîtrise de celles-ci sont indispensables pour envisager un fonctionnement fiable du laser mégajoule. Parmi ces difficultés, il est évident que l'amplification de faisceaux d'énergie de l'ordre du nanojoule, issus de lasers pilotes, à ceux de l'ordre du kilojoule, soulève de nombreuses difficultés. Sans chercher à être exhaustif, nous citerons les schémas d'amplification, le rétrécissement spectral induit par le gain d'amplification, la qualité spatiale du faisceau ou son transport sous vide, etc...

Dans ce contexte, le Laboratoire de Physique des Lasers (LPL) a été sollicité pour, entre autre, aider à la compréhension et la résolution des phénomènes physiques fonda-

¹Chirped Pulse Amplification

mentaux rencontrés lors de la réalisation de chaînes lasers de très haute puissance. C'est dans ce cadre et, en collaboration avec le Centre de Physique Moléculaire Optique et Hertzienne (C.P.M.O.H) de l'université Bordeaux I, que mon travail de thèse a démarré. Il a porté sur le développement et le dimensionnement d'un étage de compensation des phénomènes nonlinéaires induits dans les chaînes laser de puissance.

Phénomènes nonlinéaires dans les chaînes de puissance : intégrale B.

Le faisceau laser issu d'un oscillateur basse puissance est généralement amplifié dans des matériaux solides tels que les plaques de verres dopés (Néodyme :Yag par exemple) ou les cristaux de Titane-saphir. Au cours de son amplification, le faisceau traverse différents éléments optiques et se propage sur plusieurs mètres. En fin de chaîne, les densités de puissance atteintes sont telles que de nombreux phénomènes nonlinéaires se produisent. Ainsi en fin de chaîne et lors de sa propagation dans les derniers étages amplificateurs, le faisceau accumule une phase nonlinéaire importante. Celle-ci dégrade la qualité temporelle et spatiale du faisceau et limite l'efficacité d'amplification de la chaîne.

Dans les milieux centrosymétriques tels que les verres amplificateurs, ce sont les phénomènes nonlinéaires d'ordre trois qui sont responsables de cette dégradation spectrale et modale du faisceau laser. Ces nonlinéarités optiques d'ordre trois sont à l'origine d'une variation nonlinéaire d'indice n_2^{Kerr} (effet Kerr) proportionnelle à l'intensité I du laser (cf. Annexe). L'indice du matériau dépend donc spatialement et temporellement de la forme de l'impulsion laser :

$$n(x, y, t) = n_0 + n_2^{(Kerr)} I(x, y, t) \quad (1)$$

où n_0 est l'indice de réfraction linéaire du milieu et (x,y) les coordonnées spatiales transverses. La variation d'indice $n_2^{(Kerr)}$ dépend de la susceptibilité nonlinéaire d'ordre trois $\chi^{(3)}$ et s'écrit :

$$n_2^{Kerr} \sim \frac{\chi^{(3)}}{n_0} \quad (2)$$

Cet indice n_2^{Kerr} est responsable de la dégradation de la qualité spatiale et modale du faisceau laser. Il induit en particulier les phénomènes d'autofocalisation et d'automodulation de phase. Une grandeur appelée intégrale B $(x,y,t)^2$, permet de quantifier ces deux phénomènes, :

$$B(x, y, t) = \frac{2\pi}{\lambda} \int_0^L n_2^{Kerr} I(x, y, z, t) dz \quad (3)$$

²où encore intégrale de rupture.

Cette intégrale B , directement proportionnelle à la susceptibilité d'ordre trois $\chi^{(3)}$ des matériaux traversés, mesure la variation de phase nonlinéaire accumulée par le faisceau lors de la propagation. Elle permet de quantifier les déformations temporelles et spatiales subies par le faisceau.

Pour de grandes valeurs de B , le faisceau est fortement perturbé. Ainsi, le spectre de l'impulsion laser est élargi. Spatialement, les conséquences sont plus importantes. Le gradient d'indice induit par le faisceau $I(x,y)$ modifie le front d'onde du faisceau. Cette modification du front d'onde se traduit par une focalisation du faisceau dans le milieu traversé. Ce phénomène est généralement appelé phénomène d'autofocalisation : tout se passe comme si le faisceau crée une lentille qui le focalise. A forte énergie, cette autofocalisation peut se traduire par une détérioration irrémédiable du milieu traversé. Expérimentalement et à petite échelle, le faisceau laser filamente et crée des surintensités locales.

La valeur maximale de cette intégrale de rupture $B(x,y,t)$ est donc un paramètre important et elle conditionne le dimensionnement des chaînes laser de puissance. En pratique, il est généralement admis que l'intégrale B ne doit pas dépasser 2 rad. Cette valeur permet de maintenir à un niveau acceptable la qualité temporelle et spatiale du faisceau amplifié.

Comment compenser l'intégrale B ?

Les solutions existantes permettant de contrôler la qualité des faisceaux amplifiés.

Comme le souligne l'équation 3 le signe de l'intégrale B est fixé par le signe du coefficient nonlinéaire $\chi^{(3)}$. Celui-ci est généralement positif pour les milieux laser. Une architecture adaptée de la chaîne permet de réduire l'intégrale B . Peut-on aller au-delà ? La relation 3 indique les voies à suivre. Pour minimiser l'intégrale B , on peut réduire l'intensité I , diminuer la distance de propagation L dans les différents milieux constituant la chaîne laser ou utiliser des matériaux possédant un $\chi^{(3)}$ plus faible. Ceci est pratiquement peu réaliste. D'autres solutions ont été mises en oeuvre pour compenser les méfaits de l'intégrale B .

- Généralement, sur les chaînes laser, des filtrages spatiaux permettent de réduire les déformations spatiales du faisceau laser après amplification (Fig. 1). Concrètement, un trou de filtrage placé au plan de Fourier d'un système afocal nettoie le faisceau de ses irrégularités spatiales induites à petite échelle par l'intégrale B . L'opération devant se faire sous vide, ce système est difficile à mettre en oeuvre. Elle nécessite aussi un placement précis des trous de filtrage et induit des pertes

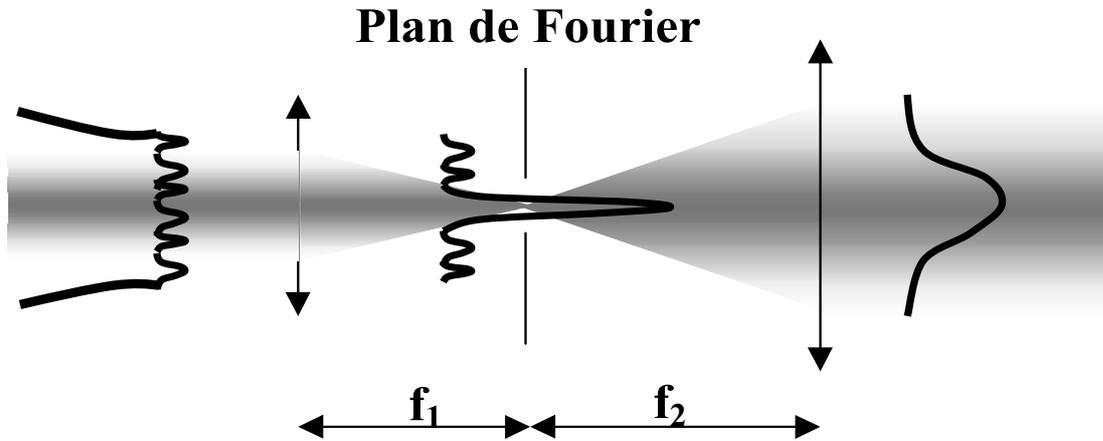


FIG. 1 — Schéma de principe du filtrage spatial.

d'énergie non négligeables. Notons enfin que cette solution ne compense pas la modulation spectrale du faisceau amplifié.

- Dans ce contexte, les miroirs utilisant les mécanismes de conjugaison de phase semblaient prometteurs. Cette solution présente également des problèmes majeurs. Ceux-ci concernent le rendement et la tenue aux flux de ces miroirs. Ils imposent également des contraintes importantes vis à vis de l'architecture de la chaîne laser.

Compenser l'intégrale B par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux ?

L'idée la plus simple pour compenser l'intégrale consiste à insérer dans la chaîne un élément optique ayant un indice nonlinéaire n_2 négatif. La nonlinéarité induite doit être directement opposée à celle des autres accumulées par les autres éléments de la chaîne laser de puissance. De nombreuses études ont été menées dans ce but. Les premières ont portées sur les matériaux à base de susceptibilité d'ordre trois négatives. Dans ces milieux au voisinage de résonances $\chi^{(2)}=0$, $\chi^{(3)} < 0$ et donc $n_2 < 0$. Les différentes études réalisées ont largement souligné les limites de ces matériaux. Ces milieux présentent généralement des absorptions non négligeables à un ou deux photons et ont de faibles seuils de dommage.

Un autre axe de recherche est basé sur l'utilisation des nonlinéarités d'ordre deux en cascade que l'on note généralement $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$. En effet, il a été démontré très tôt [1] que la succession de deux processus nonlinéaires du type $\chi^{(2)}$ était équivalente à une nonlinéarité d'ordre trois. Le principal avantage de cette technique est qu'il est alors possible de contrôler le signe et l'amplitude de cette nonlinéarité effective en ajustant le désaccord de phase. C'est cette méthode que nous nous proposons d'étudier dans ce manuscrit.

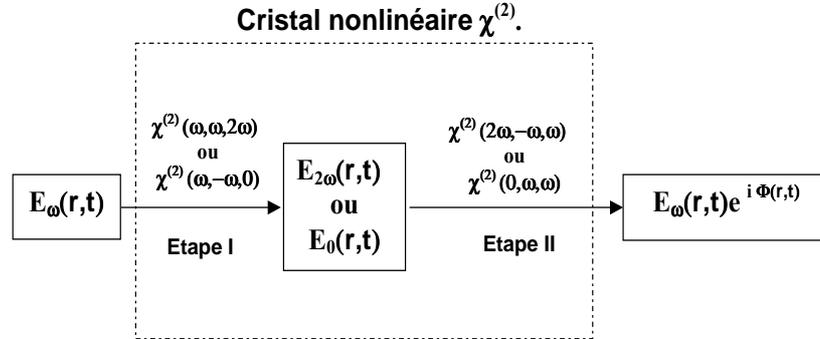


FIG. 2 — Schéma de principe de l'effet de cascade $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$.

Principe des cascades de nonlinéarités d'ordre deux.

Dés 1967, Ostrovskii [1] démontrait qu'une cascade de phénomènes nonlinéaires d'ordre deux $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ permettait de compenser une nonlinéarité d'ordre trois $\chi^{(3)}$. Notons dès à présent qu'il existe deux possibilités, pour induire un indice nonlinéaire à la fréquence fondamentale à partir de deux processus nonlinéaires d'ordre deux successifs (Fig. 2). La première possibilité est obtenue en faisant intervenir l'un après l'autre les mécanismes de génération de second harmonique (ou sommation de fréquences $\omega + \omega = 2\omega$) et de différence de fréquences ($2\omega - \omega = \omega$). La deuxième possibilité, jusqu'à présent peu ou pas étudiée, fait intervenir successivement le redressement optique (ou différence de fréquence $\omega - \omega = 0$) et la sommation de fréquence ($0 + \omega = \omega$). Dans les deux processus que nous venons d'évoquer, le couplage entre l'onde fondamentale ω et l'onde générée lors de la première étape (onde harmonique 2ω ou redressée 0) induit l'équivalent d'une polarisation nonlinéaire d'ordre trois. Celle-ci est susceptible de modifier la phase de l'onde fondamentale. Cette modification de la phase est proportionnelle à l'intensité de l'onde fondamentale. La différence importante entre cette phase nonlinéaire induite par effet de cascade et celle, plus classique, associée aux effets nonlinéaires d'ordre trois réside dans le fait que les phénomènes $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ de cascade dépendent du désaccord de phase entre l'onde harmonique (ou redressée) et l'onde fondamentale $\Delta k = k(2\omega) - 2k(\omega)$ ($\Delta k = k(0) + k(\omega) - k(\omega)$). Les phénomènes de cascade offrent donc la possibilité, via le désaccord de phase Δk entre l'onde fondamentale et l'onde générée, d'un contrôle de l'amplitude et du signe de l'indice nonlinéaire induit.

Les premières études réalisées via la génération de second harmonique à l'échelle picoseconde et pour de grands désaccords de phase indiquaient que les nonlinéarités induites étaient peu importantes. Jusqu'aux années 1990, seule l'étude de l'influence de l'effet de cascade sur la génération de second harmonique est à noter. Comme nous

l'avons souligné précédemment, la compensation de l'intégrale B était principalement envisagée via des matériaux centrosymétriques. La mise au point de milieux inorganiques fortement nonlinéaires a relancé l'intérêt pour la compensation de l'intégrale B via les cascades d'effets nonlinéaires d'ordre deux. Avec ces nouveaux matériaux, les études réalisées alors, soulignent qu'en génération de second harmonique et au voisinage de l'accord de phase ($\Delta k = 0$), l'indice nonlinéaire induit par phénomène de cascade est grand par rapport aux nonlinéarités d'ordre trois [2], [3]. Ces travaux ont déclenché un grand intérêt et ont ouvert tout un champ d'études et d'applications. Parmi ceux-ci, citons l'étude de nouveaux types de solitons spatiaux, l'étude du blocage de modes ou la compression d'impulsions laser. Le lecteur intéressé par cette thématique pourra, par exemple, consulter l'article publiée par Stegeman *et al.* [2] sur le sujet.

Il est important de souligner les avantages que procurent les phénomènes de cascade pour la compensation de l'intégrale B. Nous limiterons volontairement cette discussion au cas de la génération de second harmonique.

- Les différents paramètres permettant de contrôler l'amplitude du phénomène sont l'intensité fondamentale, le désaccord de phase entre l'onde harmonique et l'onde fondamentale et le choix du cristal doubleur. Le nombre de ces paramètres laisse entrevoir de nombreuses combinaisons. Ainsi, pour une intensité et un cristal fixés, le désaccord de phase permet d'ajuster finement la phase de l'effet de cascade.
- Les nonlinéarités induites sont proportionnelles à l'intensité de l'onde fondamentale $I(x,y,t)$. La compensation de l'intégrale B est donc simultanément réalisée en espace et en temps.
- Pour corriger l'intégrale B, les solutions existantes nécessitent généralement des architectures particulières. La compensation par cascade d'effets nonlinéaires est une solution flexible. Une fois les paramètres permettant la compensation de l'intégrale B définis, cette compensation peut être réalisée au début, au milieu ou à la fin de la chaîne d'amplification.

Comme le souligne cette présentation, il est important de contrôler et mesurer précisément au niveau spatial et temporel la phase induite par une cascade d'effets nonlinéaires. Pour maîtriser cette compensation, la phase nonlinéaire doit être étudiée de manière complète et précise. Cependant et jusqu'à aujourd'hui, les différentes études sur l'effet de cascade présentent de nombreux désavantages.

- Peu de caractérisations du phénomène ont été menées dans le domaine des impulsions femtosecondes. Cette caractérisation est importante à la vue de l'intérêt croissant de la communauté scientifique pour l'étude des effets de cascade d'impulsions courtes sur de la propagation solitonique ou dans les oscillateurs paramétriques.
- Les larges capacités d'utilisation ont été largement démontrées, mais à notre

connaissance, aucune mesure quantitative n'a jamais été réellement effectuée. Par exemple, bien que la propagation de soliton spatio-temporel ait été mise en évidence expérimentalement [2], aucune mesure précise de la phase nonlinéaire acquise par des impulsions femtosecondes $B^{cascade}(x, y, t)$ n'a été réalisée dans le domaine spatial ou temporel. De telles mesures permettraient de réellement quantifier l'amplitude, le signe et la forme de la modification de la phase d'impulsions à spectre large. Ceci est indispensable pour permettre un contrôle effectif de la compensation l'intégrale B à la sortie des chaînes laser de puissance.

- D'un point de vue théorique, la description de la phase nonlinéaire a été largement étudiée pour des désaccords de phase Δk importants. Dans ce cas, l'efficacité de conversion de l'onde fondamentale vers l'onde harmonique est faible. On peut alors négliger la variation en intensité de l'onde fondamentale. De plus, si l'on considère que les ondes en interaction se comportent comme des ondes planes, il existe des solutions analytiques aux équations couplées décrivant la propagation des enveloppes lentement variables des ondes fondamentale et harmonique. Cependant, au voisinage de l'accord de phase ou en présence de cristaux longs, une étude numérique est nécessaire. Cette approche numérique rend difficile une description qualitative des phénomènes qui se produisent dans ces conditions. Dans la suite de ce document, nous verrons que ce dernier point est important dans le contexte des impulsions femtosecondes.

Développement de la thèse.

Comme nous venons de le rappeler, dans un cristal nonlinéaire, il est possible de générer un indice nonlinéaire via deux cascades de processus nonlinéaire d'ordre deux. Premièrement, par différence de fréquences suivie d'une sommation de fréquences. Deuxièmement par génération de second harmonique poursuivie par une différence de fréquences. Dans chacun des cas, l'onde fondamentale, au cours de sa propagation dans le cristal, rayonne une onde basse fréquence (ou une onde harmonique), celle-ci se couple à l'onde fondamentale via la sommation de fréquences (ou la différence de fréquences) et modifie la phase de cette dernière. Au cours de ce travail de thèse, nous avons étudié ces deux processus de cascade. Notre but était la compensation de l'intégrale B dans les chaînes laser de puissance.

Pour dimensionner un dispositif de compensation sur une chaîne, il était indispensable de tout d'abord comprendre puis de maîtriser les processus physiques mis en jeu. Les deux premières parties de la thèse sont donc consacrées à l'étude systématique des phases nonlinéaires temporelles et spatiales induites par effet de cascade. Ce travail touche simultanément des aspects expérimentaux et théoriques et constitue une partie

importante de ce travail de thèse.

Dans la première partie de cette thèse, nous nous sommes focalisés sur la variation d'indice nonlinéaire induite n_2^{OR} par le redressement optique d'une impulsion femtoseconde. C'est à notre connaissance une des rares études consacrées à ce sujet. Historiquement, le premier article théorique sur le sujet a été publié au début des années 1970 [5]. Les auteurs de ce travail soulignent que le champ statique $E(0)$ rayonné par redressement optique (un processus du type $\chi^{(2)}(\omega, -\omega, 0)$) peut moduler la phase de l'onde fondamentale qui lui a donné naissance. Plus de vingt ans plus tard, Bosshard et *al* [6] ont analysé théoriquement et expérimentalement ce phénomène en régime picoseconde. Les expériences de Z-scan réalisées soulignent que les nonlinéarités induites via ce processus sont importantes. Ainsi dans un cristal $KNbO_3$ l'indice nonlinéaire mesuré est $n_2^{OR} \sim 2 \cdot 10^{-18} m^2/W$. Il est important de noter qu'en utilisant des impulsions picosecondes (spectre étroit), la condition d'accord de phase entre l'onde fondamentale et l'onde redressée est automatique. Si l'on remplace l'impulsion picoseconde par une impulsion femtoseconde, l'onde redressée présente un large spectre. L'efficacité de la rectification optique dépend alors fortement du désaccord de phase. Les composantes spectrales dans le domaine TeraHertz pour lesquelles l'accord de phase est réalisé ont une amplitude qui croît rapidement au cours de leur propagation dans le cristal. Ces composantes modifient également l'indice du milieu. Ainsi, à côté des indices déjà étudiés, n_2^{Kerr} , n_2^{GSH} et n_2^{OR} , nous avons, théoriquement et expérimentalement, démontré l'existence d'un nouvel indice nonlinéaire, n_2^{THz} . Cet indice nonlinéaire est spatialement et temporellement "nonlocal". Sa valeur dépend fortement de la dispersion du milieu et ouvre des applications importantes pour la propagation d'impulsions courtes (solitons, mise en forme temporelle et spatiale,...). Cependant, le caractère nonlocal et l'amplitude de l'effet ne permettaient pas d'envisager une compensation de l'intégrale B.

La deuxième partie de la thèse s'attache à décrire la caractérisation de la variation d'indice induite par génération de second harmonique, n_2^{GSH} . Dans cette partie, notre objectif est de caractériser complètement (temps et espace) et précisément (mesure de phase) les nonlinéarités d'indice induites par cascade de phénomènes nonlinéaires d'ordre deux en présence de génération de second harmonique. Dans ce but, nous avons développé plusieurs dispositifs expérimentaux. Le point commun de tous ces dispositifs est l'utilisation de techniques pompe-sonde. Le principe de ces techniques consiste à mesurer les variations d'indice vues par une onde sonde et induites par un faisceau pompe intense.

Au cours de notre étude deux types de mesures ont été développées :

1. Tout d'abord, des mesures en intensité : au cours de leurs interactions dans le

cristal les ondes pompe et sonde créent un réseau nonlinéaire sur lequel elles se diffractent. En mesurant l'intensité des tâches diffractées, on peut, quantitativement, caractériser l'amplitude de la variation d'indice induite.

2. Nous avons, par la suite, développé une mesure de la phase de l'impulsion sonde, après sa propagation dans le milieu nonlinéaire et son interaction avec l'onde pompe. En plus des mesures d'amplitudes de la variation d'indice, nous avons ainsi pu caractériser précisément l'évolution spectrale et spatiale de l'effet de cascade.

Enfin, dans le dernier chapitre de la thèse, nous appliquerons cette caractérisation expérimentale et théorique de la variation d'indice induite par génération de second harmonique, n_2^{GSH} , à la compensation d'une intégrale B positive. L'objectif est de démontrer expérimentalement la compensation d'une intégrale B positive par une intégrale B négative. En s'appuyant sur les mesures en intensité mais surtout sur les mesures de phase, nous avons compensé spatialement les déformations de front d'onde dues à un indice nonlinéaire de type Kerr (induit dans un verre de silice) par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux. Cette démonstration expérimentale est un premier pas important vers l'utilisation des cascades de phénomènes nonlinéaires d'ordre deux pour l'amélioration de la qualité des faisceaux laser de haute puissance.

Première partie

Caractérisation de l'indice nonlinéaire
induit en présence de redressement
optique d'impulsions femtosecondes.

CHAPITRE

1

Caractérisation de l'indice nonlinéaire induit en présence de redressement optique d'impulsions femtosecondes.

Ce chapitre est dédié à la caractérisation de l'indice nonlinéaire induit par redressement optique d'impulsions femtosecondes dans un cristal nonlinéaire. Un montage d'effet Kerr résolu en temps a permis la mise en évidence expérimentale et l'étude précise de la dynamique temporelle de ce phénomène. Nous verrons que l'analyse théorique de ce processus, que nous avons proposée et qui n'avait jamais été parfaitement menée, permet une bonne description des résultats expérimentaux.

Introduction.

Le redressement optique d'une onde laser (i.e. différence de fréquences) et l'effet électro-optique (i.e. sommation de fréquences entre un champ statique et un champ alternatif) sont deux phénomènes nonlinéaires d'ordre deux. Chacun d'eux a été étudié séparément et leur utilité a été largement démontrée par ailleurs [7]. Dans ce chapitre, la cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux considérée est constituée de ces deux processus successifs, le redressement optique et l'effet électro-optique.

La polarisation générée par différence de fréquences rayonne un champ statique à

la fréquence nulle et s'écrit [6] :

$$P_i(0, \omega, -\omega) = \frac{\epsilon_0}{2} \chi_{ijk}^{(2)}(0, \omega, -\omega) E_j(\omega) E_k^*(\omega) = \epsilon_0 (\epsilon_{ii} - 1) E_i(0) \quad (1.1)$$

où ϵ_{ii} est la composante du tenseur diélectrique. Ce champ statique peut induire, au travers d'un deuxième processus, l'effet electro-optique, un indice nonlinéaire n_2^{OR} . Celui-ci s'écrit :

$$n_2^{OR} = \frac{n_i^6}{4c\epsilon_0(\epsilon_{kk} - 1)} [r_{ijk}]^2 \quad (1.2)$$

Cet indice nonlinéaire est toujours positif et son amplitude dépend du carré du coefficient electro-optique r_{ijk} et de l'indice linéaire n_i . Les modifications d'indice nonlinéaire n_2^{total} induit par redressement optique d'une impulsion picoseconde ont été mesurées par Bosshard *et al.* [6] par la méthode du Z-scan dans un cristal biaxe $KNbO_3$. Selon l'expression 1.2, les directions de propagation des ondes par rapport aux axes de symétrie du cristal sont importantes. En optimisant les configuration de polarisation, un indice nonlinéaire de l'ordre de $2.10^{-18} m^2.W^{-1}$ a été mesuré. Comme nous l'avons signalé dans l'introduction générale, cette modification de l'indice nonlinéaire ne peut être dissociée des autres effets contribuant également à cette modification : tout d'abord, l'effet Kerr associé à la susceptibilité intrinsèque $\chi^{(3)}$ du milieu, noté $n_2^{(Kerr)}$, et l'effet de cascade associé à la génération de second harmonique, noté $n_2^{(GSH)}$. Pour analyser le poids de chaque effet, une comparaison analytique des variations d'indice a été menée. L'indice nonlinéaire $n_2^{(Kerr)}$ possède une forme bien connue [8] :

$$n_2^{(Kerr)} = \frac{\chi^{(3)}}{n_0^2 c \epsilon_0} \quad (1.3)$$

Par contre, l'indice nonlinéaire de cascade associé à la génération de second harmonique, $n_2^{(GSH)}$, dépend du désaccord de phase entre l'onde harmonique et l'onde fondamentale. Si l'intensité de l'onde fondamentale est constante dans le cristal, son expression est simple [39] :

$$n_2^{(GSH)} = \frac{4d_{eff}^{(2)} L}{n_0^3 c \epsilon_0 \lambda \Delta k L} \quad (1.4)$$

où $d_{eff} = \frac{\chi^{(2)}}{2}$ et Δk est le désaccord de phase entre l'onde harmonique et l'onde fondamentale. Cette expression possède une forme tout à fait similaire aux expressions 1.3 et 1.2. Notons que la nonlinéarité la plus importante mesurée pour $n_2^{(GSH)}$ est de l'ordre de $2.10^{-16} m^2.W^{-1}$ dans un monocristal de polydiacétylène [9]. Comme le souligne l'expression 1.4, le désaccord de phase Δk modifie le signe et l'amplitude de l'indice nonlinéaire.

La possibilité de générer des indices nonlinéaires par effet de cascade a donné lieu à de nombreuses applications [7]. Celles-ci utilisent généralement des impulsions

quasi-monochromatiques picoseconde ou nanoseconde. L'utilisation d'impulsions femtosecondes nous a permis de mettre en évidence, une nouvelle contribution à l'indice nonlinéaire. Avec des impulsions à large spectre, la polarisation induite n'est plus monochromatique. La polarisation nonlinéaire d'ordre deux générée par redressement optique possède également un spectre large centré autour de la fréquence nulle :

$$\tilde{P}_u^{(2)}(\Omega, x, y, z) = \frac{\epsilon_0}{2\pi} \int \chi_u^{(2)}(\omega, \Omega - \omega) \tilde{E}_p(\omega, x, y, z) \tilde{E}_p(\Omega - \omega, x, y, z) d\omega \quad (1.5)$$

Cette polarisation rayonne un champ basse fréquence dont le spectre couvre une partie du domaine TeraHertz ($0 < \Omega < 5THz$). Ainsi, en plus de la contribution n_2^{OR} du champ statique à $\Omega = 0$, il faut également considérer la possibilité d'une modification d'indice du milieu associée à la propagation d'onde TeraHertz dans le cristal (effet electro-optique transitoire). Ce nouvel indice nonlinéaire sera noté n_2^{THz} . L'objectif de ce travail est de proposer une caractérisation expérimentale et théorique de $n_2^{(THz)}$. Nous étudierons la dynamique temporelle de cet indice. Nous montrerons également qu'il est non-instantané. La compétition entre $n_2^{(THz)}$ et $n_2^{(Kerr)}$ sera également étudiée. Expérimentalement, nous nous sommes efforcés de découpler les différentes

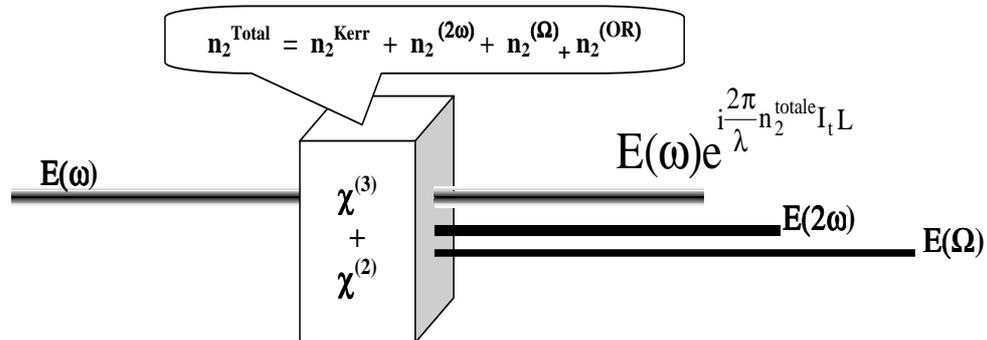


FIG. 1.1 — Contributions Kerr et cascade à la variation d'indice nonlinéaire.

contributions de n_2^{total} (celles-ci sont rappelées sur la figure 1.1). Notons par avance, que l'expression de $n_2^{(OR)}$ (Eq. 1.2) dépend fortement de la polarisation induite dans le milieu via la symétrie du coefficient électro-optique. Nous verrons que cette propriété peut être utilisée pour mettre en évidence une compétition entre les différentes contributions. Dans ce contexte, nous verrons plus loin que le choix des cristaux étudiés est primordial.

1.1 Description et protocole expérimental de la mesure hétérodyne d'effet Kerr optique résolue en temps .

Un montage expérimental a été réalisé, au C.P.M.O.H.¹, pour la mise en évidence de la variation de l'indice optique du milieu en présence de cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux. Pour caractériser cet effet nonlinéaire, une mesure d'effet Kerr optique est particulièrement adaptée. C'est une technique de grande sensibilité, relativement facile à mettre en oeuvre et offrant une résolution temporelle de l'ordre de quelques femtosecondes. Au C.P.M.O.H., cette technique a été largement utilisée pour mesurer les susceptibilités nonlinéaires d'ordre trois dans les milieux solides (verres par exemple) et liquides [10].

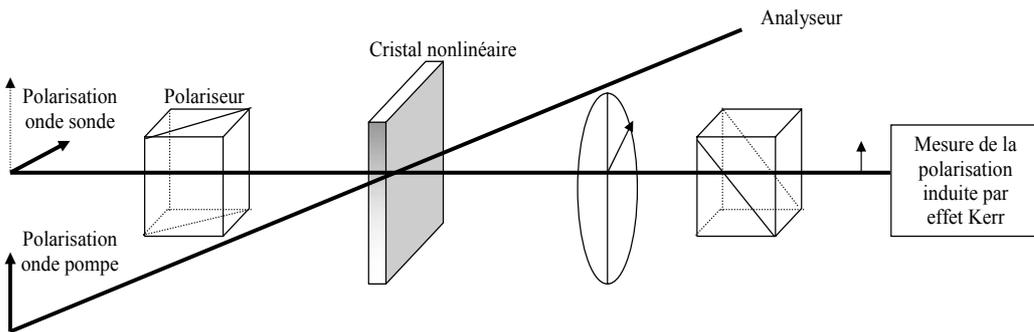


FIG. 1.2 — Schéma de principe de la mesure d'effet Kerr optique.

Le principe de l'effet Kerr optique est connu depuis 1875 [8]. Lorsque l'on applique un champ électrique intense E à un milieu, celui-ci devient biréfringent. Le champ E déforme le nuage électronique et crée une variation de l'indice optique Δn suivant la direction du champ excitateur. Celle-ci est directement reliée au carré du champ excitateur E : on écrit alors $\Delta n = n_2 E^2$. Dans cette expression, l'indice nonlinéaire n_2 représente la quantité physique que l'on cherchera à caractériser par la suite. Le schéma de principe expérimental de la mesure d'un effet Kerr optique illustré sur la figure 1.2 est un montage pompe-sonde noncolinéaire. Dans ce cas, les faisceaux pompe et sonde sont polarisés linéairement à 45° l'un de l'autre. Sur le trajet de l'onde sonde, le milieu Kerr est placé entre polariseur et analyseur croisés. En l'absence du faisceau pompe, la transmission au travers de l'analyseur est nulle. Au contraire, lorsque l'onde pompe traverse le milieu Kerr, une variation anisotrope d'indice est induite. Le faisceau sonde

¹Centre de physique moléculaire optique et Hertzienne, Université Bordeaux I.

est alors légèrement dépolarisé et une fuite peut être mesurée à l'aide d'un détecteur placé derrière l'analyseur.

1.1.1 Description du montage expérimental.

Le schéma exact du montage de mesure de l'effet Kerr optique résolue en temps est présenté sur la figure (1.3). Il permet de mesurer précisément la biréfringence induite par un faisceau pompe et subie par un faisceau sonde de plus faible intensité. Le laser Ti-Sapphire utilisé délivre, avec un taux de répétition de 76 MHz, des impulsions ayant une énergie de 10 nJ avec une durée de 120 fs. Le spectre des impulsions est centré autour de 800 nm. Une lame séparatrice ($R = 10\%$) est utilisée pour générer les faisceaux sonde et pompe. L'intensité et la polarisation de chacun des deux faisceaux sont contrôlées par un ensemble constitué d'une lame $\frac{\lambda}{2}$ et d'un prisme de Glan. Différentes configurations de polarisation des deux faisceaux peuvent alors être choisies. Les faisceaux pompe et sonde sont ensuite focalisés sur l'échantillon à étudier de façon noncolinéaire à l'aide d'une lentille sphérique de focale égale à 15 cm . La taille du col du faisceau au niveau de l'échantillon est égale à $w_0 \sim 30\mu m^2$. Dans cette configuration, l'intensité crête du faisceau pompe est de l'ordre de $10GW/cm^2$. Sur le trajet du faisceau sonde, l'échantillon est placé entre polariseur et analyseur croisés. La configuration hétérodyne est obtenue en ajoutant une lame $\frac{\lambda}{4}$ entre le polariseur et l'échantillon sur le trajet du faisceau sonde. Selon la présence ou l'absence de la lame $\frac{\lambda}{4}$, ce montage permet une mesure homodyne ou hétérodyne du signal d'effet Kerr optique. Comme nous le montrerons par la suite, la configuration hétérodyne permet une mesure directe et sensible de la phase nonlinéaire induite dans l'échantillon.

De plus, une ligne à retard précise ($\Delta t \sim 5fs$) placée sur le faisceau sonde permet de synchroniser temporellement le faisceau pompe avec le faisceau sonde. Pour régler le montage, nous vérifions tout d'abord que, lorsque l'impulsion pompe et l'impulsion sonde ne se recouvrent pas dans le milieu, la photodiode placée derrière l'analyseur délivre un signal nul. Cette photodiode est reliée à une détection synchrone. Celle-ci permet une mesure précise du courant débité par la photodiode. Pour éliminer les signaux résiduels dus aux fuites naturelles de l'analyseur ou ceux induits par les différentes diffusions de la lumière sur des éléments optiques, il est indispensable de moduler mécaniquement les faisceaux pompe et sonde à des fréquences incommensurables f_p et f_s . Dans ces conditions, la détection synchrone filtre efficacement le signal évoluant à la fréquence somme $f_p + f_s$ (proportionnel à $I_p I_s$), résultant du mélange des deux ondes. Après avoir réglé le synchronisme des impulsions pompe et sonde dans le milieu, celui-ci devient biréfringent. Nous optimisons alors le signal reçu par la photodiode. Après

²Largeur totale à mi-hauteur du faisceau

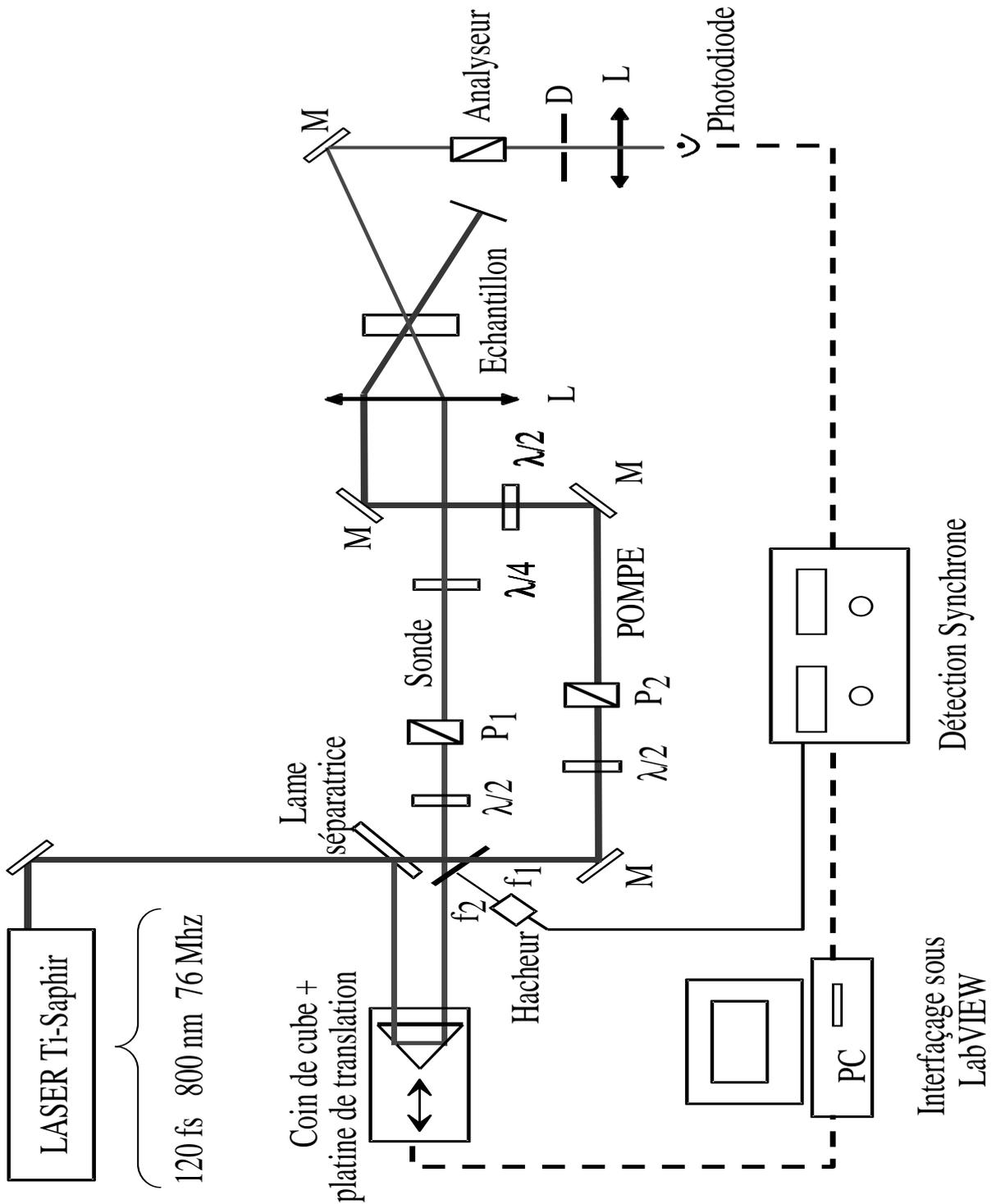


FIG. 1.3 — Expérience d'effet Kerr optique hétérodyne résolue en temps.

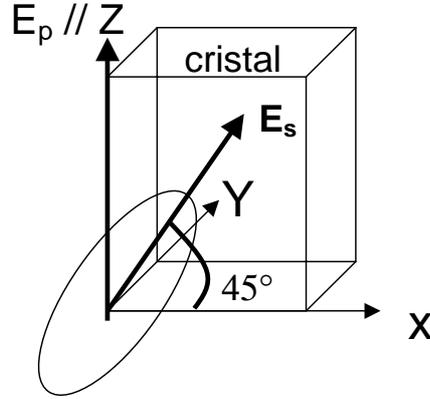


FIG. 1.4 — Configuration des polarisations pompe et sonde pour le calcul du signal hétérodyne.

l'analyseur, nous avons également rajouté un diaphragme (noté D) afin de filtrer la lumière parasite.

1.1.2 Protocole de mesure de l'indice nonlinéaire de cristaux cubiques en configuration hétérodyne.

Nous décrivons dans cette partie la mesure du signal Kerr hétérodyne induit dans des cristaux à symétrie cubique $\bar{4}3m$.

Principe et protocole de la mesure.

Avant de se propager dans le milieu, la polarisation de l'onde pompe est linéaire tandis que la polarisation de l'onde sonde est rendue légèrement elliptique par la lame $\frac{\lambda}{4}$. Pour l'onde sonde, le grand axe de l'ellipse est placé à 45° par rapport à la polarisation de l'onde pompe (Fig. 1.4). Nous noterons par α l'angle d'hétérodynage décrivant la faible ellipticité de la polarisation de l'onde sonde ($\alpha \ll 1$). Le champ sonde à l'entrée du cristal s'écrit³ :

$$\vec{E}_s^{entree}(t, z) = \frac{A_s(t)}{\sqrt{1 + \alpha^2}} \begin{pmatrix} \cos(\psi) - i\alpha \sin(\psi) \\ 0 \\ \sin(\psi) + i\alpha \cos(\psi) \end{pmatrix} \quad (1.6)$$

où $A_s(t, z)$, α et ψ représentent respectivement l'amplitude temporelle du champ électrique, l'ellipticité de la polarisation et l'angle entre le grand axe de l'ellipse et l'axe X

³Par commodité, nous avons noté z , la distance de propagation suivant l'axe Y du repère géométrique.

associé au référentiel du laboratoire. Le calcul du signal d'effet Kerr hétérodyne pour un angle de polarisation ψ quelconque est donné en annexe I. Cependant, dans notre configuration expérimentale, la polarisation de l'onde sonde sera toujours fixe et égale à $\psi = 45^\circ$. A partir de là, si $\psi = 45^\circ$, le champ sonde s'écrit :

$$\vec{E}_s^{entree}(t, z) = \frac{A_s(t)}{2} \sqrt{\frac{2}{1 + \alpha^2}} \begin{pmatrix} 1 - i\alpha \\ 0 \\ 1 + i\alpha \end{pmatrix} \quad (1.7)$$

Après propagation dans le cristal, l'onde sonde subit une modification de phase induite par un faisceau pompe dont l'intensité est notée I_p . Le faisceau pompe \vec{E}_p , polarisé linéairement suivant l'axe Z (Fig. 1.4), induit une modification de phase suivant les axes X et Z. A la sortie du cristal, le champ électrique de l'onde sonde s'écrit :

$$\vec{E}_s^{sortie}(t, z) = \frac{A_s(t)}{2} \sqrt{\frac{2}{1 + \alpha^2}} \begin{pmatrix} (1 - i\alpha)e^{i\phi_x} \\ 0 \\ (1 + i\alpha)e^{i\phi_z} \end{pmatrix} \quad (1.8)$$

$$= \frac{A_s(t)}{2} \sqrt{\frac{2}{1 + \alpha^2}} \begin{pmatrix} (1 - i\alpha)e^{i\Delta\phi} \\ 0 \\ (1 + i\alpha) \end{pmatrix} e^{i\phi_z} \quad (1.9)$$

où $\Delta\phi = \phi_x - \phi_z$. La fuite α créée par la $\frac{\lambda}{4}$ permet de détecter la phase $\Delta\phi$ vue par le champ électrique associé à l'impulsion sonde et induite par l'onde pompe dans le cristal. Compte tenu de son temps de réponse, la photodiode, reliée à une détection synchrone, intègre l'impulsion qu'elle reçoit après l'analyseur. Les faisceaux pompe et sonde étant hachés à des fréquences incommensurables f_p et f_s , le signal enregistré sur la détection synchrone à la fréquence somme $f_p + f_s$ peut se décomposer en un terme dit homodyne - indépendant de l'ellipticité α - et un terme dit hétérodyne - dépendant linéairement de α au premier ordre ⁴ :

$$S^{synchrone} = S_{homodyne}^{synchrone} + S_{heterodyne}^{synchrone} \quad (1.10)$$

avec

$$S_{homodyne}^{synchrone} = \left\langle \frac{I_s(t)}{4(1 + \alpha^2)} [1 - 2 \cos \Delta\phi] \right\rangle \quad (1.11)$$

$$S_{heterodyne}^{synchrone} = \left\langle \frac{I_s(t)}{4(1 + \alpha^2)} [\alpha^2(1 + 2 \cos \Delta\phi) - 4\alpha \sin \Delta\phi] \right\rangle \quad (1.12)$$

où $\langle \rangle$ désigne la valeur moyenne en fonction du temps. Il est important de noter que, au premier ordre, le signal homodyne est lié au carré du déphasage nonlinéaire induit

⁴Le calcul complet est développé dans l'annexe I.

$\Delta\phi^2$ tandis que le signal hétérodyne est linéaire par rapport à la phase $\Delta\phi$. Si l'on note alors que, dans la majorité des situations expérimentales, $\Delta\phi \ll 1$, il devient évident que la sensibilité d'une mesure hétérodyne est la plus importante. Cependant pour éliminer, une éventuelle composante homodyne, le protocole de mesure consiste à acquérir simultanément deux signaux aux angles d'hétérodynage $+\alpha$ et $-\alpha$. En faisant la différence entre les deux signaux mesurés, on élimine la composante homodyne. Ainsi on ne garde que la composante hétérodyne proportionnelle à α .

$$\begin{aligned} S^{final} &= S^{synchrone}(\alpha) - S^{synchrone}(-\alpha) \\ &= \left\langle \frac{I_s(t)}{1 + \alpha^2} \alpha \sin \Delta\phi \right\rangle \propto \alpha \left\langle I_s(t) \Delta\phi(t) \right\rangle \end{aligned} \quad (1.13)$$

L'acquisition simultanée des signaux aux angles d'hétérodynage $+\alpha$ et $-\alpha$ permet donc de calculer un signal directement proportionnel à la phase nonlinéaire induite dans l'échantillon.

1.2 Intérêt et critères de choix des cristaux $\bar{4}3m$ pour notre étude.

L'objectif de cette étude est de caractériser la dynamique temporelle de la modification d'indice nonlinéaire induit par une impulsion femtoseconde via un mécanisme de redressement optique. Ce phénomène est dû à une polarisation nonlinéaire d'ordre deux, proportionnelle à la susceptibilité d'ordre deux $\chi^{(2)}(\omega, -\omega, 0)$, qui rayonne une onde basse fréquence dans le milieu. Pour faciliter la mise en évidence et la compréhension de ce phénomène, le choix de l'échantillon est important. Par exemple, si l'on souhaite mesurer un changement d'indice significatif du milieu, il est évident qu'il est important de choisir un échantillon possédant une forte nonlinéarité quadratique et permettant de générer une onde basse fréquence intense. Notre choix s'est porté sur les cristaux semiconducteurs II-VI de type zinc-blende ZnTe et ZnSe. La taille de coupe a été choisie suivant l'axe $\langle 110 \rangle$ ⁵. Nous détaillons ci-dessous les critères qui nous ont conduits à ce choix.

- Tout d'abord, ces cristaux cubiques dont la symétrie cristalline est $\bar{4}3m$ n'ont pas de biréfringence naturelle dans le milieu. Cette isotropie optique des cristaux est tout à fait adaptée à la mesure d'effet Kerr.
- Les propriétés nonlinéaires optiques de ces milieux sont bien connues car ces cristaux sont largement utilisés pour la génération d'onde dans le domaine TeraHertz.
- Le seul élément de susceptibilité d'ordre deux non nul est le coefficient

⁵La notation $\langle abc \rangle$ désigne l'orientation de la normale à la surface d'entrée de l'échantillon par rapport aux axes cristallographiques. Nous reviendrons plus loin sur ce choix de coupe.

$$2d_{14} = \chi_{ijk}^{(2)} \text{ avec } i \neq j \neq k.$$

- La susceptibilité nonlinéaire d'ordre trois ne possède que 2 types d'éléments indépendants parmi les 81 possibles :

$$a = \chi_{iii}^{(3)} \text{ et } b = \chi_{iijj}^{(3)} = \chi_{ijij}^{(3)} = \chi_{ijji}^{(3)}$$

- Ils sont transparents dans le domaine de longueur d'onde utilisé ($\lambda_0 = 800nm$) et absorbent fortement l'harmonique de celui-ci. Ceci est important pour pouvoir négliger les effets de cascade dus à la génération de fréquence double [6] pouvant modifier l'indice nonlinéaire du cristal.
- Enfin, les cristaux choisis possèdent une faible absorption dans le domaine des basses fréquences qui nous concerne.

Les caractéristiques les plus importantes de ces cristaux pour notre étude sont reportées dans le tableau ci dessous(1.2) [11] :

	E_g	n	$\chi^{(2)}$	$\chi^{(3)}$
	eV	$\lambda = 800nm$	m/V	m^2/V^2
ZnTe	2.2	2.85	$90 \cdot 10^{-12}$	$3 \cdot 10^{-19}$
ZnSe	2.8	2.51	$30 \cdot 10^{-12}$	$1 \cdot 10^{-19}$

La connaissance des caractéristiques de ces cristaux permet d'évaluer les différentes contributions au changement d'indice nonlinéaire (Fig. 1.1). La biréfringence $\Delta\phi$ mesurée dans l'expérience d'effet Kerr est proportionnelle au n_2^{total} . Comme nous l'avons montré, cet indice nonlinéaire n_2^{total} est la somme de quatre contributions différentes : $n_2^{total} = n_2^{Kerr} + n_2^{GSH} + n_2^{OR} + n_2^{THz}$. Celles-ci ont été explicitées lors de l'introduction. Dans le tableau 1.2 ci-dessous, nous avons reporté les différentes valeurs de ces indices nonlinéaires calculées à partir des relations données par [6]. Nous pouvons ainsi évaluer le poids de chaque contribution :

	$\chi^{(2)}$	$\chi^{(3)}$	n_2^{Kerr}	n_2^{GSH}	n_2^{OR}
	(pm/V)	(m^2/V^2)	(m^2/GW)	(m^2/GW)	(m^2/GW)
ZnTe	90	$3 \cdot 10^{-19}$	$1 \cdot 10^{-17}$	$5 \cdot 10^{-20}$	$4 \cdot 10^{-20}$
ZnSe	30	$1 \cdot 10^{-19}$	$3 \cdot 10^{-18}$	$2 \cdot 10^{-20}$	$5 \cdot 10^{-21}$

Ce tableau indique clairement que la nonlinéarité d'ordre trois n_2^{Kerr} dépasse largement les nonlinéarités associées aux effets de cascade n_2^{OR} et n_2^{GSH} . Malgré la forte nonlinéarité d'ordre deux des cristaux, n_2^{GSH} est trois ordres de grandeur plus faible que n_2^{Kerr} . Ceci est dû au grand désaccord de phase ($\Delta k \sim 10^5 cm^{-1}$) associé à la génération de second harmonique dans ces cristaux ($n_2^{GSH} \sim \frac{1}{\Delta k}$) et à la forte absorption autour de la fréquence harmonique [11]. Dans nos conditions expérimentales, ces valeurs calculées nous permettent de négliger les contributions n_2^{GSH} et n_2^{OR} par rapport à la contribution n_2^{Kerr} . Au contraire, nous montrerons plus loin que n_2^{THz} est lui comparable à la

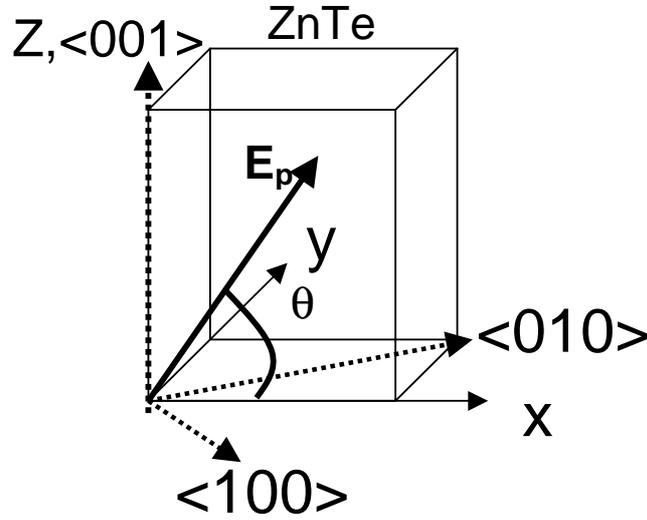


FIG. 1.5 — Configuration des polarisations pompe et sonde pour le cristal de ZnTe coupé dans le plan $\langle 110 \rangle$.

nonlinéarité d'ordre trois, n_2^{Kerr} , et ne peut donc pas être négligé. Il est important de rappeler ici qu'en faisant tourner l'axe de la polarisation de l'onde pompe autour de l'axe de propagation Y (entre les axes cristallographiques $\langle 001 \rangle$ ($//Z$) et $\langle 110 \rangle$), il est possible de mettre en évidence une compétition entre les deux contributions n_2^{THz} et n_2^{Kerr} .

1.3 Illustration expérimentale de l'effet de cascade dû au redressement optique dans un cristal de ZnTe.

1.3.1 Présentation des mesures d'effet Kerr.

Nous présentons dans ce paragraphe les premières mesures expérimentales qui ont été réalisées sur un cristal de ZnTe de 2 mm à une longueur d'onde du laser égale à $\lambda_0 = 800nm$. La configuration de polarisation (Fig. 1.5) est choisie de telle sorte que la polarisation de l'onde pompe soit suivant l'axe Z du repère géométrique ($\theta = 90^\circ$). Cet axe Z correspond aussi à l'axe cristallographique $\langle 001 \rangle$ du cristal. Les mesures enregistrées en fonction du retard pompe-sonde τ pour deux angles d'hétérodynage différents sont présentées sur la figure 1.6(a). En appliquant le protocole expérimental de mesure, un rapport signal sur bruit supérieur à trois décades est obtenu (Fig. 1.6(b)). Le signal mesuré est ici centré autour du retard nul et possède une forme gaussienne. Dans cette configuration, la polarisation de l'onde pompe est parallèle à l'axe cristallographique $\langle 001 \rangle$ et le changement d'indice dans le milieu est uniquement dû à la

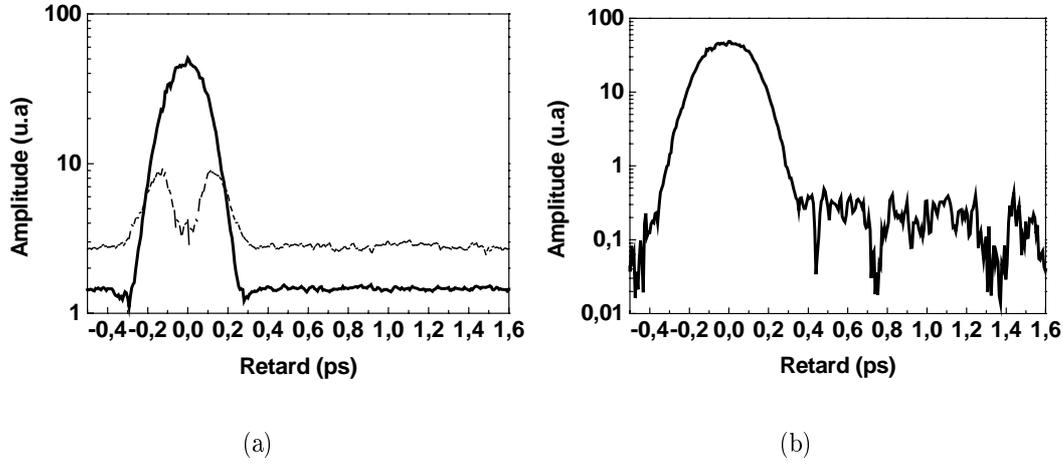


FIG. 1.6 — (a) : Signaux d'effet Kerr mesurés à $\theta = 90^\circ$ homodyne pour $\alpha > 0$ (segment) et $\alpha < 0$ (trait plein). (b) : Signaux d'effet Kerr hétérodyne pour $\theta = 90^\circ$ (signal $\alpha > 0$ - signal $\alpha < 0$).

nonlinéarité d'ordre trois intrinsèque au milieu. Ceci s'explique par la symétrie de la susceptibilité nonlinéaire d'ordre deux qui impose que $\chi_{izz}^{(2)} = 0$ quelque soit $i = x, y, z$. Pour cet angle de polarisation, on peut montrer que le signal Kerr hétérodyne est alors uniquement proportionnel à la trace d'autocorrélation des impulsions pompes et sondes $\langle I_p(t)I_s(t + \tau) \rangle$ [10].

Mise en évidence des phénomènes de cascade $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$.

Nous avons reproduit l'expérience en fixant la polarisation de l'onde pompe perpendiculairement à l'axe Z ($\theta = 0^\circ$). Dans ce cas $\chi_{xyz}^{(2)} \neq 0$ et une cascade de nonlinéarité d'ordre deux doit contribuer au changement d'indice. Les signaux enregistrés dans cette configuration (Fig. 1.7(b)) montrent clairement l'apparition d'oscillations marquées pour des retards supérieurs à la durée temporelle des impulsions. Compte tenu de l'amplitude de ces oscillations et des valeurs associées aux différentes contributions à l'indice nonlinéaire (tableau 1.2), nous pouvons considérer que c'est la première mise en évidence de la modification de l'indice nonlinéaire par des effets de cascade associés au redressement optique d'impulsions femtosecondes. La fréquence des oscillations que nous mesurons est de l'ordre de $2.5THz$. La compétition entre les phénomènes nonlinéaires d'ordre trois instantanés et les phénomènes de cascade non-instantanés apparaissent clairement sur ces figures. Il est possible de dissocier simplement les deux effets : pour cela, nous avons supposé qu'ils étaient indépendants l'un de l'autre. Ainsi, en soustrayant la trace d'autocorrélation centrée en zéro (largeur à mi-hauteur 139 fs) au signal d'effet Kerr mesuré (Fig. 1.8(a)), nous obtenons un signal oscillant à une fréquence caractéristique centrée autour de 2.55 THz (Fig. 1.8(b)). En paramétrant

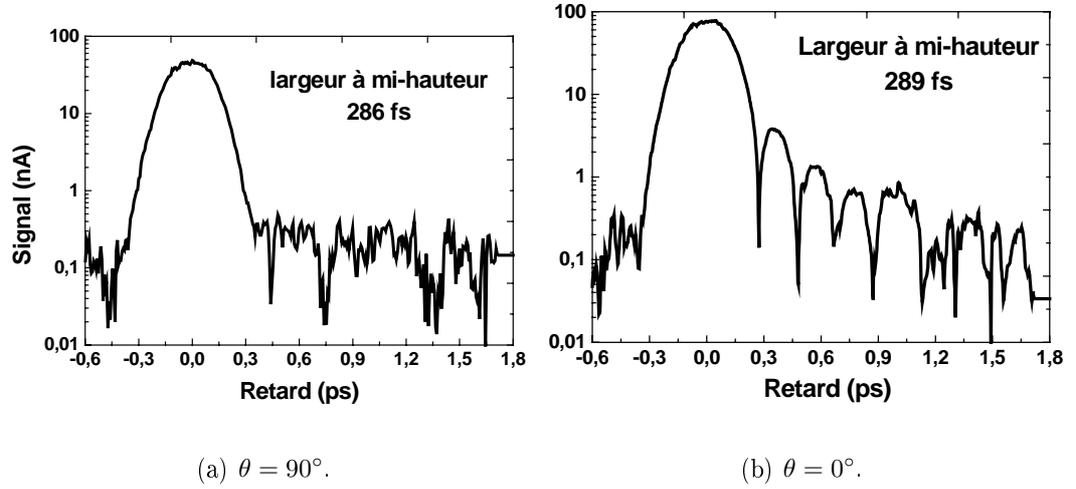


FIG. 1.7 — Signaux d'effet Kerr hétérodynes mesurés pour deux angles de polarisation θ de l'onde pompe.

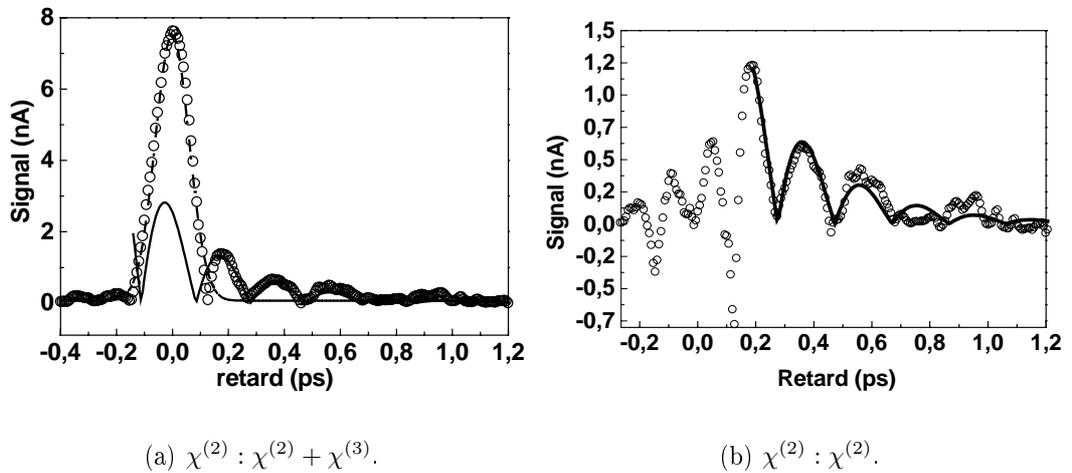


FIG. 1.8 — (a) : (o) Signal d'effet Kerr mesuré à $\theta = 62^\circ$, (—) Paramétrage du signal Kerr à $\tau = 0ps$.
 (b) Signal dû à l'effet de cascade : différence du signal Kerr avec la gaussienne paramétrée.

le signal restant, il est possible de déduire la composante à retard nul due à l'effet de cascade. Cette méthode est illustrée sur la figure 1.8(b). Notons que le déphasage nonlinéaire dû à l'effet de cascade est non négligeable. Pour cette configuration, où la polarisation de l'onde pompe est à 62° du plan d'incidence, il est de l'ordre de 35% du signal total.

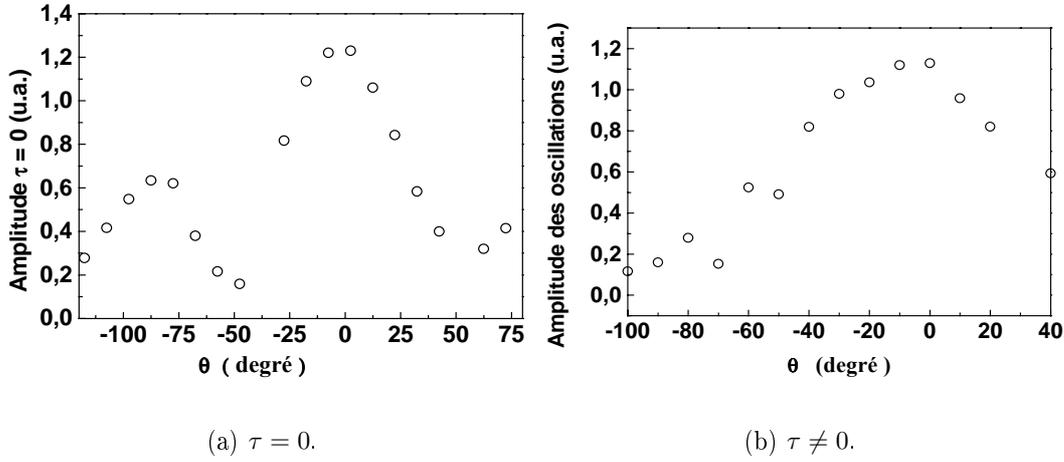


FIG. 1.9 — (a) : Amplitude du signal Kerr à retard nul ($\tau = 0$) en fonction de θ . (b) : Amplitude de la première oscillation en fonction de θ ($\tau \neq 0$).

1.3.2 Evolution des signaux en fonction de la polarisation de l'onde pompe.

Mesure de l'évolution des contributions Kerr et cascade en fonction de θ .

Les figures 1.9(a) et 1.9(b) présentent l'évolution de la composante à retard nul pour différentes valeurs de l'angle de polarisation θ de l'onde pompe. Sur cette figure, l'onde sonde était maintenue à un angle de 45° . La figure 1.9(a) décrit l'évolution du maximum du signal à retard nul $\tau = 0$ tandis que la figure 1.9(b) décrit l'évolution du premier maximum des oscillations à $\tau = 0.4ps$. Il apparaît clairement qu'il existe un comportement différent pour la contribution Kerr et cascade suivant la polarisation de l'onde pompe. Nous verrons plus loin qu'il permet de déterminer chaque contribution en fonction de θ .

Par ailleurs, nous avons vérifié que la fréquence et le temps d'amortissement caractéristique des oscillations enregistrées aux temps longs sont indépendants de l'angle θ . La fréquence d'oscillation et le temps d'amortissement sont respectivement égaux à 2.55 ± 0.05 THz et 220 ± 40 fs.

Evolution du signal de cascade en fonction de θ .

Pour calculer les contributions au signal d'effet Kerr associées respectivement à l'effet de cascade ($\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$) et à l'effet Kerr ($\chi^{(3)}$), il est indispensable de calculer les polarisations nonlinéaires d'ordre deux et trois générées dans le cristal par les faisceaux pompe et sonde. Ces polarisations ont une expression simple dans le re-

père cristallographique défini par les directions $\langle 100 \rangle$, $\langle 010 \rangle$ et $\langle 001 \rangle$. Dans ce repère, le champ pompe est défini par $\vec{E}_p = E_p^0 \begin{pmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} \cos \theta \\ \frac{\sqrt{2}}{2} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix}$ ⁶ et le champ sonde par

$$\vec{E}_s = \frac{E_s^0}{2} \sqrt{\frac{2}{1+\alpha^2}} \begin{pmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2}(1-i\alpha) \\ \frac{\sqrt{2}}{2}(1-i\alpha) \\ (1+i\alpha) \end{pmatrix}$$
⁷. Nous négligeons pour l'instant toutes les dépendances temporelles et spatiales des champs mis en jeu.

Le calcul de la variation d'indice associée à l'effet de cascade doit être décomposé en deux étapes. Dans une première étape, nous devons calculer l'onde basse fréquence générée dans le cristal par différence de fréquences. La polarisation nonlinéaire d'ordre deux associée est définie de la manière suivante :

$$\vec{P}_{diff}^{(2)} = \overline{\overline{\chi}}^{(2)} \vec{E}_p \vec{E}_p^* \quad (1.14)$$

Le seul coefficient nonlinéaire d'ordre deux non nul est le coefficient $\chi_{ijk}^{(2)}$ avec $i \neq j \neq k$. Finalement, en développant l'équation (1.14), cette polarisation devient :

$$\vec{P}_{diff}^{(2)} = \begin{pmatrix} \chi_{xyz}^{(2)} (E_p^y E_p^{z*} + E_p^{y*} E_p^z) \\ \chi_{yxz}^{(2)} (E_p^x E_p^{z*} + E_p^{x*} E_p^z) \\ \chi_{zxy}^{(2)} (E_p^x E_p^{y*} + E_p^{x*} E_p^y) \end{pmatrix} = \chi_{xyz}^{(2)} \begin{pmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} \sin 2\theta \\ \frac{\sqrt{2}}{2} \sin 2\theta \\ \cos^2 \theta \end{pmatrix} I_p \quad (1.15)$$

Dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable et en négligeant toutes les dépendances temporelles et spectrales, le champ basse fréquence rayonné peut ainsi être déterminé. Le champ rayonné est proportionnel à la polarisation nonlinéaire induite par différence de fréquence.

$$\frac{\partial \vec{E}_{THz}}{\partial z} \propto \vec{P}_{diff}^{(2)} \quad (1.16)$$

La deuxième étape du calcul consiste ensuite à déterminer la polarisation nonlinéaire d'ordre deux associée au couplage de l'onde basse fréquence avec l'onde sonde. C'est cette polarisation à la fréquence fondamentale qui modifie la phase de l'onde sonde. Elle s'écrit :

$$\vec{P}_{som}^{(2)} = \overline{\overline{\chi}}^{(2)} \vec{E}_{THz} \vec{E}_s \quad (1.17)$$

⁶ θ est l'angle entre la polarisation de l'onde pompe \vec{E}_p et l'axe cristallographique $\langle 110 \rangle$.

⁷ α est l'angle d'hétérodynage.

Dans le repère cristallin, cette polarisation prend la forme suivante :

$$\begin{aligned}\vec{P}_{som}^{(2)} &= \chi_{xyz}^{(2)} \begin{pmatrix} E_y^{THz} E_z^{sonde} + E_z^{THz} E_y^{sonde} \\ E_x^{THz} E_z^{sonde} + E_z^{THz} E_x^{sonde} \\ E_x^{THz} E_y^{sonde} + E_y^{THz} E_x^{sonde} \end{pmatrix} \\ &= [\chi_{xyz}^{(2)}]^2 \begin{pmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} E_z^{sonde} \sin 2\theta + E_y^{sonde} \cos^2 \theta \\ \frac{\sqrt{2}}{2} E_z^{sonde} \sin 2\theta + E_x^{sonde} \cos^2 \theta \\ \frac{E_x^{sonde} + E_y^{sonde}}{\sqrt{2}} \sin 2\theta \end{pmatrix} I_p \end{aligned} \quad (1.18)$$

Dans le repère géométrique (XYZ), sachant que $\frac{E_x + E_y}{\sqrt{2}} = E_X$ et $\frac{E_x - E_y}{\sqrt{2}} = 0$, nous avons :

$$\vec{P}_{som}^{(2)} = [\chi_{xyz}^{(2)}]^2 \begin{pmatrix} \sqrt{2}[E_Z^{sonde} \sin 2\theta + E_X^{sonde} \cos^2 \theta] \\ 0 \\ E_X^{sonde} \sin 2\theta \end{pmatrix} I_p \quad (1.19)$$

Cette polarisation peut encore s'écrire :

$$\begin{aligned}\vec{P}_{som}^{(2)} &\propto [\chi_{xyz}^{(2)}]^2 \begin{pmatrix} \sqrt{2}[E_{initial,Z}^{sonde} \sin 2\theta + E_{initial,X}^{sonde} \cos^2 \theta] \\ 0 \\ E_{initial,X}^{sonde} \sin 2\theta \end{pmatrix} I_p E_s^0 \\ &\propto [\chi_{xyz}^{(2)}]^2 \begin{pmatrix} \sqrt{2}(1 + i\alpha) \sin 2\theta + (1 - i\alpha) \cos^2 \theta \\ 0 \\ \frac{\sqrt{2}}{2}(1 - i\alpha) \sin 2\theta \end{pmatrix} I_p E_s^0 \end{aligned} \quad (1.20)$$

Le champ rayonné par cette polarisation est calculé à partir de l'équation de propagation suivante :

$$\frac{\partial \vec{E}_{sonde}^{final}}{\partial z} \propto \vec{P}_{som}^{(2)} \quad (1.21)$$

Notons tout d'abord que que cette expression 1.20 est analogue à une polarisation nonlinéaire d'ordre trois effective ($\propto I_p E_s^0$). Elle rayonne un champ suivant les directions X et Z qui modifiera les composantes E_X et E_Z de de l'onde sonde. Ces deux directions étant couplées, nous faisons l'approximation que la modification de l'onde sonde induite par l'onde TeraHertz est faible. Nous pouvons ainsi mesurer la biréfringence induite $\Delta\phi^{cascade}(\theta)$ en fonction de l'angle θ .

Le signal mesuré par la photodiode placée à la fin du montage expérimental est proportionnel au module carré de la fuite du faisceau sonde au travers de l'analyseur. Cette fuite est une mesure de la biréfringence $\Delta\phi^{cascade}(\theta)$ induite par l'impulsion pompe dans le cristal et subie par l'impulsion sonde. Ainsi,

$$\Delta\phi^{cascade}(\theta) = |\vec{E}_{sonde}^{final} \cdot \vec{V}_A|^2 = \left| \frac{1}{\sqrt{2}} (E_{sonde,Z}^{final} - E_{sonde,X}^{final}) \right|^2 \quad (1.22)$$

où $\vec{V}_A = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} -1 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$ est le vecteur définissant la direction de l'analyseur. Nous faisons ainsi apparaître le signal dû à l'effet de cascade qui apparaît comme la somme d'un terme homodyne (indépendant de α) et d'un terme hétérodyne (proportionnel à α). Le signal hétérodyne calculé évolue en $\cos^2 \theta$:

$$\Delta\phi_{heterodyne}^{cascade}(\theta) \propto \alpha [\chi_{xyz}^{(2)}]^2 \cos^2 \theta I_p E_s^0 \quad (1.23)$$

Cette expression du déphasage induit par effet de cascade en fonction de l'angle de la polarisation de l'onde pompe nous permettra de décrire l'évolution de nos résultats expérimentaux.

Evolution du signal Kerr en fonction de θ .

Dans un cristal cubique $\bar{4}3m$, la susceptibilité nonlinéaire d'ordre trois possède 2 types d'éléments indépendants :

$$a = \chi_{iii}^{(3)} \text{ et } b = \chi_{ijj}^{(3)} = \chi_{iji}^{(3)} = \chi_{jji}^{(3)}$$

Dans le repère géométrique (XYZ), la polarisation nonlinéaire d'ordre trois prend la forme suivante ⁸ :

$$\begin{aligned} \vec{P}^{(3)} &= \chi^{(3)} \vec{E}^{pompe} \vec{E}^{pompe*} \vec{E}^{sonde} \\ &= 6b \begin{pmatrix} (1 + \frac{u+1}{2} \cos^2(\theta)) E_X^{sonde}(t, z) + \sin(2\theta) E_Z^{sonde}(t, z) \\ (1 + \frac{u-3}{2} \cos^2(\theta)) E_Y^{sonde}(t, z) \\ (1 + (u-1) \sin^2(\theta)) E_Z^{sonde}(t, z) + \sin(2\theta) E_X^{sonde}(t, z) \end{pmatrix} | E^{pompe}(t, z) |^2 \end{aligned} \quad (1.24)$$

où $u = \frac{a}{b}$ est le rapport des éléments de susceptibilités d'ordre trois. Le déphasage nonlinéaire dû à l'effet Kerr devient finalement :

$$\Delta\phi^{Kerr}(\theta) \propto 6b [(u+1) \cos^2(\theta) - 2(u-1) \sin^2(\theta)] | E_p |^2 E_s^0 \quad (1.25)$$

Rappelons que le signal Kerr hétérodyne est linéaire par rapport à $\Delta\phi^{Kerr}(\theta)$. Ainsi, nous voyons clairement apparaître que l'évolution en fonction de θ du signal Kerr et celle du signal dû à l'onde TeraHertz sont différentes. Ceci nous permet de confirmer expérimentalement l'évidence de la contribution Kerr et cascade aux signaux mesurés.

⁸Pour simplifier ce calcul, nous considérerons un champ sonde polarisé rectilignement ($\alpha = 0$).

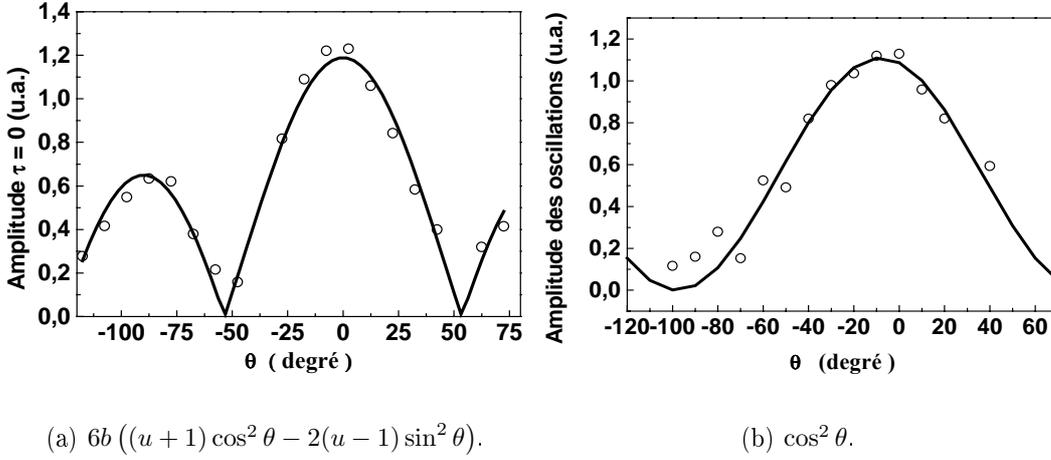


FIG. 1.10 — Paramétrage de l'évolution de l'amplitude des contributions instantanées (a) et non instantanées (b) au signal d'effet Kerr.

Paramétrage des résultats expérimentaux.

Sur la figure 1.10(a) et 1.10(b), nous avons reporté l'évolution du signal hétérodyne en fonction de l'angle θ pour deux retards différents correspondant au premier ($\tau=0$) et deuxième maximum ($\tau \simeq 0.3$ ps). Le paramétrage de ces courbes, à l'aide des équations 1.25 et 1.23, permet de déterminer le rapport des susceptibilités d'ordre trois $u = \frac{\chi_{xxxx}^{(3)}}{\chi_{xzzz}^{(3)}} = 1.9$. Cette valeur est comparable à la valeur théorique trouvée dans la littérature $u = 2$ [17]. En résumé, la symétrie des cristaux cubiques $\bar{4}3m$ nous a permis de comprendre le comportement des signaux enregistrés sur les figures 1.9(a) et 1.9(b). L'analyse des résultats en fonction de θ , nous permet de montrer que, à retard long, ces oscillations du signal sont la signature de la cascade d'effets non-linéaires d'ordre deux. L'image physique que l'on peut dégager est la suivante. L'impulsion pompe se propageant dans le cristal crée, par différence de fréquences, une impulsion TeraHertz (premier phénomène non-linéaire d'ordre deux). Cette onde se propageant alors dans le cristal, induit, par effet électro-optique, une modulation de l'indice. C'est cette modulation de l'indice qui est subie par l'impulsion sonde (deuxième phénomène non-linéaire d'ordre deux). Cette approche physique simple indique que nous avons un moyen direct de sonder l'onde TeraHertz se propageant dans le cristal [12]. Physiquement, l'onde TeraHertz crée des vibrations du réseau et induit une anisotropie de l'indice du milieu. La polarisation de l'onde sonde, initialement rectiligne, devient alors légèrement elliptique. La bonne résolution temporelle de notre montage nous permet ainsi d'échantillonner l'évolution temporelle de la variation d'indice due à l'onde TeraHertz en fonction du retard pompe-sonde.

1.4 Analyse théorique de l'indice nonlinéaire : couplage d'une onde basse fréquence (THz) avec une onde haute fréquence (PHz)

La description des données expérimentales présentées au paragraphe précédent indique que le phénomène observé est qualitativement correct. Toutefois, si l'on désire paramétrer l'ensemble des mesures effectuées, une analyse plus rigoureuse s'avère nécessaire. Cette analyse rigoureuse nécessite la résolution des équations de Maxwell nonlinéaires.

Dans notre cas, trois ondes interagissent dans le milieu : l'impulsion pompe, l'impulsion TeraHertz générée par différence de fréquences et l'impulsion sonde. Les impulsions pompe et sonde ont une durée de 100fs et possèdent donc un spectre large ($\sim 8\text{nm}$) dans le domaine optique. La différence de fréquences entre les différentes composantes spectrales de l'impulsion pompe génère une impulsion couvrant une large bande spectrale dans le domaine TeraHertz (Fig. 1.11(b)). Au cours de sa propagation cette impulsion TeraHertz modifie l'indice nonlinéaire du milieu. Par conséquent, l'impulsion sonde évoluant dans le domaine optique subit un déphasage lors de sa propagation dans le cristal.

L'objectif de notre modélisation est de décrire complètement ces étapes successives. Dans la première étape nous résoudrons l'équation décrivant la génération et la propagation de l'onde TeraHertz. Dans une deuxième étape, nous chercherons la solution de l'équation d'évolution de l'onde sonde. Cette onde (PetaHertz) sera couplée à l'onde basse fréquence (TeraHertz) se propageant dans le cristal. L'originalité de notre problème est que la résolution des équations de Maxwell nécessite de sortir du cadre des approximations habituellement considérées dans le domaine optique. Soulignons dès à présent les particularités du calcul.

1. La résolution des équations couplées dans le domaine optique se fait généralement dans le cadre de l'approximation des enveloppes lentement variables. En écrivant le champ électrique des impulsions sous la forme $E(t, \vec{r}) = A(t, \vec{r})e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})}$, on considère que les oscillations du champ électrique optique varient beaucoup plus rapidement que l'enveloppe de l'impulsion notée $A(t, \vec{r})$. Si l'on considère que dans nos conditions expérimentales, le champ électrique TeraHertz généré est la dérivée de l'enveloppe $E^{THz} \sim \frac{\partial A(t, \vec{r})}{\partial t}$, son évolution est représentée sur la figure 1.11(a) [13]. Ce champ électrique est un monocycle optique : l'utilisation de l'approximation de l'enveloppe lentement variable pour l'onde TeraHertz n'est donc plus justifiée.
2. Pour des impulsions de l'ordre de 100fs , le spectre rayonné par la polarisation

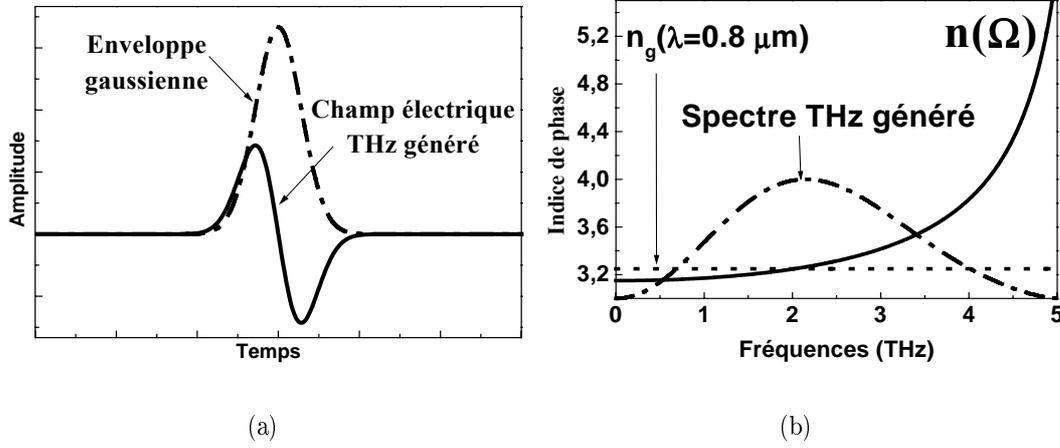


FIG. 1.11 — (a) : Forme temporelle du champ électrique THz généré (trait plein) obtenue à partir de l'enveloppe gaussienne de l'onde optique. (b) : Dispersion de l'indice (trait plein) dans la région spectrale THz (pointillés). Les points représentent l'indice de groupe optique à $\lambda = 800nm$.

générée dans le domaine TeraHertz est de l'ordre 10 THz⁹(Fig. 1.11(b)). Ce spectre couvre donc une bande de longueur d'onde comprise entre $50 \mu m$ et $500 \mu m$. Or dans ce domaine, la présence de phonons optiques est à l'origine d'une large dispersion des propriétés optiques linéaires et nonlinéaires. Ceci impose notamment de tenir compte de la dispersion de la nonlinéarité d'ordre deux. Or de telles dispersions sont généralement négligées dans le domaine optique.

1.4.1 Accord de Phase pour la génération d'une onde TeraHertz.

La forte dispersion existant dans le domaine TeraHertz a une conséquence importante. Elle permet la génération d'onde TeraHertz avec accord de phase. Comme pour la génération de second harmonique, nous verrons que l'accord de phase Δk joue un rôle important. Dans la direction de propagation de l'onde optique, la condition d'accord de phase pour la fréquence TeraHertz Ω générée par différence de fréquences entre les composantes $\omega - \Omega$ et ω s'écrit de la façon suivante¹⁰ :

$$0 = k_{THz}(\Omega) - k_{opt}(\omega - \Omega) - k_{opt}(\omega) \quad (1.26)$$

Nous considérerons désormais que la fréquence optique ω est fixe et est égale à la fréquence centrale ω_0 de l'impulsion pompe ($\Omega \ll \omega_0$). Le désaccord de phase devient

⁹ $\Delta\nu \sim \frac{1}{\tau}$ où τ est la durée d'impulsion de l'onde optique

¹⁰ ω et Ω décrivent respectivement les pulsations dans le domaine optique ($\sim 10^{15}Hz$) et dans le domaine TeraHertz ($\sim 10^{12}Hz$)

[12] :

$$\begin{aligned}\Delta k(\Omega, \theta) &= k_{THz}(\Omega) - k_{opt}(\omega_0 + \Omega) - k_{opt}(\omega_0) \\ &= k_{THz}(\Omega) - \Omega \frac{\partial k}{\partial \omega_0}\end{aligned}\quad (1.27)$$

$$= \frac{\Omega}{v_\phi(\Omega)} - \frac{\Omega}{v_{groupe}(\omega_0)}\quad (1.28)$$

$v_\phi(\Omega)$, $v_{groupe}(\omega_0)$ représentent respectivement la vitesse de phase de l'onde TeraHertz générée et la vitesse de groupe de l'onde optique. Suivant les régimes de dispersion, trois situations se présentent :

1. $\Delta k = 0$ si $v_\phi(\Omega) = v_{groupe}(\omega_0)$: la condition d'accord de phase est réalisée dans la direction longitudinale. Dans ce cas, la vitesse de propagation du paquet d'ondes optiques $v_{groupe}(\omega_0)$ est égale à celle de la composante TeraHertz générée. L'efficacité du couplage entre les ondes est alors importante.
2. $\Delta k < 0$ où $v_\phi(\Omega) < v_{groupe}(\omega_0)$: ce régime de propagation est appelé "régime Cherenkov" [18]. Il a été montré que les composantes TeraHertz générées interfèrent constructivement hors de l'axe de propagation.
3. $v_\phi(\Omega) > v_{groupe}(\omega_0)$ ($\Delta k > 0$) : nous sommes dans un régime de dispersion où la composante générée est plus rapide que le paquet d'onde qui lui donne naissance. Ce régime de dispersion donne lieu à des propagations surperluminales. Il a récemment motivé de nombreuses études [19].

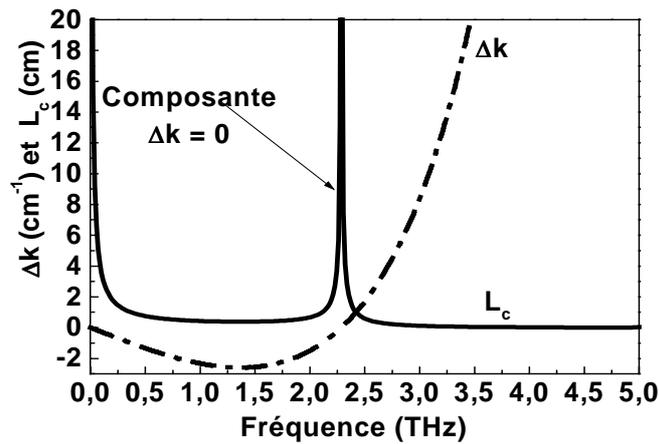


FIG. 1.12 — Accord de phase réalisé pour le cristal de ZnTe ($\lambda_0 = 800nm$).

La courbe d'accord de phase est représentée sur la figure 1.12 pour un cristal de ZnTe excité par une impulsion femtoseconde ayant son spectre centré à $\lambda_0 = 800nm$. L'accord de phase est réalisé pour la fréquence $F_{PM} = \frac{\Omega_{PM}}{2\pi} = 2.3THz$. Pour cette fréquence particulière, la longueur de cohérence $L_c = \frac{\pi}{\Delta k}$ est infinie. Le champ associé à cette

composante croît rapidement au cours de sa propagation dans le cristal. On peut donc raisonnablement s'attendre à ce que la variation d'indice associée à cette composante soit aussi très importante. Le calcul que nous venons d'effectuer permet clairement d'illustrer l'influence de l'accord de phase - $\Delta k = 0$ - sur l'indice nonlinéaire induit via la propagation d'une onde TeraHertz dans un cristal de ZnTe. En effet, nous notons sur la figure 1.12 que la fréquence caractéristique des oscillations mesurées expérimentalement (Fig. 1.7(b)) est très proche de la fréquence TeraHertz pour laquelle l'accord de phase F_{PM} est réalisé.

L'accord de phase et les différents régimes de propagation que nous venons d'évoquer sont associés à la forte dispersion de l'indice du ZnTe dans le domaine TeraHertz. Remarquons que l'analyse de la propagation d'impulsions dans le cas où $\Delta k > 0$ et $\Delta k = 0$ n'a été que très peu abordée dans la littérature scientifique [7]. Nous faisons par la suite une analyse complète de ces phénomènes. Notre modélisation analytique complète nous a permis de décrire l'ensemble de nos résultats expérimentaux.

1.4.2 Résolution des équations de Maxwell pour la génération de l'onde TeraHertz.

Les équations de Maxwell utilisées sont justifiées dans l'annexe II. En accord avec notre configuration expérimentale, nous ne considérerons que trois ondes interagissant dans le milieu : l'onde pompe, l'onde TeraHertz et l'onde sonde. La résolution des

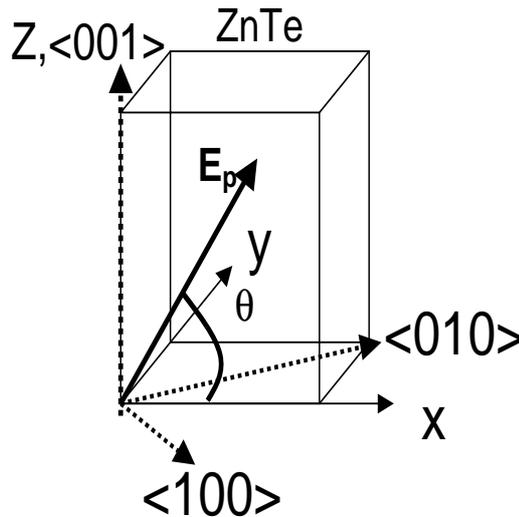


FIG. 1.13 — Configuration des polarisations pompe et sonde pour le cristal de ZnTe coupé dans le plan $\langle 110 \rangle$.

équations de Maxwell sera faite dans le repère cristallin défini par les axes $\langle 100 \rangle$, $\langle 010 \rangle$ et $\langle 001 \rangle$. Par commodité, nous les nommerons respectivement x, y et z. Il

est important de ne pas les confondre avec les axes (XYZ) attachés au cristal (i.e. le repère géométrique) (Fig. 1.13).

1.4.3 Equation de propagation de l'onde pompe

Dans le repère cristallin (x,y,z) l'onde pompe s'écrit :

$$\vec{E}_p(t, z) = \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} \cos \theta \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix} E_p(t, z) \quad (1.29)$$

où $E_p(t, z)$ est l'enveloppe lentement variable de l'onde pompe.

Nous supposons, dans la suite, que l'impulsion pompe se propage linéairement et sans atténuation dans le cristal. Ainsi, nous considérons qu'elle ne subit aucune modification d'amplitude. Même si le rendement de conversion des photons optiques vers les photons TeraHertz est important, cette approximation est justifiée compte tenu de la grande différence de fréquence entre l'onde pompe et l'onde TeraHertz. En outre, les termes de dispersion de vitesse de groupe et l'évolution spatiale du faisceau pompe seront négligés. Dans ce cas, l'équation régissant la propagation de $E_u^{pompe}(t, z)$ s'écrit :

$$\frac{\partial E_u^{pompe}(t, z)}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial E_u^{pompe}(t, z)}{\partial t} = 0 \quad (1.30)$$

où $u = x, y, z$ et v_g désigne la vitesse de groupe de l'impulsion pompe. Cette équation se résout simplement dans le domaine spectral et nous trouvons :

$$\tilde{E}_u^{pompe}(\omega, x, y, z) = \tilde{E}_u^{pompe}(\omega, x, y, 0) e^{i\omega \frac{z}{v_g}} \quad (1.31)$$

Par la suite, nous utiliserons les notations suivantes pour décrire l'onde pompe :

$$E_u^{pompe}(t, x, y, 0) = F(x, y)S(t) \quad (1.32)$$

$F(x, y)$ et $S(t)$ définissent respectivement la forme spatiale et la forme temporelle du faisceau.

1.4.4 Génération de l'onde TeraHertz à partir d'une impulsion pompe femtoseconde.

Classiquement, dans le domaine optique, la résolution de l'équation de Maxwell nonlinéaire est effectuée dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable. La propagation de l'onde optique est alors uniquement décrite par l'évolution de son enveloppe lentement variable. Comme nous l'avons souligné dans le paragraphe 1.4.1, cette approximation n'est plus valide dans le cas particulier qui nous intéresse.

Polarisation nonlinéaire d'ordre deux pour la différence de fréquences.

Nous revenons tout d'abord sur les définitions des polarisations nonlinéaires. Dans notre étude, il est maintenant nécessaire de prendre en compte la dépendance temporelle des champs. Dans le cas de la différence de fréquences, la polarisation nonlinéaire d'ordre deux s'écrit :

$$\vec{P}^{(2)}(t, x, y, z) = \overline{\chi}^{(2)} \vec{E}_p(t, x, y, z) \vec{E}_p^*(t, x, y, z) \quad (1.33)$$

Compte tenu de la forme particulière de $\vec{P}^{(2)}(t, x, y, z)$, nous utiliserons dorénavant un indice u pour définir les différentes composantes des champs ou des polarisations. Ainsi, nous écrirons dorénavant :

$$P_u^{(2)}(t, x, y, z) = \chi_u^{(2)} E_p(t, x, y, z) E_p^*(t, x, y, z) \quad (1.34)$$

avec

$$\begin{aligned} \chi_x^{(2)}(\omega, \Omega - \omega) &= 2\chi^{(2)}(\omega, \Omega - \omega) \frac{\sin 2\theta}{\sqrt{2}} \\ \chi_y^{(2)}(\omega, \Omega - \omega) &= 2\chi^{(2)}(\omega, \Omega - \omega) \frac{\sin 2\theta}{\sqrt{2}} \\ \chi_z^{(2)}(\omega, \Omega - \omega) &= 2\chi^{(2)}(\omega, \Omega - \omega) \cos^2 \theta \end{aligned} \quad (1.35)$$

La polarisation nonlinéaire pour chaque composante spectrale de l'onde TeraHertz Ω^{11} :

$$\tilde{P}_u^{(2)}(\Omega, x, y, z) = \frac{\epsilon_0}{2\pi} \int \chi_u^{(2)}(\omega, \Omega - \omega) \tilde{E}_p(\omega, x, y, z) \tilde{E}_p^*(\Omega - \omega, x, y, z) \quad (1.36)$$

En remplaçant l'onde pompe par son expression, nous obtenons :

$$\begin{aligned} \tilde{P}_u^{(2)}(\Omega, x, y, z) &= e^{i\Omega \frac{z}{v_g}} \frac{\epsilon_0}{2\pi} \int \chi_u^{(2)}(\omega, \Omega - \omega) \tilde{E}_p(\omega, x, y, 0) \tilde{E}_p^*(\omega - \Omega, x, y, 0) d\omega \\ \tilde{P}_u^{(2)}(\Omega, x, y, z) &= \frac{\epsilon_0 |F(x, y)|^2}{2\pi} e^{i\Omega \frac{z}{v_g}} \int \chi_u^{(2)}(\omega, \Omega - \omega) \tilde{S}_p(\omega) \tilde{S}_p^*(\omega - \Omega) d\omega \end{aligned} \quad (1.37)$$

Equation d'évolution de l'onde TeraHertz.

Pour décrire complètement l'évolution du champ électrique associé à l'onde TeraHertz, nous devons introduire la forme de $\tilde{P}_u^{(2)}(\Omega, x, y, z)$ dans l'équation de Maxwell (cf. annexe II) et résoudre celle-ci. Pour chaque fréquence TeraHertz $F = \frac{\Omega}{2\pi}$, le champ électrique $\tilde{A}_u(\Omega, x, y, z)$ est alors régi par l'équation :

$$\Delta \tilde{A}_u(\Omega, x, y, z) + k(\Omega)^2 \tilde{A}_u(\Omega, x, y, z) = -\frac{\Omega^2}{\epsilon_0 c^2} \tilde{P}_u^{(2)}(\Omega, x, y, z) \quad (1.38)$$

¹¹Le calcul est présenté en annexe II

Pour résoudre cette équation, nous supposons tout d'abord que la susceptibilité $\chi_u^{(2)}(\omega, \Omega - \omega)$ ne dépend que de la fréquence Ω considérée. Ceci est justifié par le fait que le milieu est peu dispersif dans le domaine des fréquences optiques. Dans ce cas, l'indice de réfraction $n^{optique}(\omega) = n^{optique}(\omega_0 = \frac{2\pi c}{\lambda_0})$ et l'indice de groupe $n_g = \frac{c}{v_g}$ sont constants. Nous verrons par la suite que la dispersion de la susceptibilité linéaire et non linéaire dans le domaine TeraHertz n'est pas sans conséquences. Dans ces conditions, l'équation de propagation s'écrit :

$$\Delta \tilde{A}_u(\Omega, x, y, z) + k(\Omega)^2 \tilde{A}_u(\Omega, x, y, z) = -\frac{\Omega^2}{2\pi c^2} |F(x, y)|^2 \chi_u^{(2)}(\Omega) C(\Omega) e^{i\Omega \frac{z}{v_g}} \quad (1.39)$$

où $C(\Omega) = \int \tilde{S}_p(\omega) \tilde{S}_p^*(\omega - \Omega) d\omega = \int e^{i\Omega t} |S(t)|^2 dt$. Cette équation régit la propagation de chaque composante spectrale de l'onde TeraHertz générée dans le cristal. Cette équation tient compte, via $C(\Omega)$, de toutes les combinaisons des fréquences optiques contenues dans l'impulsion pompe et permettant de générer la fréquence Ω . Pour prendre en compte la dimension spatiale transverse du faisceau pompe, l'équation de Maxwell est écrite, dans le domaine de Fourier spatial. Cette équation devient alors :

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} \tilde{A}_u(\Omega, k_x, k_y, z) + (k(\Omega)^2 - k_\perp^2) \tilde{A}_u(\Omega, k_x, k_y, z) = -\frac{\Omega^2}{2\pi c^2} \chi_u^{(2)}(\Omega) C(\Omega) G(k_x, k_y) e^{i\Omega \frac{z}{v_g}} \quad (1.40)$$

avec $G(k_x, k_y) = \frac{1}{4\pi^2} \int |F(x, y)|^2 e^{-i(k_x x + k_y y)} dx dy$ et $k_\perp^2 = k_x^2 + k_y^2$. La résolution de cette équation permet de déterminer l'évolution du champ électrique associé à l'onde TeraHertz à la fréquence Ω selon les trois directions du repère cristallographique $u = x, y$ ou z .

A l'équation 1.40, nous devons rajouter la condition au limite, $\tilde{A}_u(\Omega, k_x, k_y, z = 0) = 0$ et le fait que nous négligerons la composante TeraHertz se propageant suivant les $z < 0$. Dans ce cas, nous ne considérerons que le champ électrique TeraHertz se propageant suivant les $z > 0$. Cette dernière condition impose que le terme proportionnel à $e^{ik(\Omega)z}$ est nul. En résolvant l'équation 1.40, on trouve alors :

$$\tilde{A}_u(\Omega, k_x, k_y, z) = iz \frac{\Omega^2}{2\pi c^2} \chi_u^{(2)}(\Omega) \frac{G(k_x, k_y)}{\sqrt{k(\Omega)^2 - k_\perp^2 + \frac{\Omega}{v_g}}} C(\Omega) e^{i(\frac{\Omega}{v_g} + \sqrt{k(\Omega)^2 - k_\perp^2}) \frac{z}{2}} \text{sinc}\left(\left(\sqrt{k(\Omega)^2 - k_\perp^2} - \frac{\Omega}{v_g}\right) \frac{z}{2}\right) \quad (1.41)$$

En injectant l'expression de $\chi_u^{(2)}(\Omega)$ dans 1.41, nous avons l'expression du champ TeraHertz généré par le champ pompe suivant les trois axes x, y et z :

$$\begin{aligned} \tilde{A}_x(\Omega, k_x, k_y, z) &= \frac{\sin 2\theta}{\sqrt{2}} \tilde{A}(\Omega, k_x, k_y, z) \\ \tilde{A}_y(\Omega, k_x, k_y, z) &= \frac{\sin 2\theta}{\sqrt{2}} \tilde{A}(\Omega, k_x, k_y, z) \\ \tilde{A}_z(\Omega, k_x, k_y, z) &= \cos^2 \theta \tilde{A}(\Omega, k_x, k_y, z) \end{aligned} \quad (1.42)$$

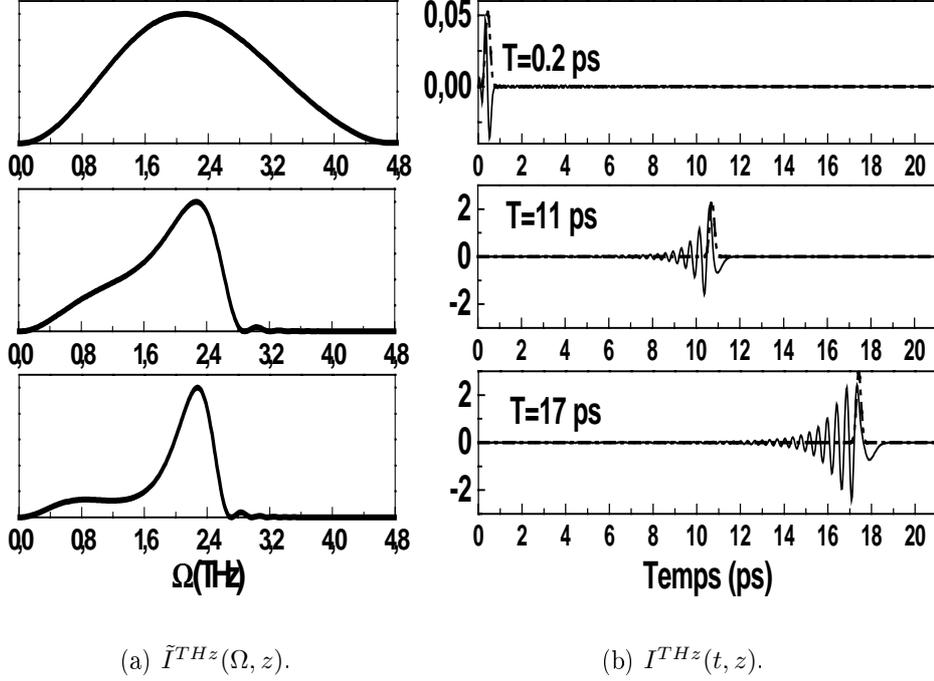


FIG. 1.14 — (a) : Densité spectrale $\tilde{I}^{THz}(\Omega, z)$ du champ électrique THz généré. (Notons qu'il est possible de comparer le spectre initial $\tilde{I}^{THz}(\Omega, z = 0)$ ($T=0.2$ ps) avec le spectre à la sortie du cristal $\tilde{I}^{THz}(\Omega, z = L)$) ($T=17$ ps). (b) : Forme temporelle $I^{THz}(t, z)$ pour trois temps de propagation T . Les pointillés représentent la forme temporelle de l'impulsion pompe $|S(t)|^2$.

Pour analyser l'évolution du champ TeraHertz généré par l'impulsion pompe, nous nous plaçons suivant la direction de propagation. Dans ce cas, $k^2(\Omega) = k_x^2(\Omega) + k_y^2(\Omega) + k_z^2(\Omega) \sim k_z^2(\Omega) \sim \frac{\Omega^2}{v_g^2}$ et l'expression du champ TeraHertz devient :

$$\tilde{A}_u(\Omega, z) = iz \frac{\Omega^2}{2\pi c^2} \frac{\chi_u^{(2)}(\Omega)}{k(\Omega) + \frac{\Omega}{v_g}} C(\Omega) e^{i(\frac{\Omega}{v_g} + k(\Omega)^2) \frac{z}{2}} \text{sinc} \left[\left(k(\Omega) - \frac{\Omega}{v_g} \right) \frac{z}{2} \right] \quad (1.43)$$

L'évolution de $\tilde{I}^{THz}(\Omega, z) = |\tilde{A}_u(\Omega, z)|^2$ est présentée sur la figure 1.14(a) pour un cristal de ZnTe ayant une longueur de 2 mm et excité par une impulsion pompe, centrée à la longueur d'onde optique $\lambda_0 = 800nm$, ayant une durée de 120fs. Sur la figure 1.14(b), la courbe en pointillés représente la densité spectrale $\tilde{I}^{pompe}(t)$ générant l'onde TeraHertz. La courbe en trait plein figure la forme temporelle de l'onde TeraHertz $I^{THz}(t, z) = |A_u(t, z)|^2$ où

$$A_u(t, z) = \frac{1}{2\pi} \int \tilde{A}_u(\Omega, z) e^{-i\Omega t} d\Omega \quad (1.44)$$

Les densités spectrales $\tilde{I}^{THz}(\Omega, z = L)$ après différents temps de propagation dans le cristal sont présentées sur la figure 1.14(a).

Sur cette figure les dispersions de l'indice linéaire $n(\Omega)$ et de la susceptibilité d'ordre deux dans le domaine TeraHertz ont été prises en compte. Les Figures 1.14(a) et 1.14(b) montrent qu'au cours de sa propagation dans le cristal, le spectre de l'onde TeraHertz s'affine fortement autour d'une fréquence particulière ($\Omega = 2.3THz$).

Ce phénomène apparaît clairement si l'on analyse l'expression de $\tilde{A}_u(\Omega, z)$ (Eq. 1.43). Dans cette expression, deux termes sont particulièrement importants :

- Le premier terme $\Omega^2 \chi_u^{(2)}(\Omega) C(\Omega)$ qui traduit l'efficacité avec laquelle la polarisation nonlinéaire induite à la fréquence Ω rayonne un champ TeraHertz. Il faut noter que ce terme est influencé par la forte dispersion du $\chi^{(2)}$ du milieu dans le domaine TeraHertz.
- Le deuxième terme $\sin c \left[\left(k(\Omega) - \frac{\Omega}{v_g} \right) \frac{z}{2} \right] = \sin c \left[\frac{\Delta k z}{2} \right]$ qui souligne l'influence du désaccord de phase entre l'onde pompe et l'onde TeraHertz à la fréquence Ω sur l'onde TeraHertz générée à la même fréquence. Pour le cristal de ZnTe à longueur d'onde pompe choisie ($\lambda = 0.8 \mu m$), cet accord de phase se produit à $\Omega = 2.5 THz$.

La combinaison de ces deux termes explique qu'à la sortie du cristal de ZnTe, le spectre TeraHertz s'affine à la fréquence $\Omega = 2.3 THz$. Ceci explique l'oscillation marquée à cette fréquence de l'impulsion TeraHertz à la sortie du cristal.

1.4.5 Couplage de l'onde TeraHertz avec une onde optique.

L'évolution de toutes les composantes spectrales de l'impulsion TeraHertz en tous points du cristal décrite précédemment permet de calculer la variation d'indice induite par l'impulsion TeraHertz se propageant dans le cristal. Pour calculer cette variation d'indice, nous devons maintenant tenir compte du couplage entre l'impulsion basse fréquence et l'impulsion sonde via l'effet électro-optique. La polarisation nonlinéaire d'ordre deux générée par ce couplage change l'indice du milieu (n_2^{THz}) et, par conséquent, modifie la propagation de l'onde sonde. Ce changement d'indice est, sur de nombreux points, similaire à une nonlinéarité d'ordre trois effective (n_2^{Kerr}). Nos résultats expérimentaux soulignent qu'il existe une forte corrélation entre les nonlinéarités Kerr et cascade. Dans notre analyse, nous ne pourrions donc pas négliger une contribution par rapport à l'autre.

Equation de propagation de l'onde sonde en présence de nonlinéarités d'ordre deux et trois.

Pour résoudre l'équation de Maxwell décrivant la propagation de l'onde sonde en présence des changements d'indice induits par l'onde TeraHertz et par effet Kerr, nous nous placerons dans le repère de l'onde sonde. On posera donc $\eta = t - \frac{z}{v_g}$ où v_g est la

vitesse de groupe de l'onde sonde. Les trois équations différentielles décrivant l'évolution de l'impulsion sonde suivant les axes $i = X, Y$ et Z s'écrivent :

$$\frac{\partial E_i^{sonde}(\eta, z)}{\partial z} = i \frac{\omega^2}{2k\epsilon_0 c^2} \left[P_i^{(2)}(\eta, z) + P_i^{(3)}(\eta, z) \right] \quad (1.45)$$

Les expressions 1.19 et 1.24 permettent de déterminer les polarisations nonlinéaires associées à l'effet de cascade $P_i^{(2)}(\eta, z)$ et à l'effet Kerr $P_i^{(3)}(\eta, z)$. Celles-ci sont réécrites ci-dessous :

$$\begin{aligned} \vec{P}^{(2)}(\eta, z) &= \epsilon_0 \begin{pmatrix} \sin(2\theta) E_Z^{sonde}(\eta, z) + \cos^2(\theta) E_X^{sonde}(\eta, z) \\ -\cos^2(\theta) E_Y^{sonde}(\eta, z) \\ \sin(2\theta) E_X^{sonde}(\eta, z) \end{pmatrix} E^{THz}(\eta, z) \\ \vec{P}^{(3)}(\eta, z) &= 6b \begin{pmatrix} (1 + \frac{u+1}{2} \cos^2(\theta)) E_X^{sonde}(\eta, z) + \sin(2\theta) E_Z^{sonde}(\eta, z) \\ (1 + \frac{u-3}{2} \cos^2(\theta)) E_Y^{sonde}(\eta, z) \\ (1 + (u-1) \sin^2(\theta)) E_Z^{sonde}(\eta, z) + \sin(2\theta) E_X^{sonde}(\eta, z) \end{pmatrix} |E^{pompe}(\eta, z)|^2 \end{aligned} \quad (1.46)$$

où $E^{THz}(\eta, z) = \frac{1}{2\pi} \int 2\chi^{(2)}(\Omega) \tilde{A}(\omega, z) e^{-i\Omega\eta} d\Omega$. Rappelons que comme l'onde sonde se propage suivant l'axe Y du repère géométrique, seules les composantes $P_X^{(2)}(\eta, z)$ et $P_Z^{(2)}(\eta, z)$ de la polarisation nonlinéaire sont à prendre en compte. Sous forme matricielle, l'équation à résoudre s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial z} E_i^s(\eta, z) &= i \frac{\omega^2}{2kc^2} 6b \begin{pmatrix} \frac{u+1}{4} \cos^2 \theta - \frac{u-1}{2} \sin^2 \theta & \sin 2\theta \\ \sin 2\theta & -(\frac{u+1}{4} \cos^2 \theta - \frac{u-1}{2} \sin^2 \theta) \end{pmatrix} |E_p(\eta, z)|^2 E_i^s(\eta, z) \\ &+ i \frac{\omega^2}{2kc^2} \begin{pmatrix} \frac{\cos^2 \theta}{2} & \sin 2\theta \\ \sin 2\theta & -\frac{\cos^2 \theta}{2} \end{pmatrix} E^{THz}(\eta, z) E_i^s(\eta, z) \end{aligned} \quad (1.47)$$

Dans cette expression, u représente toujours le rapport des coefficients de susceptibilité d'ordre trois $\frac{\chi_{xxxx}^{(3)}}{\chi_{xxyy}^{(3)}}$.

1.4.6 Evolution de l'onde sonde en présence d'une onde TeraHertz

Le couplage entre une onde TeraHertz et une onde optique est intéressant à plusieurs égards. Tout d'abord, ce couplage a été largement utilisé pour la mesure et la détections de champs TeraHertz ([16] ou [20]). Nous verrons que notre analyse permet d'affiner l'ensemble des comportements qui ont été précédemment décrits dans la littérature.

Cas où $\theta \neq 0$.

Comme nous l'avons souligné, nos résultats expérimentaux (par exemple Fig. 1.7(a) et 1.7(b)) montrent qu'il ne suffit pas d'uniquement prendre en compte la contribution

due à l'onde TeraHertz (n_2^{THz}) pour rendre compte de nos résultats expérimentaux. Cependant la résolution de l'équation 1.47 n'est pas possible si l'on prend simultanément en compte les contributions dues à la susceptibilité nonlinéaire d'ordre trois $\chi^{(3)}$ et à l'onde TeraHertz. En effet, les deux matrices mises en jeu dans l'équation 1.47 ne commutent pas. Par conséquent, elles ne se diagonalisent pas dans le même repère et il n'est pas possible d'obtenir un résultat analytique. Pour contourner cette difficulté mathématique, il est possible de faire l'approximation suivante : nous considérerons que les contributions à l'indice nonlinéaire associées aux effets de cascade d'ordre deux et aux phénomènes d'ordre trois sont indépendants. Moyennant cette approximation, il est possible de résoudre séparément l'équation en présence de la polarisation d'ordre deux, puis celle en présence de la polarisation d'ordre trois. La solution finale sera la somme des deux solutions trouvées dans chacun des cas. La résolution de ces équations est proposée dans l'annexe III.

Cas où $\theta = 0$.

Ce cas est particulièrement intéressant car l'équation 1.47 peut être résolue analytiquement. Les matrices sont alors identiques et les signaux sont cette fois-ci mathématiquement indépendants. En l'absence de la nonlinéarité d'ordre trois, l'équation 1.47 devient :

$$\frac{\partial}{\partial z} E_i^s(\eta, z) = i \frac{\omega^2}{2kc^2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} E^{THz}(\eta, z) E_i^s(\eta, z) \quad (1.48)$$

avec $i = X$ ou Z . La résolution de ce système est immédiate. La modification de phase dans les directions X ou Z subie par le champ électrique associé à l'impulsion sonde optique s'écrit :

$$E_i^s(\eta, z) = E_i^s(\eta, z = 0) e^{i\epsilon \frac{\omega^2}{2kc^2} \int_0^z E^{THz}(\eta, z) dz} \quad (1.49)$$

où $\epsilon = \pm 1$ si $i=X$ ou Z . L'expression de $E^{THz}(\eta, z)$ obtenue, fait clairement apparaître un phénomène important : la phase de l'impulsion sonde dépend fortement du retard τ entre les ondes pompe et sonde. Pour comprendre l'origine de ce phénomène, sur la figure 1.15, nous avons tracé l'impulsion sonde et l'impulsion TeraHertz dans le cristal ($\tau = -0.5ps$ et $\tau = 0.2ps$ correspondent à deux retards différents entre l'impulsion sonde et l'impulsion pompe à l'entrée du cristal). On note que l'enveloppe du champ électrique de l'onde sonde recouvre différents domaines de l'onde TeraHertz. La phase nonlinéaire acquise par l'impulsion sonde, qui dépend linéairement du champ TeraHertz, voit donc son amplitude varier avec l'amplitude du champ électrique de l'onde TeraHertz. Notons également que comme l'onde TeraHertz évolue nonlinéairement avec la distance et le temps, la phase induite sur l'onde sonde n'évolue pas linéairement avec l'intensité de l'onde pompe. En conséquence, on ne peut plus écrire

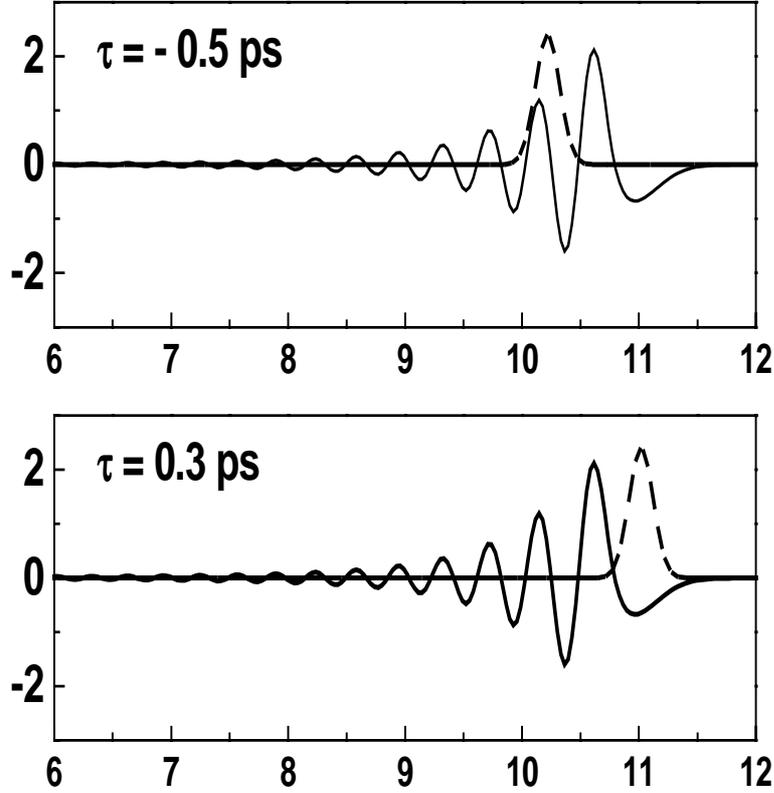


FIG. 1.15 — Superposition de la forme temporelle de l'onde sonde avec celle de l'onde TeraHertz pour deux retards pompe-sonde τ positif et négatif à l'entrée du cristal.

simplement $\Phi^{THz}(t, z) = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 I^{pompe}(t) z$. On peut donc dire que la nonlinéarité n_2^{THz} est nonlocale. Notons également qu'il est possible de contrôler le signe de la phase de l'onde sonde en déplaçant la position de celle-ci par rapport à l'onde TeraHertz (Fig 1.15). Si l'intégrale du champ TeraHertz couvert par l'onde sonde est négatif, l'indice nonlinéaire $\Delta n(t) \sim E^{THz}(t)$ subi par cette onde sera également négatif.

1.4.7 Description analytique du signal Kerr Hétérodyne.

Nous avons maintenant tous les éléments pour calculer le signal mesuré à l'aide de notre montage expérimental. Le modèle que nous venons de détailler permet une description complète au niveau temporel et spectral, de l'indice nonlinéaire induit par effet de cascade via la génération d'onde TeraHertz.

Expression du signal hétérodyne analytique.

Pour calculer les signaux hétérodynes $S^{(3)}(\tau)$ et $S^{(2)}(\tau)$ représentant les signaux associés respectivement aux effets nonlinéaires d'ordre trois, et à la cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux, en fonction du retard pompe-sonde τ , il nous faut tout d'abord déterminer l'amplitude de la fuite du faisceau sonde au niveau de l'analyseur. Pour cela, on utilise l'onde sonde calculée à partir de l'équation 1.47. La résolution de cette équation est proposée dans l'appendice III. Notons cependant que notre technique d'hétérodynage impose que le champ sonde $\vec{E}^s(\eta, z)$ se propageant dans le cristal a une po-

larisation initiale légèrement elliptique et s'écrit : $\vec{E}^s(\eta, z = 0) = \frac{1}{\sqrt{2(1+\alpha^2)}} \begin{pmatrix} 1 - i\alpha \\ 0 \\ 1 + i\alpha \end{pmatrix}$

où α désigne l'angle d'hétérodynage.

L'intensité du signal hétérodyne détecté par la photodiode placée derrière l'analyseur s'écrit :

$$I^{Ph} = \frac{1}{2} | \vec{V}_A \cdot \vec{E}^s(\eta, z) |^2 \quad (1.50)$$

où $\vec{V}_A = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} -1 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$ décrit l'axe de transmission de l'analyseur. Après avoir calculé

$E^s(\eta, z) = S(\eta + \tau)$, nous pouvons donc donner l'expression du signal hétérodyne. On obtient :

$$S^{(Kerr)}(\tau) = 4\alpha \left(\frac{u+1}{4} \cos^2 \theta - \frac{u-1}{2} \sin^2 \theta \right) \frac{\omega^2}{2kc^2} 6b \int \int_0^z |E_p(\eta, z)|^2 |S(\eta)|^2 dudt \quad (1.51)$$

$$S^{(THz)}(\tau) = 4\alpha \frac{\cos^2 \theta}{2} \frac{\omega^2}{2kc^2} \int \int_0^z A(\eta, z) |S(\eta + \tau)|^2 dud\eta \quad (1.52)$$

A nouveau, les détails du calcul sont présentés dans l'appendice III. L'expression 1.51 se simplifie encore si l'on note que $|E^{pompe}(\eta, z)|^2 = S(\eta)$, si l'on remplace $A(\eta, z)$ par son expression et enfin si on utilise la relation 1.43. Après l'intégration dans le domaine spatial, le signal hétérodyne associé à l'effet de cascade ou l'effet Kerr en fonction du retard pompe-sonde τ devient finalement :

$$S^{(Kerr)}(\tau) = \frac{3bL\omega^2\alpha}{kc^2} [(u+1) \cos^2(\theta) - 2(u-1) \sin^2(\theta)] \int |I^{pu}(\eta) I^{pr}(\eta + \tau)|^2 dt \quad (1.53)$$

$$S^{(THz)}(\tau) = 2\alpha L \cos^2 \theta \frac{\omega^2}{\pi kc^2} \int e^{i\Omega\tau} \chi^{(2)}(\Omega)^2 \frac{(\Omega/c)^2}{k(\Omega)^2 - (\frac{\Omega}{v_g})^2} |C(\Omega)|^2 \left[e^{i(k(\Omega) - \frac{\Omega}{v_g})\frac{z}{2}} \left(\text{sinc}\left(\left(k(\Omega) - \frac{\Omega}{v_g}\right)\frac{z}{2}\right) - 1 \right) \right] d\Omega \quad (1.54)$$

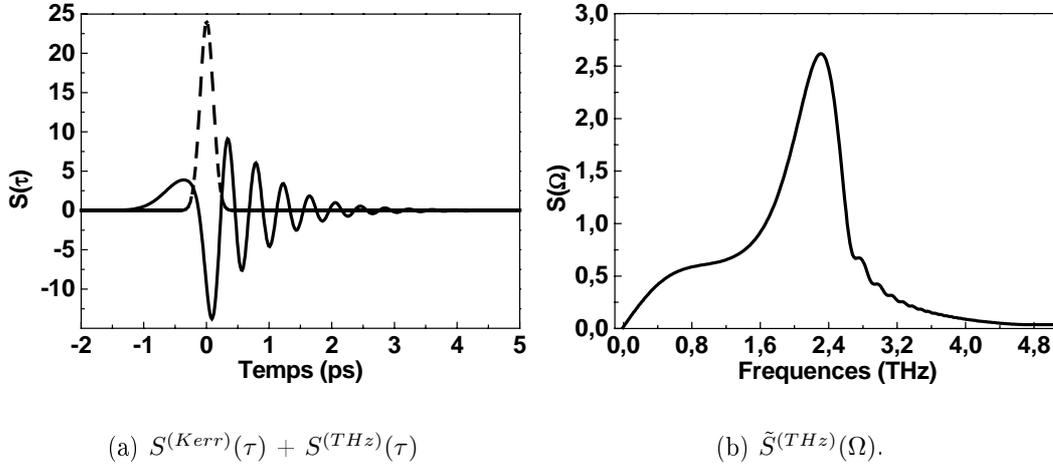


FIG. 1.16 — Evolution des signaux Kerr et contribution des phénomènes de cascade (a) : $S^{(Kerr)}(\tau)$ (pointillé) et $S^{(THz)}(\tau)$ (trait plein) (b) $\tilde{S}^{(THz)}(\Omega)$.

Ces signaux sont représentés sur la figure 1.19(a) pour un cristal de ZnTe de 2mm excité par des impulsions femtosecondes centrées à une longueur d'onde $\lambda_0 = 800nm$. La figure 1.19(b) représente l'évolution spectrale de la transformée de Fourier du signal associé à la propagation de l'onde TeraHertz dans le cristal. Cette figure confirme que la principale contribution au changement d'indice est associée à la composante de l'onde TeraHertz pour laquelle il y a accord de phase ($\Delta k = 0$).

Comme nous le verrons dans la suite, ces résultats analytiques vont nous permettre de décrire correctement l'indice nonlinéaire induit par la propagation d'une onde TeraHertz. Toutefois, l'approximation consistant à considérer indépendamment les signaux Kerr et cascade doit être validée. Ces signaux ne sont mathématiquement indépendants que lorsque $\theta = 0^\circ$ ou $\theta = 90^\circ$. Lorsque $0^\circ < \theta < 90^\circ$, nous avons vérifié que, quelque soit l'angle de polarisation de l'onde pompe, l'approximation que nous avons faite permet d'obtenir un bon accord entre les résultats numériques et les résultats analytiques. A $\tau = 0$, lorsque le recouvrement entre l'onde pompe et l'onde sonde est maximal, l'erreur est de l'ordre de 10%.

1.5 Résultats expérimentaux : mise en évidence et caractérisation de l'indice nonlinéaire dû à l'onde THz

L'objectif de ce paragraphe est de caractériser l'indice nonlinéaire induit par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux. Nous détaillerons nos résultats expérimentaux.

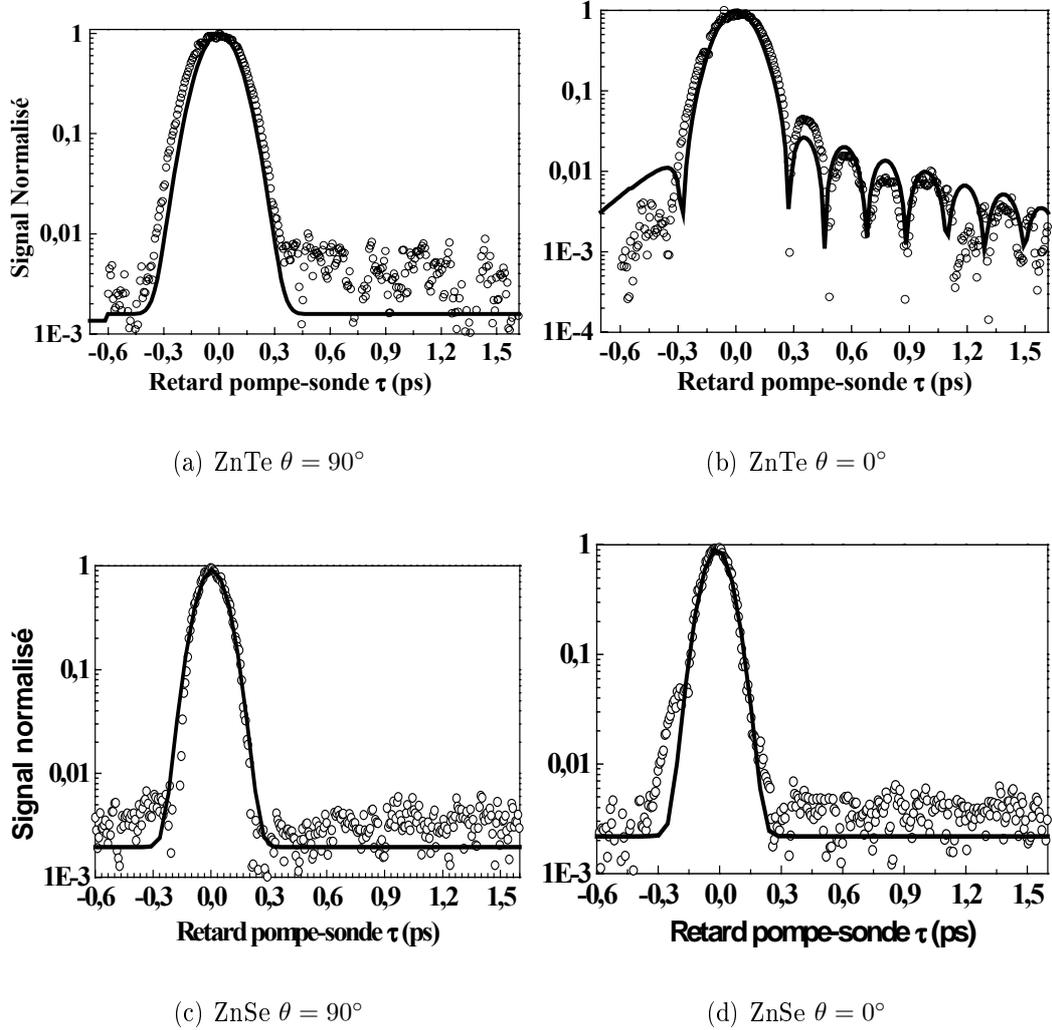


FIG. 1.17 — Signaux Kerr enregistrés (cercles) pour deux angles de polarisation $\theta = 0^\circ$ et $\theta = 90^\circ$ pour le ZnTe (Fig. (a) et (b)) et le ZnSe (Fig. (c) et (d)). Les traits pleins représentent le paramétrage des courbes avec les équations 1.53 et 1.54.

La modélisation théorique, présentée auparavant, nous permettra de donner une description précise des changements d'indice mesurés.

Etude de deux cristaux de type $\bar{4}3m$: ZnTe et ZnSe.

Nous avons mené une comparaison de deux cristaux cubiques $\bar{4}3m$: le cristal ZnTe et le cristal ZnSe. Tous deux ont été taillés dans le plan $\langle 110 \rangle$. Ces cristaux, dont les propriétés optiques sont similaires (cf Tableau 1.2), présentent des comportements tout à fait différents. Ceci est clairement mis en évidence sur la figure 1.17. Des différences expérimentales marquées apparaissent à l'angle $\theta = 0^\circ$ du faisceau pompe. Cependant,

lorsque $\theta = 90^\circ$, les signaux sont similaires (Fig. 1.17(a) et 1.17(c)). Il faut noter que pour cet angle, la contribution au changement d'indice est uniquement due à n_2^{Kerr} . A partir de l'expression 1.53, nous avons pu reproduire nos résultats (traits pleins sur la figure 1.17).

Pour le ZnSe lorsque $\theta = 0^\circ$, on note que signal est principalement instantané et n'apparaît que pendant le temps de recouvrement des impulsions pompe et sonde dans le cristal. Par contre dans le cas du ZnTe, le signal Kerr est fortement modifié. Des oscillations marquées apparaissent bien après le temps de recouvrement des impulsions pompe et sonde. La modélisation, que nous venons de présenter, décrit parfaitement l'évolution des signaux mesurés. L'équation 1.54 permet de parfaitement reproduire les données expérimentales. Dans cette équation, les paramètres ajustables sont l'angle d'hétérodynage α et le rapport $R = \frac{\chi_{xxxx}^{(3)}}{\chi_{xyz}^{(2)} \cdot \chi_{xyz}^{(2)}}$ des susceptibilités nonlinéaires d'ordre deux et trois. Expérimentalement, nous avons trouvé $R^{ZnTe} = 18$ pour le ZnTe. Les courbes analytiques ont été obtenues en tenant compte de la dispersion dans le domaine TeraHertz. Dans ce domaine, nous avons utilisé les règles de Miller [16] pour décrire la dispersion de la susceptibilité d'ordre deux $\chi^{(2)}(\omega)$ en fonction des propriétés linéaires du milieu :

$$\chi^{(2)}(\Omega) \propto \frac{\epsilon(\Omega)}{\epsilon_0} - 1 \quad (1.55)$$

où $\epsilon(\Omega)$ est la fonction diélectrique du cristal. Remarquons que la valeur de R^{ZnTe} est plus faible que celle attendue $R^{ZnTe} = 37$ (Tab. 1.2). En effet, l'utilisation de spectres larges et de la dispersion des indices linéaires et nonlinéaires, implique que la mesure du $\chi^{(2)}$ effectuée est une moyenne de la valeur $\chi^{(2)}(\Omega)$ sur l'ensemble du spectre TeraHertz généré.

La différence de comportement entre ces deux cristaux, de même symétrie, met clairement en évidence l'influence de l'accord de phase Δk . Expérimentalement, l'indice nonlinéaire associé à l'effet de cascade n'est mesurable que si la condition $\Delta k = 0$ est réalisée sur l'une des composantes spectrales de l'impulsion TeraHertz. Il faut noter que nous avons là une différence notoire avec l'indice nonlinéaire n_2^{GSH} induit en présence de génération de second harmonique. En effet, n_2^{GSH} est non-nul uniquement si $\Delta k \neq 0$. La longueur de cohérence $L_c = \frac{\pi}{\Delta k}$ pour chaque cristal dans le domaine TeraHertz est représentée sur la figure 1.18. Cette figure indique clairement que l'accord de phase dans cette bande de fréquence n'est pas réalisé pour le cristal de ZnSe. Il est important de noter que l'accord de phase n'apparaît dans ces milieux qu'en raison de la forte dispersion de l'indice aux fréquences TeraHertz associées à la présence de phonons optiques. ($\omega_{TO}^{ZnTe} = 5.3THz$ et $\omega_{TO}^{ZnSe} = 6.2THz$). Ceci explique pourquoi aucun indice nonlinéaire associé à la génération d'une onde TeraHertz n'est observé dans ce cristal de ZnSe excité par des impulsions ayant une durée d'environ 100 fs. Sur la figure 1.19,

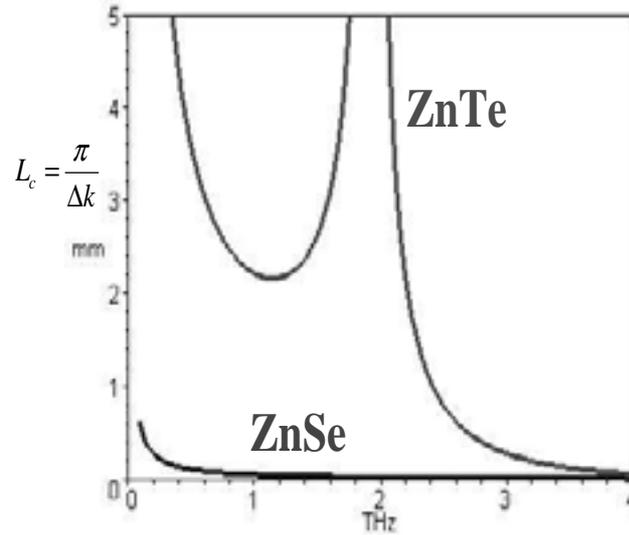


FIG. 1.18 — Longueur de cohérence pour le cristal de ZnTe et de ZnSe dans le domaine TeraHertz.

nous avons simulé les signaux d'effet Kerr et de cascade correspondant à notre situation expérimentale dans les domaines temporel et spectral. Nous retrouvons sur ces figures la différence de comportement entre le cristal de ZnTe et celui de ZnSe. Ces simulations numériques, en accord avec notre analyse théorique, soulignent que l'indice nonlinéaire induit par cascade d'effets d'ordre deux à partir de l'onde TeraHertz est un phénomène nonlocal temporellement.

Pour compléter la comparaison entre les résultats expérimentaux et les résultats analytiques, nous nous sommes placés à un angle θ particulier différent de 0 et de 90° . Dans ce cas, il existe une compétition entre les deux indices nonlinéaires n_2^{Kerr} et n_2^{THz} . Le signal enregistré pour un angle de polarisation intermédiaire $\theta = 40^\circ$ est présenté sur la figure 1.20. Une nouvelle fois, la modélisation des signaux que nous avons faite en fonction de θ , nous permet de reproduire nos résultats expérimentaux.

1.6 Conclusion

Ce chapitre était consacré à la caractérisation de la modification d'indice induite par la propagation d'une onde TeraHertz dans un milieu de symétrie cubique. L'indice nonlinéaire - équivalent à une susceptibilité d'ordre trois - est le résultat d'une cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux. La première étape du processus est le redressement optique d'une impulsion femtoseconde. Ce phénomène génère une onde TeraHertz. Dans une seconde étape, cette onde TeraHertz se couple à l'onde optique via un effet électro-optique. La propagation de l'onde optique est alors modifiée. Nous avons montré que

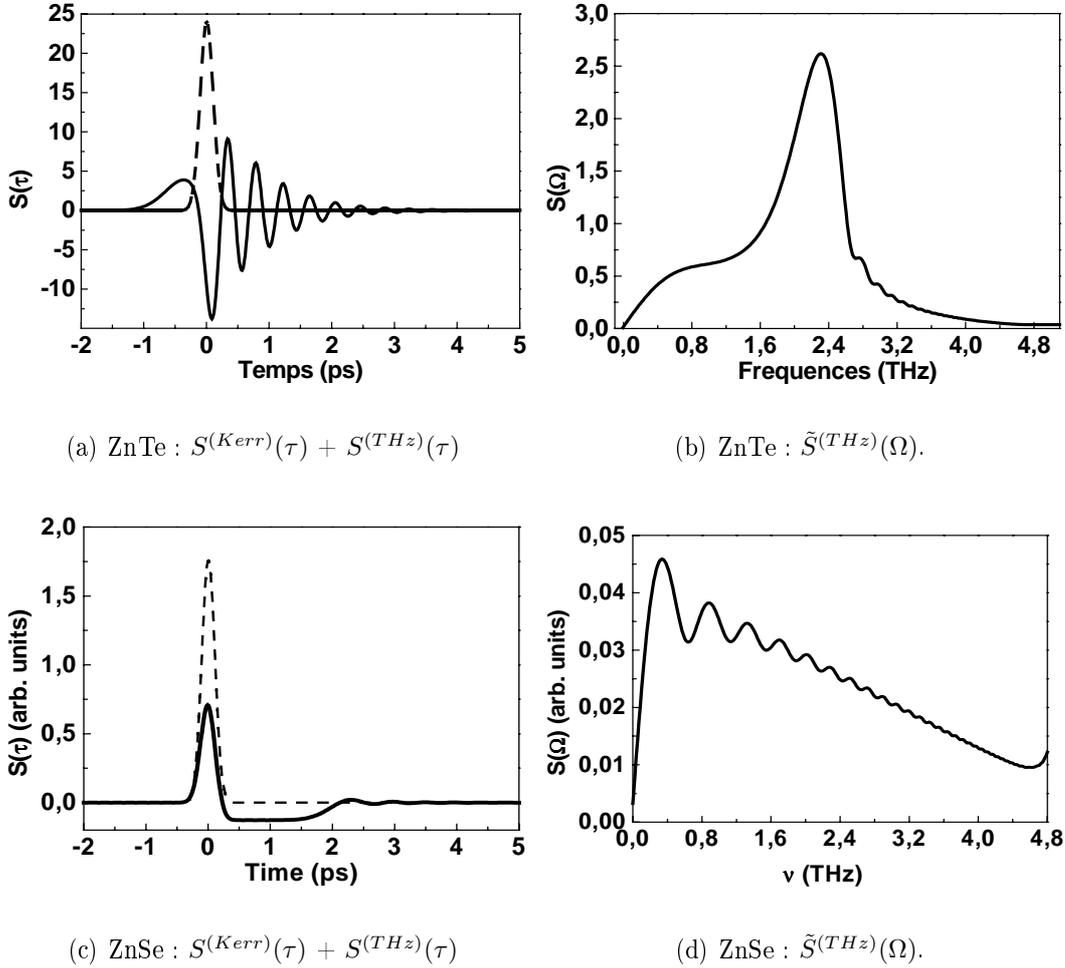


FIG. 1.19 — (a) et (c) Simulation ($\theta = 0^{(o)}$) du signal Kerr $S^{Kerr}(\tau)$ (pointillés) et cascade $S^{cascade}(\tau)$ (trait plein) pour le cristal de ZnTe et de ZnSe. (b) et (d) Simulation ($\theta = 0^{(circ)}$) de la densité spectrale $\tilde{S}(\Omega)$ pour le ZnTe et le ZnSe.

la modification d'indice était non-locale temporellement. Ce phénomène a été étudié sur les plans expérimentaux et analytiques.

Expérimentalement, une mesure d'effet Kerr optique hétérodyne résolue en temps, nous a permis de mettre en évidence cet indice nonlinéaire n_2^{THZ} . Cette expérience s'est montrée tout à fait adaptée à la mesure de la réponse temporelle (fréquence d'oscillations de l'onde TeraHertz autour de 2.55 THz) du milieu grâce à sa précision et à sa sensibilité. Le fait d'utiliser des cristaux cubiques de type zinc-blende (ZnTe et ZnSe) nous a permis de discriminer les différentes contributions aux changements d'indice (effet Kerr, effet de cascade par génération de second harmonique). La compétition avec la nonlinéarité intrinsèque $\chi^{(3)}$ a été mesurée en fonction de la polarisation de l'onde optique.

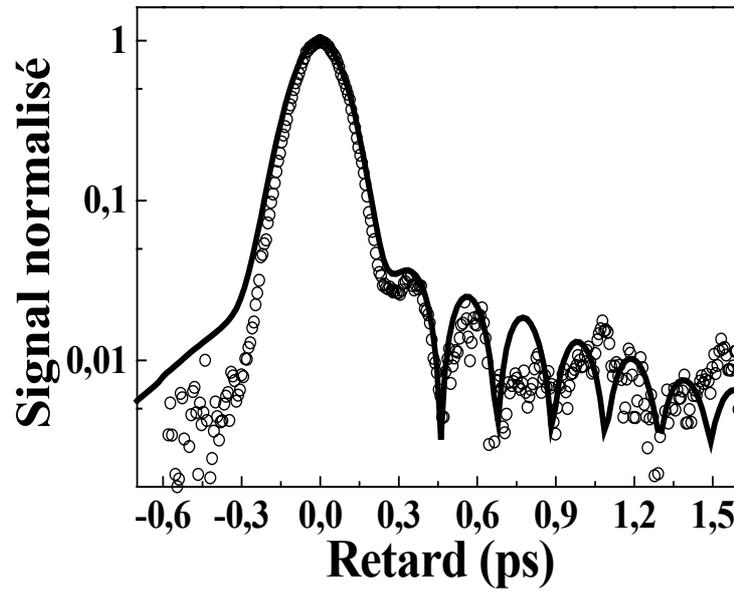


FIG. 1.20 — Signal expérimental (cercle) enregistré à $\theta = 40^\circ$ dans le cas du ZnTe. Le trait plein : paramétrage par les expressions 1.53 et 1.54.

Le choix du cristal à symétrie cubique et sa coupe ont aussi permis une modélisation simple du problème. Les résultats expérimentaux sont en bon accord avec les expressions analytiques que nous avons trouvées.

Deuxième partie

Caractérisation de l'indice nonlinéaire
induit durant la génération de second
harmonique d'impulsions
femtosecondes.

Introduction

La deuxième partie de cette thèse est dédiée à l'étude des cascades de nonlinéarités d'ordre deux basées sur la génération de second harmonique. L'objectif de cette étude est de se doter d'outils théoriques et expérimentaux, permettant de mieux comprendre et de maîtriser les changements de phase subis par une onde optique se propageant dans un cristal doubleur. Cette étude doit nous permettre de dimensionner un dispositif optique basé sur une cascade de phénomènes nonlinéaires d'ordre deux pour la compensation d'une chaîne laser. D'un point de vue expérimental, pour démontrer les possibilités offertes par les processus de cascade, nous nous sommes fixés pour objectif de compenser l'intégrale B ($\sim 2rad$) induite dans un morceau de verre de silice par des impulsions femtosecondes issues d'un amplificateur régénératif.

La première partie de ce chapitre est consacrée à la caractérisation de l'indice nonlinéaire n_2^{GSH} . Ces mesures quantitatives sont basées sur des expériences d'auto-diffraction dans le domaine spectral ou spatial. Elles nous permettront de définir les paramètres expérimentaux importants pour le contrôle et la maîtrise du déphasage nonlinéaire induit.

Par rapport aux travaux précédents sur le sujet, l'ensemble de nos mesures a été réalisé dans des conditions expérimentales particulières, originales et plus adaptées au but que nous nous sommes fixé. Premièrement, pour induire des phases nonlinéaires négatives $B^{GSH} \sim -2 rad$, nous avons travaillé près du désaccord de phase nul ($\Delta k = 0$). Comme nous le verrons plus loin, dans ces conditions, le déphasage associé à l'effet de cascade ne peut plus être simplement décrit par un indice de type Kerr $n_2^{GSH} I^{laser}$. Deuxièmement, les densités de puissance associées aux impulsions issues d'un amplificateur régénératif femtoseconde sont importantes. Ainsi nos dispositifs expérimentaux nous ont permis de mettre en évidence des couplages nonlinéaires nouveaux. Ils font par exemple apparaître l'influence de la nonlinéarité de type $\chi^{(3)}$ et des couplages en cascade de type $\chi^{(5)}$. Enfin, la courte durée des impulsions utilisées nous a également permis de mettre en évidence des phénomènes non-stationnaires associés à la différence de vitesses de groupe des différentes impulsions se propageant dans le cristal ou à la double réfraction dans les milieux uniaxes. Ces derniers phénomènes sont d'autant plus importants que la longueur des cristaux utilisés est grande.

Notre premier objectif était donc de mesurer l'amplitude des phases nonlinéaires induites par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux en génération de second harmonique. Pour cela, nous avons choisi d'utiliser la technique d'auto-diffraction dans le domaine spectral et dans le domaine spatial. Cette technique, relativement simple, permet de caractériser les processus d'auto-modulation de phase via la mesure des composantes spectrales diffractées par des nonlinéarités de type Kerr ($\chi^{(3)}$ ou $\chi^{(2)}$).

Cependant, cette méthode a un équivalent spatial. Nous verrons qu'un phénomène analogue peut être observé en effectuant des expériences d'auto-diffraction dans le domaine spatial. Ces techniques ont été précédemment mises en oeuvre en utilisant des impulsions picosecondes [35], [36]. Cependant, la mesure seule de l'amplitude de l'intégrale B induite par effet de cascade n'est pas suffisante. Pour dimensionner un système de compensation précis, nous avons développé des expériences de caractérisation donnant accès à la forme spatiale et spectrale de la phase nonlinéaire.

Ainsi, le deuxième chapitre de cette partie concerne les mesures de phases spatiales et spectrales d'une onde laser en présence de génération de second harmonique. En effet, même si les mesures d'auto-diffraction nous ont permis de caractériser précisément l'indice nonlinéaire n_2^{GSH} autour du désaccord de phase $\Delta k = 0$ ainsi que son évolution en fonction de l'intensité des ondes lasers, des questions importantes méritaient d'être approfondies. Par exemple : Quel serait l'aspect spatial d'une onde après compensation de l'intégrale B ? Le front d'onde serait-il homogènement compensé ? La compensation serait-elle assurée quelle que soit l'intensité des ondes laser ? Nous verrons que la caractérisation de la phase des ondes après propagation dans le cristal dans le domaine spectral et spatial permet d'apporter des réponses à ces questions. Ces mesures constitueront un ensemble de résultats qui nous permettront d'affirmer que lors de la génération de second harmonique, la compensation de l'intégrale B par effet de cascade est effectivement envisageable.

Cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux.

Une onde laser intense se propageant dans un milieu subit des déphasages nonlinéaires. Ces déphasages nonlinéaires, directement liés à la nonlinéarité d'ordre trois du milieu $\chi^{(3)}$, sont associés à une variation de l'indice du matériau. Classiquement, pour les phénomènes de type Kerr d'origine électronique, on définit un indice nonlinéaire $n_2^{(Kerr)}$ tel $n = n_0 + n_2^{(Kerr)} I$ (où I est l'intensité du faisceau laser à l'origine du changement d'indice). Ainsi, les indices $n_2^{(Kerr)}$ de nombreux matériaux organiques ou inorganiques, ont été étudiés. Des nonlinéarités de l'ordre de $10^{-16} m^2/W$ [37] ont été mesurées. Ces fortes valeurs de nonlinéarités ne sont cependant obtenues qu'en présence d'absorptions importantes du faisceau laser dans le matériau.

De nombreuses études ont été menées depuis le début des années 1990, sur les déphasages nonlinéaires induits par effet de cascade. Ces travaux ont été initiés par Ostrowsky [1]. Il fut le premier à montrer théoriquement que la cascade de deux processus nonlinéaires d'ordre deux $\chi^{(2)}$ induisait l'équivalent d'un indice nonlinéaire $n_2^{(Kerr)}$. Une étude similaire fut également réalisée par Gustafson *et al.* [5]. Ces auteurs démontrent théoriquement, eux aussi, que lors de la génération de second harmonique,

le produit de deux nonlinéarités d'ordre deux ($\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$) induit une nonlinéarité effective du type $n_2^{(Kerr)}$. Après ces travaux pionniers, il fallut attendre le début des années 1990 pour que le sujet connaisse un regain d'intérêt. A cette période Belashenkov [38] et DeSalvo [39] démontrent à la fois théoriquement et expérimentalement qu'un $n_2^{(GSH)}$ de l'ordre de $10^{-18} m^2/W$ peut être induit dans des cristaux de KDP ou de CDA au voisinage de l'accord de phase lors de la génération de second harmonique. Dès lors, de nombreuses expériences se sont attachées à décrire les conditions pour lesquelles les phases nonlinéaires induites par effet de cascade se comportaient comme celles induites par des nonlinéarités d'ordre trois [40]. Les idées physiques importantes concernant l'effet de cascade peuvent être déduites d'une étude des équations couplées décrivant la génération de second harmonique dans l'approximation des ondes planes [41]. Dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable, ces équations s'écrivent sous la forme [42] :

$$\frac{\partial A_1(z)}{\partial z} = -i\beta A_1(z)^* A_2(z) e^{i\Delta k z} \quad (1.56)$$

$$\frac{\partial A_2(z)}{\partial z} = -i\beta A_1(z)^2 e^{-i\Delta k z} \quad (1.57)$$

où $A_i(z)$, β et $\Delta k = k(2\omega) - 2k(\omega)$ sont respectivement l'amplitude des ondes fondamentale et harmonique, le coefficient de couplage nonlinéaire et le désaccord de phase pour la génération de second harmonique. Le coefficient $\beta = \frac{1}{\sqrt{P_c}}$ ¹² est proportionnel aux indices linéaires n_1 et n_2 à la fréquence fondamentale et harmonique et au coefficient nonlinéaire $d_{eff} = \frac{\chi^{(2)}}{2}$. Armstrong et al [41] ont trouvé la solution analytique de ces équations. Celle-ci est relativement complexe en l'absence d'accord de phase. Cependant, le résultat le plus important peut être simplement obtenu si l'on néglige la variation en intensité de l'onde fondamentale au cours de sa propagation dans le cristal : $A_1(z) = A_1(z=0)$. Dans ce cas l'intégration des équations 1.56 permet d'obtenir la phase de l'onde fondamentale [43]

$$\phi_1(\Delta k, z) = \frac{|A_1(z=0)|^2 L}{\Delta k P_c} \quad (1.58)$$

A partir de cette expression, nous pouvons définir l'indice nonlinéaire induit par la génération de second harmonique $n_2^{(GSH)}(\Delta k)$:

$$n_2^{GSH}(\Delta k) = \frac{1}{k_0 \Delta k P_c} \quad (1.59)$$

On remarque ainsi que le désaccord de phase Δk permet le contrôle du signe et de l'amplitude de l'indice nonlinéaire $n_2^{(GSH)}$. Une analyse plus détaillée permet de souligner d'autres aspects limitatifs du phénomène [42] :

¹² P_c représente une puissance critique : $P_c = \frac{\epsilon_0 c n_1^2 n_2 \lambda_0^2}{8\pi^2 d_{eff}^2}$

- Les conditions permettant d’obtenir une phase nonlinéaire évoluant comme celle induite par une nonlinéarité de type Kerr, c’est à dire linéairement par rapport à l’intensité de l’onde pompe et à la distance z de propagation sont très restrictives. Ceci n’a lieu que si $\Delta k \neq 0$ mais aussi si $\Delta k L \gg \pi$.
- Le maximum de la phase est obtenu lorsque $\Delta k L = \pi$. L’indice nonlinéaire effectif s’écrit alors :

$$n_{2,max}^{GSH}(L) = \pm \frac{L}{k_0 P_c} \quad (1.60)$$

Il est important de noter ici que lorsque $\Delta k \sim 0$, la déplétion du faisceau fondamental au cours de sa propagation dans le cristal intervient ¹³.

Expérimentalement, l’effet de cascade a été mesuré dans des cristaux doubleurs massifs et des guides d’onde. La première vraie démonstration expérimentale de l’effet de cascade a été réalisée par Belashenkov et *al* dans un cristal massif de CDA en 1989 [38]. Un peu plus tard, au cours d’une expérience de Z-scan utilisant des impulsions picosecondes, DeSalvo et *al* ont analysé l’évolution simultanée de la phase nonlinéaire et la déplétion de l’onde fondamentale en fonction de Δk . Plus récemment l’utilisation d’impulsions femtosecondes a souligné les possibilités importantes offertes par cet effet. Citons par exemple la compression d’impulsion [47], [48], le blocage de modes [45], [46] ou l’étude de la propagation solitonique. Ces impulsions présentent cependant quelques désavantages. Ainsi Hache et *al* [44] a mis en évidence une nette diminution de la phase nonlinéaire ($\Delta k \sim 0$) dans un cristal de BBO lorsque la durée d’impulsion diminue. L’ensemble de ces travaux soulignent clairement que généralement les nonlinéarités dues aux effets de cascade ne peuvent pas être simplement décrites par des nonlinéarités de type Kerr. Ceci est particulièrement vrai lorsque le désaccord de phase est faible, $\Delta k L \sim \pi$, ou lorsque les intensités crêtes sont importantes. Dans ces cas, seule une analyse globale des équations décrivant l’évolution de la phase nonlinéaire subie par l’onde laser permet de décrire l’ensemble des phénomènes observés. Nos études sont en parfait accord avec ces conclusions. Dans la majorité de nos études réalisées dans ces conditions, nous verrons que seule une étude numérique permet de décrire les phénomènes dans ces régimes particuliers.

¹³Son équivalent est l’absorption à deux photons pour les phénomènes $\chi^{(3)}$.

Caractérisation de la nonlinéarité induite durant la génération de second harmonique d'impulsions femtosecondes par des mesures d'intensité.

Pour mesurer l'amplitude de l'effet de cascade, nous avons mis à profit le phénomène d'auto-diffraction spectrale ou spatiale en présence de génération de second harmonique. Deux configurations expérimentales différentes ont été utilisées :

- Pour réaliser une expérience d'auto-diffraction spatiale, deux faisceaux ayant la même fréquence fondamentale ω mais ayant deux vecteurs d'onde différents notés respectivement \vec{k}_p et \vec{k}_s sont mélangés dans un cristal nonlinéaire (Fig. 2.1). Ces deux faisceaux font un petit angle θ l'un par rapport à l'autre. Au cours de leurs interactions nonlinéaires dans le cristal et via les mécanismes de sommation et de différence de fréquences, ces faisceaux vont générer de nouveaux vecteurs d'onde. Ainsi à la sortie du cristal, des ondes apparaissent dans de nouvelles directions. Leurs fréquences seront centrées autour de la fréquence centrale de l'onde fondamentale ω et de l'onde harmonique 2ω [35]. Expérimentalement, tout se passe comme si les ondes fondamentale et harmonique étaient diffractées par un réseau spatial auto-induit dans le cristal.
- La même expérience peut être réalisée dans le domaine spectral. Un faisceau unique constitué de deux impulsions quasi monochromatiques centrées respectivement à la fréquence ω_1 et ω_2 est envoyé dans un cristal nonlinéaire (Fig. 2.2).

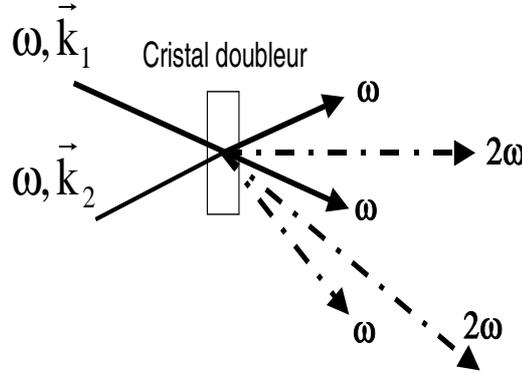


FIG. 2.1 — Principe d'auto-diffraction spatiale.

Dans ce cristal, via les mécanismes de sommation et de différence de fréquences, de nouvelles composantes spectrales sont générées. Par analogie entre le domaine spectral et le domaine spatial, nous parlerons ici d'auto-diffraction spectrale.

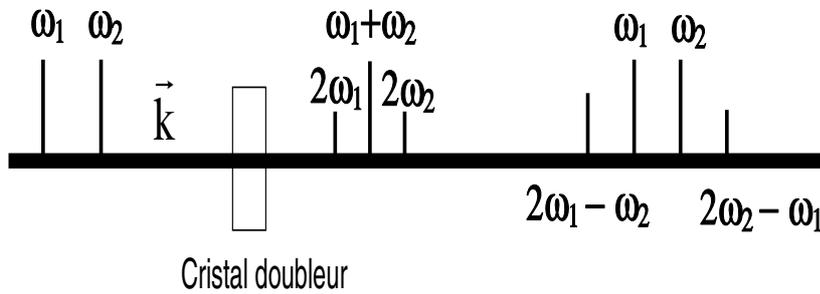


FIG. 2.2 — Principe d'auto-diffraction spectrale.

Nous montrerons que l'efficacité de "diffraction" vers les fréquences spatiales ou spectrales est directement reliée à l'amplitude de l'effet de cascade $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$. Ainsi, la mesure de l'amplitude de ces nouvelles fréquences, permet de quantifier la phase non-linéaire induite par effet de cascade.

Dans le domaine spatial, les mesures réalisées offrent d'autres possibilités que nous avons exploitées. En effet, il n'est pas nécessaire de synchroniser temporellement les ondes se mélangeant dans le milieu non-linéaire. Il est ainsi possible de mesurer l'amplitude des phénomènes de cascade en fonction du retard temporel entre les ondes interagissant dans le cristal. Par ailleurs, notre étude complète montrera deux points essentiels :

- Tout d'abord, ces expériences mettent clairement en évidence le caractère non-local, d'un point de vue temporel et spatial, des variations d'indices induites par effet de cascade.
- Ensuite, différents problèmes posés par l'utilisation de ces phénomènes lors de la caractérisation d'impulsions courtes (méthodes nonlinéaires du type F.R.O.G.¹ par exemple [49], [50]) sont mis à jour. En effet, nous verrons qu'à forte intensité, les phénomènes nonlinéaires d'ordre supérieur déforment fortement les traces d'auto-corrélation.

Dans le domaine spectral, l'expérience d'auto-diffraction est réalisée en utilisant une impulsion courte possédant deux composantes spectrales $\omega + \Delta\omega$ et $\omega - \Delta\omega$ synchronisées temporellement. L'amplitude des nouvelles composantes spectrales apparaissant dans le spectre fondamental et harmonique est directement liée à celle des phénomènes de cascade. Cette technique permet également de mettre en évidence les effets de cascade d'ordres supérieurs associés à plusieurs étapes de rétro-actions entre l'onde fondamentale et l'onde harmonique. Nous montrerons alors que, dans nos conditions expérimentales, la nonlinéarité d'ordre trois $\chi^{(3)}$ influence la mesure des effets de cascade.

2.1 Mesure de l'intégrale B induit par effet de cascade par auto-diffraction spectrale.

Ce paragraphe est consacré à la caractérisation spectrale de cascades d'effets nonlinéaires d'ordre deux se produisant lors de la génération de second harmonique d'impulsions femtosecondes. L'expérience d'auto-diffraction spectrale utilise une impulsion courte unique possédant deux composantes spectrales $\omega + \Delta\omega$ et $\omega - \Delta\omega$ synchronisées temporellement. Cette méthode de mesure - dont la mise en oeuvre est simple - permet de quantifier précisément les effets de cascade $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$. La mesure consiste à analyser le spectre des ondes fondamentale et harmonique à la sortie du cristal en fonction du désaccord de phase et de l'intensité laser.

2.1.1 Principe de base de l'auto-diffraction spectrale.

Essayons tout d'abord d'évaluer les modifications spectrales associées aux contributions liées d'une part aux effets de cascade $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ et d'autre part à la nonlinéarité d'ordre trois $\chi^{(3)}$ intrinsèque du matériau :

¹Frequency Resolved Optical Gating

1. Loin de toute résonnance et au voisinage de l'accord de phase $\Delta k \sim 0$, les phénomènes nonlinéaires d'ordre deux dominant. On enregistre alors une modification de la forme et de l'amplitude du spectre de l'onde fondamentale et l'apparition du spectre associé à l'onde harmonique. L'évolution de ces différentes composantes spectrales peut être facilement expliquée. Pour cela, nous considérons que l'impulsion fondamentale contient deux fréquences $\omega + \Delta\omega$ et $\omega - \Delta\omega$. La sommation de fréquences produite par la nonlinéarité d'ordre deux $\chi^{(2)}$ du cristal va, dans une première étape, générer trois fréquences harmoniques respectivement à $2(\omega + \Delta\omega)$, $2(\omega - \Delta\omega)$ et 2ω . Celles-ci se propagent simultanément avec l'onde fondamentale dans le cristal (Fig. 2.3). Au cours d'un deuxième processus nonlinéaire d'ordre

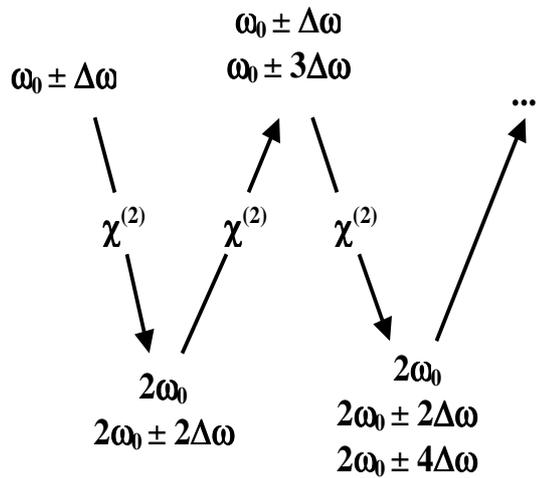


FIG. 2.3 — Schéma de principe pour la création de nouvelles fréquences à partir de processus $\chi^{(2)}$.

deux (par différence de fréquences), ces nouvelles composantes spectrales vont générer de nouvelles fréquences dans le spectre fondamental. Ainsi, des composantes centrées à $\omega + 3\Delta\omega$ et $\omega - 3\Delta\omega$ apparaissent de part et d'autre des composantes initiales $\omega + \Delta\omega$ et $\omega - \Delta\omega$. Notons que si l'intensité des ondes fondamentales est suffisante, ce processus se répète. Ainsi autour des fréquences centrales ω et 2ω apparaissent les fréquences paires $2(\omega \pm n\Delta\omega)$ dans le spectre de l'onde harmonique et les fréquences impaires $\omega \pm (2n + 1)\Delta\omega$ dans le spectre de l'onde fondamentale. Nous montrerons plus loin que l'amplitude de ces nouvelles fréquences est respectivement proportionnelle au produit $(\chi^{(2)})^{2n+1}$ et $(\chi^{(2)})^{2n}$. Cette présentation rapide nous indique qu'il est, en principe, relativement simple de mettre en évidence les effets de cascade d'ordres supérieurs ($n > 2$). Nous verrons qu'une caractérisation quantitative de ces phénomènes est possible. Il suffit pour cela d'enregistrer l'évo-

lution du spectre des ondes fondamentale et harmonique en fonction de l'intensité de l'onde fondamentale et du désaccord de phase Δk entre l'onde harmonique et l'onde fondamentale. Cependant l'enregistrement d'effet de cascade d'ordre supérieure à $n=2$ nécessite l'utilisation d'impulsions de fortes puissances crêtes.

- Notons cependant que pour des intensités suffisamment importantes, les phénomènes nonlinéaires d'ordre trois contribuent aussi à la modification du spectre de l'onde fondamentale. Par exemple, la fréquence fondamentale $\omega + 3\Delta\omega$ peut être générée à partir du mélange des trois ondes $\chi^{(3)}(\omega + \Delta\omega, -(\omega - \Delta\omega), \omega + \Delta\omega)$ via un processus nonlinéaire d'ordre trois. Ainsi, il est légitime de s'interroger sur le poids respectif des contributions associées aux effets nonlinéaires d'ordre deux et trois lors de la mesure des effets de cascade d'ordres supérieurs. Expérimentalement, nous avons un moyen relativement simple pour dissocier les effets de cascade $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ et $\chi^{(3)}$. Il nous suffit de modifier le désaccord de phase $\Delta k = k(2\omega) - 2k(\omega)$ autour de $\Delta k = 0$. En effet autour de cette valeur, la contribution nonlinéaire d'ordre trois peut être considérée comme étant constante tandis que celles associées aux effets de cascade seront considérablement modifiées. Notons également que l'évolution en fonction de l'intensité ne permet pas de séparer les deux contributions.

2.1.2 Dispositif expérimental.

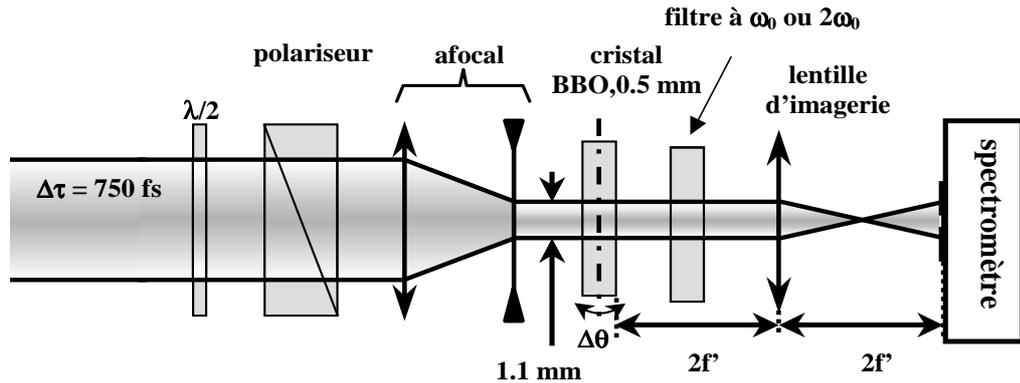


FIG. 2.4 — Schéma expérimental du dispositif d'auto-diffraction spectrale.

Le schéma expérimental qui nous a permis de mettre en évidence l'auto-diffraction spectrale est présenté sur la figure 2.4. Le faisceau laser utilisé est issu d'un amplificateur régénératif et possède les caractéristiques suivantes : $\lambda_0 = 800$ nm, $f_{rep} = 1$ kHz, $\tau = 120$ fs et $E = 0.5$ mJ. Le spectre typique des impulsions issues de cette source est représenté sur la figure 2.5. La largeur à mi-hauteur est de $\Delta\lambda = 8$ nm. Pour réaliser

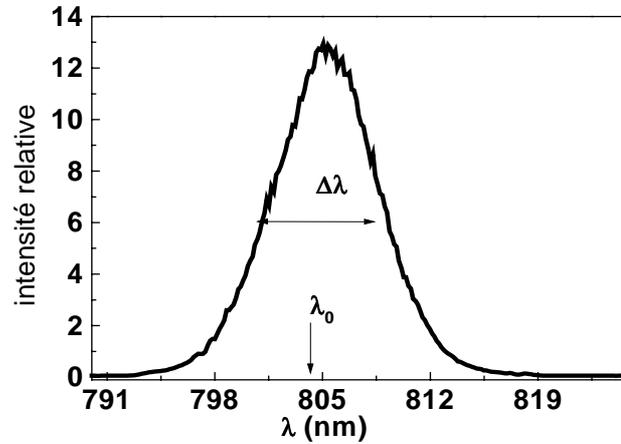


FIG. 2.5 — Spectre de l'impulsion laser issue de l'amplificateur réfénératif.

notre expérience d'auto-diffraction spectrale et générer deux composantes spectrales centrées à $\omega + \Delta\omega$ et $\omega - \Delta\omega$, nous avons filtré le spectre de l'impulsion fondamentale. Pour cela, nous avons placé un masque d'amplitude - constitué de deux fentes parallèles - dans le plan de Fourier du compresseur (Fig. 2.6). En ajustant la largeur et la position des fentes, nous pouvions régler la fréquence centrale λ_0 et la largeur spectrale filtrée $\Delta\lambda$. Le spectre ainsi filtré est représenté sur la figure 2.7. Les durées d'impulsions pour

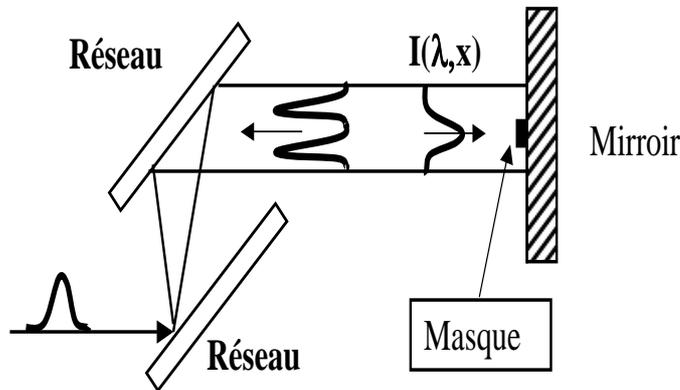


FIG. 2.6 — Schema de principe pour le filtrage expérimental des deux composantes spectrales.

les ondes fondamentales, déterminées à partir de leur spectre filtré, sont égales à 455 fs. D'autre part, nous voyons clairement que le spectre filtré ne présente pas de fréquences satellites qui perturberaient nos mesures. Deux paramètres importants sont contrôlés lors du filtrage du spectre de l'impulsion laser (fig. 2.7) :

1. La distance entre les deux composantes spectrales filtrées $\lambda_{1,-} = 808.4nm$ et $\lambda_{1,+} = 814.6nm$ qui est égale à $\Delta\lambda = \pm 3.1nm^2$.

²On définit $\Delta\lambda$ par rapport à la fréquence centrale λ_0

2. La largeur de chaque pic à mi-hauteur qui est égale à $\delta\lambda = 1.8nm$.

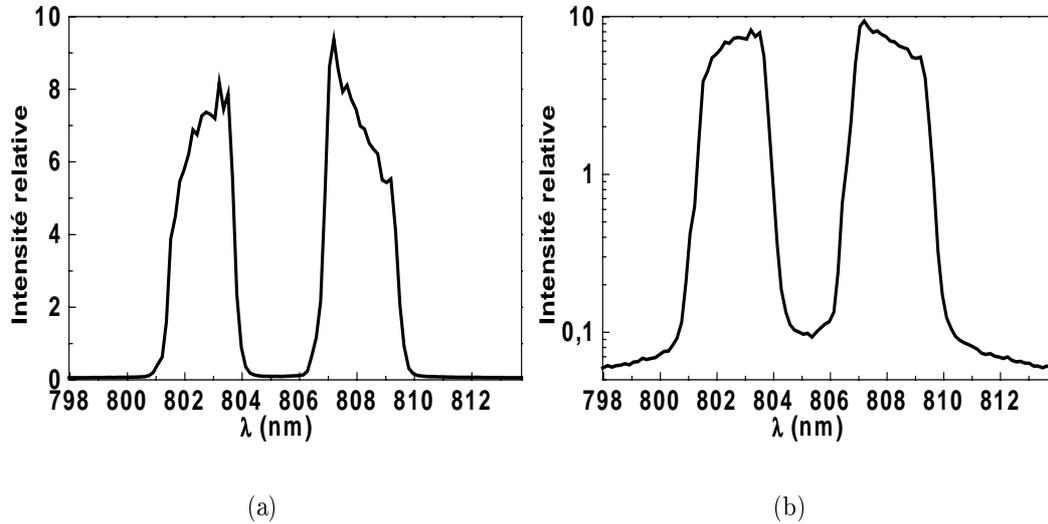


FIG. 2.7 — Mesure du spectre filtré par le masque d'amplitude ((a) échelle linéaire et (b) semi-logarithmique).

Après leur mise en forme spectrale, les impulsions fondamentales à l'entrée du cristal ont une énergie égale à $50\mu J$. A la sortie du compresseur, la taille du faisceau est réduite : un système afocal permet de fixer la valeur du diamètre du faisceau à mi-hauteur $w_0 = 1.1mm$ à l'entrée du cristal. L'intensité crête du faisceau est alors égale à $2.5GW/cm^2$. La puissance du faisceau laser peut être réglée continûment à l'aide d'un système composé d'un prisme de Glan et d'une lame demi-onde. Nos expériences ont été réalisées en utilisant un cristal de BBO de longueur $500\mu m$ taillé pour une interaction de type I (ooe) à $800nm$ ($\theta = 28.3^\circ$, $\phi = 30^\circ$). L'acceptance spectrale de ce cristal est grande par rapport au spectre total de l'impulsion. La faible épaisseur de notre cristal permet de nous affranchir des phénomènes de dispersion pour les ondes fondamentale et harmonique.

Après le cristal, un filtre spectral, constitué d'un verre absorbant, est utilisé pour caractériser le champ harmonique ou fondamental. Le faisceau à la sortie du cristal est imagé sur la fente d'entrée d'un spectromètre dont la largeur est réglée à $10\mu m$.

2.1.3 Mesure de l'intégrale B à $\Delta k = 0$ par auto-diffraction spectrale.

Nous avons appliqué le principe d'auto-diffraction spectrale pour tout d'abord mesurer l'intégrale B induite par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux autour de $\Delta k = 0$. Pour cela, nous avons enregistré le spectre de l'onde harmonique et celui

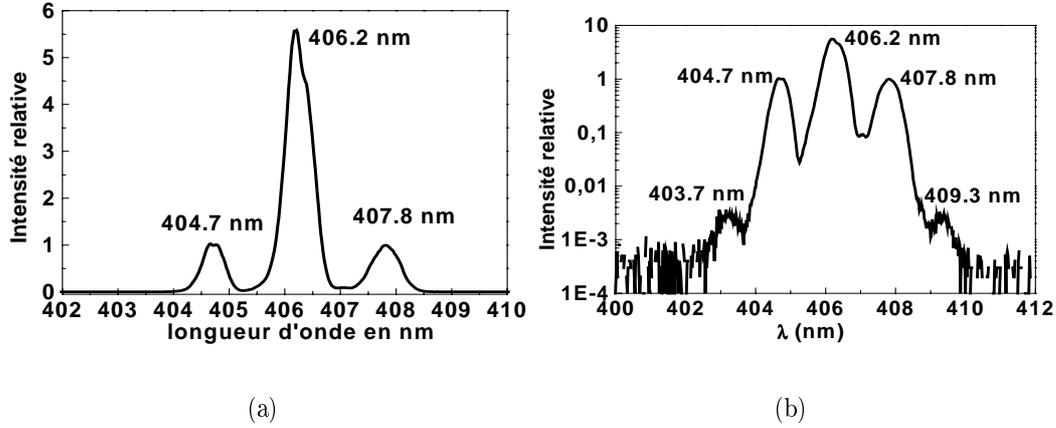


FIG. 2.8 — Mesure du spectre harmonique à $\Delta k = 0$ ((a) échelle linéaire et (b) semi-logarithmique).

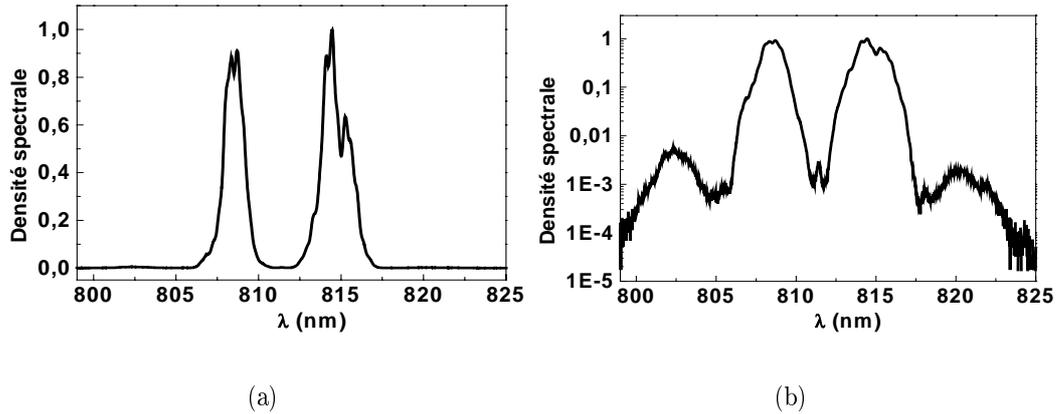


FIG. 2.9 — Mesure du spectre fondamental à $\Delta k = 0$ ((a) échelle linéaire et (b) semi-logarithmique).

de l'onde fondamentale après leurs propagations dans le cristal. La forme du spectre harmonique mesurée (Fig. 2.8) à la sortie du cristal est bien celle attendue. En parfait accord avec le phénomène de sommation de fréquences des composantes centrées à $\lambda_{2,-} = 404,7nm$, $\lambda_{2,0} = 406.2nm$ et $\lambda_{2,+} = 407.8nm$ apparaissent. Le spectre de l'onde fondamentale après sa propagation dans le cristal de BBO est présenté sur la figure 2.9. Comme pour l'onde harmonique et en parfait accord avec l'approche qualitative que nous avons proposée, de nouvelles fréquences centrées à $\omega_0 + 3\Delta\omega$ et $\omega_0 - 3\Delta\omega$ apparaissent clairement en échelle logarithmique. Les longueurs d'onde de ces nouvelles composantes sont respectivement $\lambda_{1,3\Delta\omega} = 820.2nm$ et $\lambda_{1,-3\Delta\omega} = 802.3nm$. Il est important de noter que la représentation en échelle logarithmique (Fig. 2.8b) du spectre de l'onde harmonique permet de mettre en évidence la mesure de nouvelles longueurs d'onde centrées à $403.2nm$ et $409.3nm$. Ces composantes spectrales sont la

signature expérimentale des cascades d'effets nonlinéaires d'ordre deux d'ordres supérieurs ($\sim \chi^{(5)}$). En particulier la composante à $\lambda = 403.2nm$ résulte de la sommation de fréquences de la composante initiale de l'onde fondamentale $\omega_0 + \Delta\omega$ avec la composante $\omega_0 + 3\Delta\omega$ produite par effet de cascade. Il faut noter qu'un processus nonlinéaire d'ordre 5 (i.e. $\chi^{(5)}$) peut également produire le même effet.

L'évolution en fonction de l'intensité de l'amplitude des différentes composantes spectrales confirme l'origine de ces nouvelles fréquences. Les figures 2.10(a) et 2.10(b) reportent l'évolution de l'amplitude des composantes à $\omega_0 \pm 3\Delta\omega$, $2(\omega_0 \pm 3\Delta\omega)$ et $2\omega_0$ en fonction de l'intensité de l'onde fondamentale. La représentation de cette évolution en échelle log-log permet de retrouver le coefficient associé aux lois en puissance par rapport à l'intensité de l'onde fondamentale. Aux incertitudes expérimentales près, les

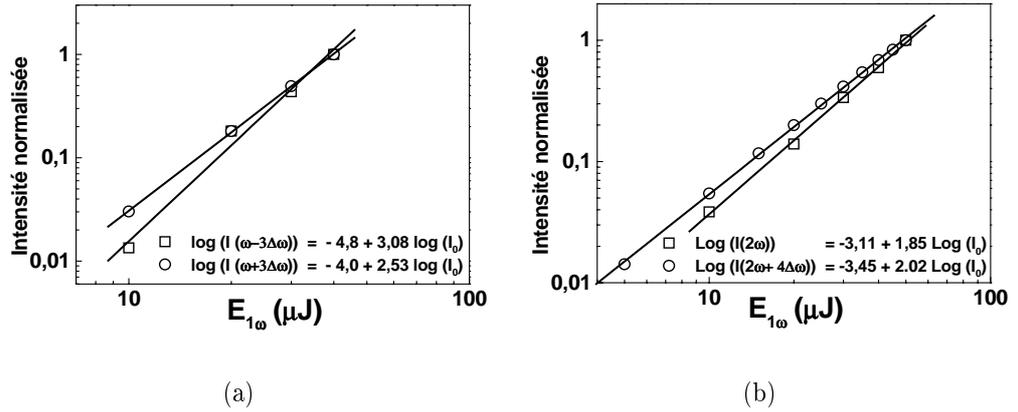


FIG. 2.10 — (a) : Evolution de l'amplitude des pics générés à $\omega + 3\Delta\omega$ (\square) et $(\omega - 3\Delta\omega)$ (\circ) et (b) : Evolution de l'amplitude des pics générés à 2ω (\square) et $(2\omega + 4\Delta\omega)$ (\circ).

composantes associées aux phénomènes en $\chi^{(2)}$ et $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ évoluent respectivement en I_p et I_p^2 .

Notre analyse théorique du problème montrera que lorsque $\Delta k = 0$:

1. l'amplitude des nouvelles composantes spectrales créées autour de la fréquence centrale de l'onde fondamentale et de l'onde harmonique est une mesure de l'intégrale B induite par cascade d'effets d'ordre deux.
2. Pour l'onde fondamentale, le rapport entre l'amplitude des composantes spectrales générées et initiales $\eta = \frac{I(\omega_0 \pm 3\Delta\omega)}{I(\omega_0 \pm \Delta\omega)}$ permet une mesure simple et directe de l'intégrale B. Ainsi sur la figure 2.9, la variation de phase induite par effet de cascade est de l'ordre du pourcent.

2.1.4 Compétition entre la nonlinéarité d'ordre trois et les phénomènes de cascade.

Pour mieux comprendre l'influence de la nonlinéarité $\chi^{(3)}$ sur la phase totale accumulée par l'impulsion fondamentale au cours de sa propagation dans le cristal, nous avons fait varier le désaccord de phase entre l'onde fondamentale et l'onde harmonique $\Delta k = k(2\omega_0) - 2k(\omega_0)$. En effet, comme nous l'avons souligné précédemment, la variation des différentes composantes spectrales en fonction de l'intensité ne permet pas de dissocier la contribution $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ de la contribution $\chi^{(3)}$ à la variation d'indice subie par l'onde fondamentale. En fait, les deux contributions évoluent toutes les deux comme I_0^2 . Cependant, lorsque $|\Delta k| \gg 0$, la contribution associée à l'effet de cascade est faible³ tandis que la contribution due à l'effet Kerr reste à peu près constante. Pour confirmer la validité de notre analyse, nous avons reporté sur la figure 2.11, l'évolution de l'amplitude des composantes spectrales aux fréquences $\omega_0 \pm 3\Delta\omega$ en fonction de Δk . Effectivement, une contribution constante en fonction de Δk (tracée en pointillés sur la figure 2.11) crée une forte dissymétrie de la courbe. Nous verrons lors de notre analyse théorique qu'en soustrayant cette constante au signal dû à un effet Kerr, il est possible de tracer spécifiquement l'évolution de la contribution associée à l'effet de cascade.

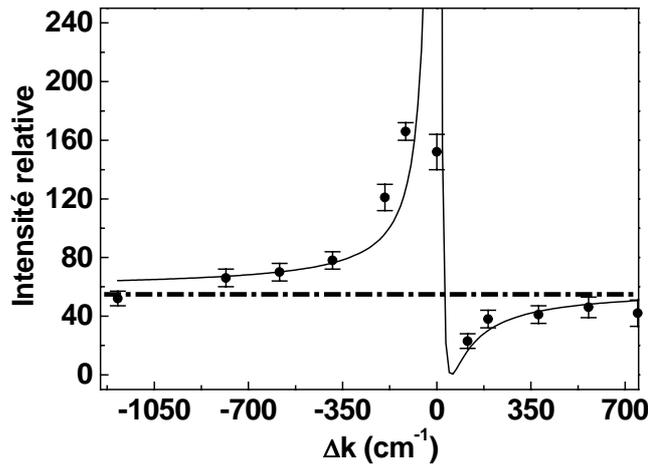


FIG. 2.11 — Evolution de l'amplitude du pic à $\omega_0 \pm 3\Delta\omega$ en fonction de Δk (pointillées : contribution constante du $\chi^{(3)}$).

³celle-ci est proportionnelle à l'intensité harmonique, qui est très faible si $|\Delta k| \gg 0$

2.1.5 Description analytique.

L'analyse qualitative de l'auto-diffraction spectrale, donnée au début de ce chapitre, a été confirmée par les résultats expérimentaux que nous avons précédemment décrits. Les spectres mesurés pour l'onde harmonique et fondamentale concordent avec les images simples que nous proposons. Pour aller plus loin et obtenir une description plus quantitative de ces mesures, nous avons développé un modèle analytique perturbatif. Celui-ci nous permettra de mieux quantifier les différentes étapes du processus de cascade.

La particularité de notre calcul est associée à la forme temporelle de l'onde fondamentale que nous utilisons. Dans notre analyse, nous considérerons que le champ électrique fondamental est une onde plane dont la forme temporelle $A_1(z, t)$ est modulée. A l'entrée du cristal, le champ électrique fondamental s'exprime sous la forme :

$$E_1(z, t) = A_1(z, t)e^{i\omega t} \quad (2.1)$$

où $A_1(z, t) = A_{10} \cos(\Delta\omega t)e^{-\left(\frac{t}{\tau}\right)^2}$, τ et $\Delta\omega$ sont respectivement l'amplitude du champ électrique, la durée des impulsions centrées à ω et la modulation temporelle de l'onde fondamentale.

La description de nos résultats expérimentaux passe par la résolution des équations couplées de génération de second harmonique. Les mesures indiquent clairement qu'il faut prendre en compte la présence de la nonlinéarité d'ordre trois dans nos équations. Classiquement, les équations de l'enveloppe lentement variable de l'onde fondamentale et harmonique s'écrivent dans l'approximation des ondes planes :

$$\begin{aligned} \frac{\partial A_1(z, t)}{\partial z} &= i\gamma d_{eff} A_2(z, t) A_1^*(z, t) e^{i\Delta k z} + i\gamma \chi^{(3)} A_1(z, t) [|A_1(z, t)|^2 + 2 |A_2(z, t)|^2] \\ \frac{\partial A_2(z, t)}{\partial z} &= i\gamma d_{eff} A_1(z, t) A_1(z, t) e^{-i\Delta k z} + i\gamma \chi^{(3)} A_2(z, t) [2 |A_1(z, t)|^2 + |A_2(z, t)|^2] \end{aligned} \quad (2.2)$$

où $\gamma = \frac{\omega}{2nc}$. Notons que dans ces équations nous n'avons pas pris en compte les phénomènes linéaires tels que la dispersion de l'indice linéaire (vitesse de groupe, dispersion de vitesse de groupe) ou encore les phénomènes spatiaux. En fait, nos conditions expérimentales et l'épaisseur de notre cristal, nous permettent de s'affranchir de ces phénomènes.

Ce système d'équation n'a pas, à notre connaissance, de solution analytique. Pour résoudre ces équations, nous allons donc considérer deux cas différents :

- Tout d'abord, le cas où $\Delta k = 0$. Dans cette situation, nous considérerons alors $\chi^{(3)} = 0$. Ainsi, lorsque $\Delta k = 0$, une solution analytique [41] existe et nous verrons que celle-ci décrit correctement nos résultats expérimentaux.

- Ensuite le cas où $\Delta k \neq 0$. On ne peut plus alors négliger les phénomènes d'interférences entre les effets $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ et $\chi^{(3)}$. La solution analytique n'existe pas. Mais, comme les phénomènes ont une amplitude moins importante, nous montrerons qu'il est possible de résoudre le système d'équation 2.2 par une approche perturbative .

Cas où $\Delta k = 0$.

Lorsque $\Delta k \sim 0$, nous pouvons légitimement négliger les effets dus à la nonlinéarité d'ordre trois par rapport aux effets de cascade. En effet les rendements de conversion - que l'on nommera η , sont importants et dans ce cas, il est possible de montrer que l'intensité des nouvelles composantes spectrales générées dépend directement de η [35]. Dans ce cas, les équations à résoudre sont obtenues en posant $\Delta k = 0$ et $\chi^{(3)} = 0$. Ces équations 2.2 s'écrivent :

$$\frac{\partial A_1(z, t)}{\partial z} = i\gamma d_{eff} A_2(z, t) A_1^*(z, t) \quad (2.3)$$

$$\frac{\partial A_2(z, t)}{\partial z} = i\gamma d_{eff} A_1(z, t) A_1(z, t) \quad (2.4)$$

La solution analytique de ces équations a été proposé par Armstrong et al. [41] dès 1962. Les solutions pour l'onde fondamentale et harmonique sont :

$$A_1(z, t) = \frac{A_1(t)}{\cosh(\gamma d_{eff} A_{10}(t) z)} \quad (2.5)$$

$$A_2(z, t) = A_1(t) \tanh(\gamma d_{eff} A_{10}(t) z) \quad (2.6)$$

Dans notre cas particulier, l'impulsion laser initiale s'écrit $A_1(t) = A_{10} \cos(\Delta\omega t) e^{-\left(\frac{t}{\tau}\right)^2}$. Sur figure 2.12 nous avons représenté la forme des spectres fondamentaux et harmonique avant et après propagation dans le cristal. Les paramètres choisis pour réaliser cette figure sont ceux de l'expérience que nous avons présentée. En très bon accord avec nos données expérimentales, nous observons l'apparition simultanée de nouvelles fréquences dans le spectre de l'onde fondamentale et de l'onde harmonique (représentées en échelle linéaire et en échelle logarithmique).

Cas où $\Delta k \neq 0$.

Dans ce cas, il faut résoudre complètement le système d'équations 2.2.

$$\begin{aligned} \frac{\partial A_1(z, t)}{\partial z} &= i\gamma d_{eff} A_2(z, t) A_1^*(z, t) e^{i\Delta k z} + i\gamma \chi^{(3)} A_1(z, t) [| A_1(z, t) |^2 + 2 | A_2(z, t) |^2] \\ \frac{\partial A_2(z, t)}{\partial z} &= i\gamma d_{eff} A_1(z, t) A_1(z, t) e^{-i\Delta k z} + i\gamma \chi^{(3)} A_2(z, t) [2 | A_1(z, t) |^2 + | A_2(z, t) |^2] \end{aligned}$$

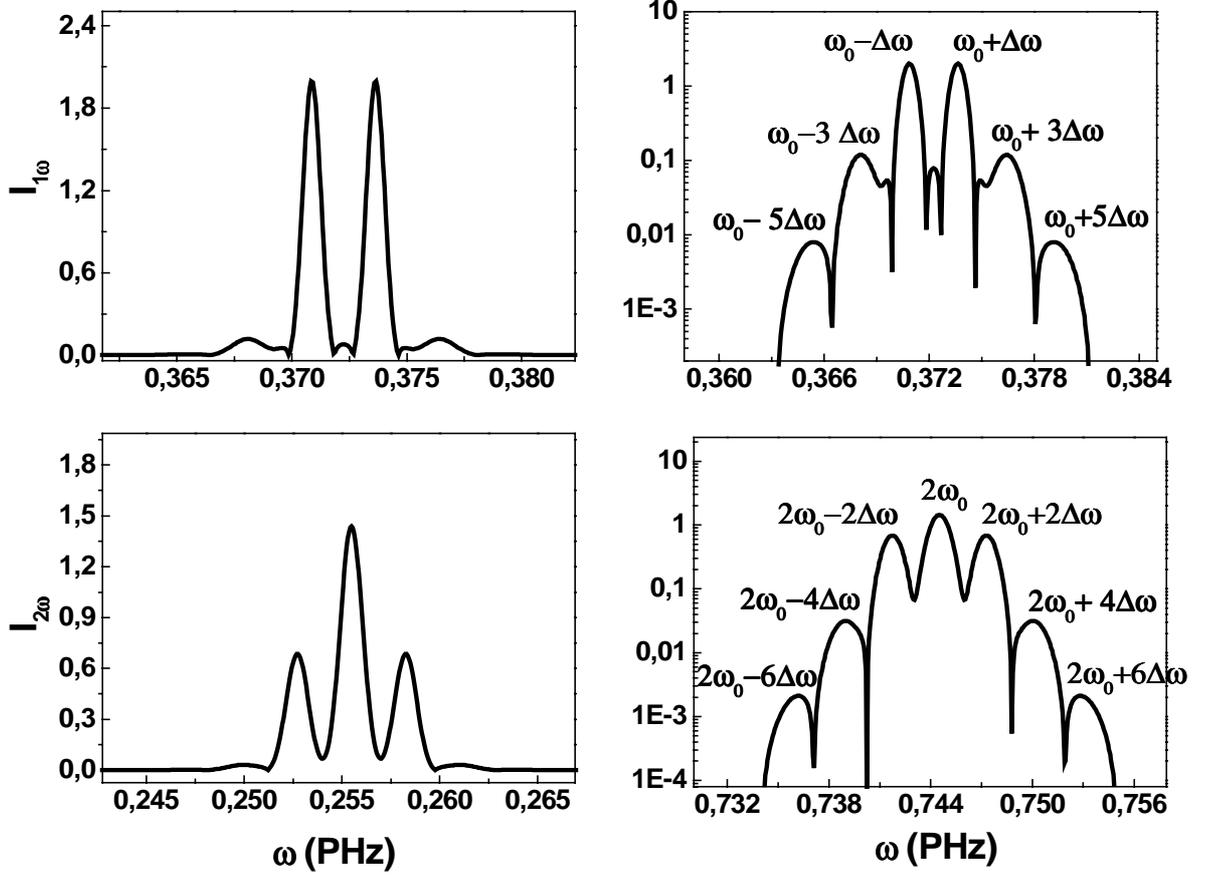


FIG. 2.12 — Densité spectrale simulée pour les ondes fondamentales et harmoniques à $\Delta k = 0$ en échelle linéaire et logarithmique.

Comme, à notre connaissance aucune solution analytique n'existe, nous avons utilisé une méthode de résolution perturbative. Pour réaliser ce calcul, nous avons supposé que les enveloppes lentement variable des champs électriques fondamental et harmonique s'écrivaient sous la forme :

$$A_i(z, t) = \sum_{l=0}^n \Gamma^l A_i^{(l)}(z, t) \quad (2.7)$$

où $i = 1, 2$ et $\Gamma = \gamma d_{eff}$. Ce développement n'est valable que si la condition $A_i^{(l)}(z, t) \ll A_i^{(l+1)}(z, t)$ est vérifiée. A la fin du calcul, nous avons vérifié a poste-

riori que la série 2.7 convergeait. Avec cette écriture, le système 2.7 devient :

$$\sum_{l=0}^n \Gamma^l \frac{\partial \tilde{A}_1^{(l)}(z, t)}{\partial z} = \sum_{l, l'=0}^n \Gamma^{l+l'+1} A_1^{(l)*}(z, t) A_2^{(l')}(z, t) e^{i\Delta k z} \quad (2.8)$$

$$+ i\chi^{(3)} \sum_{l, l', l''=0}^n \Gamma^{l+l'+l''+1} A_1^{(l)}(z, t) \left[A_1^{(l')}(z, t) A_1^{(l'')*}(z, t) + 2A_2^{(l')}(z, t) A_2^{(l'')*}(z, t) \right]$$

$$\sum_{l=0}^n \Gamma^l \frac{\partial \tilde{A}_2^{(l)}(z, t)}{\partial z} = \sum_{l, l'=0}^n \Gamma^{l+l'+1} A_1^{(l)}(z, t) A_1^{(l')}(z, t) e^{-i\Delta k z} \quad (2.9)$$

$$+ i\chi^{(3)} \sum_{l, l', l''=0}^n \Gamma^{l+l'+l''+1} A_2^{(l)}(z, t) \left[A_2^{(l')}(z, t) A_2^{(l'')*}(z, t) + 2A_1^{(l')}(z, t) A_1^{(l'')*}(z, t) \right]$$

Focalisons nous maintenant sur les ordres perturbatifs successifs du calcul allant de $n = 0$ à $n = 2$.

Résolution à l'ordre $n = 0$: Cet ordre représente les conditions initiales pour notre calcul :

$$A_1^{(0)}(z, t) = A_1(z = 0, t) = A_{10} S(t) = A_{10} \cos(\Delta\omega t) e^{-\left(\frac{t}{\tau}\right)^2} \quad (2.10)$$

$$A_2^{(0)}(z, t) = A_2(z = 0, t) = 0 \quad (2.11)$$

Résolution à l'ordre $n = 1$: Les équation 2.12 s'écrivent :

$$\frac{\partial A_1^{(1)}(z, t)}{\partial z} = 2iA_1^{(0)*}(z, t) A_2^{(0)}(z, t) e^{i\Delta k z} \quad (2.12)$$

$$+ i\chi^{(3)} A_1^{(0)}(z, t) \left(A_1^{(0)}(z, t) A_1^{(0)*}(z, t) + 2A_2^{(0)}(z, t) A_2^{(0)*}(z, t) \right)$$

$$\frac{\partial A_2^{(1)}(z, t)}{\partial z} = iA_1^{(0)}(z, t) A_1^{(0)}(z, t) e^{-i\Delta k z} \quad (2.13)$$

$$+ i\chi^{(3)} A_2^{(0)}(z, t) \left(A_2^{(0)}(z, t) A_2^{(0)*}(z, t) + 2A_1^{(0)}(z, t) A_1^{(0)*}(z, t) \right)$$

Nous supposons dorénavant que les phénomènes $\chi^{(3)} \sim \chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ sont des termes d'ordre 2. Ainsi, en intégrant les conditions initiales (Eq. 2.10), le système se simplifie :

$$\frac{\partial A_1^{(1)}(z, t)}{\partial z} = 0 \quad (2.14)$$

$$\frac{\partial A_2^{(1)}(z, t)}{\partial z} = iA_{10}^2 S(t)^2 e^{-i\Delta k z} \quad (2.15)$$

La solution de ces équations se calcule alors aisément :

$$A_1^{(1)}(z, t) = 0$$

$$A_2^{(1)}(z, t) = -\frac{A_{10}^2 S(t)^2}{\Delta k} \left[e^{-i\Delta k z} - 1 \right] \quad (2.16)$$

Résolution à l'ordre $n = 2$: Dans le développement de la polarisation nonlinéaire, nous ne retiendrons ici que les termes non-nuls. Les équations 2.12 s'écrivent :

$$\begin{aligned}\frac{\partial A_1^{(2)}(z, t)}{\partial z} &= 2iA_1^{(0)*}(z, t)A_2^{(1)}(z, t)e^{i\Delta kz} + i\chi^{(3)}A_1^{(0)}(z, t)A_1^{(0)}(z, t)A_1^{(0)*}(z, t) \\ \frac{\partial A_2^{(2)}(z, t)}{\partial z} &= 0\end{aligned}\quad (2.17)$$

ou encore :

$$\frac{\partial A_1^{(2)}(z, t)}{\partial z} = -2i\frac{A_{10}^3 S(t)^3}{\Delta k} [1 - e^{i\Delta kz}] + i\chi^{(3)}A_{10}^3 S(t)^3 \quad (2.18)$$

$$\frac{\partial A_2^{(1)}(z, t)}{\partial z} = 0 \quad (2.19)$$

La solution de ces équations se calcule aisément :

$$A_1^{(2)}(z, t) = iA_{10}^3 S^3(t) \left[\frac{2}{\Delta k^2} \left(\Delta kz + 2e^{i\frac{\Delta kz}{2}} \sin\left(\frac{\Delta kz}{2}\right) \right) + \chi^{(3)}z \right] \quad (2.20)$$

$$A_2^{(2)}(z, t) = 0 \quad (2.21)$$

L'avantage de ce type de calcul apparaît maintenant clairement. Ce calcul permet de calculer successivement les différents ordres de rétroactions entre l'onde fondamentale et l'onde harmonique. Il nous permet de déterminer la phase et l'amplitude des enveloppes lentement variables des champs. A partir de la relation 2.7, il est possible d'écrire $A_1(z, t)$ et $A_2(z, t)$ à l'ordre $n=2$ sous la forme :

$$A_1(z, t) = A_{10}S(t) + \gamma^2 A_1^{(2)}(z, t) \quad (2.22)$$

$$A_2(z, t) = \gamma A_2^{(1)}(z, t) \quad (2.23)$$

Une autre écriture est possible. Pour cela, il suffit d'exprimer le champ $E_1(x, y, t)$ en puissance de $\cos(\Delta\omega t)$. Nous avons alors :

$$A_1(z, t) = \cos(\Delta\omega t) \left[A_{10} + 3\chi_{eff}^{(3)}(z, \Delta k)A_{10}^3 \right] e^{-\left(\frac{t}{\tau}\right)^2} \quad (2.24)$$

$$\begin{aligned} &+ \cos(3\Delta\omega t)\chi_{eff}^{(3)}(z, \Delta k)A_{10}^3 e^{-3\left(\frac{t}{\tau}\right)^2} \\ A_2(z, t) &= \chi_{eff}^{(2)}(z, \Delta k)A_{10}^2 e^{-\left(\frac{t}{\tau}\right)^2} + \cos(2\Delta\omega t)\chi_{eff}^{(2)}(z, \Delta k)A_{10}^2 e^{-2\left(\frac{t}{\tau}\right)^2} \end{aligned} \quad (2.25)$$

où les susceptibilités nonlinéaires effectives $\chi_{eff}^{(2)}(z, \Delta k)$ et $\chi_{eff}^{(3)}(z, \Delta k)$ sont définies comme suit :

$$\chi_{eff}^{(2)}(z, \Delta k) = i\gamma\frac{d_{eff}}{\Delta k} e^{-i\frac{\Delta kz}{2}} \sin\left(\frac{\Delta kz}{2}\right) \quad (2.26)$$

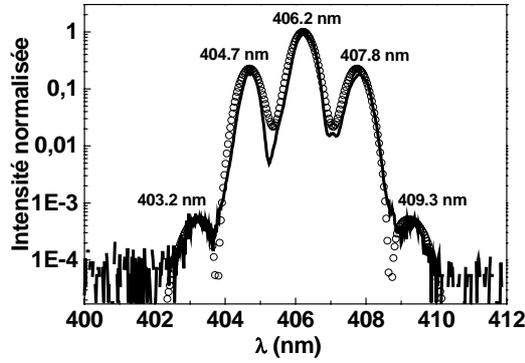
$$\chi_{eff}^{(3)}(z, \Delta k) = i\gamma^2\frac{d_{eff}^2}{2\Delta k^2} \left(\Delta kz + 2e^{i\frac{\Delta kz}{2}} \sin\left(\frac{\Delta kz}{2}\right) \right) + \chi^{(3)}z \quad (2.27)$$

2.1.6 Discussion des résultats.

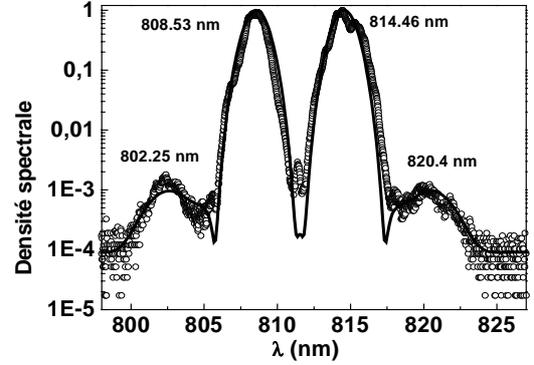
Ci-dessous, nous montrons que le modèle perturbatif présenté dans le paragraphe précédent, permet de décrire de façon très satisfaisante l'ensemble de nos résultats expérimentaux.

Tout d'abord, nous avons tracé sur les figures 2.8 et 2.9 les spectres de l'onde harmonique et de l'onde fondamentale lorsque $\Delta k = 0$. Ces courbes ont été calculées sans paramètres ajustables. En effet, connaissant l'énergie de l'impulsion fondamentale E_0 , le diamètre du faisceau incident w_0 , sa durée temporelle τ , nous avons pu calculer l'amplitude des champs électriques $A_1(z = 0, t)$ et $A_2(z = 0, t)$ de l'onde fondamentale à l'entrée du cristal. Nous connaissons également les différentes caractéristiques, telles que le $d_{eff} = \frac{\chi^{(2)}}{2} = 2.09pm/V$ et les indices $n_{\omega_0} = n_{2\omega_0} = 1.66$ à l'accord de phase, du cristal de BBO utilisé. Ces valeurs ont alors été injectées dans les différentes solutions que nous avons établies. A $\Delta k = 0$, les amplitudes spectrales calculées sont en parfait accord avec les résultats expérimentaux 2.13(a) et ceci, il faut encore une fois le souligner, sans aucun paramètre ajustable. Ces résultats confirment l'exactitude de l'image physique que nous avons proposée dans notre introduction. Par ailleurs, ce modèle confirme également que nos expériences ont été réalisées dans des conditions expérimentales qui sont en bon accord avec les approximations permettant d'obtenir une solutions analytique en fonction de Δk (Approximation de l'enveloppe lentement variable des ondes planes, modulation sinusoïdale du spectre fondamental, ...). Lorsque $\Delta k \neq 0$, notre approche perturbative permet également de reproduire les différents résultats expérimentaux que nous avons obtenus. Nous avons ainsi paramétré l'évolution de l'amplitude des composantes spectrales à $\omega \pm 3\Delta\omega$ en fonction du désaccord de phase pour une intensité de l'onde fondamentale fixée (Fig. 2.14(a)). Pour calculer cette courbe à partir des expressions analytiques 2.24, nous avons un paramètre ajustable à notre disposition : la susceptibilité nonlinéaire d'ordre trois $\chi^{(3)}$ du cristal de BBO. Il s'avère que la valeur que nous avons trouvée $\chi^{(3)} = 2.10^{-21}$ est proche mais supérieure à celle généralement admise dans la littérature $\chi^{(3)} = 8.10^{-22}$.

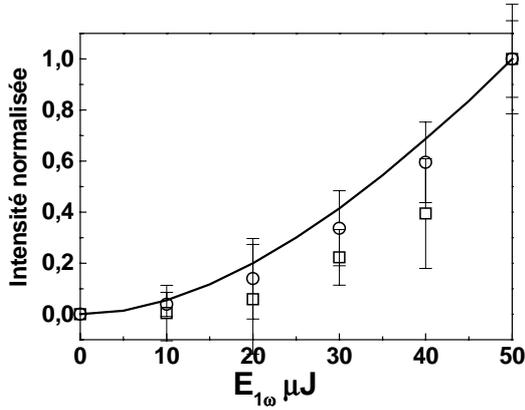
L'ensemble des résultats expérimentaux et analytiques que nous avons établis, nous permet de faire quelques remarques importantes sur la méthode de caractérisation des cascade d'effet nonlinéaire d'ordre deux par "auto-diffraction spectrale". Le résultat le plus important est contenu par l'équation 2.26. Cette équation donne l'évolution de la susceptibilité effective d'ordre trois du milieu en fonction du désaccord de phase Δk et en prenant en compte les contributions associées à l'effet de cascade de nonlinéarité d'ordre deux et à la nonlinéarité intrinsèque $\chi^{(3)}$ du cristal. Cette relation détermine également l'évolution de l'amplitude des composantes spectrales créées autour de $\omega \pm \Delta\omega$. En bon accord avec nos résultats expérimentaux, cette équation montre



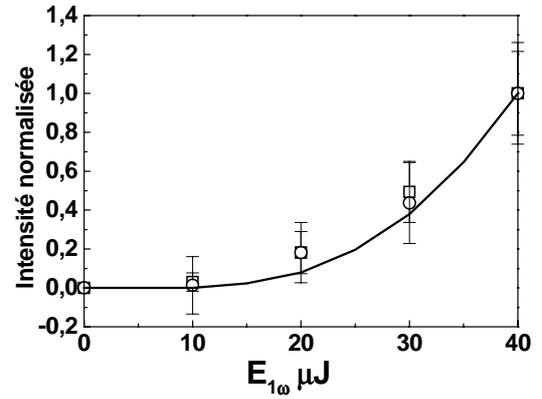
(a) Spectre harmonique.



(b) Spectre fondamental.



(c) Intensité harmonique $I(2\omega \pm 4\Delta\omega)$.



(d) Intensité fondamentale $I(\omega \pm 3\Delta\omega)$.

FIG. 2.13 — Comparaison entre les résultats expérimentaux et les solutions analytiques (trait plein) pour le spectre harmonique et fondamental.

que lorsque le désaccord de phase est grand, la valeur de $\chi_{eff}^{(3)}$ reste constante. $\chi_{eff}^{(3)}$ est alors essentiellement reliée à l'effet nonlinéaire d'ordre trois intrinsèque du matériau $\chi^{(3)}$ et ne dépend pas du signe Δk . Lorsque Δk diminue, la contribution à $\chi_{eff}^{(3)}$ associée à l'effet de cascade augmente considérablement. Le signe de cette contribution dépend du signe de Δk . Ainsi selon le signe de Δk , les contributions à $\chi_{eff}^{(3)}$ associées aux effets de cascade et à la nonlinéarité intrinsèque $\chi^{(3)}$ du milieu s'ajoutent ou se retranchent. Deux cas sont donc à considérer :

- $\Delta k < 0$, la contribution due au $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ s'ajoute à celle du $\chi^{(3)}$.
- Inversement, si $\Delta k > 0$, les deux contributions se retranchent jusqu'à s'annuler pour un désaccord de phase particulier Δk_0 qui a pour expression :

$$\Delta k_0 \sim \frac{8}{\gamma^2} \frac{\chi^{(3)}}{\chi^{(2)} : \chi^{(2)}} \quad (2.28)$$

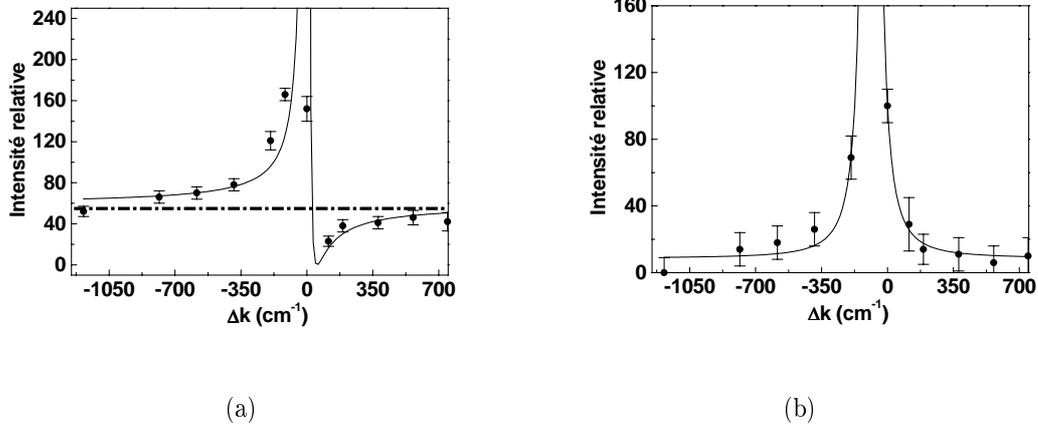


FIG. 2.14 — Evolution de l'amplitude du pic à $\omega_0 \pm 3\Delta\omega$ en fonction de Δk avec (a) et sans (b) la contribution du $\chi^{(3)}$ (trait plein : expression analytique).

Cette valeur de Δk_0 est importante car elle permet de définir les domaines de Δk dans lesquels les expressions 2.5 et 2.24 doivent être utilisées. Ainsi, si $\Delta k \ll \Delta k_0$, l'amplitude des cascades d'effets nonlinéaires d'ordre deux est prépondérante devant celle due à la nonlinéarité d'ordre trois et l'expression 2.5 s'applique. Au contraire, si $\Delta k \gg \Delta k_0$, la nonlinéarité d'ordre trois doit être prise en compte et l'expression 2.24 doit être appliquée. C'est une considération importante pour les applications qui nous intéressent. En utilisant les paramètres expérimentaux que nous avons établis, $\chi^{(2)} = 4.18 \cdot 10^{-12} m/V$ et $\chi^{(3)} = 2 \cdot 10^{-21} (m/V)^2$, nous obtenons $\Delta k_0 \sim 60 cm^{-1}$ (soit $\Delta k L \sim 3$). Cette dernière valeur de Δk_0 est très proche de celle pour laquelle dans ce cristal $\Delta k_0 L = \pi$. Il faut noter que si $\Delta k_0 L = \pi$ la variation d'indice induit par la cascade d'effet nonlinéaire en génération de second harmonique est maximum. Cette discussion souligne donc qu'a priori la nonlinéarité d'ordre trois ne peut pas être négligée dans nos conditions expérimentales.

2.1.7 Conclusion.

Nous avons démontré qu'une méthode d'auto-diffraction "spectrale" permettait une mesure simple et directe des cascades de phénomènes nonlinéaires d'ordre deux induits pendant la génération de second harmonique. Cette méthode est basée sur la mesure de l'amplitude de nouvelles composantes spectrales apparaissant dans le spectre des ondes fondamentale et harmonique. Nous avons ainsi mis en évidence expérimentalement la compétition entre les phénomènes de cascade $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ et la susceptibilité d'ordre trois intrinsèque au matériau. Des phénomènes de cascade d'ordres supérieurs clairement

identifiés ont également été observés.

Des expressions analytiques, dont le domaine de validité a été établi, nous ont permis de rendre compte de l'ensemble de nos résultats expérimentaux :

- Les résultats expérimentaux sont en très bon accord avec les expressions analytiques que nous avons établies. Nos expériences nous ont permis par exemple de mesurer les coefficients d_{eff} et $\chi^{(3)}$ d'un cristal de BBO. Pour cela deux mesures successives ont été nécessaires. La première consiste à déterminer le coefficient d_{eff} en mesurant le spectre de l'onde harmonique à $\Delta k = 0$. Connaissant la valeur de d_{eff} , la mesure du spectre de l'onde fondamentale à $|\Delta k| > 0$ permet de déterminer le coefficient nonlinéaire d'ordre trois. Ces mesures pourraient facilement être étendues à d'autres types de cristaux.
- L'analyse pour $\Delta k = 0$ et $|\Delta k| \gg 0$ a permis de mettre en avant l'influence non négligeable de la nonlinéarité d'ordre trois. A $\Delta k = 0$, la contribution due aux effets de cascade est prépondérante. Le paramétrage des courbes en fonction de Δk nous a permis de proposer un domaine de Δk dans lequel la contribution des effets de cascade domine.

Les conséquences pour nos applications sont claires. La valeur Δk_0 permet de définir une zone de compensation, dans laquelle seuls les effets de cascade de phénomènes nonlinéaires d'ordre deux doivent être pris en compte.

2.2 Mesure de l'intégrale B induit par effet de cascade par auto-diffraction spatiale.

Nous venons de démontrer que les phénomènes associés à la cascade d'effets non linéaire d'ordre deux pouvaient être mis en évidence à l'aide d'une expérience d'auto-diffraction spectrale. Il existe une analogie directe avec l'auto-diffraction spatiale. Si deux fréquences décalées spectralement génèrent par effet nonlinéaire de nouvelles composantes spectrales, on peut légitimement penser que deux fréquences spatiales différentes produisent par mélange nonlinéaire de nouvelles fréquences spatiales. Ainsi deux faisceaux non-colinéaires, ayant la même longueur d'onde λ mais centrés autour des vecteurs d'onde \vec{k}_1 et \vec{k}_2 se mélangeant dans un cristal nonlinéaire, doivent générer des faisceaux ayant pour vecteurs d'onde $2\vec{k}_1$, $\vec{k}_1 + \vec{k}_2$, $2\vec{k}_2$ à $\lambda/2$ et des faisceaux ayant pour vecteurs d'onde $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$, $2\vec{k}_1 - \vec{k}_2$ à λ . Tout se passe donc comme si les faisceaux se diffractaient mutuellement. En se basant sur cette analogie et compte tenu des résultats que nous avons précédemment présentés, il est possible d'envisager d'utiliser ce phénomène pour caractériser les cascades d'effets nonlinéaires d'ordre deux via ce processus. Cependant, on doit s'interroger sur l'intérêt d'une telle expérience. En fait

les expériences d'auto-diffraction spatiale possèdent différents avantages par rapport aux expériences d'auto-diffraction spectrale.

- Spectralement, la mesure est d'autant plus précise et sensible que le spectromètre est résolvant et possède une grande dynamique. Spatialement, les différentes fréquences sont séparées spatialement et sont généralement visibles à l'oeil. Elles sont donc facilement mesurables avec une camera CCD ou une photodiode. De fait, les expériences d'auto-diffraction dans le domaine spatial permettent de discriminer plus facilement les différents processus.
- Les mesures réalisées dans le domaine spatial offrent une autre possibilité que nous avons exploitée et que nous allons étudier en détail ci-dessous. En effet, les ondes interagissant dans le cristal, n'ont pas nécessairement besoin d'être synchronisées temporellement. Nous pouvons ainsi mesurer l'amplitude du phénomène de cascade en fonction du retard temporel entre les deux ondes interagissant dans le cristal.

Dans les paragraphes suivants, nous décrivons un montage permettant la mesure de l'amplitude des ondes diffractées spatialement à la fréquence des faisceaux harmonique et fondamental. Expérimentalement, nous avons plus spécifiquement étudié la variation de l'amplitude des ondes diffractées en fonction du désaccord de phase et de l'intensité des ondes fondamentales.

2.2.1 Principes de base de l'auto-diffraction spatiale.

Cette expérience nécessite une onde pompe et une onde sonde centrée à la même fréquence ω mais ayant deux vecteurs d'onde différents notés respectivement \vec{k}_p et \vec{k}_s . Au cours de leurs interactions dans le cristal, ces ondes produisent, via les phénomènes de sommation et de différence de fréquences entre les différents vecteurs d'ondes, de nouvelles directions spatiales aux fréquences harmonique 2ω et fondamentale ω (Fig.2.15). Ce phénomène s'explique facilement si on le décompose en plusieurs étapes. Lors d'une première étape, via la sommation de fréquences, trois ondes dans les directions $2\vec{k}_p$, $2\vec{k}_s$ et $\vec{k}_p + \vec{k}_s$ (Fig. 2.15) sont créées pour l'onde harmonique. Dans une deuxième étape, ces faisceaux harmoniques se couplent par différence de fréquences et génèrent de nouveaux vecteurs d'onde dont la fréquence centrale est la fréquence de l'onde fondamentale. Ainsi, la différence de fréquence entre l'onde harmonique générée dans la direction $\vec{k}_p + \vec{k}_s$ et l'onde pompe \vec{k}_p crée une onde dans la direction de l'onde sonde. Cette onde est rayonnée par la polarisation nonlinéaire résultant du couplage entre les ondes harmonique et fondamentale. Cette polarisation s'écrit :

$$\begin{aligned} \vec{P}^{cross}(\vec{k}_s) &= 2\chi^{(2)}(\vec{k}_s, \vec{k}_p + \vec{k}_s, -\vec{k}_p)E_{2\omega}(\vec{k}_p + \vec{k}_s)E_{\omega}^*(\vec{k}_p) \\ &= 2\chi^{(2)}(\vec{k}_s, \vec{k}_p + \vec{k}_s, -\vec{k}_p) : \chi^{(2)}(\vec{k}_p + \vec{k}_s, \vec{k}_s, \vec{k}_p)E_{\omega}(\vec{k}_s) | E_{\omega}(\vec{k}_p) |^2 \end{aligned} \quad (2.29)$$

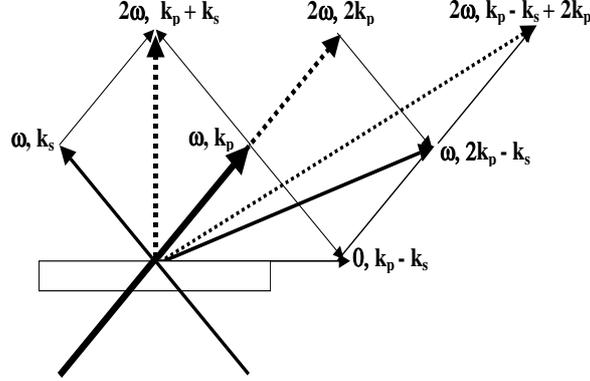


FIG. 2.15 — Schéma de principe pour la création de nouvelles fréquences spatiales à partir de processus $\chi^{(2)}$.

Comme l'indique l'expression précédente, cette polarisation résulte d'une cascade de processus nonlinéaires d'ordre deux. Cette polarisation a une expression très similaire à celle produite par un phénomène nonlinéaire d'ordre trois. Par analogie, on peut donc définir une susceptibilité nonlinéaire effective :

$$\chi_{cross}^{(3)} \sim 2\chi^{(2)}(\vec{k}_s, \vec{k}_p + \vec{k}_s, -\vec{k}_p) : \chi^{(2)}(\vec{k}_p + \vec{k}_s, \vec{k}_s, \vec{k}_p) \quad (2.30)$$

Cette polarisation module la phase de l'onde sonde. On parle généralement de modulation de phase croisée entre le faisceau pompe et le faisceau sonde.

Un autre phénomène peut également produire une polarisation à la même fréquence et dans la même direction \vec{k}_s . Cette polarisation résulte du couplage de l'onde sonde avec l'onde harmonique qu'elle produit au cours sa propagation dans le cristal. Cette polarisation s'écrit :

$$\begin{aligned} \vec{P}^{auto}(k_s) &= \chi^{(2)}(k_s, 2k_s, -k_s)E_{2\omega}(2k_s)E_{\omega}^*(k_s) \\ &= \chi^{(2)}(k_s, 2k_s, -k_s) : \chi^{(2)}(2k_s, k_s, k_s)E_{\omega}(k_s) |E_{\omega}(k_s)|^2 \end{aligned} \quad (2.31)$$

Là encore, par analogie avec les phénomènes nonlinéaires d'ordre trois, on peut définir une susceptibilité nonlinéaire effective :

$$\chi_{auto}^{(3)} \sim \chi^{(2)}(\vec{k}_s, 2\vec{k}_s, -\vec{k}_s) : \chi^{(2)}(2\vec{k}_s, \vec{k}_s, \vec{k}_s) \quad (2.32)$$

On parle alors plus communément d'un phénomène d'auto-modulation de phase.

Notons qu'il est possible de différencier le phénomène auto-modulation de phase, proportionnel à l'intensité de l'onde sonde $I_s = |E_{\omega}(\vec{k}_s)|^2$, du phénomène de modulation de phase croisée, proportionnelle à l'intensité de l'onde pompe $I_p = |E_{\omega}(\vec{k}_p)|^2$.

Pour permettre cette différenciation, notre expérience pompe-sonde utilise un faisceau pompe intense et au faisceau sonde peu intense. Cette configuration privilégie la modulation de phase croisée par rapport à l'auto-modulation de phase. Notons, que dans les expressions 2.29 et 2.31, on peut remplacer $\chi_{eff}^{(3)}$ par la nonlinéarité d'ordre trois intrinsèque du milieu $\chi^{(3)}$. Les phénomènes nonlinéaires d'ordre trois nonlinéaires jouent donc également un rôle lors de ces interactions.

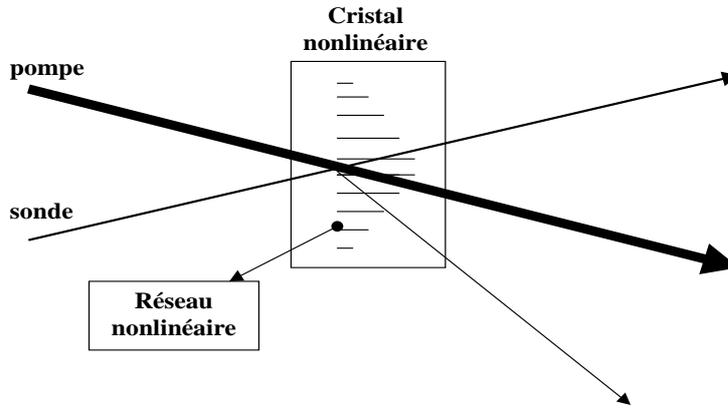


FIG. 2.16 — Réseau nonlinéaire généré par le couplage entre l'onde pompe et l'onde sonde à travers la génération de second harmonique.

Pour des intensités laser importantes et pour des raisons similaires à celles que nous avons discutées lors des expériences d'auto-diffraction spectrale, les phénomènes de cascade d'ordres supérieurs doivent apparaître. Dès lors, une multitude de nouveaux vecteurs d'ondes à la fréquence harmonique et fondamentale est créée. Dans le milieu, tout se passe comme si un réseau fin non sinusoïdal était produit. Sur ce réseau, les faisceaux harmoniques et fondamentaux sont diffractés (Fig. 2.16).

2.2.2 Dispositif expérimental.

Pour caractériser l'effet de cascade nonlinéaire d'ordre deux, nous avons utilisé le schéma expérimental présenté sur la figure 2.17. Le faisceau laser utilisé était issu d'un amplificateur régénératif et possédait les caractéristiques suivantes : $\lambda_0 = 800nm$, $f_{rep} = 1kHz$, $\tau = 120fs$ et $E = 0.5mJ$. Le spectre de l'impulsion issu de l'amplificateur avait une largeur à mi-hauteur égale à $\Delta\lambda = 8nm$. Pour réaliser nos mesures, deux cristaux de BBO, dont la longueur était respectivement de 0.5 mm et de 1 mm, ont été utilisés (annexe IV). Ces cristaux étaient taillés pour un accord de phase de type I à 800 nm. Les ondes diffractées, induites par les phénomènes de cascade, pouvaient être

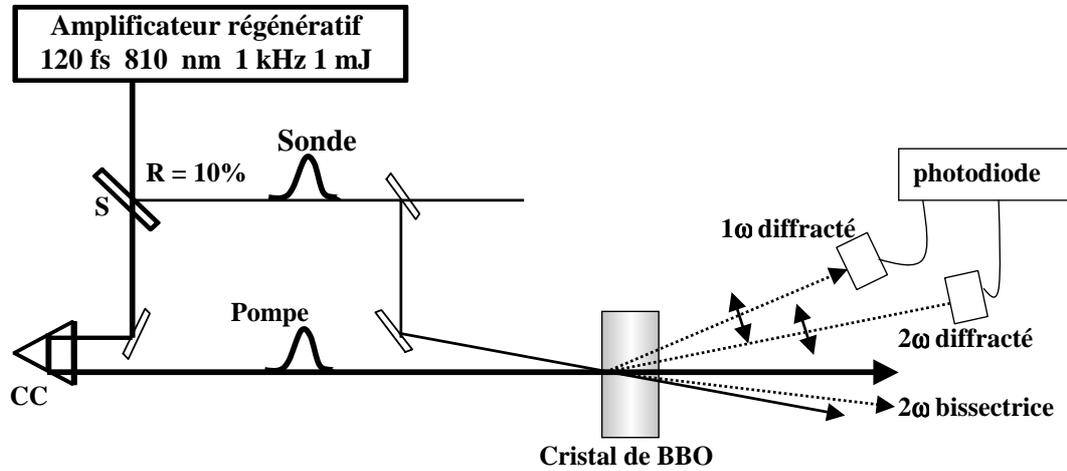


FIG. 2.17 — Schéma expérimental du dispositif d'auto-diffraction spatiale.

aisément observées en plaçant un écran derrière le cristal. Des enregistrements typiques sont présentées sur les figures 2.18 et 2.19. Pour mesurer quantitativement l'intensité respectivement à ω et 2ω , des filtres colorés ont été utilisés. Ceux-ci permettaient de mettre en évidence les nouvelles fréquences créées par effet de cascade. L'analyse de la direction des tâches lumineuses permettait de donner la combinaison de vecteurs d'onde à l'origine des ordres de diffraction mesurés. Notons également que le champ électrique associé aux différents faisceaux peut être caractérisé en amplitude et en phase. A l'aide de ce montage pompe sonde non-colinéaire, nous avons mis en évidence les phénomènes d'auto-diffraction pour l'onde fondamentale et l'onde harmonique. Ces résultats sont présentés ci-dessous.

1. Tout d'abord, nous discuterons les mesures en intensité des ondes diffractées. Ces mesures ont été faites à l'aide d'une photodiode placée derrière le cristal. Les tâches étudiées étaient focalisées sur la photodiode à l'aide d'une lentille de courte focale. Nous avons également mesuré l'évolution des intensités des ondes diffractées en fonction du retard τ entre les ondes pompe et sonde. Ce retard était ajusté via un coin de cube placé sur une platine de translation motorisée.
2. Nous avons ultérieurement, via une technique d'interférométrie spectrale, étudié la phase acquise par l'impulsion sonde au cours de sa propagation dans le cristal. Ces résultats seront présentés et discutés dans le chapitre suivant.

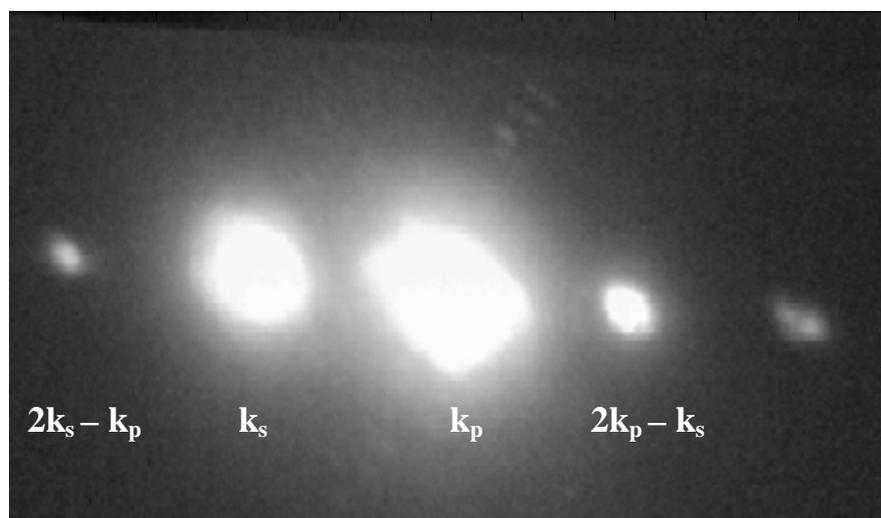


FIG. 2.18 — Observation des fréquences fondamentales diffractées.

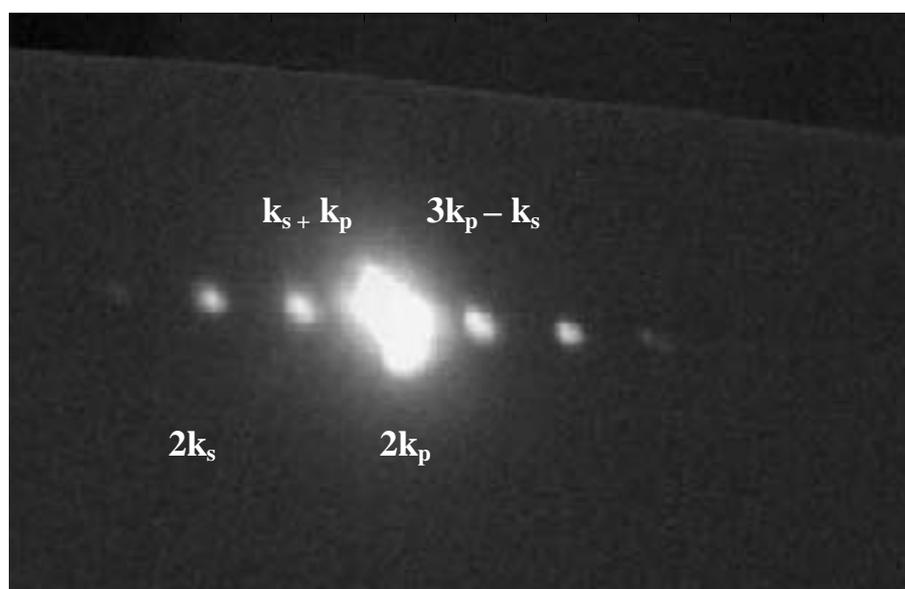


FIG. 2.19 — Observation des fréquences harmoniques diffractées.

2.2.3 Origine des tâches de diffractions mesurées.

L'analyse de la direction associée aux vecteurs d'onde des taches diffractées permet de confirmer que ces faisceaux résultent de différentes combinaisons de vecteurs

d'onde. Il existe plusieurs combinaisons possible pour générer les vecteurs d'ondes des ondes diffractées dans différentes directions et centrées respectivement aux fréquences fondamentale ω et harmonique 2ω .

- Pour la fréquence fondamentale (Fig. 2.18) les ondes le plus facilement observables sont dans les directions $2\vec{k}_p - \vec{k}_s$ et $3\vec{k}_p - 2\vec{k}_s$ et résultent du couplage des vecteurs d'onde initiaux \vec{k}_p et \vec{k}_s .
- Pour la fréquence harmonique (Fig. 2.19), Le premier ordre qui apparaît est suivant la bissectrice des deux vecteurs d'ondes \vec{k}_p et \vec{k}_s et correspond au vecteur d'onde $\vec{k}_p + \vec{k}_s$. D'autres ordres de diffraction dans les direction $3\vec{k}_p - \vec{k}_s$ et $4\vec{k}_p - 2\vec{k}_s$ apparaissent également.

L'expérience de diffraction spatiale permet d'identifier plus facilement l'origine des mécanismes donnant naissance aux phénomènes observés. Ainsi alors que dans les expériences d'auto-diffraction spectrale, il était a priori impossible d'évaluer les contributions $\chi^{(2)}$ et $\chi^{(3)}$ aux ondes générées à $2\omega_0 \pm 4\Delta\omega$ l'expérience de diffraction spectrale permet d'immédiatement évaluer le poids de chaque contribution puisqu'elles sont discriminées spatialement. Finalement, c'est un phénomène de type $\chi^{(2)}$ dans la direction $\vec{k}_p + \vec{k}_s$ et un phénomène de type $\chi^{(3)}$ pour la direction $2\vec{k}_p - \vec{k}_s$. Ainsi, nous nous attendons à ce que les dépendances des ondes diffractées en fonction de l'intensité soient différentes. De plus, la possibilité de mesurer l'amplitude de ces taches en fonction du retard entre la pompe et la sonde dans les directions de diffraction permet la mesure des traces d'auto-corrélation de différents ordres.

Mesure en fonction du retard pompe-sonde.

Dans notre schéma expérimental, la génération de second harmonique suivant la bissectrice permet très classiquement de caractériser les impulsions issues d'un amplificateur ou d'un oscillateur laser. Pour cela, on mesure pour différents retards entre l'impulsion pompe et sonde l'intensité de l'onde harmonique générée suivant la bissectrice des deux faisceaux. C'est ce qu'on appelle communément la mesure de la trace d'auto-corrélation d'une impulsion laser. L'intensité mesurée par une photodiode dans cette direction est proportionnelle à l'intégrale :

$$I^{(2)}(\tau) \propto \int I_s(t)I_p(t + \tau)dt \quad (2.33)$$

où τ est le retard entre l'impulsion pompe et l'impulsion sonde. Si la forme de l'enveloppe lentement variable des impulsions utilisées est connue, cette intégrale permet de mesurer la durée à mi-hauteur des impulsions Δt . Ainsi si l'on considère que les impulsions lasers ont une enveloppe gaussienne du type $I_{s,p}(t) = I_0 e^{-4\log(2)\left(\frac{t}{\delta t}\right)^2}$, la largeur de la trace d'auto-corrélation mesurée Δt est relié à la largeur totale à-mi-hauteur réelle δt

par la relation $\Delta^{(2)}t = \sqrt{2}\delta t$. Cette technique, d'une très grande sensibilité, a l'avantage de présenter un très bon rapport signal sur bruit de l'ordre de 10^4 . Cependant, cette technique ne permet pas facilement de déterminer avec précision la forme temporelle de l'impulsion étudiée.

Le premier ordre de diffraction à la fréquence fondamentale permet également de caractériser plus précisément, l'impulsion laser utilisée pour réaliser l'expérience. La mesure de l'intensité de cette tache en fonction du retard τ donne accès à un signal correspondant à une trace d'auto-corrélation du troisième ordre [50]. Dans les milieux centrosymétriques, il résulte d'un processus nonlinéaire de type $\chi^{(3)}$. Ainsi, dans la direction $2k_p - k_s$, l'intensité mesurée en fonction du retard pompe-sonde est de la forme

$$I^{(3)}(\tau) \propto \int I_s(t)I_p^2(t + \tau)dt \quad (2.34)$$

Là encore, si la forme de l'enveloppe lentement variable des impulsions est connue, il est possible de relier la durée de l'impulsion δt à la largeur à mi-hauteur $\Delta^{(3)}t$ de ce signal d'auto-corrélation. Ainsi, si l'on considère une forme gaussienne pour l'enveloppe de l'impulsion, la relation suivante relie les deux quantités : $\Delta^{(3)}t = \frac{\sqrt{6}}{2}\delta t$. En fait quelle que soit la forme de l'impulsion, la largeur à mi-hauteur de la trace d'auto-corrélation d'ordre trois est plus courte que celle d'une trace d'auto-corrélation d'ordre deux. L'un des intérêts de la mesure simultanée de traces d'auto-corrélation d'ordre deux et trois est qu'elle limite considérablement le choix sur la forme temporelle des impulsions lasers.

Les expériences d'auto-diffraction spectrale permettent de mesurer des traces d'auto-corrélation d'ordre supérieur. Ainsi, la mesure de l'intensité de l'onde diffractée à la fréquence harmonique en fonction du retard τ , dans la direction $3k_p - k_s$ où $k_p - k_s + 2k_p$, permet la mesure de la trace d'auto-corrélation d'ordre 4. La trace mesurée doit avoir la forme suivante :

$$I^{(4)}(\tau) \propto \int I_s(t)I_p^3(t + \tau)dt \quad (2.35)$$

La encore, si l'on considère une forme gaussienne pour l'enveloppe lentement variable de l'impulsion, la relation suivante relie la largeur à mi-hauteur de la trace d'auto-corrélation $\Delta^{(4)}t$ à la durée δt de l'impulsion : $\Delta^{(4)}t = \frac{2}{\sqrt{3}}\delta t$. De nouveau, quelle que soit la forme de l'impulsion, la largeur à mi-hauteur de la trace d'auto-corrélation d'ordre 4 est plus courte que celles des traces d'auto-corrélation d'ordre 2 et 3.

Ainsi, il apparaît clairement, que la mesure de la largeur à mi-hauteur de l'intensité des ondes diffractées en fonction du retard τ permet de confirmer la forme temporelle des impulsions laser utilisées. Ainsi si l'on mesure une trace d'auto-corrélation gaussienne avec une largeur totale à mi hauteur initiale Δt , les largeurs à mi-hauteur calcu-

lées pour les traces d'auto-corrélation d'ordre 3 et 4 sont respectivement $\Delta^{(3)} = \frac{\sqrt{3}}{2}\Delta t$ et $\Delta^{(4)} = \sqrt{\frac{2}{3}}\Delta t$. Les impulsions issues d'un amplificateur régénératif Titane-Saphir sont généralement considérées comme ayant une enveloppe gaussienne. Pour confirmer ceci, nous avons effectué ces mesures sur un cristal de BBO de longueur 1 mm. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 2.20 lorsque $\Delta k = 0$. Les largeurs to-

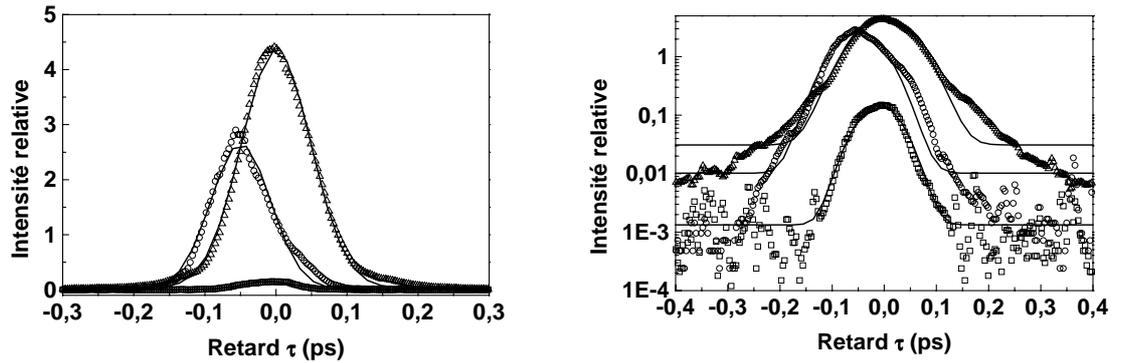


FIG. 2.20 — Trace d'auto-corrélation mesurée dans trois directions : (Δ) l'onde harmonique $I^{(2)}(\tau)$ suivant la bissectrice, (\circ) onde fondamentale diffractée $I^{(3)}(\tau)$ et (\square) onde harmonique diffractée $I^{(4)}(\tau)$.

tales à mi-hauteur mesurées sont respectivement $\Delta t_{mesure} = 97 fs$, $\Delta t_{mesure}^{(3)} = 84 fs$ et $\Delta t_{mesure}^{(4)} = 72 fs$. L'accord est très bon avec les valeurs calculées qui sont respectivement $\Delta t_{calculé}^{(3)} = 84 fs$ et $\Delta t_{calculé}^{(4)} = 79 fs$. Ces mesures valident le fait que les traces d'auto-corrélation mesurées sont en bon accord avec les expressions 2.33, 2.34, 2.35 et caractérisent effectivement les phénomènes observés.

Pour aller plus loin dans cette démonstration, nous avons aussi vérifié si la dépendance des traces d'auto-corrélation en fonction de l'intensité était correcte. Pour cela, nous avons fait varier l'intensité du faisceau pompe tout en maintenant celle du faisceau sonde fixe. La puissance moyenne du faisceau sonde était de 6 mW. La figure 2.21 montre clairement le bon accord entre les pentes mesurées et celles attendues. En échelle "log-log", les coefficients linéaires des droites représentent les puissances de l'intensité pompe. D'après les expressions 2.33, 2.34, nous retrouvons bien une évolution en puissance 1 et 2 de I_p pour les traces d'auto-corrélation d'ordre 2 et 3. Par contre, pour la trace d'auto-corrélation d'ordre 4 évoluent comme $I_p^{2.4}$ au lieu de I_p^3 . Ceci est relativement attendu pour des phénomènes nonlinéaires d'ordres élevés :

- En effet, d'une part l'amplitude de ces phénomènes reste faible et d'autre part la plage en intensité - une décade - n'est pas assez grande pour un paramétrage très significatif.
- De plus pour ces ordres d'interactions, différents phénomènes nonlinéaires peuvent interférer les uns avec les autres.

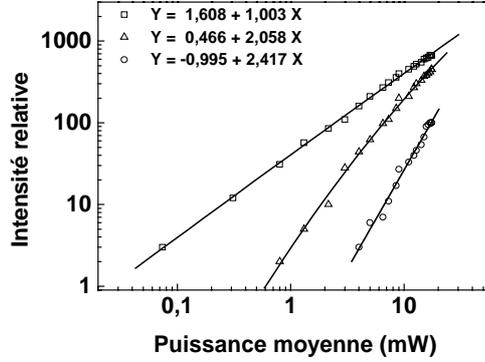


FIG. 2.21 — Maximum des traces d'auto-corrélation mesurée dans trois directions : (□) l'onde harmonique $I^{(2)}(\tau)$ suivant la bissectrice, (△) onde fondamentale diffractée $I^{(3)}(\tau)$ et (○) onde harmonique diffractée $I^{(5)}(\tau)$.

Les mesures des traces d'auto-corrélation basées sur une technique d'auto-diffraction spatiale semblent, malgré les limitations que nous venons de voir, intéressantes pour caractériser des impulsions laser. Pour aller plus loin dans notre analyse, nous avons essayé d'évaluer plus amplement les avantages et les inconvénients de cette technique. Nous avons, par exemple, cherché à mesurer l'influence de la condition d'accord de phase sur les mesures effectuées.

2.2.4 Caractérisation des ondes diffractées : auto-corrélations d'ordres supérieurs.

L'étude des ondes harmoniques et fondamentales diffractées par auto-diffraction lors de processus de cascade de phénomènes nonlinéaires d'ordre deux est intéressante au moins à deux points de vue :

1. Les rendements de diffraction sont directement reliés à l'amplitude des processus de cascade. Par exemple, l'onde fondamentale diffractée dans la direction $2\vec{k}_p - \vec{k}_s$ porte l'information sur les modifications d'amplitude et de phase induites dans le cristal par l'onde harmonique de vecteur d'onde $2\vec{k}_p$. Dans cette partie, nous nous intéressons principalement à l'étude des modifications d'intensités mesurées en fonction du désaccord de phase Δk et du retard pompe-sonde τ . Nous verrons plus loin que l'étude de la phase portée par l'onde fondamentale (méthode interférométrique) est tout aussi riche d'enseignement.
2. L'aspect non stationnaire du processus de cascade de phénomènes nonlinéaires d'ordre deux peut aussi être mis en évidence. Nous évaluerons ainsi l'influence des

interactions linéaires telles que la double réfraction ou la différence de vitesse de groupe des cristaux doubleurs uniaxes sur cet aspect du phénomène.

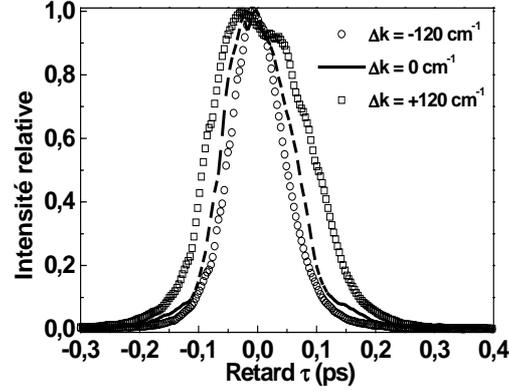


FIG. 2.22 — Trace d'auto-corrélation $I^{(2)}(\tau)$ mesurée dans la direction de la bissectrice pour $\Delta k = 120\text{cm}^{-1}$, $\Delta k = 0\text{cm}^{-1}$ et $\Delta k = -120\text{cm}^{-1}$

Expérimentalement, pour atteindre ces objectifs, nous avons enregistré les différentes traces d'auto-corrélation $I^{(2)}(\tau, \Delta k)$, $I^{(3)}(\tau, \Delta k)$, $I^{(4)}(\tau, \Delta k)$ pour différents désaccords de phase Δk .

Caractérisation de $I^{(2)}(\tau, \Delta k)$.

Comme nous avons noté auparavant, la largeur à mi-hauteur de la trace d'auto-corrélation est liée à la largeur à mi-hauteur de l'impulsion laser. Pour $\Delta k = 0$, cette largeur à mi hauteur de l'impulsion laser (en pointillés sur la figure 2.22) est égale à 113 fs. La forme de la trace d'auto-corrélation est, sur une échelle logarithmique, très proche de celle calculée pour une impulsion ayant une enveloppe temporelle gaussienne. Il est intéressant de noter sur la figure 2.22 que, lorsque l'on fait varier le désaccord de phase Δk , la largeur à mi-hauteur et la forme de la trace d'auto-corrélation évoluent. Ainsi pour $\Delta k = +120\text{cm}^{-1}$ et $\Delta k = -120\text{cm}^{-1}$, les largeurs des traces sont respectivement égales à 157 fs et à 92 fs. Ainsi, suivant que le désaccord de phase est positif ou négatif, la durée apparente des impulsions mesurées semblent s'accroître ou diminuer. Pour confirmer cette mesure, nous avons relevé plus systématiquement l'amplitude du signal à $\tau = 0$ ainsi que la largeur à mi-hauteur de la trace d'auto-corrélation pour différents désaccords de phase Δk (Fig. 2.23(a) et 2.23(b)). Bien que le signal $I_{(2\omega)}(\tau = 0)$ semble maximum pour $\Delta k = 0$, il apparaît clairement que la durée maximale de la trace d'auto-corrélation $\Delta\tau = 162\text{fs}$ apparaît pour des valeurs de Δk proche de 200cm^{-1} .

Il est important de rappeler ici que cette trace d'auto-corrélation est le produit des intensités fondamentales pompe $I_p^{(\omega)}(t + \tau)$ et sonde $I_s^{(\omega)}(t)$ à travers une suscep-

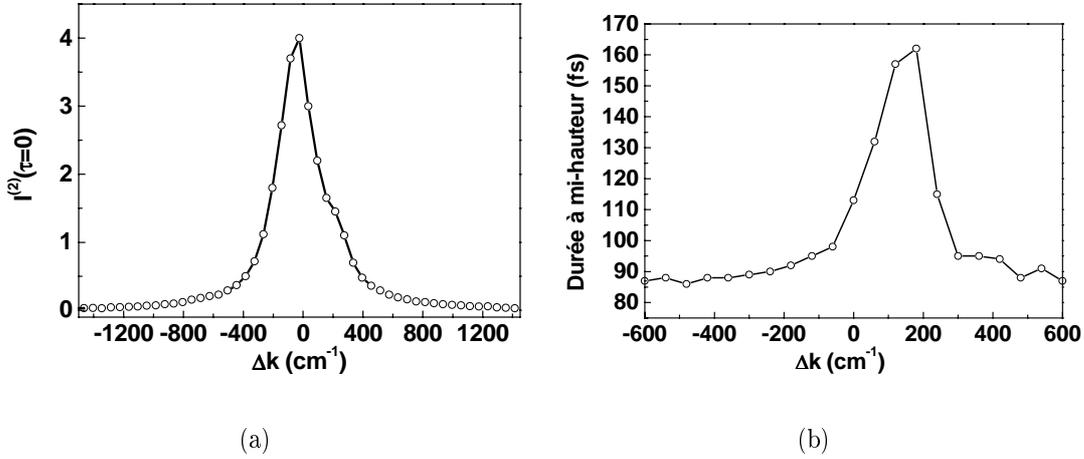


FIG. 2.23 — (a) : Evolution de l'amplitude de $I^{(2)}(\tau = 0)$ en fonction de Δk et (b) : Evolution de la durée à mi-hauteur de $I^{(2)}(\tau)$ en fonction de Δk .

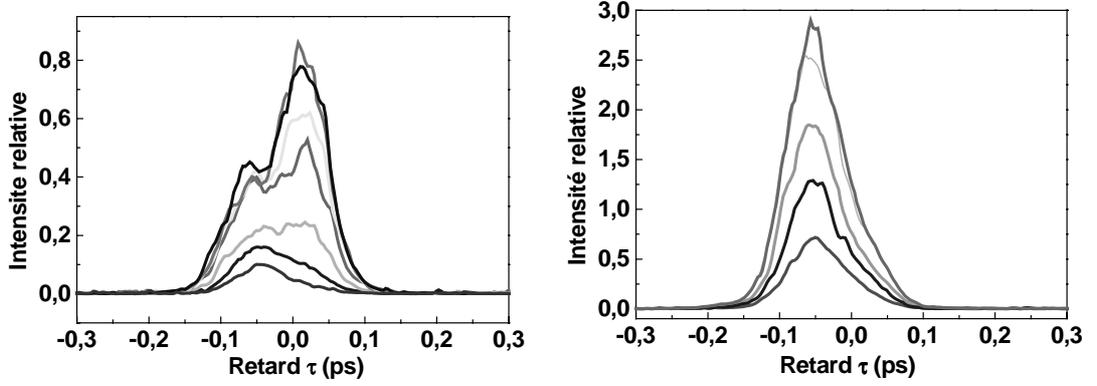
tibilité nonlinéaire d'ordre 2, $\chi^{(2)}$. Le résultat précédent semble donc indiquer qu'au cours de leur propagation dans le cristal et au voisinage de $\Delta k = 0$ la durée et l'amplitude des ondes $I_p^{(\omega)}(t)$ et $I_s^{(\omega)}(t)$ à la fréquence fondamentale ω évoluent. L'étude de la génération de second harmonique sur la bissectrice ne fournit que des informations qualitatives. Elle indique uniquement une modification de l'amplitude et de la forme de l'onde harmonique générée. On peut alors se poser la question suivante : est-il possible de caractériser le premier ordre de rétroaction de l'onde harmonique sur l'onde fondamentale en étudiant $I^{(3)}(\tau, \Delta k)$?

Retard temporel de la phase nonlinéaire : étude de $I^{(3)}(\tau, \Delta k)$.

Pour tenter de répondre à cette question, les traces d'auto-corrélation $I^{(3)}(\tau, \Delta k)$, dans la direction $2\vec{k}_p - \vec{k}_s$, ont été mesurées pour trois désaccords de phase Δk particuliers. Les résultats obtenus sont représentés en fonction du retard pompe sonde sur les figures 2.24(a), 2.24(b) et 2.24(c). Pour chaque vecteur d'onde, les courbes ont été enregistrées pour différentes énergies de l'onde pompe.

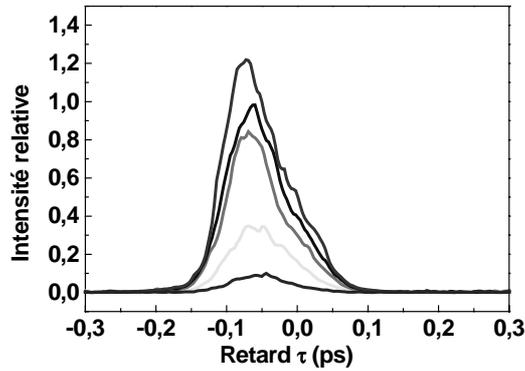
Lorsque $\Delta k \neq 0$, sur les figures 2.24(b) et 2.24(c), on note que les traces d'auto-corrélation gardent leur forme gaussienne et sont toutes décalées par rapport à $\tau = 0$. Nous avons choisi d'étudier plus particulièrement $I^{(3)}(\tau)$ pour le désaccord de phase $\Delta k \sim 180 \text{ cm}^{-1}$ car il correspond au maximum d'intensité de la tache diffractée. Pour ce désaccord de phase, $I^{(3)}(\tau)$ est centré autour de $\tau = 50 \text{ fs}$ et a une largeur à mi-hauteur égale à 83 fs. Ces mesures confirment le comportement déjà observé sur la trace d'auto-corrélation d'ordre deux $I^{(2)}(\tau, \Delta k)$.

- L'élargissement de la trace d'auto-corrélation $I^{(2)}(\tau)$ ou l'apparition d'un maxi-



(a) $\Delta k = 0 \text{ cm}^{-1}$.

(b) $\Delta k = 180 \text{ cm}^{-1}$.



(c) $\Delta k = 300 \text{ cm}^{-1}$.

FIG. 2.24 — Evolution des traces d'auto-corrélation $I^{(3)}(\tau, \Delta k)$ en fonction de l'intensité pompe pour trois Δk différents.

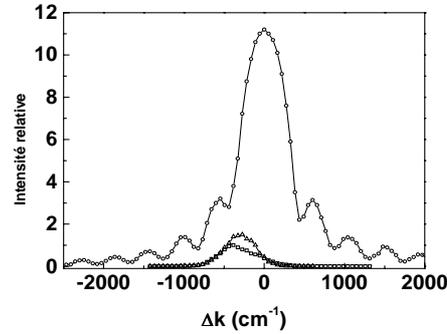
mum d'intensité de $I^{(3)}(\tau)$ à $\tau \neq 0$ traduisent la même information. En fait, l'efficacité de diffraction est directement associée à l'amplitude de la phase accumulée par effet de cascade. Ainsi, la forte variation de largeur à mi-hauteur de $I^{(2)}(\tau)$ et le maximum d'amplitude de $I^{(3)}(\tau)$ à $\tau \neq 0$ doivent apparaître autour de la même valeur de Δk . Pour ce désaccord de phase particulier, les ondes pompe et sonde à la fréquence fondamentale subissent une modulation de phase importante lors de leur propagation. Dans les expériences d'auto-corrélation, cette modulation de phase va induire un élargissement ou une compression des impulsions. Dans le cas d'une compression, la puissance crête des impulsions est accrue et l'efficacité de diffraction du réseau non linéaire induit dans le cristal est plus grande. On a donc une indication sur le signe et l'amplitude de l'intégrale B induite dans le cristal.

– Une autre information tout aussi intéressante concernant la réponse temporelle

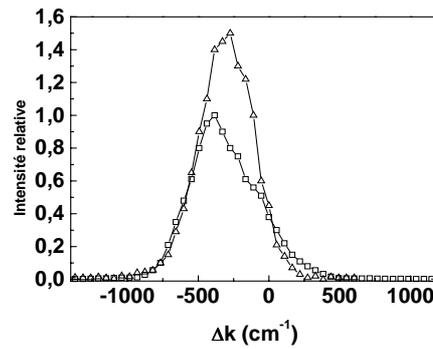
de l'effet de cascade peut être obtenue via la mesure de la trace d'auto-corrélation d'ordre trois $I^{(3)}(\tau)$ qui présente une caractéristique importante. Le décalage de 50 fs mesuré sur la trace d'auto-corrélation traduit l'aspect non-instantané de la réponse du milieu. Contrairement à la variation d'indice induite par effet Kerr, la variation d'indice induit par effet de cascade n'est pas maximale à l'instant où l'onde fondamentale atteint sa valeur maximale. Cet aspect non-instantané de la variation d'indice induit par effet de cascade a été pris en compte pour décrire la compression d'impulsion observé dans des oscillateurs paramétriques femtosecondes [44]. Cependant les expériences mettant en évidence ce phénomène sont à notre connaissance peu nombreuses [21]. Hache *et al.* [44] ont quantifié numériquement pour des impulsions lasers d'une durée 100 fs, le décalage temporel entre le maximum de l'impulsion laser et le maximum de l'indice nonlinéaire induit par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux dans un cristal de BBO de 1 mm. Ce décalage est de l'ordre de 50 fs. Nous apportons ici une évidence expérimentale de ce phénomène. En effet, les traces d'auto-corrélation sont décalées de 50 fs. Ceci traduit le retard temporel associé à l'effet de cascade sur la tâche diffractée : la diffraction n'est maximale que quand le changement d'indice est maximal. L'origine physique du phénomène est la suivante. Lors de sa propagation dans le cristal, le faisceau pompe $I_p(\omega, k_p, t)$ à la fréquence fondamentale génère une onde harmonique $I_p(2\omega, 2k_p, t)$ dont la vitesse de propagation est différente de celle de l'onde fondamentale. Lors du phénomène de rétroaction qui correspond au couplage entre les ondes $I_p(2\omega, 2k_p, t)$ et $I_s(\omega, k_s, t)$, la variation d'indice est maximum lorsque le produit de l'intensité des ondes fondamentale et harmonique est maximum. A cause de la différence de vitesse de groupe entre les impulsions pompe et harmonique, ce maximum n'est pas atteint quand l'impulsion fondamentale $I_p(\omega, k_p, t)$ passe par son maximum. Notons que le décalage temporel mesuré correspond à une valeur moyenne car la variation d'indice est accumulée sur toute la longueur du cristal. Ainsi, à l'entrée du cristal, le décalage est négligeable et il s'accroît au fur et à mesure que l'impulsion fondamentale se propage dans le cristal [44].

Lorsque $\Delta k = 0$, les traces d'auto-corrélation de $I^{(3)}(\tau)$ évoluent en fonction de l'intensité. A basse intensité, elles gardent une forme gaussienne dont la largeur à mi-hauteur est de 76 fs et elles sont centrées autour de $\tau_{max} = 40$ fs. Ensuite, lorsque l'intensité du faisceau pompe augmente, les traces se déforment et un pic centré à $\tau = 0$ se développe. Nous n'avons pas d'explications physiques simples de ce phénomène.

Le retard temporel mesuré sur le maximum de la trace d'auto-corrélation $I^{(3)}(\tau, \Delta k)$ trouve son analogie dans le domaine spatial. En effet, l'analogie spatiale de la différence de vitesse de groupe est la double réfraction. Ainsi, de la même manière que les faisceaux



(a)



(b)

FIG. 2.25 — Evolution de $I^{(2)}(\tau, \Delta k)$ (o), $I^{(3)}(\tau, \Delta k)$ (Δ) et $I^{(4)}(\tau, \Delta k)$ (\square) en fonction de Δk . (b) Zoom sur les courbes $I^{(3)}(\tau, \Delta k)$ (Δ) et $I^{(4)}(\tau, \Delta k)$ (\square).

harmonique et fondamentale se séparent temporellement, ils se séparent également spatialement. La mesure de ce décalage est observable sur l'évolution de l'amplitude de l'onde diffractée en fonction de Δk . Pour un cristal de BBO de longueur $L=0.5 \mu m$, nous avons fait varier continûment le désaccord de phase pour chaque onde diffractée (Fig. 2.25(a) et 2.25(b)).

Il apparaît clairement que le maximum de l'amplitude diffractée en fonction de Δk est différent de celui de la bissectrice. La mesure de ce décalage donne $\Delta k^{I_3} = 273 cm^{-1}$.

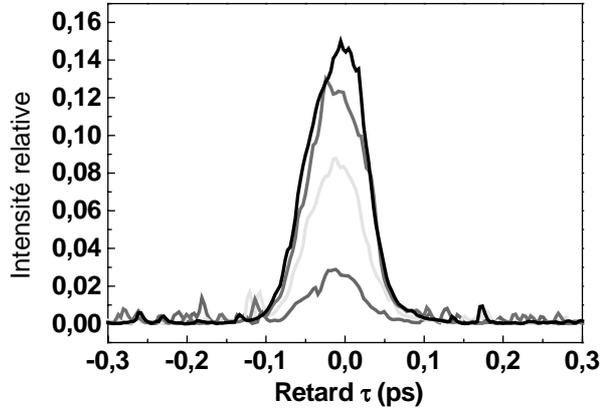


FIG. 2.26 — $I^{(4)}(\tau, \Delta k = 0)$.

Caractérisation de $I^{(4)}(\tau, \Delta k)$

Nous avons également analysé la trace d'auto-corrélation d'ordre supérieur associée à $I^{(4)}(\tau, \Delta k)$. Cette trace est centrée à la fréquence harmonique. Elle peut également être induite par un phénomène nonlinéaire d'ordre 4. Dans notre cas particulier elle résulte de la cascade de trois processus nonlinéaires d'ordre deux que nous noterons $\chi^{(2)} : \chi^{(2)} : \chi^{(2)}$. L'observation de cette trace est donc une évidence expérimentale d'une cascade de phénomènes nonlinéaires d'ordre supérieur. Ces phénomènes fortement nonlinéaires sont très sensibles aux puissances crêtes des impulsions laser utilisées et ont des efficacités relativement faibles. Par conséquent, une faible variation du désaccord de phase Δk autour du maximum d'efficacité de diffraction se traduit par une forte variation de l'amplitude de la trace d'auto-corrélation. Malgré ces contraintes, nous avons pu enregistrer les traces d'auto-corrélation à $\Delta k = 0$ pour différentes valeurs de l'intensité pompe $I_p(\omega, k_p)$. Celles-ci sont présentées sur la figure 2.26. Lorsque $\Delta k = 0$, les traces d'auto-corrélation sont gaussiennes et sont centrées en $\tau = 0$. La largeur à mi-hauteur des traces est égale à 72 fs.

2.2.5 Conclusion.

Les études présentées dans ce chapitre ont été motivées par la nécessité de mieux appréhender la phase nonlinéaire acquise par effet de cascade. L'objectif principal est de contrôler la phase nonlinéaire acquise en fonction de la génération de second harmonique pour compenser les effets de type Kerr. Les expériences d'auto-diffraction, spatiales et temporelles, que nous avons menées nous ont permis de mesurer l'amplitude de ces phénomènes de cascade en utilisant des impulsions issues d'un amplificateur régénératif Titane-Saphir. Les fortes intensités crêtes de ces impulsions nous ont permis de réaliser cette étude dans des conditions très confortables par rapport aux travaux

réalisés précédemment dans le domaine [39], [40].

L'observation des cascades de phénomènes nonlinéaires d'ordre deux par des expériences d'auto-diffraction nous a apporté beaucoup d'enseignements. L'auto-diffraction dans le domaine spectral permet de mettre aisément en évidence les phénomènes de cascade. L'une des conclusions importantes de cette expérience est que nous ne pourrions pas, a priori, négliger les phénomènes $\chi^{(3)}$ intrinsèques au milieu. L'auto-diffraction spatiale offre de plus grandes possibilités. Celles-ci n'ont pas été complètement exploitées. Elles ont cependant permis de démontrer pour la première fois expérimentalement l'aspect non-instantané de la variation d'indice associée à l'effet de cascade.

Les expériences que nous venons de présenter peuvent être appliquées à la caractérisation d'impulsions laser. Nous avons souligné quelques problèmes qui peuvent apparaître dans certaines conditions expérimentales. Notons que ces techniques sont très proches de la technique F.R.O.G. [50] largement utilisée pour la caractérisation des impulsions courtes lasers.

CHAPITRE

3

Caractérisation de la nonlinéarité induite durant la génération de second harmonique d'impulsions femtosecondes par des mesures de phase.

En route vers la compensation de l'intégrale B...

Ce chapitre achève la caractérisation de la phase par une cascade d'effets nonlinéaires en présence de génération de second harmonique.

Les expériences d'auto-diffraction nous ont permis de mesurer l'amplitude de ces phénomènes de cascade. La méthode de caractérisation, présentée dans le chapitre précédent, consistait à mesurer des variations relatives d'intensité induites par les processus de cascade $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$. Dans ces mesures, les formes temporelles et spatiales des impulsions ne jouent qu'un rôle mineur car les mesures sont le résultat d'une intégration sur le temps et sur l'espace. Même si les comportements nouveaux que nous avons observé offrent des perspectives intéressantes (caractérisation d'impulsions, propagation solitonique, etc...), ces mesures ne permettent pas un réel dimensionnement d'un dispositif de compensation de l'intégrale B d'une chaîne laser de puissance. En fait, l'utilisation d'impulsions femtosecondes à spectre large impose une description plus complète de la phase nonlinéaire accumulée par les ondes lors de leur propagation dans le cristal. Les diverses questions auxquelles nous ne pouvons pas complètement répondre avec les

mesures d'auto-diffraction sont en particulier les suivantes :

1. Quelle est la forme de la phase temporelle induite par effet de cascade ?
2. La modification de phase est-elle homogène en espace et en temps ?
3. Quelle est l'influence des effets linéaires (différence de vitesse de groupe, double réfraction) sur l'efficacité de la modification de phase ?
4. Quelle est la perte d'énergie induite par les phénomènes de cascade ?

Nous verrons que les mesures de phase que nous présentons ci-dessous permettent d'apporter une réponse à presque toutes ces questions. Le schéma expérimental utilisé pour mesurer quantitativement la phase nonlinéaire $\Phi^{GSH}(\vec{r}, t)$ induite par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux est basé sur un dispositif pompe-sonde non-colinéaire que nous avons présenté dans les expériences d'auto-diffraction spatiale. Dans ce dispositif, une onde pompe intense modifie la phase d'une onde sonde se propageant dans le cristal. A la sortie du cristal, la phase spatiale et temporelle de l'onde sonde est mesurée. Cette mesure donne accès à la quantité $\Phi^{GSH}(x, y, t)$. Ces mesures nous permettront de dimensionner réellement un dispositif expérimental de compensation de l'intégrale B. Un tel dispositif sera par la suite utilisé à la sortie d'un amplificateur régénératif pour la compensation de l'intégrale B induite dans un morceau de verre.

Le principe de notre étude repose sur le fait que nous pouvons, en première approximation, découpler les phénomènes spatiaux et temporels. Dans le cadre de cette approximation, nous montrerons que les mesures que nous avons effectuées indiquent qu'une analogie entre les deux domaines existe.

- Dans le domaine spatial, la modification de la phase spatiale de l'onde se propageant dans le cristal sera mesurée à l'aide d'un analyseur de surface d'onde. Cette étude montre que cet outil permet une mesure absolue de la phase spatiale $\Phi(x, y) \sim n_2^{GSH} I(x, y)$ de l'onde se propageant dans le cristal. La déformation du front d'onde est produite par la lentille nonlinéaire induite dans le milieu par le processus de cascade. Nous montrerons que les caractéristiques de celle-ci sont analogues à celle produite par un effet Kerr associé à une susceptibilité nonlinéaire d'ordre trois. La lentille spatiale induite par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux a été mesurée en fonction de deux paramètres expérimentaux fondamentaux pour nos applications, le désaccord de phase Δk et l'intensité de l'onde pompe I_p .
- Mais avant cela, dans le domaine spectral, nous avons utilisé une technique interférométrique pour mesurer la modification de la phase spectrale d'une onde sonde se propageant dans un cristal nonlinéaire. Cette modification a également été mesurée en fonction du désaccord de phase Δk et de l'intensité de l'onde pompe I_p . Cette dernière mesure confirmera qu'une analogie existe entre le domaine tempo-

rel et le domaine spatial. Nous montrerons que l'équivalent de la lentille spatiale induite par cascade d'effets nonlinéaires est une lentille "temporelle".

Ces mesures de phase nous permettront de quantifier les différents ordres de compensation de la phase spatiale et temporelle. Nous mettrons ainsi en lumière la possibilité de compenser une nonlinéarité de type Kerr $\chi^{(3)}$ par des cascades de nonlinéarités d'ordre deux $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$. Finalement, afin de définir les cristaux les mieux adaptés à une compensation efficace de l'intégrale B, nous avons également mené une étude permettant de définir les performances respectives des cristaux doubleurs de KDP et de BBO.

Avant de débiter la présentation de cette étude, il est important de noter qu'à notre connaissance au début de ce travail, peu de mesures de la variation de la phase spatiale et spectrale induite par une cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux n'avait été effectuée¹. Nous verrons que de telles mesures sont importantes pour la suite de notre travail. Premièrement d'un point de vue pratique, nous avons pu définir tous les éléments importants pour dimensionner un système compensateur. Deuxièmement, d'un point de vue plus fondamental, des résultats originaux ont été obtenus. Nous verrons en particulier que notre travail, permet de mieux décrire et comprendre le comportement spectral et spatial de la phase autour de $\Delta k \sim 0$. Ces résultats ouvrent des perspectives pour la manipulation de la phase d'impulsions courtes. Une autre ouverture importante de cette étude se situe dans la caractérisation spatio-temporelle des phénomènes nonlinéaires.

3.1 Caractérisation de la phase spectrale induite par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux.

L'amplitude de la mesure de la variation d'indice a été souvent réalisée par la méthode du Z-scan. Cette méthode a permis les premières mises en évidence de l'effet [39], [44]. Elle a souvent été employée pour sa facilité de mise en oeuvre. Toutefois pour notre application, nous devons mettre en place une mesure de phase précise adaptée aux faisceaux laser issus d'une chaîne de puissance. Mais, pour des impulsions de quelques centaines de femtosecondes, l'enregistrement de la phase temporelle de l'impulsion laser est délicate à réaliser. Pour éviter cette difficulté, nous avons décidé de mesurer la phase de l'impulsion dans le domaine spectral. Pour cela, nous avons choisi d'utiliser une technique d'interférométrie spectrale. Même si, comme nous le verrons, cette mesure est une mesure différentielle, elle permet une analyse quantitative précise ($< 50\text{mrad}$) de la phase spectrale acquise par l'impulsion laser en présence de génération de second

¹Notons tout de même la mesure du comportement temporel des effets de cascade à travers une technique Z-scan dérivée d'une expérience pompe-sonde [21].

harmonique.

Nous nous attacherons maintenant à la description de cette technique d'interférométrie spectrale. La modification de la phase temporelle ou spectrale d'une impulsion est à l'origine des applications les plus remarquables de la cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux (compression d'impulsion [24], blocage de mode [25], soliton [26] etc...). Malgré ces applications remarquables, aucune mesure directe de la phase temporelle ou spectrale des impulsions laser modifiée par ce processus n'a été réalisée à notre connaissance. Nous montrons ici, que la mesure de cette phase est riche d'enseignements et ouvre des perspectives intéressantes pour les impulsions ultracourtes. Ici, nous nous intéressons non seulement à l'amplitude de l'effet induit par le processus de cascade mais aussi à sa dynamique.

La mesure de cette phase spectrale a également été réalisée dans le cadre d'expériences pompe-sonde. Le dispositif expérimental est le même que celui décrit lors de l'étude de l'auto-diffraction spatiale d'impulsions laser lors de cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux. La principale différence concerne la méthode de détection associée à la technique d'interférométrie spectrale.

Notre étude de la nonlinéarité n_2^{GSH} induite par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux a été réalisée en fonction de deux paramètres : l'intensité du faisceau pompe et du désaccord de phase Δk . A l'aide de cette technique, nous avons également mené une étude comparative entre les cristaux de BBO et de KDP.

Dans un premier temps, nous rappellerons le principe de la mesure d'interférométrie spectrale. Ceci nous amènera alors à une description analytique plus précise des spectres enregistrés. L'étude des interférogrammes nous permettra alors de reconstruire le spectre et la phase spectrale de l'impulsion sonde. Nous verrons alors que les résultats expérimentaux sont correctement décrits. Ces expériences nous ont permis de mettre en évidence et de caractériser l'indice nonlinéaire induit par le faisceau pompe et subi par un faisceau sonde en présence de génération de second harmonique.

3.1.1 Comment une phase nonlinéaire temporelle peut-elle être mesurée par interférométrie spectrale ?

Principe d'interférométrie spectrale.

Dans le domaine spatial, les modifications de phase sont souvent mesurées par des méthodes interférométriques [27]. Pour cela, le faisceau est divisé en deux faisceaux décalés spatialement (interféromètre de Michelson par exemple). Dans le plan d'observation où a lieu l'interférence, l'intensité mesurée est modulée. Si le chemin optique de

l'un des bras est modifié, les franges sont alors déformées. Ainsi, l'étude de cette déformation permet de remonter à la différence de phase entre les deux bras interférant. Le

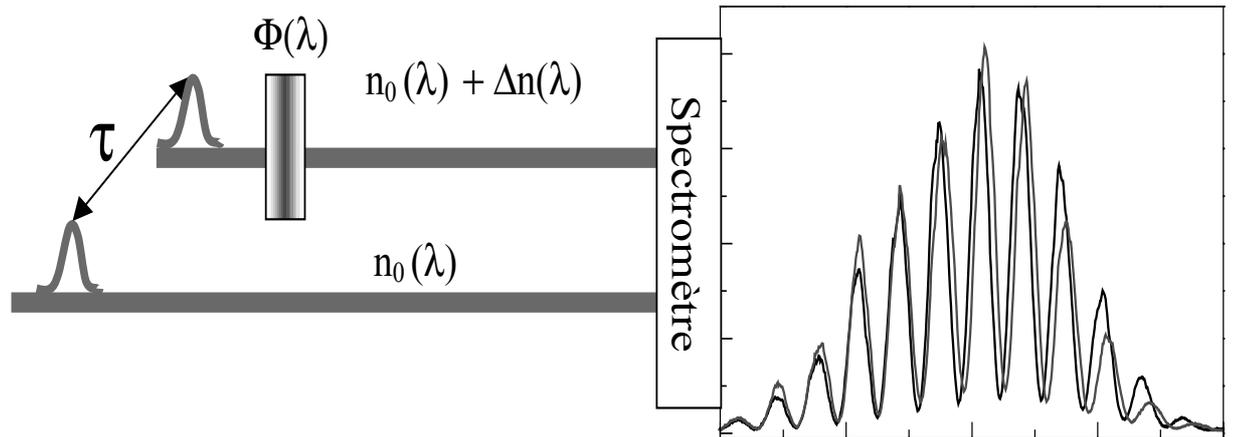


FIG. 3.1 — Schéma de principe d'une expérience d'interférométrie spectrale. La modification du chemin optique par le milieu induit un décalage de frange.

principe de l'interférométrie spectrale est similaire (Fig. 3.1). Pour mesurer la différence de phase spectrale entre deux impulsions femtosecondes, elles sont décalées temporellement et interfèrent à l'aide d'un spectromètre. Le réseau du spectromètre qui induit le recouvrement spatial des composantes spectrales permet d'enregistrer le spectre à l'aide d'une caméra CCD placée à la sortie du spectromètre. Le signal enregistré est le battement spectral entre les deux impulsions incidentes et se traduit par un spectre modulé, appelé interférogramme. Comme dans le domaine spatial, une modification du chemin optique de l'un des bras se traduit par une déformation des franges enregistrées à la sortie du spectromètre. Dans notre cas, le chemin optique pour chaque longueur d'onde est modifié par l'intermédiaire d'un changement d'indice nonlinéaire $\Delta n(\lambda)$. Le décalage des franges de l'interférogramme induit par un effet nonlinéaire de type Kerr ou par effet cascade peut ainsi être mesuré. Pour avoir une mesure quantitative de la phase apportée par ces effets, une analyse de Fourier plus complète permet de reconstruire la différence de phase entre les deux impulsions incidentes sur le spectromètre [28], [29], [30].

Nous avons mis en oeuvre cette technique dans le but de caractériser la phase spectrale acquise dans un milieu nonlinéaire en présence de l'effet de cascade lors de la génération de second harmonique. Avant de présenter les résultats expérimentaux, nous pouvons décrire les signaux enregistrés par le spectromètre à partir d'une phase nonlinéaire temporelle induite par un faisceau pompe sur un faisceau sonde.

Description des interférogrammes en présence d'une phase nonlinéaire temporelle $\Phi^{NL}(t)$.

Nous utiliserons des impulsions femtosecondes dont le champ électrique s'écrit :

$$E(t) = E^0 S(t) e^{i\omega_0 t} \quad (3.1)$$

$S(t)$, ω_0 et E_0 sont respectivement la forme temporelle lentement variable normalisée, la pulsation centrale et l'amplitude du champ électrique de l'impulsion laser. Deux répliques de l'impulsion sont créées : l'impulsion $E_{phase}(t)$ qui porte la phase nonlinéaire $\Phi^{NL}(t)$ à caractériser et une impulsion de référence $E_{ref}(t + \tau)$ décalée temporellement d'une durée τ . Ces deux impulsions, qui ont initialement une phase nulle sont caractérisées mathématiquement par les expressions suivantes :

$$E_{phase}(t) = E_{phase}^0 S(t) e^{i\Phi^{NL}(t)} e^{i\omega_0(t)} \quad (3.2)$$

$$E_{ref}(t + \tau) = E_{ref}^0 S(t + \tau) e^{i\omega_0(t+\tau)} \quad (3.3)$$

La modification de phase apportée sur l'impulsion femtoseconde à $\tau = 0$ est proportionnelle à la forme temporelle de l'enveloppe lentement variable de l'intensité :

$$\Phi^{NL}(t) = BI(t) = BS(t)^2 \quad (3.4)$$

Notons que la forme choisie pour la phase nonlinéaire peut être assimilée à une phase acquise lors d'un changement d'indice nonlinéaire n_2 induit par une nonlinéarité du type Kerr ($B = \frac{2\pi}{\lambda} n_2^{Kerr} |E_0|^2 L$) ou associé à une cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux ($B = \frac{2\pi}{\lambda} n_2^{GSH} |E_0|^2 L$). Dans notre expérience, nous cherchons principalement à remonter à la valeur de B , l'amplitude de la phase nonlinéaire induite dans le domaine temporel. Cependant, nous mesurons la phase spectrale induite.

Alors, comment justifier cette mesure dans le domaine spectral ? Nous verrons plus loin que la forme spectrale est plus intuitive pour comprendre et décrire l'évolution temporelle de la phase induite par effet de cascade. Pour calculer la modification de la phase spectrale de l'impulsion laser, nous écrivons la densité spectrale enregistrée par le spectromètre de la façon suivante :

$$S(\Delta\omega) = \left| \int [E_{ref}(t + \tau) + E_{phase}(t)] e^{i\omega t} d\omega \right|^2 \quad (3.5)$$

En développant cette expression, nous obtenons :

$$S(\Delta\omega) = \left| \tilde{S}_{ref}(\Delta\omega) e^{i\omega_0\tau} + \int E_{phase}^0 S(t) e^{i\Phi^{NL}(t)} e^{i\omega t} d\omega \right|^2 \quad (3.6)$$

où $\Delta\omega = \omega - \omega_0$ et $\tilde{S}_{ref}(\Delta\omega)$ est la transformée de Fourier² du champ de référence $E_{ref}(t)$. Pour aller plus loin dans le calcul, nous devons développer la phase nonlinéaire $\Phi^{NL}(t)$ de la façon suivante :

$$e^{i\Phi^{NL}(t)} = e^{iBS(t)^2} \sim 1 + iBS(t)^2 \quad (3.7)$$

Ce développement n'est valable que pour des phases dont l'amplitude est inférieure ou de l'ordre de quelques centaines de mrad. Dans cette situation, la densité spectrale devient :

$$S(\Delta\omega) = \left| \tilde{S}_{ref}(\Delta\omega)e^{i\omega_0\tau} + \tilde{S}_{phase}(\Delta\omega) + i\tilde{\Phi}(\Delta\omega) \right|^2 \quad (3.8)$$

avec $\tilde{\Phi}(\Delta\omega) = B \int S(t)^3 e^{i\Delta\omega t}$. Notons encore une fois que la phase induite par effet de cascade est une phase nonlinéaire temporelle. Ici, $\tilde{\Phi}(\Delta\omega)$ est une phase spectrale "effective". Son amplitude est directement reliée à l'amplitude de la phase temporelle B. Elle indique précisément l'influence de l'effet de cascade pour chaque composante ω du spectre de l'onde optique.

cas où $B = 0$: dans ce cas, $\tilde{\Phi}(\Delta\omega) = 0$. Dans ce cas, nous retrouvons simplement l'expression classique décrivant les signaux d'interférométrie spectral. Le spectre mesuré sur le spectromètre est modulé avec une fréquence dont la valeur est inversement proportionnelle au retard τ entre les deux impulsions.

$$\begin{aligned} S(\Delta\omega) &= \left| \tilde{S}_{ref}(\Delta\omega)e^{i\omega_0\tau} + \tilde{S}_{phase}(\Delta\omega) \right|^2 \\ &= \left| \tilde{S}_{ref}(\Delta\omega) \right|^2 + \left| \tilde{S}_{phase}(\Delta\omega) \right|^2 + 2\tilde{S}_{ref}(\Delta\omega)\tilde{S}_{phase}(\Delta\omega) \cos(\Delta\omega\tau) \end{aligned} \quad (3.9)$$

Le nombre de franges N_f enregistré est une fonction de la largeur spectrale de ces impulsions $\Delta\omega$ et du retard τ entre les impulsions lasers. Nous avons ainsi :

$$N_f = \frac{\Delta\omega\tau}{2\pi} \quad (3.10)$$

cas où $B \neq 0$: Ce cas permet de décrire l'influence de la phase temporelle sur les interférogrammes. Dans ce cas, nous pouvons décrire les modifications spectrales apportées par la phase nonlinéaire. L'expression donnant l'interférogramme s'écrit alors :

$$\begin{aligned} S(\Delta\omega) &= \left| \tilde{S}_{ref}(\Delta\omega)e^{i\omega_0\tau} + \tilde{S}_{phase}(\Delta\omega) + i\tilde{\Phi}(\Delta\omega) \right|^2 \\ &= \left| \tilde{S}_{ref}(\Delta\omega) \right|^2 + \left| \tilde{S}_{phase}(\Delta\omega) \right|^2 + 2\tilde{S}_{ref}(\Delta\omega)\tilde{S}_{phase} \cos(\Delta\omega\tau) \\ &\quad + 2\tilde{S}_{ref}(\Delta\omega)\tilde{\Phi}(\Delta\omega) \sin(\Delta\omega\tau) + \left| \tilde{\Phi}(\Delta\omega) \right|^2 \end{aligned} \quad (3.11)$$

²Nous avons défini la transformée de Fourier $\tilde{S}_{ref}(\Delta\omega) = \int S_{ref}(t)e^{i\Delta\omega t} dt$

L'observation des déformations ou des décalages de franges dans le domaine spectral apporte une idée qualitative de la modification du spectre de l'impulsion. Dans le cas où $\frac{\tilde{\Phi}(\Delta\omega)}{\tilde{S}_{phase}(\Delta\omega)} \ll 1$, $S(\omega)$ peut s'écrire aussi sous la forme :

$$S(\Delta\omega) = \left| \tilde{S}_{ref}(\Delta\omega) \right|^2 + \left| \tilde{S}_{phase}(\Delta\omega) \right|^2 \quad (3.12)$$

$$+ 2\tilde{S}_{ref}(\Delta\omega)\tilde{S}_{phase}(\Delta\omega) \cos \left[\Delta\omega\tau + \frac{\tilde{\Phi}(\Delta\omega)}{\tilde{S}_{phase}(\Delta\omega)} \right] + |\tilde{\Phi}(\Delta\omega)|^2$$

La phase nonlinéaire $\tilde{\Phi}(\Delta\omega)$ se traduit alors par un décalage des franges des interférogrammes. Autour de la fréquence centrale λ_0 , le décalage moyen des franges s'écrit :

$$\delta\lambda = -\frac{\lambda_0^2}{2\pi c\tau} \frac{\tilde{\Phi}(\lambda_0)}{\tilde{S}_{phase}(\lambda_0)} \quad (3.13)$$

Cette expression souligne que le décalage spectral des interférogrammes est proportionnel à la phase nonlinéaire $\tilde{\Phi}(\lambda_0)$ subie par l'impulsion sonde. Par conséquent, la mesure de $\delta\lambda$ permet de remonter à l'amplitude de la phase temporelle induite par effet de cascade que nous avons nommé B.

Simulation et protocole de détermination de la différence de phase spectrale

Pour donner une représentation plus précise des résultats attendus lors de l'expérience, nous présentons dans ce paragraphe une simulation des différentes expressions calculées dans le paragraphe précédent. Pour cela, nous supposons une forme temporelle gaussienne du champ électrique de l'onde sonde

$$S(t) = e^{-4\log(2)\left(\frac{t}{\Delta t}\right)^2} \quad (3.14)$$

où Δt est la largeur totale à mi-hauteur. Ceci nous permet de définir la phase temporelle gaussienne $\Phi^{NL}(t)$:

$$\Phi^{NL}(t) = BS(t)^2 = Be^{-8\log(2)\left(\frac{t}{\Delta t}\right)^2} \quad (3.15)$$

Elle représente la principale information que nous souhaitons extraire des différentes mesures. La description reste correcte tant que la phase nonlinéaire maximale B reste inférieure à 1 rad. Les paramètres que nous avons utilisés sont les suivants :

$$\begin{aligned} \lambda_0 &= 1053nm \\ \Delta t &= 350fs \\ \tau &= 5ps \\ B &= 0.1rad \end{aligned}$$

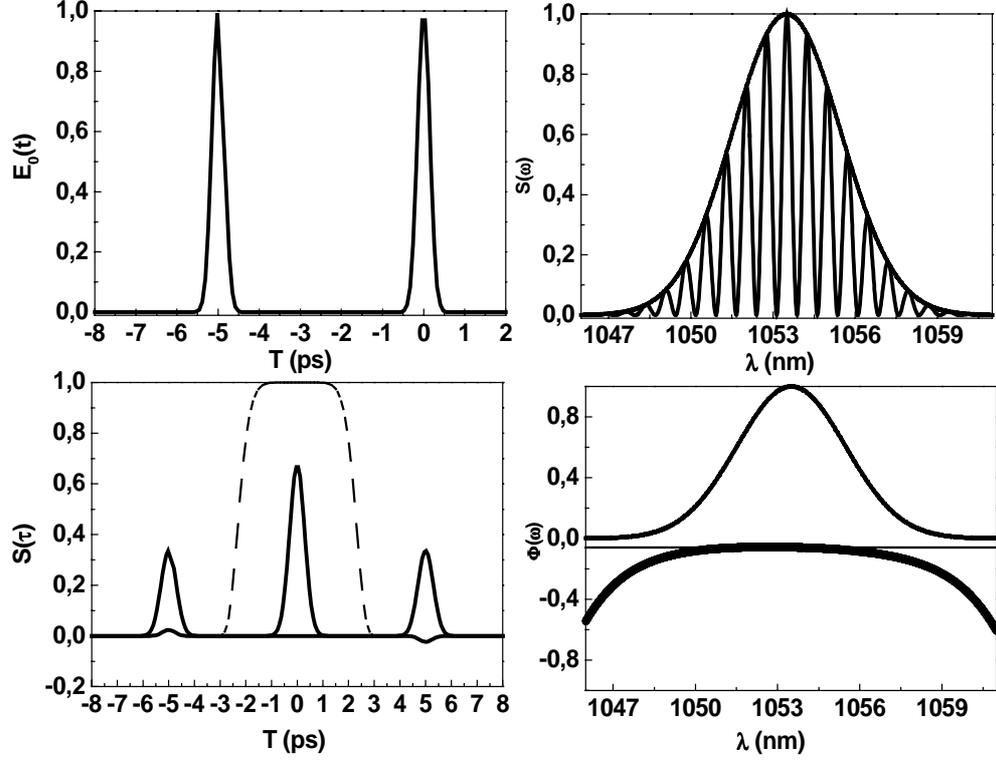


FIG. 3.2 — Etapes de la reconstruction de phase.

La figure 3.2 illustre les différentes étapes de la simulation. Ceci permet de valider la technique de reconstruction de phase que nous emploierons pour traiter les résultats expérimentaux. Nous obtenons de cette façon des informations plus quantitatives ($\tilde{\Phi}(\Delta\omega)$, $\tilde{I}(\Delta\omega)$) pour la caractérisation d'une impulsion sonde. L'expression analytique de $\tilde{\Phi}(\Delta\omega)$ et de $\tilde{I}(\Delta\omega)$ est :

$$\tilde{I}(\Delta\omega) = \int S(t)e^{i\Delta\omega t} = \sqrt{\frac{\pi}{\log(2)}} \frac{\Delta t}{2} e^{-\frac{\Delta t^2 \Delta\omega^2}{16 \log(2)}} \quad (3.16)$$

$$\tilde{\Phi}(\Delta\omega) = B \int S(t)^3 e^{i\Delta\omega t} = B \sqrt{\frac{3\pi}{\log(2)}} \frac{\Delta t}{16} e^{-\frac{\Delta t^2 \Delta\omega^2}{48 \log(2)}} \quad (3.17)$$

Le champ initial $E_0(t) = E_{ref}(t+\tau) + E_{phase}(t)$ est représenté sur la figure 3.2a. L'interférogramme enregistré par le capteur placé à la sortie du spectromètre (Fig. 3.2b) nous permettra de reconstruire d'une part la phase $\tilde{\Phi}(\Delta\omega)$, d'autre part la densité spectrale $\tilde{I}(\Delta\omega)$ des impulsions utilisées. Ces courbes sont représentées sur la figure 3.2d. Pour arriver à ce résultat, nous avons utilisé les méthodes classiques de transformée de Fourier. En effet, la transformée de Fourier des spectres modulés par le décalage temporel τ possède trois pics, un situé à $\tau = 0$ et deux situés à $\pm\tau$ (Fig. 3.2c). Les différentes

contributions aux différents satellites sont décrits à partir de l'expression 3.11 :

$$\begin{aligned}
 2\pi S(\tau) &= \int \tilde{S}(\Delta\omega) e^{-i\Delta\omega\tau} d\Delta\omega \\
 &= |S_{ref}(t)|^2 + |S_{phase}(t)|^2 + \int |\tilde{\phi}(\Delta\omega)|^2 e^{-i\Delta\omega\tau} d\Delta\omega \\
 &+ 2S_{ref}(t \pm \tau) \otimes S_{phase}(t \pm \tau) - 2iS(t \pm \tau) \otimes \Phi^{NL}(t \pm \tau)
 \end{aligned} \tag{3.18}$$

Une particularité apparaît dans notre cas. En effet si la phase nonlinéaire est nulle, la transformée de Fourier de $S(\Delta\omega)$ est réelle. Dans notre cas, elle possède une partie imaginaire proportionnelle à la phase nonlinéaire B. Ce terme n'apparaît pas lorsque l'on fait le calcul classique. Dans notre cas, la modification de phase est décrite dans le domaine temporel. Ce terme imaginaire est en fait le produit de corrélation entre la forme temporelle de l'impulsion de référence et la phase nonlinéaire temporelle. Finalement, pour caractériser spectralement notre impulsion, deux étapes sont nécessaires :

- Pour retirer l'information sur le spectre, il suffit alors de filtrer $S(t)$ autour de $t = 0$. Le filtre que nous avons utilisé est une supergaussienne d'ordre 10 qui est représentée en pointillés sur la figure 3.2c³. La transformée de Fourier inverse sera proportionnelle à la somme des spectres⁴ :

$$|\tilde{S}_{ref}(\Delta\omega)|^2 + |\tilde{S}_{phase}(\Delta\omega)|^2 \tag{3.19}$$

Le spectre retiré est superposé à l'interférogramme sur la figure 3.2b.

- Pour retrouver la différence de phase, l'expression 3.20 montre que la phase nonlinéaire $\Phi^{NL}(t)$ influence principalement les satellites centrés autour de $t = \tau$. Donc cette fois ci, il faut filtrer $S(t)$ autour de $t = \pm\tau$. Le filtre utilisé dans ce cas est identique à celui utilisé pour retirer le spectre des impulsions. La différence de phase entre les deux impulsions est alors obtenue en prenant la phase de la transformée de Fourier inverse donnée par l'expression suivante :

$$\tilde{S}_{ref} \tilde{S}_{phase} e^{i \Delta\omega\tau + \frac{\tilde{\Phi}(\Delta\omega)}{\tilde{S}_{ref}(\Delta\omega)}} \tag{3.20}$$

La phase que l'on trouve est une droite dont l'expression est : $\Delta\omega\tau + \tilde{\Phi}(\Delta\omega)$ ⁵. Une fois la phase linéaire apportée par le décalage entre les deux impulsions $\Delta\omega\tau$ soustraite, nous pouvons déterminer la phase nonlinéaire induite $\frac{\tilde{\Phi}(\Delta\omega)}{\tilde{S}_{ref}(\Delta\omega)}$. La formule analytique de $\tilde{\Phi}(\Delta\omega)$ est :

$$\frac{\tilde{\Phi}(\Delta\omega)}{\tilde{S}_{ref}(\Delta\omega)} = \frac{B}{\sqrt{3}} e^{\frac{\Delta t^2 \Delta \omega^2}{24 \log(2)}} \sim \frac{B}{\sqrt{3}} \left(1 + \frac{\Delta t^2 \Delta \omega^2}{24 \log(2)} \right) \tag{3.21}$$

³La supergaussienne d'ordre n s'écrit $F(t, n) = e^{-\left(\frac{t}{\Delta t}\right)^n}$

⁴On néglige ici le carré de la phase $|\tilde{\Phi}(\Delta\omega)|^2$.

⁵Il faut noter que $\Delta\omega\tau \gg \tilde{\Phi}(\Delta\omega)$.

Finalement, au premier ordre, la phase spectrale nonlinéaire "effective" est constante. De plus, aux ordres supérieurs, elle ne possède que des ordres pairs. Ceci nous permet déjà d'anticiper sur le fait que le décalage de frange sera constant sur le spectre. Cette phase retirée des interférogrammes est montrée sur la figure 3.2d avec le spectre retiré. La valeur constante $\frac{B}{\sqrt{(3)}}$ est aussi reportée sur cette figure en trait plein.

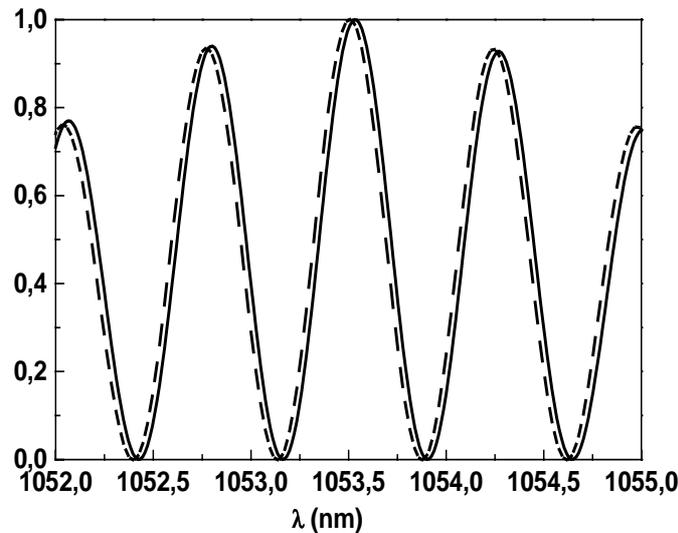


FIG. 3.3 — Simulation du décalage de frange.

Les modifications d'interférogrammes associées au décalage de frange induit par $\Phi^{NL}(t)$ permet aussi de donner une information sur la phase nonlinéaire induite. La figure 3.3 compare les modifications de spectres des interférogrammes où $B = 0$ (en pointillés sur la Fig. 3.3) et des interférogrammes où $B \neq 0$ (en trait plein sur la Fig. 3.3) autour de λ_0 . Le décalage de frange retiré est constant sur tout le spectre et est égal à $\delta\lambda = 0.02nm$. Cette donnée nous confirme qu'il est important d'avoir un spectromètre le plus résolvant possible pour effectuer la mesure du décalage des franges. Notons qu'expérimentalement, il est possible d'observer directement l'inversion du signe de la phase induit par effet de cascade à l'aide des interférogrammes enregistrés puisque ce décalage est directement proportionnel à l'amplitude de la phase B.

3.1.2 Dispositif expérimental d'interférométrie spectrale.

Description du montage expérimental

Le montage expérimental est présenté sur la figure 3.4. Le faisceau laser est délivré par un amplificateur régénératif Ti :Sapphire fonctionnant à un taux de répétition de

10 Hz. A la sortie du compresseur de l'amplificateur, les impulsions ont une durée temporelle de l'ordre de 500 fs avec une largeur spectrale $\delta\lambda_0 \sim 5nm$ centrée à $\lambda_0 = 1053nm$. La taille du faisceau est de l'ordre du 1 mm. L'énergie des impulsions est égale à 1 mJ. A l'aide d'un système composé d'un prisme de Glan et d'une lame $\frac{\lambda}{2}$, nous contrôlons l'énergie envoyée sur notre montage expérimental. Une lame séparatrice

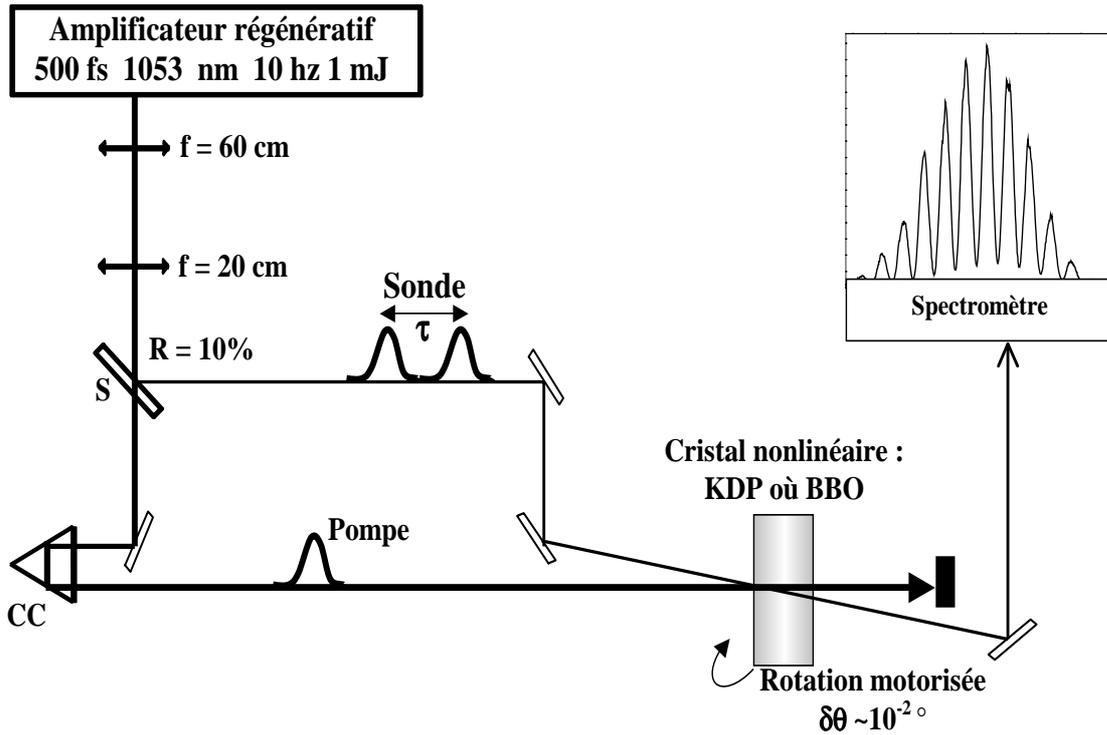


FIG. 3.4 — Montage d'expérimental pompe-sonde d'interférométrie spectrale (S : Séparatrice, CC : coin de cube).

prélève 10% de l'énergie du faisceau issu de l'amplificateur pour créer un faisceau sonde. Lorsqu'ils interagissent dans le cristal non linéaire, les faisceaux pompe et sonde font un petit angle $\alpha \sim 2^\circ$. Enfin, A l'aide d'une ligne à retard placée sur le faisceau pompe, les impulsions pompe et sonde sont temporellement synchronisées à l'intérieur du cristal.

Les cristaux utilisés sont décrit en annexe IV. Ce sont des cristaux doubleurs (BBO ou KDP) taillés pour une interaction de type I ooe. Pour ce type d'interaction, la polarisation des faisceaux pompe et sonde est parallèle à l'axe ordinaire du cristal. La rotation de celui-ci autour de cet axe est réalisée à l'aide d'un moteur pas à pas. Il permet de faire varier avec précision le désaccord de phase. La précision angulaire de la platine utilisée est égale à $\delta\theta = 0.01^\circ = 0.17mrad$. Un système afocal composé de deux lentilles convergentes nous permet de diminuer la taille du faisceau ($w_0 \sim 1mm$) avant la lame séparatrice. Cette diminution du col du faisceau, nous permet d'obtenir des puissances importantes au niveau du cristal non linéaire.

Création des répliques pour la mesure interférométrique.

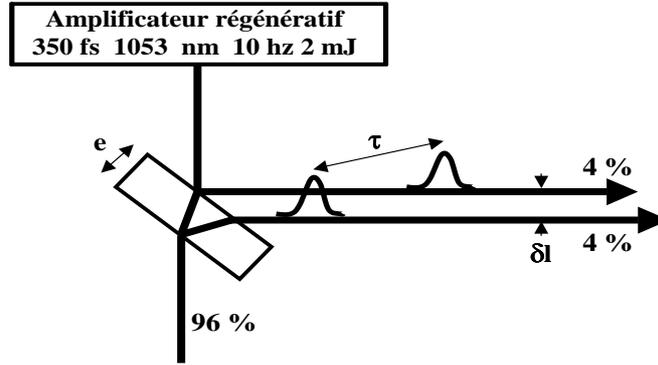


FIG. 3.5 — Dispositif pour créer les deux répliques sur la voie du faisceau sonde.

Pour effectuer cette mesure de phase, nous avons créé deux répliques de l'impulsion sonde à l'aide d'une lame séparatrice travaillant en transmission (Fig. 3.5). Si θ est l'angle d'incidence du faisceau sur la lame d'indice n , le décalage τ est directement relié à l'épaisseur de la lame par la relation :

$$\tau = \frac{2e}{v_g \cos r} \quad (3.22)$$

où e est l'épaisseur de la lame, $\sin(r) = \frac{1}{n} \sin(\theta)$ et $v_g = \left[\frac{1}{c} \left(n(\lambda) - \lambda \frac{\partial n(\lambda)}{\partial \lambda} \right) \right]^{-1}$ est la vitesse de groupe de l'impulsion laser dans le milieu. La lame n'étant pas traitée optiquement, les deux impulsions auront une intensité équivalente à $\sim 4\%$ du faisceau incident. Le contraste des franges sera alors suffisant. Dans notre expérience, nous avons choisi d'utiliser une lame séparatrice ayant une épaisseur $e = 1\text{mm}$. Le retard temporel pour un faisceau incident tel que $\theta = 45^\circ$ est $\tau = 11\text{ps}$. Enfin notons, que le décalage de franges induit par effet de cascade (Eq. 3.13) est inversement proportionnel au retard τ

Par ailleurs, il faut noter qu'un décalage spatial équivalent δx existe. Son expression est la suivante :

$$\delta x = 2e \tan r \cos(\theta) \quad (3.23)$$

Dans notre expérience, δx est égal à $755\mu\text{m}$. Comme nos faisceaux possèdent une largeur totale à mi-hauteur $w_0 = 1\text{mm}$, ce décalage spatial a une incidence sur notre mesure interférométrique. En effet, ceci signifie que la mesure de phase ne se fera pas au maximum d'intensité $I(x = 0)$ mais à

$$I\left(x = \frac{\delta x}{2}\right) = I(x = 0) e^{-4 \log(2) \frac{\delta x^2}{4w_0^2}} = 0.7I(x = 0) \quad (3.24)$$

Enfin, ces deux impulsions sondes sont envoyées dans le spectromètre. Pour effectuer nos mesures, nous avons choisi d'utiliser un spectromètre possédant une focale de 75 cm et des réseaux de 1200 traits/mm. Notons que la résolution $\delta\lambda \sim 0.1nm$ du spectromètre à $\lambda_0 = 1053nm$ est suffisante pour les mesures de décalage de frange.

Interférogramme de référence.

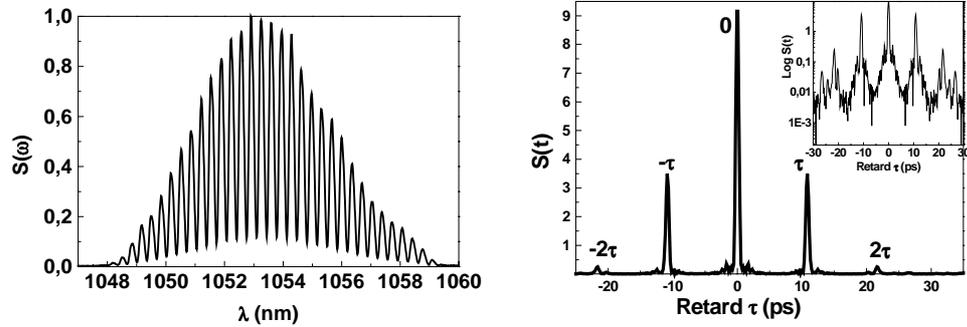
Avant toute chose, nous avons caractérisé notre interféromètre. Pour cela, en l'absence de l'impulsion pompe, nous avons mesuré le spectrogramme des deux impulsions sondes à la sortie du spectromètre. La figure 3.6(a) présente l'interférogramme enregistré. Notons premièrement, que l'enveloppe spectrale est bien décrite par une gaussienne et deuxièmement, que le contraste des franges est tout à fait satisfaisant. L'enregistrement de cet interférogramme constitue une référence pour nos expériences. En effet, il permet la mesure de la différence de phase entre les deux impulsions sondes. Pour cela, nous avons appliqué à cet interférogramme le traitement décrit auparavant. Les figures 3.6(b) et 3.6(c) illustrent les différentes étapes pour la reconstruction de la différence de phase et du spectre. Nous remarquons que, dans le domaine temporel, la transformée de Fourier présente plusieurs pics à des temps retard égaux à des multiples de τ . Ces impulsions retardées apparaissant à $t = \pm 2\tau$ correspondent à des réflexions multiples produites à l'intérieur de la lame séparatrice. Pour retirer l'information concernant les impulsions sondes, nous avons utilisé le pic à $t = \tau$. Comme le montre l'expression 3.20, la transformée de Fourier de ce satellite permet d'obtenir la différence de phase $\tilde{\Phi}(\lambda)$ et le spectre $I(\lambda)$. La phase de l'impulsion sonde seule n'est pas plane et nulle comme on pourrait s'y attendre : la phase retirée de cet interférogramme montre une phase nonlinéaire fortement quadratique (Fig. 3.6(c)). Notons que le paramétrage de la partie linéaire $\Delta\omega\tau$ a permis de fixer la valeur du paramètre $\tau = 10.81$ ps. La phase restante représentée sur la figure 3.6(c) a été paramétrée avec le polynôme d'ordre deux suivant :

$$\tilde{\Phi}(\Delta\omega) = 1.3 \cdot 10^{-26} \Delta\omega^2 + 9.24 \cdot 10^{-15} \Delta\omega + 0.67 \quad (3.25)$$

A partir de ce paramétrage plusieurs remarques peuvent être faites :

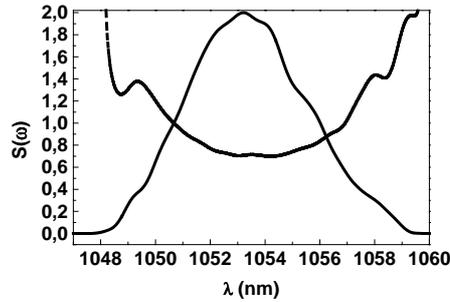
1. Une phase constante existe : $\Phi_0 = 0.67$.
2. L'impulsion utilisée possède une phase quadratique. Cette phase est associée à une dispersion d'ordre deux de k $\tilde{\Phi}(\omega) = \frac{1}{2}k''(0)z\Delta\omega^2 = 1.3 \cdot 10^{-26} \Delta\omega^2$. Nous avons associé l'origine de cette phase quadratique à la différence de chemin optique entre les deux impulsions introduite par la traversée de la lame séparatrice.

Finalement, cette mesure de phase est intéressante car elle permet de donner une phase de référence aux mesures de phase qui seront faites en présence du faisceau pompe . Comme nous le verrons par la suite, dans notre protocole de mesure, pour déduire



(a) Interférogramme mesuré.

(b) Transformée de Fourier.



(c) Spectre et phase retirées.

FIG. 3.6 — Description de la phase de référence permettant de caractériser notre interféromètre.

la phase nonlinéaire induite par l'impulsion pompe nous soustrairons cette phase de référence à la phase mesurée.

3.1.3 Caractérisation expérimentale de la phase nonlinéaire spectrale induite par cascade d'effets d'ordre deux dans un cristal de KDP.

Dans ce paragraphe, nous présentons des résultats expérimentaux obtenus sur un cristal de KDP ayant une longueur $L=1\text{cm}$. Les mesures ont été réalisées avec un faisceau pompe dont l'énergie était de $100\mu\text{J}$ ⁶.

⁶L'intensité crête est égale à 16 GW/cm^2

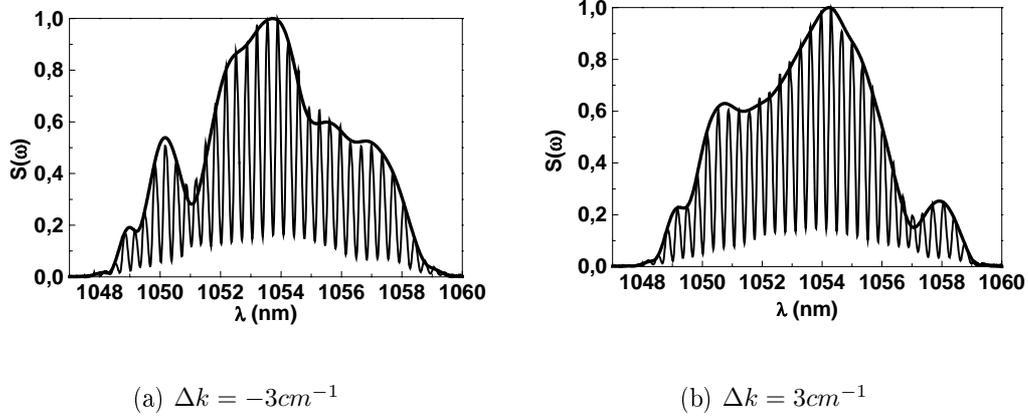


FIG. 3.7 — Interférogrammes mesurés pour deux désaccords de phase différents (KDP 1cm 100μJ).

Mesure du décalage de frange induit par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux.

Dans notre dispositif d'interférométrie spectrale, la première mise en évidence expérimentale des cascades d'effets nonlinéaires d'ordre deux est mesurable directement sur les interférogrammes. En effet, la phase nonlinéaire apportée par l'onde pompe et subie par l'onde sonde induit un décalage spectral des franges. L'expression 3.13 nous montre que le décalage dépend du signe de la phase nonlinéaire et donc du désaccord de phase entre l'onde fondamentale et l'onde harmonique. Pour mettre en évidence ce changement de signe, nous avons mesuré deux interférogrammes avec des désaccords de phase opposées (Fig. 3.7(a) et 3.7(b)). Pour ces deux désaccords de phase considérés, la figure 3.8 illustre ce décalage de franges. Le décalage positif et négatif des interférogrammes indique clairement l'inversion du signe de la phase nonlinéaire induite par effet de cascade $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$. Pour être plus précis, nous pouvons donner une approximation de la phase nonlinéaire induite. Ainsi, lorsque $\Delta k = -3\text{cm}^{-1}$ et $\Delta k = +3\text{cm}^{-1}$, nous mesurons un décalage respectivement égal à $\delta\lambda = -0.05\text{nm}$ et $\delta\lambda = 0.02\text{nm}$. A partir de l'expression 3.13 :

$$B_{\delta\lambda} = -\sqrt{3} \frac{2\pi c\tau}{\lambda_0^2} \delta\lambda \quad (3.26)$$

Nous avons calculé les valeurs numériques suivantes :

$$\begin{aligned} B_{\Delta k=-3\text{cm}^{-1}} &= 1.55\text{rad} \\ B_{\Delta k=3\text{cm}^{-1}} &= -0.62\text{rad} \end{aligned}$$

Les phases que nous mesurons sont importantes et dépassent sûrement le domaine de validité des expressions analytiques que nous avons établies. Toutefois, ces mesures qualitatives permettent une visualisation directe de l'inversion de la phase nonlinéaire

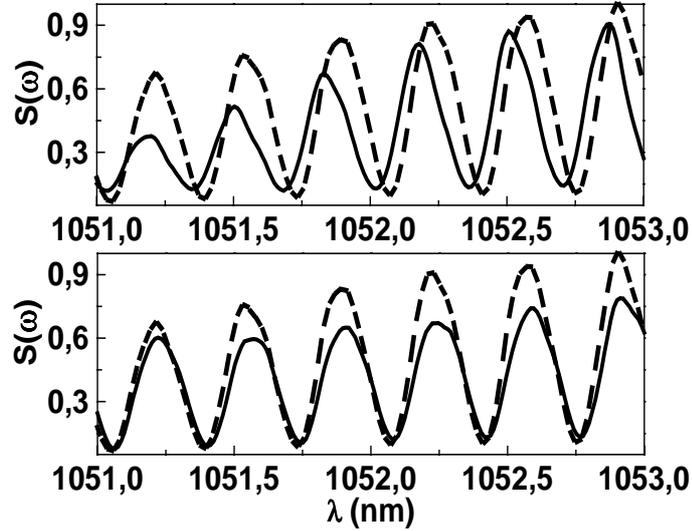


FIG. 3.8 — Décalage des interférogrammes pour (a) $\Delta k = -3cm^{-1}$ et (b) $\Delta k = 3cm^{-1}$. Les franges en pointillés représentent l'interférogramme de référence

associée au changement du signe du désaccord de phase Δk . Pour aller au delà de ces mesures qualitatives, nous avons calculé, la densité spectrale et la phase de l'impulsion sonde modifiée par l'impulsion pompe.

3.1.4 Evolution spectrale de la phase nonlinéaire en fonction de Δk .

Nous avons donc traité les interférogrammes suivant le protocole que nous avons décrit précédemment. Pour éviter de perdre une information sur les premiers ordres de la phase (décalage du retard pompe-sonde ou courbure), la composante $\Delta\omega\tau_0$ que nous avons retirée était égale à celle calculée pour la référence ($\tau = 10.81ps$). Comme nous le verrons plus loin, il est possible d'enregistrer une éventuelle variation du retard τ entre les impulsions sondes, retard induit par la cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux. Pour $\Delta k = \pm 3cm^{-1}$, la différence de phase est présentée sur la figure 3.9 (Les spectres retirés sont superposés aux interférogrammes sur les figures 3.7(a) et 3.7(b)). Sur cette figure, notons que la phase de référence est représentée en pointillés. Nous remarquons clairement que la phase spectrale est principalement constante dans la zone spectrale de notre impulsion. Comme l'indique la relation 3.11, la phase nonlinéaire est, au premier ordre, égale à $\frac{B}{\sqrt{3}}$. Après avoir retiré la phase constante des impulsions de référence, la

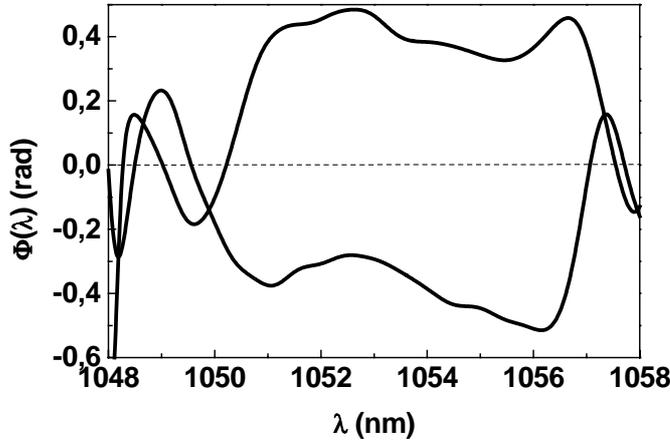


FIG. 3.9 — Phase retirée $\Phi(\omega)$ pour $\Delta k = \pm 3cm^{-1}$.

phase nonlinéaire mesurée est :

$$B_{\Delta k = -3cm^{-1}} = 1.03rad$$

$$B_{\Delta k = 3cm^{-1}} = -0.95rad$$

Du point de vue de la compensation de l'intégrale B, ces mesures réalisées lorsque $\Delta k \neq 0$ sont intéressantes pour deux raisons.

1. la phase mesurée est importante et laisse augurer de larges possibilités de compensation.
2. Le fait que la phase soit homogène sur le spectre apparaît comme favorable. Elle permettra une compensation de l'intégrale B d'impulsions à spectre large.

Pour décrire plus complètement les possibilités offertes par cette technique de compensation, nous avons enregistré les interférogrammes pour plusieurs désaccords de phase entre $-50cm^{-1}$ à $+50cm^{-1}$. Précisons que $\Delta k = 0$ a été défini par rapport à l'angle entre la normale du cristal et la bissectrice des deux faisceaux non-colinéaires. Après avoir traité les interférogrammes, nous avons pu tracer l'évolution de l'amplitude de la phase nonlinéaire $B(\Delta k)$ induit par effet de cascade (Fig. 3.10). Nous pouvons noter que des phases de l'ordre de 1 rad sont enregistrées sur une plage en Δk couvrant environ $20 cm^{-1}$. Notons enfin que le maximum de la phase se situe autour de $\Delta k \sim 3cm^{-1}$ correspondant à $\Delta kL \sim 3$, valeur voisine de celle attendue théoriquement pour une onde plane $\Delta kL \sim \pi$.

Le comportement de la phase spectrale en fonction du désaccord de phase souligne la faisabilité d'un dispositif de compensation utilisant une cascade de phénomène nonlinéaire d'ordre deux. Nous avons également mesuré pour cela le signe et l'amplitude de la phase nonlinéaire en fonction du désaccord de phase. La phase induite sur le spectre est en plus constante sur chaque composante spectrale de l'impulsion.

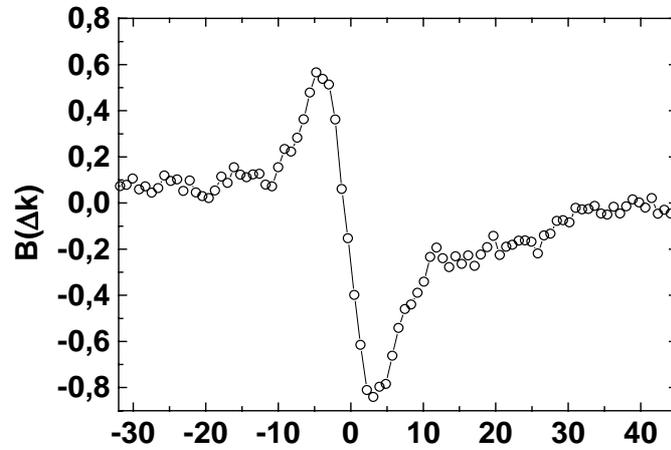
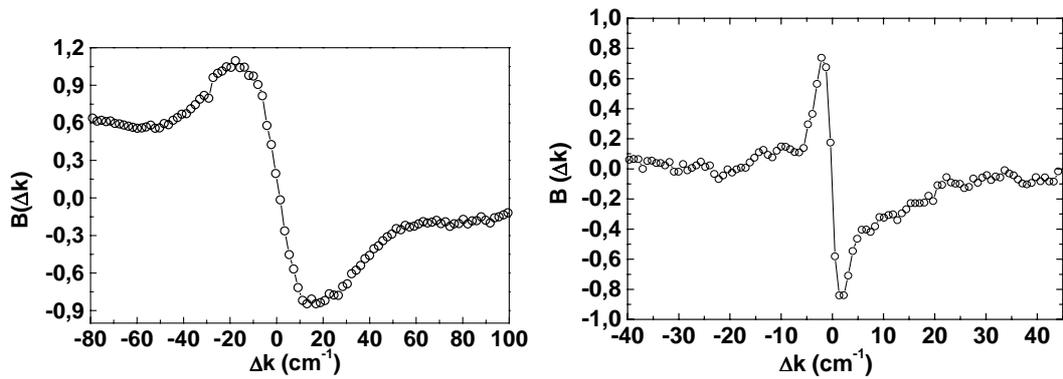


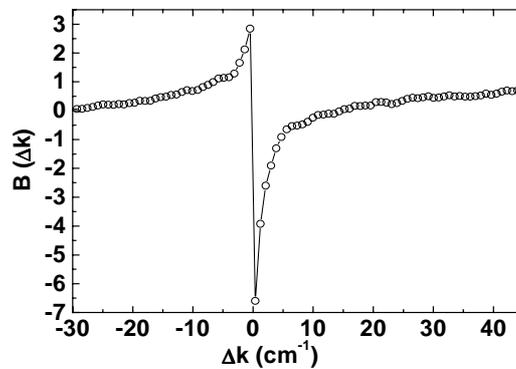
FIG. 3.10 — Evolution de $B(\Delta k)$ pour le cristal de KDP.

3.1.5 Comparaison entre les cristaux de KDP et de BBO.



(a) BBO : $L = 2 \text{ mm}$, $E_p = 50 \mu\text{J}$.

(b) KDP : $L = 2 \text{ cm}$ $E_p = 30 \mu\text{J}$.



(c) KDP : $L = 2 \text{ cm}$ $E_p = 100 \mu\text{J}$.

FIG. 3.11 — Phase nonlinéaire en fonction de Δk pour différentes configurations expérimentales.

Nous avons également mené une étude comparative entre les cristaux de BBO et de KDP. Il est vrai que, dans les chaînes laser de puissance, l'utilisation des cristaux de KDP est incontournable. En effet, pour de telles installations, il est nécessaire d'avoir des cristaux de grandes dimensions possédant très peu de défauts. Aujourd'hui, il est, par exemple, très difficile de fabriquer des cristaux de BBO de grande taille et présentant de telles homogénéités.

Toutefois, comme pour le cristal de KDP, nous avons étudié pour des cristaux de BBO, l'évolution de B en fonction de Δk . Pour comparer ces deux types de cristaux, nous avons choisi le maximum de la phase nonlinéaire comme critère (la phase présentée pour le cristal de BBO étant de l'ordre du radian). Rappelons que ce maximum est théoriquement situé à $\Delta kL \sim \pi$. Ce critère étant défini, nous avons enregistré l'évolution de la phase nonlinéaire en fonction de ΔkL pour différentes valeurs de l'intensité du faisceau pompe (Fig. 3.11(a), 3.11(b) et 3.11(c)). Nous remarquons tout d'abord que la phase maximale ($\sim 1rad$) est effectivement située au alentour de $\Delta kL \sim \pi$. Pour une phase donnée, les courbes possèdent une forme similaire. Si l'on augmente l'intensité de l'onde pompe pour obtenir une phase plus importante $\sim \pi$, une dissymétrie de la courbe apparaît (Fig.3.11(c)). Cette dissymétrie est associée à la nonlinéarité intrinsèque d'ordre trois du cristal. Pour comparer le cristal de BBO et de KDP, nous avons représenté une série de mesures sur la même courbe (Fig. 3.12). Cette dernière

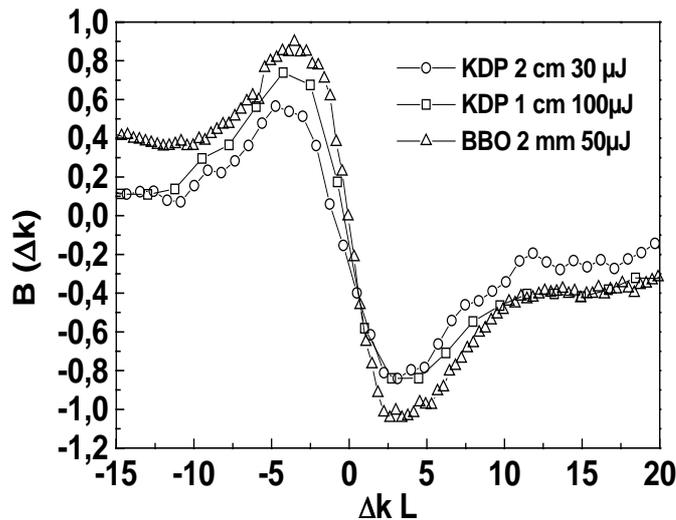


FIG. 3.12 — Comparaison de $B(\Delta k)$ pour les cristaux de KDP et de BBO.

figure indique que pour une phase équivalente, le cristal de BBO qui a une longueur beaucoup plus faible offre une plage de réglage plus importante.

3.1.6 Etude de l'indice nonlinéaire $n_2^{(GSH)}$ induit par effet de cascade.

Lorsque la cascade d'effets nonlinéaires est importante (fortes intensités, faibles Δk), la notion de variation d'indice mise sous la forme $\Delta n = n_2^{(GSH)} I_{pompe}(t)$ perd son sens pour les impulsions courtes. Par exemple, au voisinage de $\Delta k = 0$, les différentes composantes spectrales de l'impulsion laser ne voient pas le même désaccord de phase. Le déphasage subi par chacune des composantes spectrales doit être différent. Dans ce cas, il faut prendre en compte l'évolution complète de la phase nonlinéaire $\phi^{(GSH)}(t)$. Ci-dessous, nous verrons que les mesures d'interférométrie spectrale permettent l'analyse précise de la variation de phase nonlinéaire $\phi^{(GSH)}(\lambda)$ au voisinage de $\Delta k = 0$. Dans ce paragraphe, nous montrons que lorsque $\Delta k \sim 0$ la phase nonlinéaire ne peut être décrite que si l'on prend en compte la variation de la phase et de l'amplitude des ondes se propageant dans le cristal ⁷.

Phase nonlinéaire induite par cascade d'effets d'ordre deux à $\Delta k = 0$.

La précision de notre montage en fonction du désaccord de phase ($\sim 1cm^{-1}$) est un avantage pour la mesure de la phase nonlinéaire lorsque $\Delta k \sim 0$. Rappelons que la mesure de phase spectrale donne la contribution de l'effet de cascade pour chaque longueur d'onde.

La phase mesurée autour de $\Delta k = 0$ est représentée sur la figure 3.13. On note ici un phénomène nouveau : la phase spectrale induite varie en fonction de la longueur d'onde et change de signe autour de la longueur d'onde centrale du spectre. Ceci est relié à une particularité de la nonlinéarité de cascade dans le domaine femtoseconde. En effet, la condition d'accord de phase $\Delta k = 0$ n'est satisfaite que pour la fréquence centrale λ_0 avec une acceptation spectrale de l'ordre de $\frac{\partial \Delta k}{\partial \lambda} = -5cm^{-1}/nm$ pour le KDP. Cependant, le spectre de l'impulsion femtoseconde est de l'ordre de $5nm$. Ainsi, les longueurs d'ondes basses du spectre voient un désaccord de phase négatif tandis que les longueurs d'onde hautes subissent un désaccord de phase positif. En conséquence, les longueurs d'onde de part et d'autre de la fréquence centrale de l'impulsion subissent ainsi un déphasage nonlinéaire positif ou négatif. C'est, à notre connaissance, la première caractérisation expérimentale de la phase nonlinéaire induite par effet de cascade autour de $\Delta k = 0$ pour des impulsions femtosecondes. Elle a été réalisée aussi bien sur les cristaux de KDP que de BBO. Notre mesure indique que contrairement à ce qui est généralement admis, ce n'est pas la phase nonlinéaire mais la valeur moyenne

⁷Sous certaines conditions, la corrélation entre les deux parties peut être faite par la relation de Kramers-Kronig [31].

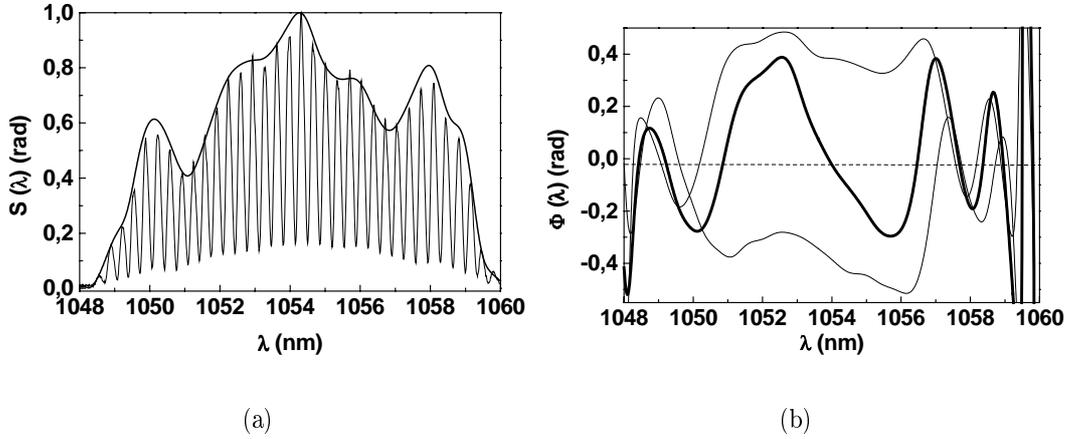


FIG. 3.13 — Interférogramme $S(\omega)$ et phase $\Phi(\omega)$ autour de $\Delta k = 0$ (trait épais).

de celle-ci qui est nulle à $\Delta k = 0$. Notre mesure est en fait en parfait accord avec les expériences de Z-scan, expériences qui mesurent de fait une phase intégrée. Notre expérience permet de préciser l'évolution de la phase nonlinéaire d'impulsion femtoseconde au voisinage de $\Delta k = 0$ pour des impulsions femtosecondes.

Modification nonlinéaires de phases d'ordres supérieurs.

L'interférométrie spectrale apparaît comme une technique efficace pour caractériser les différents ordres de la modification de phase induite par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux (décalage temporel ou courbure de la lentille temporelle). Ceci permet de

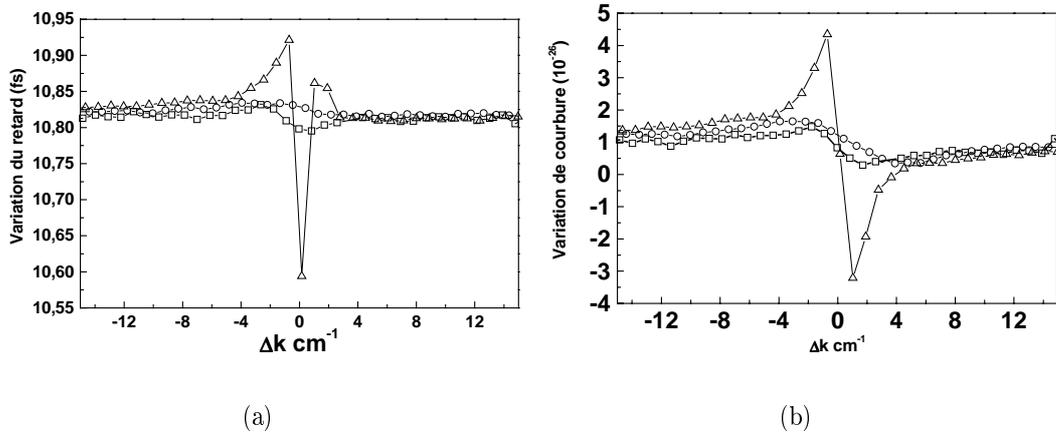


FIG. 3.14 — Modification du temps retard et de la courbure de la phase spectrale en fonction de Δk pour les cristaux de KDP (\circ : $L = 1$ cm, $E_p = 100\mu J$, \square : $L = 2$ cm, $E_p = 30\mu J$ et \triangle : $L = 2$ cm, $E_p = 100\mu J$).

définitivement contrôler la phase nonlinéaire spectrale induite. Pour cela, nous avons

paramétré les différentes phases retirées des interférogrammes, à l'aide de polynôme d'ordre deux. Il apparaît que le retard entre les deux faisceaux sondes (coefficient du premier ordre) varie (Fig. 3.14(a)). Cette mesure traduit une modification de l'indice de groupe du milieu (variation du temps retard entre les deux impulsions sondes) en présence de cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux. De la même manière, la courbure (coefficient du second ordre) est positive ou négative selon le signe du désaccord de phase (Fig. 3.14(b)). Ceci décrit en fait une dispersion de la nonlinéarité induite en présence de génération de second harmonique.

Mesure de la variation d'intensité sur le faisceau sonde induite par effet de cascade.

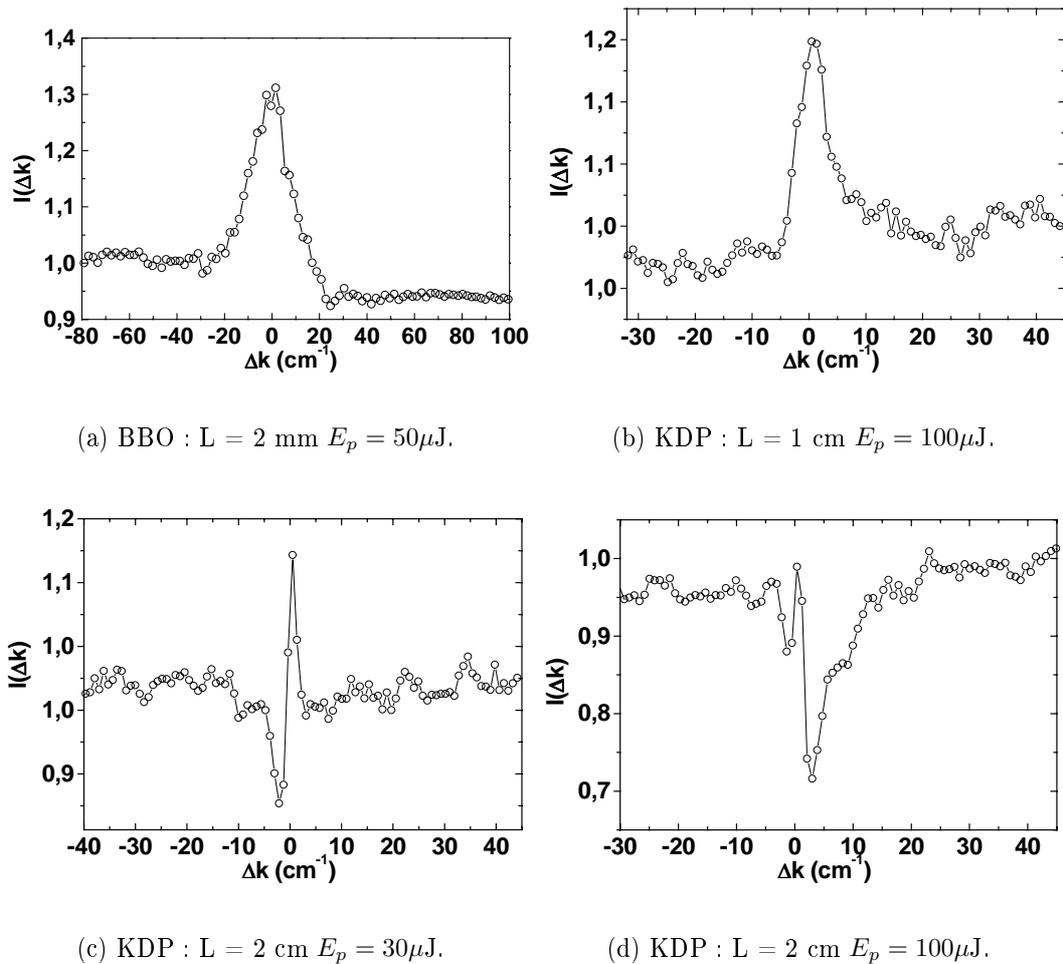


FIG. 3.15 — Mesure de l'intensité intégrée sur le spectre $I(\Delta k)$.

L'étude précédente nous amène également à nous interroger sur les modifications d'amplitude des différentes composantes spectrales lorsque $\Delta k \sim 0$. En effet, la forte

variation de la longueur de cohérence au voisinage de $\Delta k = 0$ doit également se traduire par une forte dispersion de la variation d'amplitude des différentes composantes spectrales de l'impulsion laser. De ce point de vue, on peut considérer que la cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux se traduit par une modification nonlinéaire de la partie réelle et imaginaire de l'indice du milieu. Les mesures que nous avons présentées sur la figure 3.15 sont centrées autour de $\Delta k = 0$. Dans cette région, la phase nonlinéaire est importante (en $\frac{1}{\Delta k}$). Cette forte variation de phase a une contrepartie : l'onde fondamentale est convertie en onde harmonique et l'intensité de onde fondamentale diminue au cours de sa propagation dans le cristal. Cette image est valable pour un processus de conversion à une onde où à deux ondes d'intensités équivalentes. Cependant dans notre configuration pompe-sonde, nous faisons interagir en géométrie non-colinéaire des faisceaux d'intensité différente. L'enregistrement des interférogrammes en fonction de Δk nous a permis de mesurer les rendements de conversion. La figure 3.15 montre l'évolution de l'intensité intégrée $I(\Delta k)$ sur les interférogrammes $S(\omega, \Delta k)$ pour différentes configurations expérimentales. Cette intensité intégrée est définie par :

$$I(\Delta k) = \int_{-\infty}^{\infty} S(\omega, \Delta k) d\omega \quad (3.27)$$

où $S(\omega, \Delta k)$ est définie par l'expression 3.5.

3.1.7 Description analytique de l'effet de cascade en régime non-colinéaire.

L'étude analytique présentée dans ce paragraphe nous permettra de décrire notre expérience pompe-sonde en régime non-colinéaire. Pour cela, le principe utilisé est proche de celui adopté pour décrire les expériences d'auto-diffractions spectrales. De la même façon, la méthode pour résoudre les équations couplées de génération de second harmonique reste une méthode perturbative.

Pour décrire nos expériences pompe-sonde non-colinéaires, deux particularités doivent être prises en compte :

1. Nous allons utiliser cette fois-ci, une onde plane de vecteur d'onde \vec{k}_0 dont la forme spatiale est modulée⁸. Ceci nous permettra de décrire les deux faisceaux pompe et sonde interagissant non-colinéairement, avec un angle θ dans le cristal nonlinéaire (Fig 3.16).
2. Les cristaux doubleurs que nous utilisons sont des cristaux uniaxes. Dans cette étude, nous prendrons en compte, les effets linéaires tels que la diffraction et la

⁸Rapelons que pour l'auto-diffraction spectrale, nous avons utilisé un faisceau unique de vecteur d'onde \vec{k}_0 dont le spectre était modulé sinusoidalement.

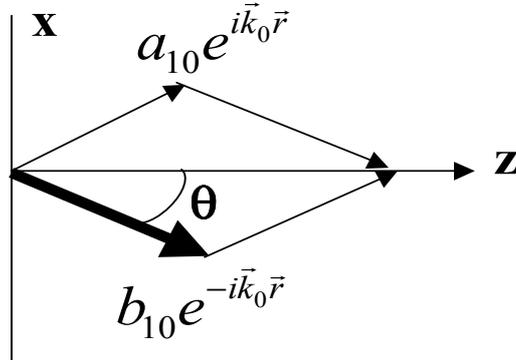


FIG. 3.16 — Schéma de l'onde plane modulée.

double réfraction.

Comme pour l'auto-diffraction spectrale, cette étude permettra la description de chaque nouvelle fréquence spatiale apparaissant par cascade d'effets nonlinéaires. Toutefois, pour décrire nos résultats expérimentaux, nous nous intéresserons principalement à la rétroaction de ces nouvelles fréquences spatiales (second harmonique générée sur la bissectrice et sur les directions $\pm \vec{k}_0$).

Equations couplées de génération de second harmonique au second ordre de dispersion

Nous allons tout d'abord écrire les équations couplées de génération de second harmonique pour deux ondes planes $E_1(x, y, z, t)$ et $E_2(x, y, z, t)$. Les indices 1 et 2 désignent respectivement les champs électriques de l'onde fondamentale et de l'onde harmonique. Les équations que nous considérons sont les suivantes :

$$\left[\frac{\partial}{\partial z} + \frac{i}{2k_1} \Delta_{\perp} \right] E_1(x, y, z, t) = i\sigma E_1^*(x, y, z, t) E_2(x, y, z, t) e^{i\Delta k z} \quad (3.28)$$

$$\left[\frac{\partial}{\partial z} + \beta \frac{\partial}{\partial x} + \frac{i}{2k_2} \Delta_{\perp} \right] E_2(x, y, z, t) = i\sigma E_1^2(x, y, z, t) e^{-i\Delta k z} \quad (3.29)$$

avec $\sigma = \frac{1}{\sqrt{P_c}}$ ⁹ [43]. Dans notre problème, l'onde fondamentale est une onde plane modulée spatialement. De cette façon, elle simule les deux vecteurs d'ondes de l'expérience pompe-sonde non-colinéaire. L'onde fondamentale s'écrit alors :

$$E_1(x, y, z = 0) = a_{10} e^{ik_{1x}x} + b_{10} e^{-ik_{1x}x} \quad (3.30)$$

avec $k_{1x} = k_1(\theta) \sin(\theta) = \frac{2\pi}{\lambda} n(\lambda, \theta) \sin(\theta)$ où θ est le demi-angle entre les deux faisceaux. Les amplitudes des champs a_{10} et b_{10} permettent de prendre en compte le rapport d'intensité entre les ondes pompe et sonde.

⁹ P_c représente une puissance critique du cristal : $P_c = \frac{\epsilon_0 c n_1^2 n_2 \lambda_0^2}{8\pi^2 d_{eff}^2}$

On peut chercher une forme particulière des solutions aux équations 3.28 lorsque l'interaction nonlinéaire n'est pas prise en compte. En posant par exemple $E_1(x, y, z) = a_1(z)e^{ik_{1x}x}$, l'équation de l'onde fondamentale devient :

$$\left[\frac{\partial}{\partial z} - \frac{ik_{1x}^2}{2k_1} \right] a_1(z) = 0 \quad (3.31)$$

La solution de cette équation se calcule facilement :

$$a_1(z) = a_{10} e^{\frac{ik_{1x}^2}{2k_1} z} \quad (3.32)$$

Ceci nous permet de donner la forme des solutions générales que nous utiliserons pour la résolution complète des équations 3.28. Pour cela, on utilise la forme de k_{1x} sachant que l'angle θ est très petit ($\sim 1^\circ$). Dans ce cas, dans la direction $e^{ik_{1x}x}$, nous avons

$$\frac{k_{1x}^2}{2k_1} = \frac{k_1(\theta)\theta^2}{2} \quad (3.33)$$

Finalement, le champ fondamental s'écrit :

$$E_1(x, y, z) = a_{10} e^{ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z + \theta x} + b_{10} e^{ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z - \theta x} \quad (3.34)$$

La forme décrite par 3.34 nous permettra de tenir compte dans notre analyse des phénomènes de diffraction et double réfraction. Comme pour l'auto-diffraction spectrale, nous allons calculer dans un premier temps, l'onde harmonique générée par 3.34. Dans un deuxième temps, nous calculerons la rétroaction de cette onde harmonique avec l'onde fondamentale. Cette étape créera de nouvelles fréquences spatiales à la fréquence fondamentale.

Calcul de la génération de second harmonique.

A partir de l'équation 3.34 décrivant l'onde fondamentale modulée spatialement et l'équation 2 du système 3.28, il est possible de calculer l'onde harmonique générée. Exprimons tout d'abord le terme nonlinéaire :

$$\begin{aligned} i \sigma E_1^2(x, y, z, t) e^{-i\Delta kz} &= i\sigma \left[a_{10} e^{ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z + \theta x} + b_{10} e^{ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z - \theta x} \right]^2 e^{-i\Delta kz} \\ &= i\sigma \left[a_{10}^2 e^{2ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z + \theta x} + b_{10}^2 e^{2ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z - \theta x} + 2a_{10}b_{10} e^{ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z + \theta x + ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z - \theta x} \right] e^{-i\Delta kz} \\ &= i\sigma \left[a_{10}^2 e^{2ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z + \theta x} + b_{10}^2 e^{2ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z - \theta x} + 2a_{10}b_{10} e^{2ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z} \right] e^{-i\Delta kz} \end{aligned}$$

Le terme nonlinéaire comporte 3 composantes à $2k_1(\theta)\theta x$, $-2k_1(\theta)\theta x$ et $0.x$ qui correspondent respectivement à la génération de second harmonique dans la direction θ ,

$-\theta$ et suivant la bissectrice des deux vecteurs d'ondes 0. Pour écrire le terme linéaire, nous poserons pour l'onde harmonique :

$$\begin{aligned} E_2(x, y, z, t) &= A_2(z)e^{2i\theta x} + B_2(z)e^{-2i\theta x} + C_2(z) \\ &= a_2(z)e^{2ik_1(\theta)\frac{\theta^2}{2}z+\theta x} + b_2(z)e^{2ik_1(\theta)\frac{\theta^2}{2}z-\theta x} + c_2(z) \end{aligned} \quad (3.35)$$

Ainsi, l'équation dans la direction de la bissectrice des deux faisceaux s'écrit :

$$\left[\frac{\partial}{\partial z} + \beta \frac{\partial}{\partial x} + \frac{i}{2k_2(\theta_0)} \Delta_{\perp} \right] c_2(z) = 2i\sigma a_{10} b_{10} e^{i 2 \frac{k_1(\theta)\theta^2}{2} - \Delta k z} \quad (3.36)$$

Cette équation se simplifie sous la forme :

$$\frac{\partial c_2(z)}{\partial z} = 2i\sigma a_{10} b_{10} e^{i 2 \frac{k_1(\theta)\theta^2}{2} - \Delta k z} \quad (3.37)$$

en posant $\Delta K = 2 \frac{k_1(\theta)\theta^2}{2} - \Delta k$ La solution de cette équation s'écrit :

$$\begin{aligned} c_2(z) &= 2 \frac{\sigma a_{10} b_{10}}{\Delta K} [e^{i\Delta K z} - 1] \\ c_2(z) &= 2iz\sigma a_{10} b_{10} e^{i \frac{\Delta K z}{2}} \operatorname{sinc} \left[\frac{\Delta K z}{2} \right] \end{aligned} \quad (3.38)$$

Le calcul de $c_2(z)$ donne l'évolution de l'onde harmonique sur la bissectrice due au couplage entre l'onde pompe et l'onde sonde.

De la même façon, nous pouvons maintenant calculer le champ électrique de l'onde harmonique dans la direction θ . L'équation à résoudre s'écrit :

$$\left[\frac{\partial}{\partial z} + 2i\beta k_1(\theta)\theta \right] a_2(z) e^{2ik_1(\theta)\frac{\theta^2}{2}z+\theta x} = i\sigma a_{10}^2 e^{2ik_1(\theta)\frac{\theta^2}{2}z+\theta x} e^{-i\Delta k z} \quad (3.39)$$

où encore

$$\left[\frac{\partial}{\partial z} + 2i\beta k_1(\theta)\theta \right] a_2(z) = i\sigma a_{10}^2 e^{-i\Delta k z} \quad (3.40)$$

Dans ce cas, la solution s'écrit :

$$a_2(z) = \frac{\sigma a_{10}^2}{\Delta k - 2\beta k_1(\theta)\theta} [e^{-2i\beta k_1(\theta)\theta z} - e^{-i\Delta k z}] \quad (3.41)$$

Pour la direction $-\theta$, nous obtenons immédiatement :

$$b_2(z) = \frac{\sigma b_{10}^2}{\Delta k + 2\beta k_1(\theta)\theta} [e^{2i\beta k_1(\theta)\theta z} - e^{-i\Delta k z}] \quad (3.42)$$

Il est intéressant de noter que les solutions 3.38, 3.41 et 3.42 tiennent compte, à travers θ , de la géométrie non-colinéaire des faisceaux pompe et sonde. A partir de ces solutions, nous pouvons calculer les différents ordres de diffractions générés à la fréquence fondamentale. Nous ne développons le calcul que pour l'onde diffractée dans la direction θ où nous faisons notre mesure de phase spectrale. Par contre, le modèle permet tout à fait de décrire les ordres impairs dans la direction $\pm(2n+1)\theta$ correspondant à des effets de cascade $\chi^{(2)n}$.

Rétroaction de l'onde harmonique sur l'onde fondamentale.

Le calcul de l'onde harmonique dans la direction θ et 0 permet de calculer les contributions d'auto-modulation et de modulation de phase croisée du faisceau fondamental dans la direction θ due à l'effet de cascade $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$. L'équation à résoudre est alors

$$\left[\frac{\partial}{\partial z} + \frac{i}{2k_1} \Delta_{\perp} \right] E_1(x, y, z) = i\sigma E_{10}^*(x, y, z) E_{20}(x, y, z) e^{i\Delta k z} \quad (3.43)$$

où $E_{10}^*(x, y, z)$ et $E_{20}(x, y, z)$ sont les champs électriques fondamentaux et harmoniques que nous avons calculés plus haut. Par contre, on pose :

$$E_1(x, y, z, t) = a_1(z) e^{ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z + \theta x} + b_1(z) e^{ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z - \theta x}$$

Dans la direction θ , l'équation à résoudre s'écrit :

$$\begin{aligned} \left[\frac{\partial}{\partial z} + \frac{i}{2k_1(\theta)} \Delta_{\perp} \right] a_1(z) e^{ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z + \theta x} \\ = i\sigma c_2(z) b_1^*(z) e^{-ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z - \theta x} e^{i\Delta k z} \\ + i\sigma a_2(z) a_1^*(z) e^{-ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z + \theta x} e^{2ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z + \theta x} e^{i\Delta k z} \end{aligned}$$

En développant cette équation, nous obtenons :

$$\begin{aligned} \frac{\partial a_1(z)}{\partial z} &= i \frac{2\sigma^2 a_{10} b_{10}^2}{\Delta K} [1 - e^{-i\Delta K z}] \\ &+ i \frac{\sigma^2 a_{10}^3}{\Delta K_{auto}} [e^{i\Delta K_{auto} z} - 1] \end{aligned} \quad (3.44)$$

où $\Delta K = 2 \frac{k_1(\theta)\theta^2}{2} - \Delta k$ et $\Delta K_{auto} = \Delta k - 2\beta k_1(\theta)\theta$. Les solutions sont alors :

$$\begin{aligned} a_1(z) &= i \frac{2\sigma^2 a_{10} b_{10}^2}{\Delta K} \left[z - z e^{-i \frac{\Delta K z}{2}} \text{sinc} \left[\frac{\Delta K z}{2} \right] \right] \\ &- i \frac{\sigma^2 a_{10}^3}{\Delta K_{auto}} \left[z - z e^{i \frac{\Delta K_{auto} z}{2}} \text{sinc} \left[\frac{\Delta K_{auto} z}{2} \right] \right] \end{aligned} \quad (3.45)$$

Ainsi, dans la direction θ , nous pouvons ainsi décrire complètement la phase et l'intensité de l'onde modifié par effet de cascade. Si nous nous plaçons en régime pompe sonde ($a_{10} \ll b_{10}$), il est possible de négliger le processus d'auto-modulation ($\propto a_{10}^3$) par rapport au processus de modulation de phase croisée ($\propto a_{10}^2 b_{10}$). Le champ dans la direction θ s'écrit :

$$E_{10}(z) = a_{10} + a_1(z) e^{ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z} \quad (3.46)$$

$$= a_{10} \left[1 + i \frac{2I_p}{\Delta K P_c} \left[z - z e^{-i \frac{\Delta K z}{2}} \text{sinc} \left[\frac{\Delta K z}{2} \right] \right] e^{ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z} \right] \quad (3.47)$$

Dans le cas où $\frac{2I_p}{\Delta K P_c} \ll 1$, nous pouvons écrire :

$$E_{10}(z) = a_{10} e^{i\Phi(z)} e^{ik_1(\theta) \frac{\theta^2}{2} z} \quad (3.48)$$

où $\Phi(z) = \frac{2I_p}{\Delta K P_c} \left[z - z e^{-i \frac{\Delta K z}{2}} \text{sinc} \left[\frac{\Delta K z}{2} \right] \right]$ est une phase complexe. La partie réelle et la partie imaginaire de $\Phi(z)$ décrivent respectivement la modification d'intensité et de phase dues aux effets de cascade. Nous avons :

$$\begin{aligned} \Phi'(z) &= \mathcal{R}e(\Phi(z)) = \frac{I_p}{\Delta K^2 P_c} [\Delta K z - \text{sin} [\Delta K z]] \\ \Phi''(z) &= \mathcal{I}m(\Phi(z)) = \frac{4I_p}{\Delta K^2 P_c} \text{sin}^2 \left[\frac{\Delta K z}{2} \right] \end{aligned}$$

Notons que ces expressions peuvent être obtenues de manières différentes mais équivalentes : en effet, Bloembergen *et al.* ont donné la solution semi-analytique des équations couplées 3.28 sans prendre en compte la diffraction et la double réfraction. Le développement au premier ordre de leurs solutions en fonction du paramètre $\frac{P_c \Delta k^2}{I_p}$ permet aussi d'obtenir les expressions 3.49 [42]. Il est alors intéressant de noter que dès le premier ordre de rétroaction, le calcul perturbatif permet simplement de donner la variation de phase et d'intensité de l'onde fondamentale.

Toutefois, dans notre calcul, la prise en compte de la double réfraction et de la diffraction induit un décalage du maximum des sinus cardinaux traduit par $\Delta K = 2 \frac{k_1(\theta) \theta^2}{2} - \Delta k$ et $\Delta K_{auto} = \Delta k - 2\beta k_1(\theta) \theta$. Ces décalages ont été mis en évidence dans les mesures d'auto-diffractions spatiales (Fig. 2.25(a) et 2.25(b)). Par contre, les mesures d'interférométrie spectrale sont réalisées avec une définition relative du désaccord de phase. Dorénavant, nous confondrons donc la notation ΔK avec Δk .

Finalement, ces solutions nous permettront de décrire les modifications de phase du faisceau sonde induites par le faisceau pompe en présence de génération de second harmonique. Il est intéressant de noter que l'expression 3.49 sera utile non seulement dans le cadre de la mesure de la phase spectrale mais aussi dans le chapitre suivant pour la mesure de la phase spatiale.

Phase nonlinéaire induite par effet de cascade.

Nous avons donc utilisé les expressions 3.49 pour décrire les phases nonlinéaires que nous avons mesurées par interférométrie spectrale. L'évolution comparée de la phase mesurée et de la phase calculée est représentée sur la figure 3.17 en fonction de Δk . Sur cette figure, nous avons aussi tracé la solution numérique calculée à partir de 3.28. D'après l'expression 3.49, connaissant précisément le désaccord de phase Δk et la longueur du cristal L , nous avons choisi de paramétrer les courbes en fonction du

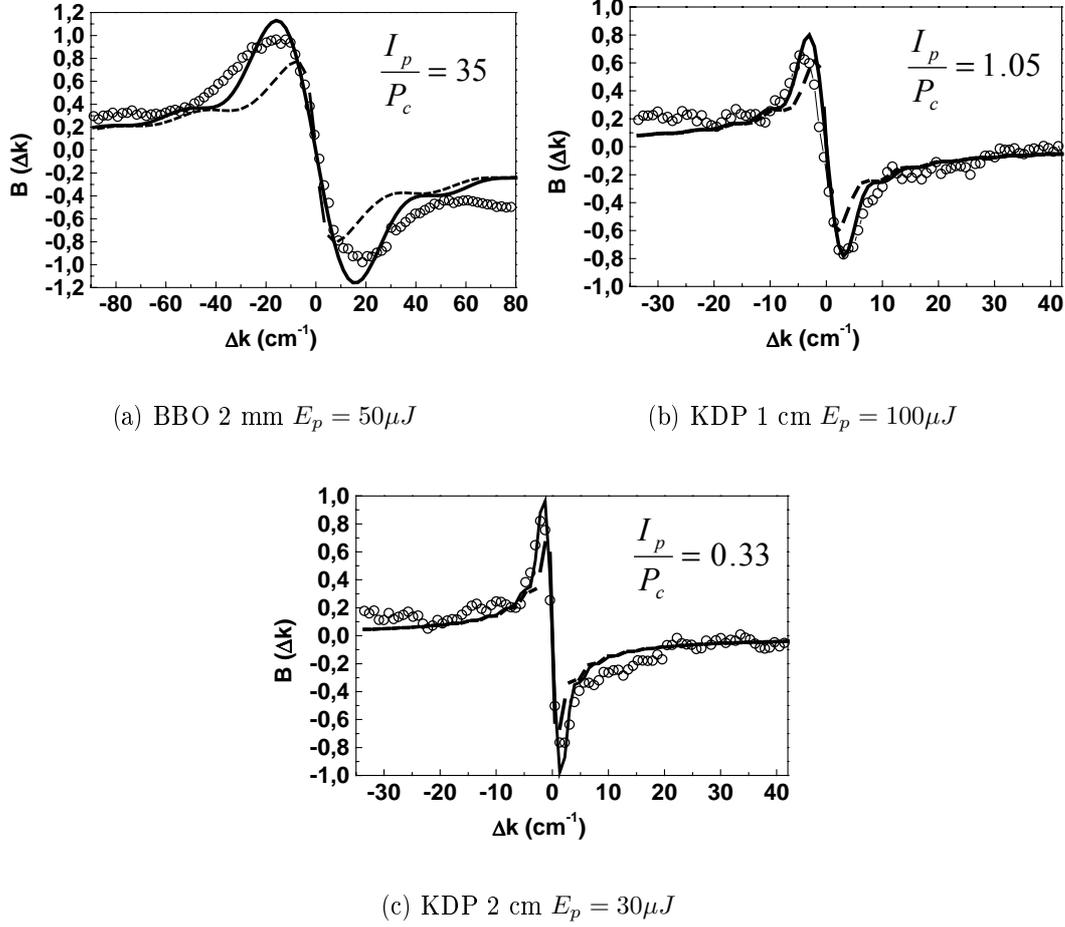


FIG. 3.17 — Comparaison entre la phase mesurée et la phase calculée en fonction de Δk . (Cercles : résultats expérimentaux, trait plein : expression analytique et segments : résultats numériques.

rapport $\frac{I_p}{P_c}$ où P_c est la puissance critique. Les rapports calculés soulignent deux points importants :

1. Le rapport de la puissance critique du BBO et du KDP mesuré à la même énergie ($E_p = 100\mu J$)¹⁰ donne la valeur $\left(\frac{P_c^{KDP}}{P_c^{BBO}}\right)^{mesure} = 67$ Sachant que théoriquement, $P_c^{KDP} = 1.88GW$ et $P_c^{BBO} = 0.035GW$ et donc $\left(\frac{P_c^{KDP}}{P_c^{BBO}}\right)^{theorique} = 53$, nous avons ici un accord satisfaisant.
2. Par contre, la phase nonlinéaire mesurée est plus faible que celle attendue. En effet, dans nos conditions expérimentales, pour un faisceau pompe avec une énergie de $100\mu J$, l'intensité crête est de $16GW/cm^2$. Pour de telles intensités crêtes, lorsque $\Delta kL = \pi$, nous nous attendons à des amplitudes proches de π dans le KDP.

¹⁰Pour cela, nous avons extrapolé le paramètre $\frac{I_p}{P_c}$ du BBO à $100\mu J$.

3.1.8 Limites de la mesure de la phase spectrale par interférométrie.

Le désaccord entre l'amplitude de la phase mesurée et celle attendue nécessite d'apporter deux limites à notre mesure de phase par interférométrie spectrale :

- Tout d'abord, comme nous l'avons précisé dans la description de notre dispositif expérimental, l'analyse de la phase spectrale de l'onde sonde ne se fait pas au maximum d'intensité mais à environ 70%. Ceci est dû au fait que nous avons utilisé une réflexion interne et externe sur une lame non-traitée pour créer les deux impulsions sondes interférant dans le spectromètre. Les impulsions qui interfèrent ne sont donc pas parfaitement superposées et ceci réduit l'amplitude de la phase mesurée.
- Ensuite, dans la description théorique de notre expérience, nous n'avons pas pris en compte la distance de propagation entre le cristal nonlinéaire et le spectromètre. Or cette distance de propagation est de $2m$. Au premier abord, comme la longueur de Rayleigh [32] (égale à $z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \sim 2m$) est comparable à cette distance, il semblait inutile d'imager le faisceau à la sortie du cristal sur la fente d'entrée du spectromètre. Or cette argument n'est plus valable lorsque l'on considère une phase nonlinéaire de type Kerr ou de cascade. Il faut alors considérer les couplages entre la phase spatiale et la phase temporelle. En effet, que ce soit dans le domaine temporel ou spatial, en présence de cette phase nonlinéaire, le milieu se comporte comme une lentille. Comme nous le montrerons au chapitre suivant, la focale de cette lentille est inversement proportionnelle à la phase induite. Dans ces conditions, la notion de longueur de Rayleigh perd son sens. Ainsi, la phase temporelle, et donc, la phase spectrale est moyennée par la propagation du champ électrique portant la phase nonlinéaire $\phi(x, y, t)$.

Ce dernier aspect qui semble négatif pour notre objectif de mesure de l'effet de cascade dans le domaine spectral ouvre toutefois des perspectives intéressantes pour la compréhension des phénomènes spatio-temporels lors de la propagation d'une phase nonlinéaire. Pour mieux appréhender l'influence de cette limitation sur notre mesure, nous avons développé récemment une approche analytique simple de cette propagation.

3.1.9 Conclusion.

Les mesures de phases spectrales des impulsions en présence de l'effet de cascade sont riches d'enseignements. Les résultats obtenus démontrent clairement la complémentarité de ce type de caractérisation avec les mesures d'intensités réalisées par auto-diffraction.

La technique d'interférométrie spectrale est une technique précise pour caractériser la lentille temporelle induite par effet de cascade. Pour la compensation de l'intégrale B, il est intéressant de noter que la phase spectrale induite, positive mais surtout négative, est constante sur le spectre de l'impulsion large. De plus, les amplitudes de ces phases sont importantes, que ce soit pour les cristaux de KDP et de BBO. Mais les cristaux de BBO présentent une plage plus importante pour la compensation due à leur acceptation spectrale. Nous avons mesuré pour chaque cristal, un maximum de la phase autour de $\Delta kL \sim \pi$.

Enfin, nous avons mis en évidence des caractéristiques importantes de la dynamique de la phase nonlinéaire induite par effet $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$. Lorsque $\Delta k \sim 0$, la phase nonlinéaire ne peut plus être simplement décrite par une phase de type Kerr proportionnelle à l'intensité de l'onde laser. A $\Delta k = 0$, La forte modulation observée sur la phase spectrale et la variation d'intensité indique que nous décrivons une résonance de la susceptibilité nonlinéaire. Dans ce cas, nos expériences ont montré, en accord avec les mesures d'auto-diffractions, qu'il faut prendre en compte, non seulement la partie réelle de la phase due à l'effet de cascade mais aussi sa partie imaginaire.

Les limitations que nous avons émises sur notre mesure offrent des perspectives intéressantes. Nous avons négligé ici les couplages entre le domaine spatial et temporel. Dans le chapitre suivant, nous décrirons la lentille nonlinéaire spatiale. Nous verrons qu'elle est l'analogue de la lentille temporelle que nous avons décrite ici. Toutefois, pour éviter l'influence de la propagation de la phase nonlinéaire, nous modifierons le dispositif expérimental en imageant le front d'onde sur notre détection.

3.2 Caractérisation de la lentille spatiale induite par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux.

Dans le paragraphe précédent, la partie spectrale de l'intégrale $B(\vec{r}, t)$ a été caractérisée par une mesure interférométrique de la phase de l'impulsion laser en présence de génération de second harmonique. Dans cette partie, nous caractériserons la phase spatiale de l'onde laser induite par effet de cascade. Cette caractérisation nous amènera alors à définir précisément une expérience de compensation de l'intégrale B spatiale induit par un processus d'ordre trois.

Toutefois pour cette application, nous devons mettre en place une mesure de front d'onde précise et adaptée aux faisceaux lasers issus d'une chaîne de puissance. Dans ce but, nous ferons une mesure absolue de la phase spatiale à l'aide d'un analyseur de surface d'onde. Cette mesure se démarque des précédentes sur deux points :

- Tout d'abord, c'est une mesure directe dans le domaine spatial de la phase nonlinéaire induite par effet de cascade.
- Ensuite et au contraire des mesures de Z-scan, elle possède l'avantage d'être insensible ou peu sensible à la forme spatiale du faisceau utilisé. Ceci est un avantage lors de la mesure de phases importantes ($\sim \frac{\pi}{2}$) à partir desquelles des modulations d'amplitudes associées aux modulations de phases peuvent apparaître.

Nous allons montrer dans ce paragraphe la similarité entre la variation d'indice induite par l'effet Kerr (n_2^{Kerr}) et celle induite en présence de la génération de second harmonique (n_2^{GSH}). Les deux effets peuvent être décrits par une lentille nonlinéaire équivalente. Toutefois une différence importante existe avec l'effet Kerr : il est possible d'inverser la focale de la lentille en changeant le signe du désaccord de phase. Ce phénomène sera mis à profit dans le domaine spatial pour corriger un indice $n_2^{(Kerr)}$ positif par un indice $n_2^{(GSH)}$ négatif.

Avant de présenter ces résultats, nous commencerons par un rappel de la description d'une lentille nonlinéaire spatiale induite par des effets nonlinéaires d'ordre trois.

3.2.1 Lentille nonlinéaire induite par une nonlinéarité d'ordre trois.

Un faisceau laser se propageant dans un milieu possédant une nonlinéarité d'ordre trois subit des déformations spatiales et temporelles. Ces déformations résultent des nonlinéarités d'ordre trois intrinsèques du milieu. Ces nonlinéarités optiques de type Kerr se traduisent par une modification de l'indice du milieu traversé par l'impulsion laser, n_2^{Kerr} [34]. Nous nous intéressons ici plus particulièrement au phénomène d'auto-

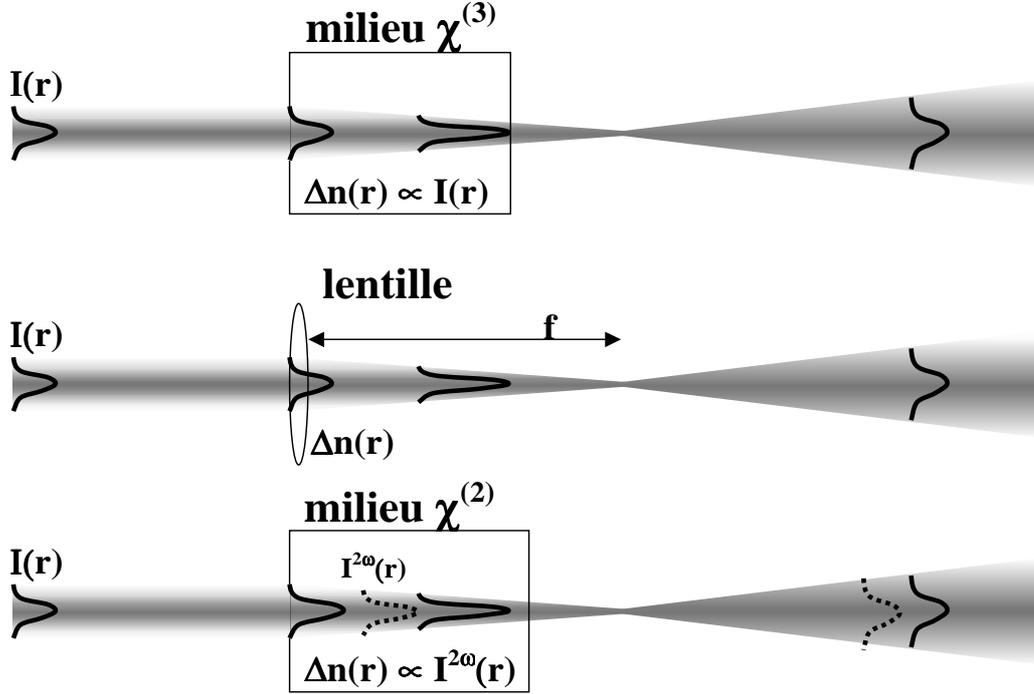


FIG. 3.18 — Lentille nonlinéaire créée par une nonlinéarité de type Kerr et par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux : analogie avec une lentille épaisse.

focalisation induit et subi par un faisceau laser lors de sa propagation dans un milieu nonlinéaire. Cette auto-focalisation résulte de la formation d'une lentille spatiale dans le milieu. Elle est en particulier induite via les effets nonlinéaires si le faisceau laser a une structure spatiale non uniforme et en particulier gaussienne. Notons que ce faisceau peut se propager sans déformation spatiale, s'il possède une puissance P égale à la puissance critique P_{auto} définie par $P_{auto} = \frac{\lambda^2}{8\pi n_0 n_2^{Kerr}}$ [32]. Suivant que $P > P_{auto}$ ou $P < P_{auto}$, le faisceau s'auto-focalise ou se défocalise. Ainsi, le milieu se comporte comme une lentille dont la focale dépend de l'intensité laser (Fig. 3.18).

Il est possible de trouver une expression donnant la focale de cette lentille nonlinéaire en fonction de différents paramètres. Pour calculer cette expression, nous allons considérer une onde laser qui traverse un matériau mince de longueur L . Lors de sa propagation dans le milieu, le champ électrique, $E(x, z) = A(x)e^{ik_0z}$, de l'onde laser de vecteur d'onde k_0 acquiert une phase nonlinéaire. Celle-ci s'écrit :

$$\phi(x) = k_0 n_2^{Kerr} |A(x)|^2 L \quad (3.49)$$

Pour un faisceau ayant une distribution d'énergie gaussienne $A(x) = \sqrt{I_0} e^{-2\log(2)\left(\frac{x}{\Delta x}\right)^2}$,

on obtient par développement limité de $|A(x)|^2$ autour de $x = 0$:

$$\begin{aligned} E(x) &= A(x)e^{-i\Phi(x)} = A(x)e^{ik_0n_2^{Kerr}|A(x)|^2L} \\ &= A(x)e^{ik_0n_2^{Kerr}L} e^{-4\log(2)ik_0n_2^{Kerr}I_0L\left(\frac{x}{\Delta x}\right)^2} \end{aligned} \quad (3.50)$$

où Δx est la largeur à mi-hauteur du faisceau. Cette expression est analogue à celle décrivant la phase spatiale acquise par un faisceau gaussien traversant une lentille de focale f :

$$E(x) = E_0 e^{-\frac{k_0 x^2}{2f}} \quad (3.51)$$

En combinant l'expression 3.50 avec l'expression 3.51, la distance focale de la lentille nonlinéaire s'écrit :

$$f^{nonlinéaire} = \frac{\Delta x^2}{8\log(2)n_2^{Kerr}I_0L} \quad (3.52)$$

Cette approche permet de donner une expression approchée de la lentille induite par des effets nonlinéaires dans les chaînes laser. En effet, les milieux des chaînes amplificatrices possèdent des indices nonlinéaires de type Kerr ($n_2^{(Kerr)}$). Ils créent donc dans le milieu des lentilles dont la focale est généralement positive car $n_2^{(Kerr)} > 0$. Des effets thermiques peuvent aussi induire des effets similaires. Cette image que nous venons de présenter suggère que dans le domaine spatial, la compensation du front d'onde est possible. Il suffit de faire passer le faisceau laser par une lentille de focale inverse. Les fronts d'onde imposés par la lentille de focale positive et négative se compensent alors exactement. Nous allons maintenant montrer que les effets de focalisation et défocalisation induit par une cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux peuvent être décrits par le même formalisme.

3.2.2 Analogie avec la lentille nonlinéaire induite par cascade de nonlinéarité d'ordre deux.

Une analogie avec l'effet Kerr peut être proposée pour décrire le comportement spatial d'une onde laser se propageant dans un milieu en présence d'une nonlinéarité induite par cascade d'effet d'ordre deux $n_2^{GSH} = \frac{-2}{k_0\Delta k P_c}$. La phase nonlinéaire induite par ce phénomène est proportionnelle à l'intensité $I(\vec{r})$ de l'onde. Lors de la génération de second harmonique, la focale induite par cascade d'effets nonlinéaire est relié à l'indice nonlinéaire n_2^{GSH} via la relation 3.52 :

$$f^{cascade} = \frac{\Delta x^2}{8\log(2)n_2^{GSH}I_0L} = -\frac{\Delta x^2}{8\log(2)} \frac{\Delta k P_c}{2I_0L} \quad (3.53)$$

Notons dès à présent que le rayon de courbure du front d'onde R_c d'une telle lentille est égale à $R_c = f^{cascade}$. La focale de la lentille est donc directement proportionnelle

au désaccord de phase Δk et inversement proportionnel à la nonlinéarité n_2^{GSH} induite. Ainsi la vergence définie par $\nu^{cascade} = \frac{1}{f_{cascade}}$ diverge autour de $\Delta k = 0$. Nous verrons qu'une expression plus complète de la phase nonlinéaire est nécessaire pour décrire correctement les résultats expérimentaux autour de l'accord de phase $\Delta k = 0$. Notons également que cette expression n'est valable que si l'on peut négliger l'atténuation de l'onde laser au cours de sa propagation dans le cristal.

3.2.3 Caractérisation de la lentille spatiale induite par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux.

Pour caractériser la lentille nonlinéaire induite dans le milieu via le couplage entre l'onde fondamentale et l'onde harmonique, nous avons choisi d'utiliser un montage pompe-sonde non-colinéaire. L'objectif de ce montage est la mise en évidence et la mesure, à l'aide d'un analyseur de surface d'onde de type Shack-Hartmann, de la lentille induite par un faisceau pompe dans le cristal. Cette lentille focalisera le faisceau sonde. La géométrie non-colinéaire choisie nous permet d'éviter le phénomène associé à l'auto-focalisation du faisceau pompe. Par ailleurs, nous négligerons les effets auto-induits par le faisceau sonde. Cette géométrie limite les effets de couplage et facilite la modélisation du problème.

Description du montage expérimental

Le montage expérimental est présenté sur la figure 3.19. Le faisceau laser est délivré par un amplificateur régénératif Ti :Sapphire fonctionnant à un taux de répétition de 10 Hz. A la sortie du compresseur de l'amplificateur, les impulsions ont une durée temporelle de l'ordre de 500 fs avec une largeur spectrale $\delta\lambda_0 \sim 5nm$ centrée à $\lambda_0 = 1053nm$. La taille du faisceau est de l'ordre du 3 mm. L'énergie des impulsions est au plus égale à 1 mJ. A l'aide d'un système composé d'un prisme de Glan et d'une lame $\frac{\lambda}{2}$, nous contrôlons l'énergie envoyée sur notre montage expérimental. Une lame séparatrice prélève 10% de l'énergie du faisceau issu de l'amplificateur pour créer un faisceau sonde. Lorsqu'ils interagissent dans le cristal nonlinéaire, les faisceaux pompe et sonde font un petit angle $\alpha \sim 2^\circ$. Enfin, à l'aide d'une ligne à retard placée sur le faisceau pompe, les impulsions pompe et sonde sont temporellement synchronisées à l'intérieur du cristal.

Les cristaux utilisés sont décrits en annexe IV. Ce sont des cristaux doubleurs (BBO ou KDP) taillés pour une interaction de type I ooe. Pour ce type d'interaction, la polarisation des faisceaux pompe et sonde est parallèle à l'axe ordinaire du cristal. La rotation de celui-ci autour de cet axe, est réalisée à l'aide d'un moteur pas à pas. Il

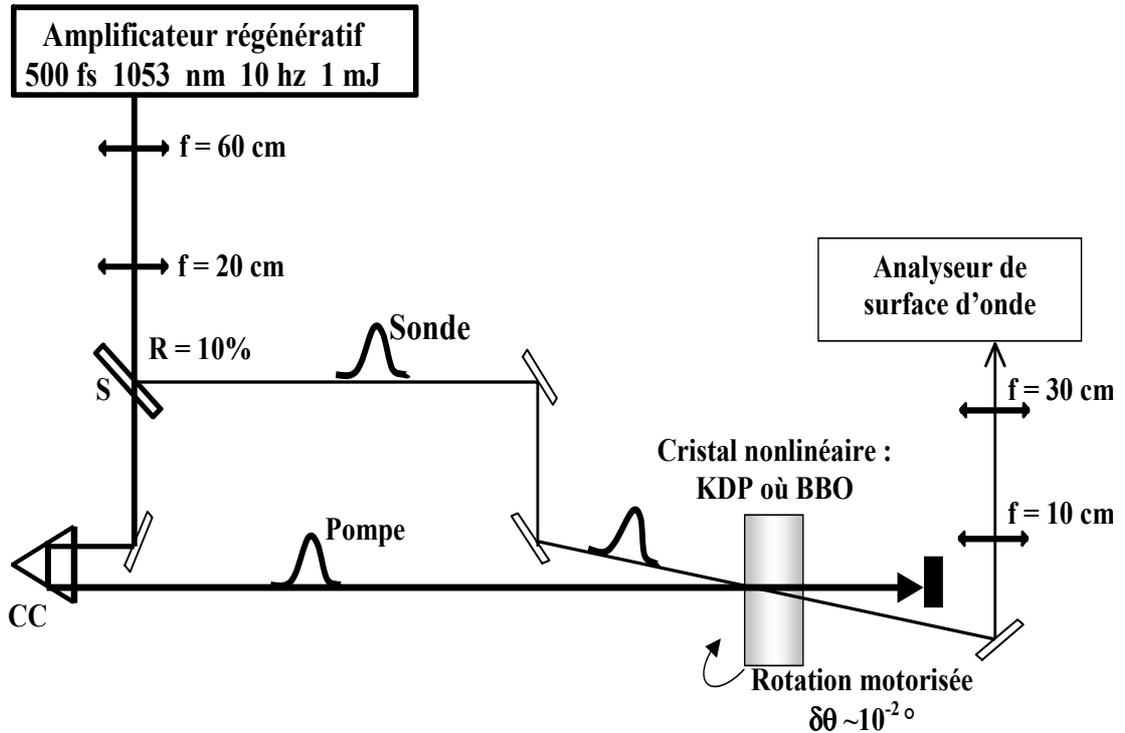


FIG. 3.19 — Montage d'expérimental pompe-sonde de la mesure de front d'onde du faisceau sonde (S : Séparatrice, CC : coin de cube).

permet de faire varier avec précision le désaccord de phase. La précision angulaire de la platine utilisée est égale à $\delta\theta = 0.01^\circ = 0.17\text{mrad}$. Un système afocal composé de deux lentilles convergentes nous permet de diminuer la taille du faisceau ($w_0 \sim 1\text{mm}$) avant la lame séparatrice. Cette diminution du col du faisceau, nous permet d'obtenir des puissances importantes au niveau du cristal non linéaire.

A la sortie du cristal, le faisceau sonde est imagé sur l'analyseur de surface d'onde à l'aide d'un système grandisseur 1 : 3. Le grandissement permet de couvrir un nombre suffisant de pixels sur la CCD¹¹ de l'analyseur et permet d'analyser avec une bonne résolution le front d'onde du faisceau sonde.

Mesure du front d'onde : analyseur de surface d'onde de type Shack-Hartmann.

L'analyseur de surface d'onde de type Shack-Hartmann a été conçu pour caractériser les fronts d'onde des champs optiques. La mesure est sensible ($< \frac{\lambda}{20}$) et peut être réalisée en temps réel. Des applications ont été démontrées dans plusieurs domaines, que ce soit l'astronomie, la médecine ou la technologie laser. Une des plus importantes

¹¹Charge Coupled Device : camera à transfert de charge.

applications concerne l'optique adaptative. Couplé à un système de miroirs déformables ou de modulateur de phase dans une boucle rétroactive, il permet la compensation de distortions de fronts d'onde associées à des phénomènes thermiques dans les lasers de puissance.

Principe de fonctionnement de l'ASO.

Le principe de base est décrit sur la figure 3.20. La mesure consiste à estimer les pentes locales du front d'onde pour chaque micro-lentille à l'aide d'une caméra CCD. Le signal mesuré est uniquement associé à la position des points de focalisation des microlentilles sur la camera CCD. Un algorithme de reconstruction permet alors de remonter à la phase spatiale $\Phi(x, y)$. Généralement, le front d'onde est défini à travers une pupille. Dans cette pupille, la phase spatiale est décrite par les polynômes de Zernike. C'est cette représentation - dite modale - que nous utiliserons. Le gradient

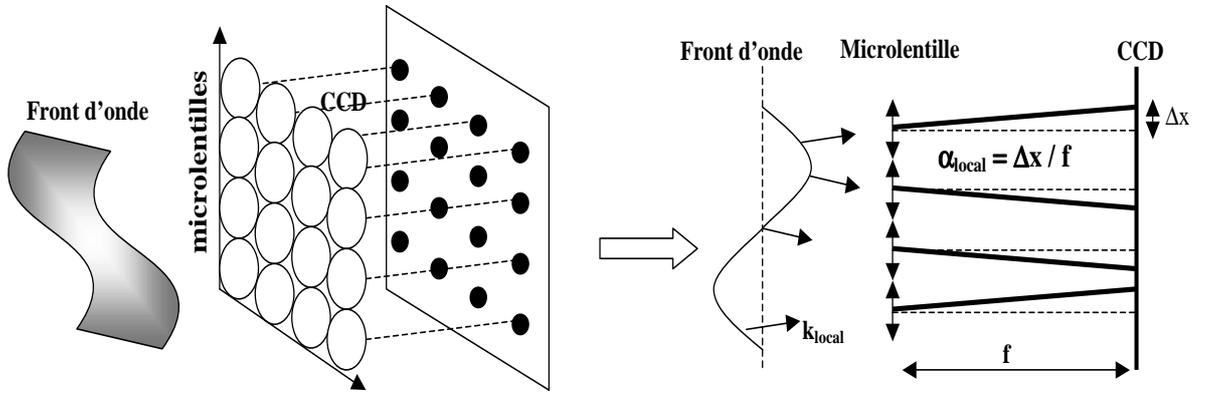


FIG. 3.20 — Schéma de principe de l'analyseur de surface d'onde en 3D et en 2D. La pente local α permet de remonter à l'inclinaison du vecteur d'onde local.

local de la phase est obtenue à partir des points de focalisation x^c et y^c . Connaissant le point central de la région de focalisation x^0 et y^0 , le gradient local de $\Phi(x, y)$ s'écrit :

$$\frac{\partial \Phi(x, y)}{\partial x} = \frac{x^c - x^0}{f} = \frac{S_x}{f} \quad (3.54)$$

$$\frac{\partial \Phi(x, y)}{\partial y} = \frac{y^c - y^0}{f} = \frac{S_y}{f} \quad (3.55)$$

où f est la focale de la micro-lentille considérée. De manière analogue, la dérivée de la phase peut s'écrire en fonction des polynômes de Zernike à deux dimensions $F_k(x, y)$:

$$\frac{\partial \Phi(x, y)}{\partial x} = \sum_{k=1}^M a_k \frac{\partial F_k(x, y)}{\partial x} \quad (3.56)$$

$$\frac{\partial \Phi(x, y)}{\partial y} = \sum_{k=1}^M a_k \frac{\partial F_k(x, y)}{\partial y} \quad (3.57)$$

M , a_k sont respectivement l'ordre de développement dans la base de Zernike et les coefficients à déterminer. La notation matricielle plus souvent utilisée est la suivante :

$$S = A.\alpha \quad (3.58)$$

où α est la matrice des coefficients de Zernike a_k . Les premiers coefficients de Zernike sont représentés dans le tableau 3.2.3. Les calculs des polynômes de Zernike effectués permettent de représenter le front d'onde de l'impulsion.

ordre k	Nom de l'aberration	Fonction $F_k(X, Y)$
1	Tilt dans la direction X	X
1	Tilt dans la direction Y	Y
2	Focus	$-1 + 2(X^2 + Y^2)$
2	Astigmatisme à 0° et 0°	$Y^2 - X^2$
2	Astigmatisme à $\pm 45^\circ$	$2XY$
3	Coma suivant l'axe x	$-2X + 3XY^2 + 3X^3$
3	Coma suivant l'axe Y	$-2Y + 3Y^3 + 3X^2Y$

Notons qu'à partir des spots recueillis sur la matrice CCD, il est aussi possible de reconstruire l'intensité du faisceau incident. Par exemple, la phase spatiale et l'intensité d'un faisceau laser issu d'un amplificateur régénératif sont représentées sur la figure 3.21.

Conditions expérimentales d'utilisation de l'analyseur de surface d'onde.

L'HASO 64 que nous avons utilisé ¹² possède les caractéristiques suivantes. Il possède 64x64 micro-lentilles permettant d'échantillonner la surface d'onde à mesurer. Les intensités sont enregistrées sur une camera CCD composée d'une matrice de 1024x1024 pixels. La surface utile de mesure de la surface d'onde est de 12x12mm. Ce système de détection est couplé à un ordinateur qui traite les mesures en temps réel. Il fournit une mesure précise du front d'onde laser à travers les différents paramètres calculés :

¹²vendu par Imagine Optics.

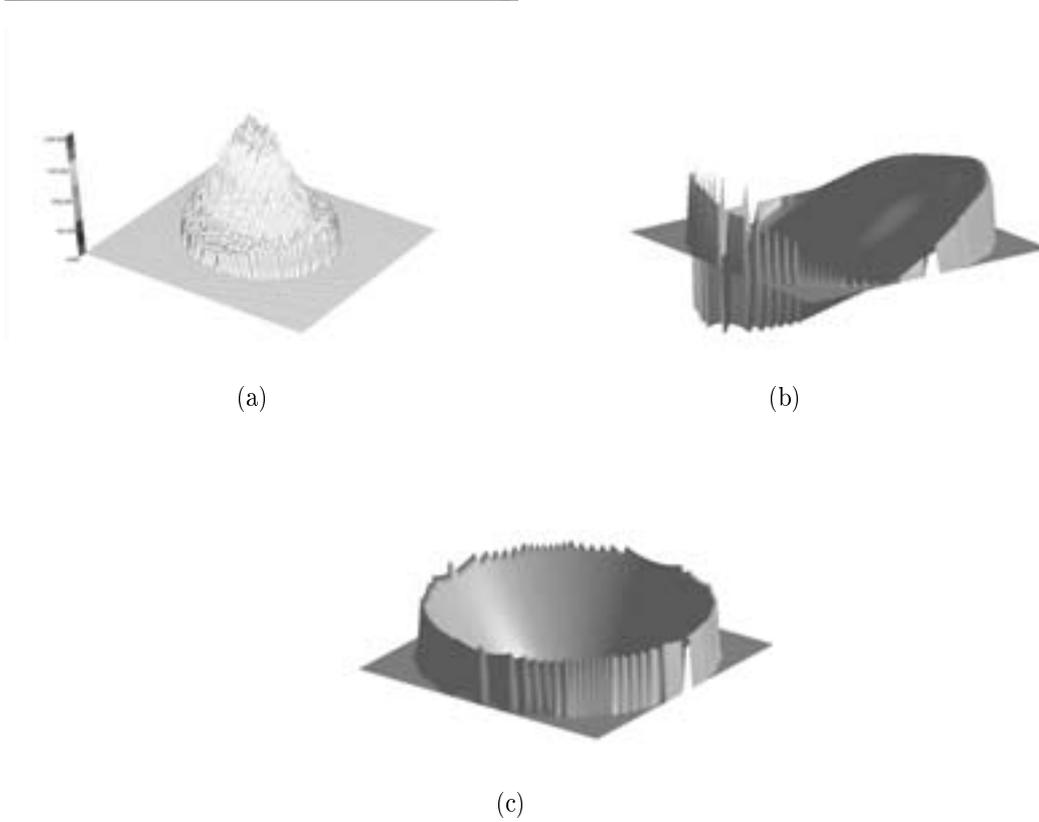


FIG. 3.21 — Exemple de mesure d'intensité (a) et de phase (b) et (c) (tilt et focus) mesuré par l'analyseur de surface d'onde.

courbure du front d'onde, intensité reconstruite du faisceau, valeur moyenne et hauteur pic-vallée de la phase reconstruite ainsi que les coefficients de Zernike. L'acquisition est synchronisée sur la fréquence de répétition de notre laser impulsionnel ($f_{rep} = 10Hz$). Les facilités de réglages sont alors évidentes. Compte-tenu de la sensibilité de la caméra, la caractérisation de faisceau issu d'un amplificateur régénératif nécessite l'utilisation d'un atténuateur calibré pour éviter de saturer les détecteurs formant la caméra CCD.

Les mesures de front d'onde ont été effectuées sur des impulsions femtosecondes ($\sim 500fs$). Cette mesure spatiale du front d'onde est donc une moyenne temporelle sur la durée d'impulsion de la phase réelle de l'impulsion sonde. Ainsi pour décrire la modification de phase effectivement induite au niveau du cristal à partir de la valeur enregistrée, nous devons tenir compte de la variation temporelle de la phase dans notre traitement. L'analyseur de surface d'onde intègre la phase temporelle de l'onde analysée. Ainsi, notre mesure de la phase spatiale est la moyenne de la phase temporelle $\phi(t) \propto I(t)$. Nous pouvons écrire :

$$\Phi_{mesure}(x, y) = \langle \Phi(x, y, t) \rangle_t \propto \Phi(x, y) \langle I(t) \rangle_t \quad (3.59)$$

Ainsi, si nous considérons une forme gaussienne temporelle, nous pouvons obtenir le facteur correctif sur notre mesure de phase :

$$\Phi_{mesure}(x, y) = \sqrt{\pi}\Phi(x, y) \quad (3.60)$$

Ce calcul montre que, lors de la mesure d'une phase spatiale, la moyenne temporelle modifie l'amplitude de la phase enregistrée par l'analyseur de surface d'onde.

3.2.4 Mesure de la nonlinéarité n_2^{GSH} par mesure de front d'onde.

Expression de la focale de la lentille nonlinéaire à partir des mesures de front d'onde.

La déformation du front d'onde est la conséquence de la phase nonlinéaire acquise par l'impulsion sonde lors de sa propagation dans le milieu nonlinéaire. Ce paragraphe décrit la méthode permettant de déduire la phase nonlinéaire induite au niveau du cristal à partir de la courbure du front d'onde mesuré par l'analyseur. Cette méthode est développée en considérant un faisceau gaussien se propageant tout d'abord dans un cristal, où il subit une focalisation induite par la lentille nonlinéaire, et qui est ensuite envoyé vers l'analyseur de surface d'onde au travers d'un système de grandissement (Fig. 3.22). Le faisceau gaussien est décrit classiquement [32] :

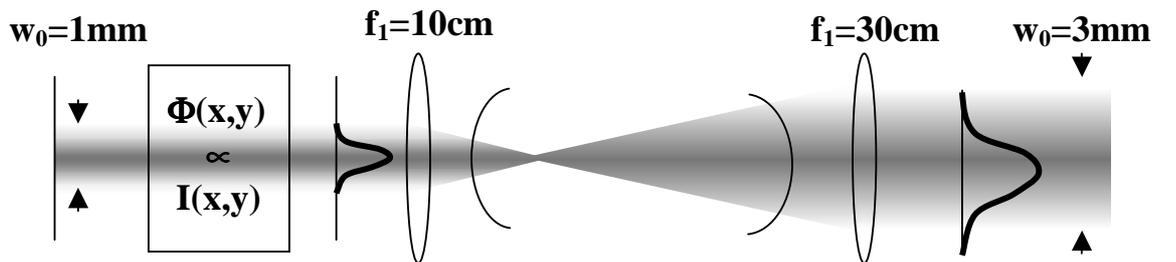


FIG. 3.22 — Mesure de front d'onde après le transport du faisceau modifié par la phase nonlinéaire $\Phi(x, y) \propto I(x, y)$.

$$E(x, y, z) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} e^{-i[kz - \eta(z)] - r^2 \frac{h}{w^2(z)} + \frac{ik}{2R(z)}} \quad (3.61)$$

avec $k = \frac{2\pi}{\lambda_0}$ est le vecteur d'onde moyen du faisceau. $w(z)$ et $R(z)$ sont respectivement le "beam-waist" et le rayon de courbure du front d'onde du faisceau gaussien au point

z. L'expression 3.61 souligne que le paramètre gaussien $q(z)$ défini comme étant :

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R(z)} - i \frac{\lambda_0}{\pi n w^2(z)} \quad (3.62)$$

permet de définir la forme de cette onde gaussienne pour tous points z de la propagation. Le lecteur intéressé par le sujet trouvera dans [32] la loi de transformation de $q(z)$ dans différents milieux et par différentes optiques. La forme du champ électrique définie par le schéma 3.22 se calcule donc en déterminant l'évolution du paramètre $q(z)$ modifié par chaque optique.

Reprenons maintenant notre schéma expérimental. Au départ, le front d'onde du faisceau collimaté est plan. Ceci impose que $R_0 = \infty$ et la largeur du faisceau est égale à w_0 . Le paramètre gaussien q_0 est alors :

$$\frac{1}{q_0} = -i \frac{\lambda_0}{\pi n w_0^2} \quad (3.63)$$

Le milieu nonlinéaire agit comme une lentille dont la focale $f^{cascade}$ est décrite par l'expression 3.53. Après cette lentille, le front d'onde du faisceau est transformé. Les lois d'imagerie de l'optique géométrique nous permettent de calculer cette transformation. Le paramètre $q_1(z)$ s'écrit alors :

$$\frac{1}{q_1(z)} = \frac{1}{q_0} - \frac{1}{f^{cascade}} = -\frac{1}{f^{cascade}} - i \frac{\lambda_0}{\pi n w_0^2} \quad (3.64)$$

Ce paramètre permet de calculer la taille du faisceau, $w_1 = w_0$ et le rayon de courbure du front d'onde $R_1 = f^{cascade}$ à la sortie du cristal. Ce front d'onde est alors imagé sur l'analyseur de surface d'onde par deux lentilles convergentes de focale $f_1 = 10cm$ et $f_2 = 30cm$. Le transport du faisceau par cette imagerie est développé en annexe III. A partir de l'expression 4.61, le paramètre gaussien à l'entrée de l'analyseur de surface d'onde est dans notre cas :

$$\frac{1}{q_f} = g^2 f^{cascade} - i g^2 \frac{\lambda_0}{\pi n w_0^2} \quad (3.65)$$

L'utilisation d'un système afocal de grandissement $g = 3$ se traduit par un agrandissement du rayon de courbure égal à $g^2 = 9$. La relation suivante permet donc de relier le rayon de courbure mesuré sur l'analyseur à la focale induite dans le cristal : $R_{analyseur} = 9R_0 = 9f^{cascade}$.

Caractérisation expérimentale de la lentille nonlinéaire induite par cascade d'effet nonlinéaire d'ordre deux.

Le schéma expérimental précédent permet de précisément mesurer la variation d'indice nonlinéaire (n_2^{GSH}) induite par la génération de second harmonique sur le faisceau fondamental.

La relation $n_2^{GSH} = \frac{-2}{k_0 \Delta k P_c}$ indique qu'en changeant le désaccord de phase Δk , il est possible d'inverser le signe de la nonlinéarité n_2^{GSH} . Nous l'avons vérifié à l'aide de notre dispositif expérimental. Pour cela, nous avons préalablement mesuré la phase spatiale de l'impulsion sonde en l'absence du faisceau pompe (fig. 3.23b). La phase mesurée dans cette situation est pratiquement plane. Cette mesure permet de définir la phase de référence de l'onde sonde. Dans un premier temps, nous avons mesuré les

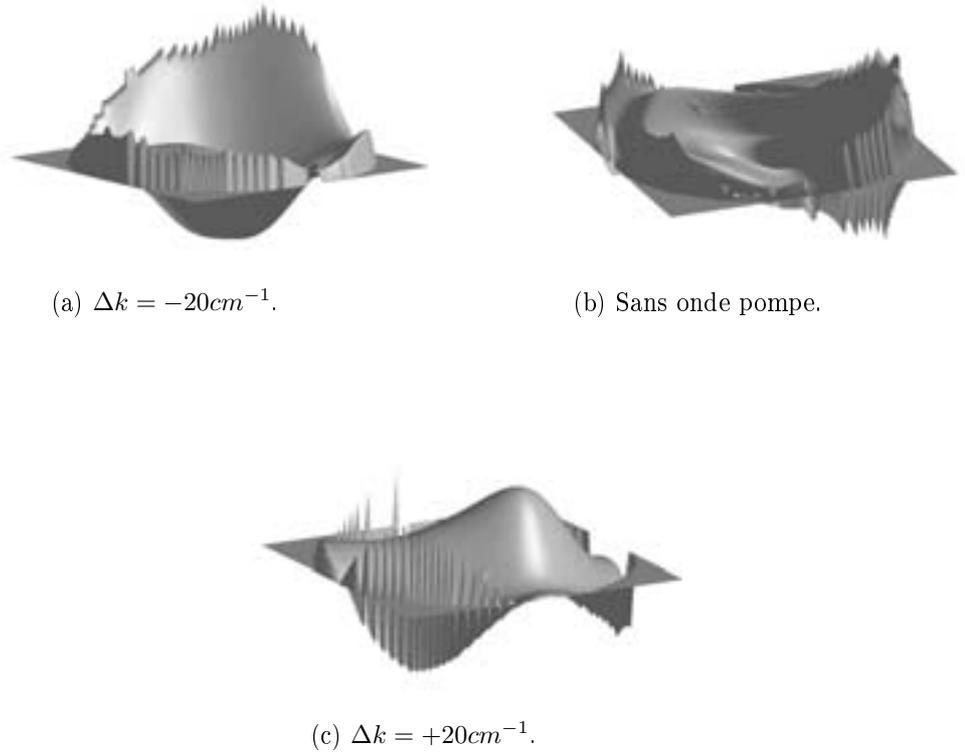


FIG. 3.23 — Illustration de l'inversion du front d'onde en présence du faisceau pompe pour un cristal de BBO de 2 mm avec $E_p = 300 \mu J$.

modifications de phase apportées lors de l'interaction avec le faisceau pompe dans le cristal de BBO de longueur $L = 2$ mm. L'énergie du faisceau pompe était de $300 \mu J$ tandis que la sonde était de $30 \mu J$. Les résultats sont présentés sur la figure 3.23a et 3.23c pour deux désaccords de phase opposés $\Delta k = \pm 20 \text{ cm}^{-1}$. La mesure a été effectuée en retranchant la phase de référence à la phase totale mesurée 3.23a. La figure 3.24 montre une coupe des différents fronts d'onde de l'onde sonde dans la direction Y. Ces mesures nous permettent de caractériser la lentille nonlinéaire induite par effet de cascade.

- La forme du front d'onde mesuré est essentiellement une courbure associée à une phase nonlinéaire d'ordre deux (focus). Les mesures des différents rayons

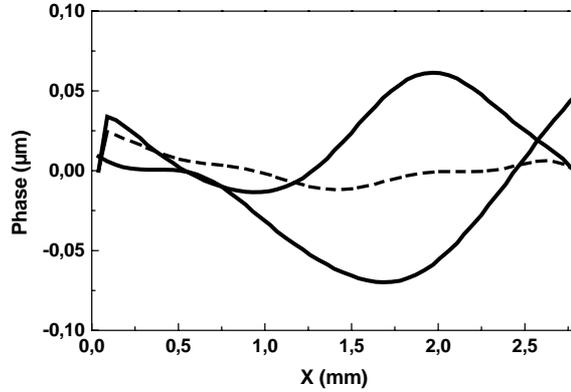


FIG. 3.24 — Phase spatiale (coupe suivant Y) de l'onde sonde pour $\Delta k = \pm 20 \text{ cm}^{-1}$ (trait plein), et $\Delta k = 0 \text{ cm}^{-1}$ (pointillés).

de courbures ($R^{\text{reference}} = 51 \text{ m}$, $R^{+\Delta k} = -11 \text{ m}$ et $R^{-\Delta k} = 12 \text{ m}$) indiquent clairement l'inversion de la phase de l'impulsion sonde sous l'action de l'impulsion pompe.

- Les données représentées sur la figure 3.24 permettent de remonter à la phase nonlinéaire induite par effet de cascade. Le rayon de courbure mesuré étant de l'ordre de $\pm 11 \text{ m}$, le rayon induit au niveau du cristal avant l'imagerie est $R_0 = 1.2 \text{ m}$. Ce rayon de courbure est égal à la focale de la lentille nonlinéaire induite par effet de cascade f^{cascade} . Ainsi, la phase nonlinéaire au sommet du faisceau est égale à (Eq. 3.53) :

$$\Phi^{\text{cascade}} = \frac{k_0 \Delta x^2}{8 \log(2) f^{\text{cascade}}} = 0.89 \text{ rad} \quad (3.66)$$

où $\Delta x = 1 \text{ mm}$ est la largeur totale à mi-hauteur du faisceau. Comme nous l'avons noté auparavant, la mesure moyenne la phase temporelle induite. Ainsi, en appliquant le facteur correctif, nous obtenons :

$$\Phi^{\text{cascade}} = 0.8 \sqrt{\pi} = 1.57 \text{ rad} \quad (3.67)$$

Connaissant les conditions expérimentales, $I_{\text{pompe}} = 49 \text{ GW/cm}^2$ et $L = 2 \text{ mm}$, nous pouvons en déduire une valeur de l'indice nonlinéaire :

$$n_2^{\text{GSH}} = \frac{\Phi^{\text{cascade}}}{k_0 I_{\text{pompe}} L} = 2.610^{-19} \text{ m}^2/\text{W} \quad (3.68)$$

L'amplitude de cet indice nonlinéaire peut être comparée à la variation d'indice induite par effet Kerr $n_2^{\text{Kerr}} = 2.4 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ pour le cristal de BBO [44]. On montre ainsi qu'il est possible d'induire des phases importantes par effet de cascade et par conséquent, de compenser de fortes phases nonlinéaires positives.

Dans un deuxième temps, nous avons fait varier l'angle du cristal par rapport à la bissectrice des deux faisceaux pour passer continûment de $\Delta k = +60\text{cm}^{-1}$ à $\Delta k = -60\text{cm}^{-1}$. Nous vérifions ici que la phase nonlinéaire devient effectivement positive ou négative en fonction de Δk . Pour être plus quantitatif, nous avons enregistré les rayons

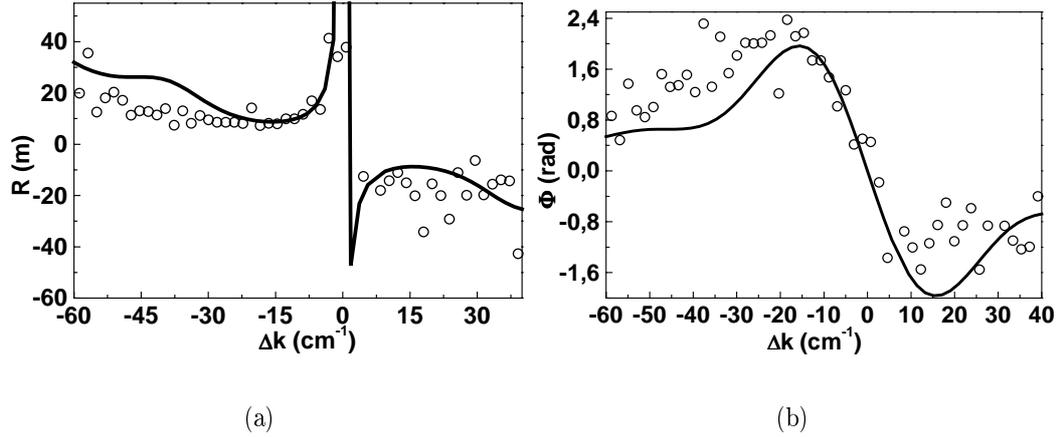


FIG. 3.25 — Evolution du Rayon de courbure et de la vergence ($\propto \frac{1}{R}$) en fonction de Δk pour un cristal de BBO de 2 mm avec $E_p = 300 \mu\text{J}$.

de courbures des différentes phases (Fig. 3.25(a)). La divergence qui apparaît pour $\Delta k = 0$ et Δk très grand ($> \pm 30\text{cm}^{-1}$) indique un front d'onde plat et donc un rayon de courbure qui diverge. Dans ces régions, la phase nonlinéaire acquise par le faisceau sonde est nulle. Par ailleurs, il est de nouveau possible de mettre en évidence l'inversion du rayon de courbure en fonction de Δk . Les rayons de courbure mesurés (Fig. 3.25(a)) possèdent la forme attendue. Lorsque Δk est grand, la phase induite par effet de cascade est faible et ainsi le rayon de courbure est peu modifié. Ceci est aussi vrai autour de $\Delta k = 0$ où l'on s'attend à ce que la phase nonlinéaire soit nulle. Par contre autour de $\Delta k = 0$ l'inversion du signe de la phase se remarque clairement. Ainsi, sur la figure (Fig. 3.25(b)), nous représentons l'évolution de l'inverse du rayon de courbure, aussi appelée vergence. Cette quantité a une signification plus physique puisqu'elle est proportionnelle à la nonlinéarité n_2^{GSH} (Eq. 3.53). Nous avons voulu vérifier l'évolution de la forme de de la courbe 3.25(b) pour une intensité différente. Par ailleurs, les études antérieures ont montré que la phase nonlinéaire induite dépend linéairement de l'intensité de l'onde pompe. Les résultats pour les cristaux de BBO ($E_{pompe} = 100\mu\text{J}$) sont présentés sur la figure 3.26(a) et 3.26(b). La courbe représentant la vergence en fonction du désaccord de phase est mieux définie pour cette intensité. Par contre, la forme est moins étendue que sur la figure 3.25(b). Notons enfin que, nous avons diminué l'intensité d'un facteur 3 et nous observons une diminution de la phase nonlinéaire du même facteur.

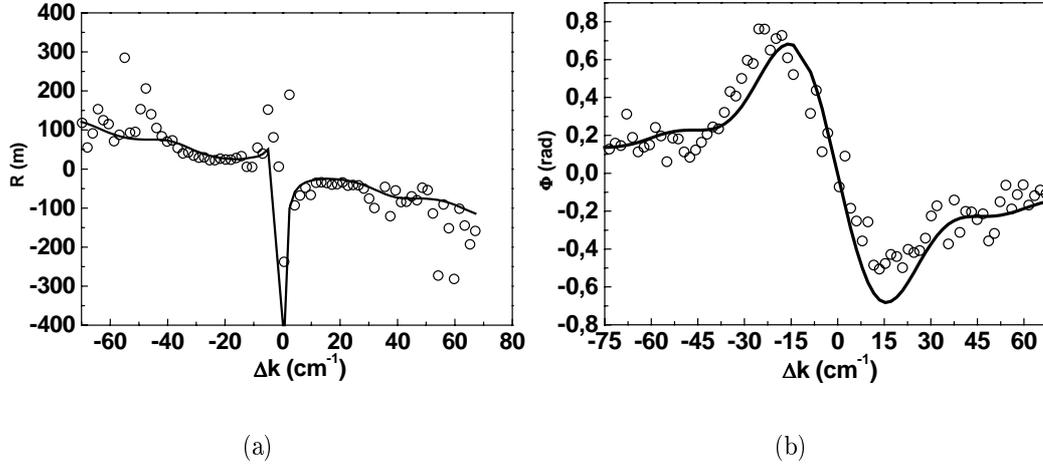


FIG. 3.26 — Evolution du Rayon de courbure et de la vergence ($\propto \frac{1}{R}$) en fonction de Δk pour un cristal de BBO de 2 mm avec $E_p = 100 \mu J$.

Nous avons paramétré nos courbes selon le modèle analytique présenté lors des mesures de phase spectrale en régime pompe-sonde. La modification de phase dans la direction de l'onde sonde s'écrit (Eq. 3.49) :

$$\Phi(z) = \frac{2I_p}{\Delta k^2 P_c} [\Delta k z - \sin(\Delta K z)] \quad (3.69)$$

Tout d'abord, nous remarquons que le modèle décrit correctement l'évolution du rayon de courbure en fonction de Δk . Notons enfin que, pour le cristal de BBO, aux différentes énergies de l'onde pompe $E_p = 100 \mu J$ et $E_p = 300 \mu J$, le paramètre d'ajustement $\frac{2I_p}{P_c}$ est respectivement égal à 23 et 74.

Comparaison entre les cristaux de KDP et de BBO.

Comme pour les mesures de phase spectrale, nous avons étendu notre étude au cristal de KDP. Rappelons que, à $1.053 \mu m$, le cristal de BBO présente des propriétés nonlinéaires intéressantes ($P_c^{(BBO)} = 0.035 GW$) par rapport à celles du KDP ($P_c^{(KDP)} = 1.88 GW$). Sur la figure 3.27(a) nous avons reporté les mesures enregistrées dans un cristal de BBO de 2 mm pour des énergies de $E_p = 300 \mu J$ et $E_p = 100 \mu J$. La même mesure a été effectuée sur des cristaux de KDP (Fig. 3.27(b)), beaucoup plus longs (1 et 2 cm) taillés pour un accord de phase de type I à $1.053 \mu m$. Pour faciliter la comparaison entre les deux cristaux, il est important de trouver une représentation significative. Cette représentation est évidente si l'on note que la phase nonlinéaire accumulée dépend de $\Delta k L$, le produit du désaccord de phase et de la longueur du cristal L. Le seul paramètre variable pour comparer les deux cristaux reste alors l'intensité laser utilisée pendant l'interaction. Ainsi, pour un cristal donné si l'on souhaite obtenir

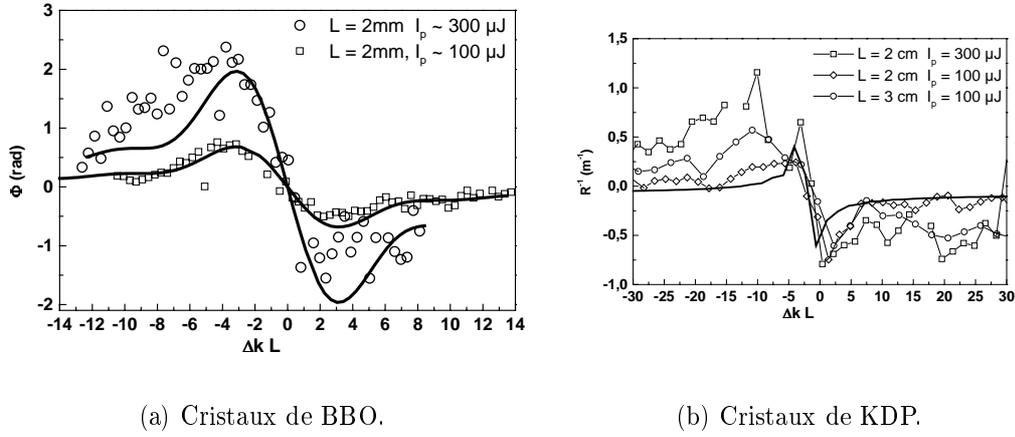


FIG. 3.27 — Evolution de la vergence ($\propto \frac{1}{R}$) en fonction de Δk pour différents cristaux de BBO et de KDP.

une phase nonlinéaire équivalente, le désaccord de phase à imposer au cristal doit être moins important. On note sur ces figures que la plage ΔkL permettant la compensation d'un indice n_2 positif, est moins étendue pour le cristal de KDP ($< 10cm^{(-1)}$) par rapport au cristal de BBO ($\sim 20cm^{(-1)}$).

Nous avons de nouveau paramétré la phase nonlinéaire avec l'expression 3.69. Le paramètre $\frac{2I_p}{P_c}$ pour le cristal de KDP de longueur $L=2\text{ cm}$ avec une énergie pompe $E_p = 100\mu J$ et de $E_p = 300\mu J$ est respectivement égal à 0.22 et 0.53.

Conclusion.

Dans cette partie, nous avons développé deux types de caractérisation de la variation d'indice en présence de génération de second harmonique. Cette variation d'indice induite par une onde pompe sur une onde sonde se traduit soit par une modification de son intensité (mesures d'auto-diffractions), soit par une variation de sa phase nonlinéaire (mesures de phases). Nous avons mené ces deux études de façon complémentaire et celles-ci ont été très riches d'enseignements.

Tout d'abord, la caractérisation de l'intensité des phénomènes de cascade est une étude plus proche de celles réalisées par les méthodes classiques telles le Z-scan. En effet, les expériences de Z-scan sont basées sur l'analyse en champ lointain du profil spatial de l'impulsion laser. Selon la courbure de la phase, les faisceaux focalisent ou défocalisent. Cette focalisation ou défocalisation du faisceau laser se traduit par un accroissement ou une diminution de l'intensité laser au travers d'un diaphragme placé derrière l'échantillon. C'est cette variation d'intensité qui est enregistrée dans une expérience de Z-scan et reliée à la variation d'indice. Nos mesures d'autodiffraction

vont plus loin : dans le domaine spatial, elle fournit l'information sur l'amplitude du phénomène. Ceci est important dans l'optique fixée de la compensation d'une intégrale B. Mais, elle donne aussi accès à la dynamique de la nonlinéarité induite. Nous avons ainsi pu mettre en évidence le caractère nonlocal de la nonlinéarité induite par effet de cascade.

Ensuite, la caractérisation de la modification de phase, dans le domaine spatial et spectral, est certainement une étape importante pour nos études. Rappelons que les mesures de la phase nonlinéaire en champ proche est une mesure inédite qui ouvre des perspectives intéressantes discutées dans la conclusion de ce manuscrit. Enfin, le point le plus important est qu'il confirme la faisabilité d'une compensation de l'intégrale B par effet de cascade en présence de génération de second harmonique. En effet, nous avons montré expérimentalement et théoriquement que les lentilles nonlinéaires étaient similaires à celles induites par effet Kerr. Les mesures différentielles faites par interférométrie spectrale donnent qualitativement la forme spectrale (homogénéité de la phase, influence des effets linéaires et variation d'intensité) induite par effet de cascade. Toutefois, nous avons vu quelques raisons qui limitent la mesure réelle de l'amplitude de la phase nonlinéaire. Par contre, la mesure absolue de la phase spatiale est quantitative et précise. Pour cette raison, nous avons décidé d'appliquer ce diagnostic à la démonstration expérimentale de la compensation de front d'onde. Ainsi, les résultats expérimentaux décrivant la compensation d'une intégrale B positive simulée dans un verre de silice par une intégrale B négative induit par effet de cascade sont présentés dans le chapitre suivant.

Troisième partie

Démonstration de la compensation
d'une intégrale B positive par cascade
d'effets nonlinéaires d'ordre deux.

Démonstration de la compensation d'une intégrale B positive par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux.

Introduction

L'architecture des chaînes lasers de puissances s'oriente de plus en plus vers des milieux amplificateurs solides. Au-delà des différents avantages qu'ils procurent (cavité simple, pompage efficace, compacité), la qualité spatiale et temporelle des faisceaux amplifiés n'est pas toujours suffisante. Par exemple, une lentille thermique est créée par le pompage du milieu amplificateur et déforme le front d'onde du faisceau [51]. L'utilisation de miroirs déformables ou simplement de lentilles adaptées constituent une solution efficace mise en oeuvre pour la compensation de ces variations lentes et constantes du front d'onde [52]. Cependant, il existe d'autres origines à la mauvaise qualité temporelle et spatiale des faisceaux amplifiés [53], [54]. Ainsi, les effets nonlinéaires instantanés de type $\chi^{(3)}$ modifient la forme temporelle et spatiale du faisceau. Les déformations du front d'onde ne sont alors plus simplement sphériques et varient rapidement dans le domaine spatial et temporel. Les solutions que nous avons évoquées, ne sont alors plus adaptées et il faut faire appel à des méthodes de compensations nonlinéaires [55], [56].

Dans ce chapitre, nous nous intéresserons à la compensation de l'intégrale de rupture spatiale $B(x,y)$ par des phénomènes de cascade de nonlinéarités d'ordre deux $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$. Dans les chapitres précédents, nous avons développé plusieurs expériences pompe-sonde pour mesurer l'amplitude et la forme spectrale ou spatiale de la phase nonlinéaire in-

duite. Nous avons utilisé ces résultats pour démontrer la faisabilité d'une compensation de l'intégrale B par l'utilisation de cristaux doubleurs. Pour se rapprocher de conditions réalistes de compensation, les expériences présentées dans ce chapitre utilisent des interactions à un faisceau fondamental. Dans un premier temps, nous simulerons une intégrale B positive par la phase nonlinéaire accumulée dans un morceau de verre de silice. Dans un second temps, la phase spatiale ainsi déformée par effet Kerr sera ensuite compensée par effet de cascade dans un cristal de BBO placé immédiatement après l'échantillon de silice. Le diagnostic utilisé - un analyseur de surface d'onde - nous permettra alors de caractériser de manière absolue la compensation de la phase spatiale en fonction du désaccord de phase et de l'intensité de l'onde laser. Ceci permettra de démontrer clairement la compensation d'une intégrale B positive par effet de cascade $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$. Nous répondrons également à deux questions importantes concernant l'évolution du point de compensation en fonction du désaccord de phase Δk et de l'intensité pompe I_p .

4.1 Description du dispositif expérimental.

Pour démontrer la compensation d'une intégrale B positive par effet de cascade, nous avons mis en oeuvre le dispositif expérimental présenté sur la figure 4.1. Nous

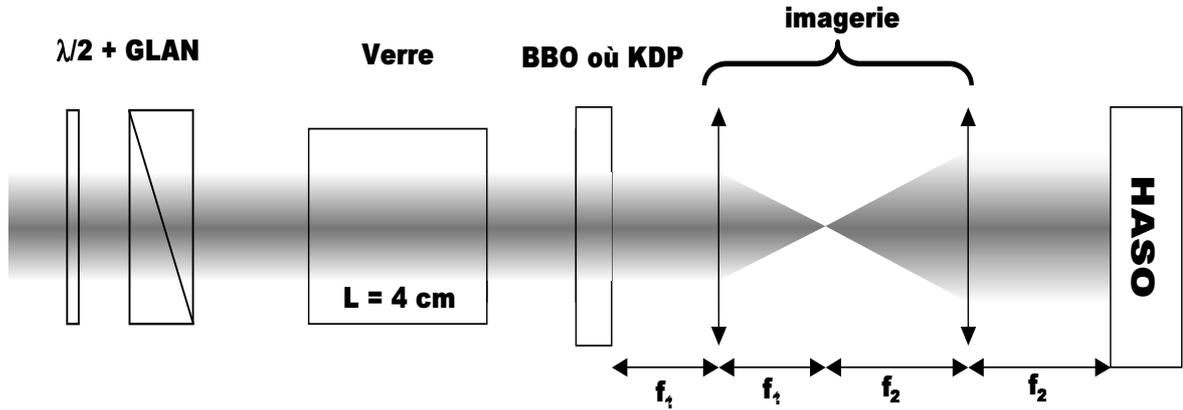


FIG. 4.1 — Montage d'expérimental.

utilisons un faisceau laser issu d'un amplificateur régénératif ($\lambda_0 = 1053 \text{ nm}$, $\tau = 500 \text{ fs}$ et $E \sim 400 \mu\text{J}$). Nous contrôlons son intensité à l'aide d'une $\lambda/2$ et d'un prisme de Glan. Ensuite, ce faisceau traverse un morceau de verre de silice de longueur $L = 4 \text{ cm}$. Ceci nous permet de simuler une intégrale B positive acquise dans une chaîne laser de puissance. Le milieu compensateur sera placé le plus proche possible de celui-ci. Pour

induire une intégrale B négative par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux, nous avons choisi un cristal de BBO de longueur 2 mm en configuration type I (ooe). Ce choix est dicté par les études de caractérisations réalisées auparavant. Ce cristal, par rapport au KDP, possède une acceptation spectrale plus importante et donc une plage de désaccord de phase plus grande pour induire une variation de phase négative. Pour

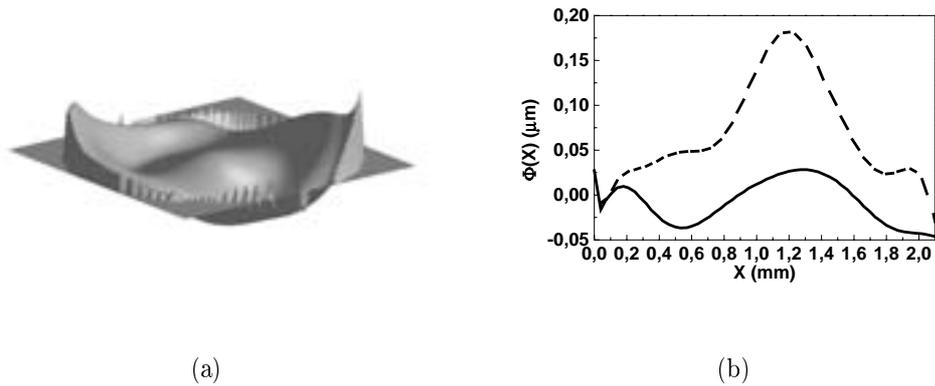


FIG. 4.2 — (a) Mesure de la phase spatiale du faisceau en propagation libre sans le verre de silice ni le cristal doubleur. (b) Coupe suivant Y de la phase (trait plein) et de l'intensité reconstruite (segment).

éviter les effets de la déformation spatiale du faisceau après propagation dans le verre, le cristal de BBO est placé immédiatement après l'échantillon de silice. A la sortie du cristal compensateur, le front d'onde du faisceau laser est imagé sur un analyseur de surface d'onde par un système afocal de grandissement $g=3$. Il est composé de deux lentilles convergentes ($f_1=10$ cm et $f_2=30$ cm). Ceci nous permet de caractériser précisément la phase spatiale de l'onde laser en champ proche. Dans notre schéma expérimental, il est possible de caractériser l'onde laser en présence ou non du verre de silice et du cristal de BBO. Par exemple, la figure 4.2 présente la forme de la phase spatiale de l'onde laser en propagation libre, c'est-à-dire en l'absence du cristal doubleur et du verre de silice.

4.2 Mesure de la nonlinéarité Kerr induite dans un verre de silice.

Dans un premier temps, nous avons caractérisé la phase nonlinéaire induite par effet Kerr ($\propto \chi^{(3)}$) dans un verre de silice de longueur $L = 4$ cm. Cette mesure de phase du champ de l'onde laser après la propagation dans le verre est présentée sur la figure 4.3. Comme attendu, il apparaît clairement une forte courbure négative sur le front

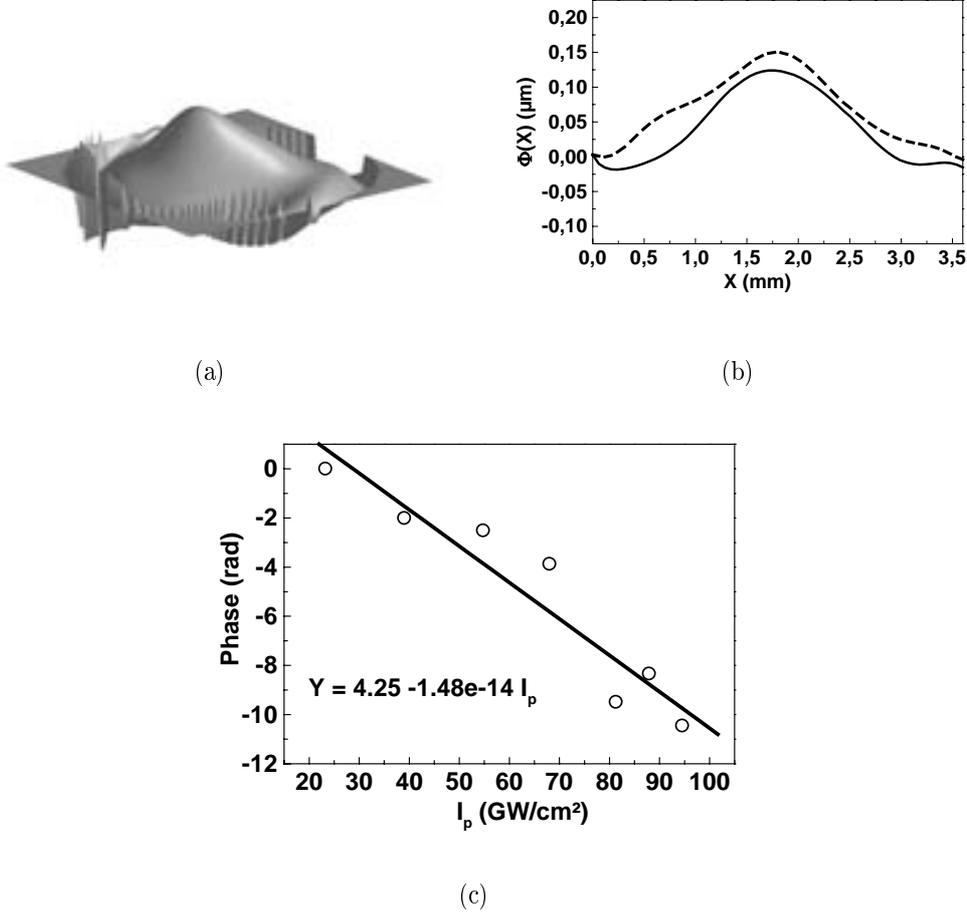


FIG. 4.3 — (a) Mesure de la phase spatiale du faisceau avec le verre de silice et sans le cristal doubleur. (b) Coupe suivant Y de la phase (trait plein) et de l'intensité reconstruite (segment). (c) Evolution et paramétrage de la phase spatiale en fonction de l'intensité laser I_p .

d'onde de l'onde laser. Ce rayon de courbure est égal à $R^{mesure} = -15.56m$ (hauteur totale pic-vallée = 0.130λ). Ceci représente donc le type de rayon de courbure que nous devons compenser.

Il est intéressant de montrer qu'avec l'utilisation d'un analyseur de surface d'onde, nous disposons d'une mesure absolue de la phase spatiale. Nous avons reporté l'évolution de la phase nonlinéaire en fonction de l'intensité de l'onde laser (Fig. 4.3). Sur cette figure, nous remarquons premièrement que, la nonlinéarité Kerr est effectivement linéaire en fonction de I_p et deuxièmement que, nous avons là un moyen précis de mesurer l'indice nonlinéaire n_2 de milieux non-centrosymétriques. En effet, à partir de l'expression 3.52, nous avons :

$$\phi^{(silice)} = \sqrt{\pi} \frac{k_0 \Delta x^2}{8 \log 2} \frac{9}{R^{mesure}} \quad (4.1)$$

où $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda}$, $\Delta x = 1mm$ sont respectivement le vecteur d'onde de l'onde laser et le diamètre du faisceau à mi-hauteur¹. Cette expression nous permet de calculer la valeur de l'indice nonlinéaire de la silice en mesurant les rayons de courbures en fonction de l'intensité I_p :

$$\phi^{(silice)} = k_0 n_2^{(Silice)} I_p L \quad (4.2)$$

Ainsi, en faisant une régression linéaire de la phase mesurée en fonction de l'intensité, nous obtenons la pente suivante :

$$k_0 L n_2^{(Silice)} = 1.48.10^{-14} m^2/W \quad (4.3)$$

et ainsi d'en déduire la valeur de l'indice nonlinéaire de la silice mesurée est $n_2^{(Silice)} = (3.1 \pm 0.6).10^{-20} m^2/W$. Cette valeur est en très bon accord avec celle trouvée généralement dans la littérature ([57] donne $n_2^{(Silice)} = 3.10^{-20} m^2/W$). Il faut noter que l'erreur commise sur cette mesure est directement reliée au bruit en intensité du laser et aux erreurs commises sur la mesure du rayon de courbure c'est-à-dire $\frac{\lambda}{20}$.

Nous avons ainsi caractérisé la phase nonlinéaire acquise par effet Kerr dans le verre de silice. Nous démontrerons dans le paragraphe suivant la compensation expérimentale de celle-ci par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux.

4.3 Etude expérimentale de la compensation d'un n_2^{Kerr} positif par un $n_2^{cascade}$ négatif.

Notre objectif est donc de compenser la courbure du front d'onde acquise par l'impulsion au cours de sa propagation dans le verre de silice. Cette compensation s'effectuera à l'aide d'un cristal de BBO via le phénomène de cascade basé sur la génération de second harmonique. Rappelons qu'en ajustant le désaccord de phase Δk entre l'onde fondamentale et l'onde harmonique, il est possible d'induire une courbure positive du front d'onde de l'impulsion laser. La valeur de cette courbure sera ajustée pour compenser exactement celle induite par effet Kerr.

Démonstration expérimentale de la compensation.

Les résultats expérimentaux présentés dans ce paragraphe ont été obtenus avec une énergie laser $E_p = 100\mu J$. L'intensité crête est alors de $16 GW/cm^2$. La présentation de nos résultats expérimentaux se déroule en trois temps. Tout d'abord, nous montrons

¹Les facteurs $g^2 = 9$ et $\sqrt{\pi}$ sont dus respectivement à l'imagerie du faisceau sur l'analyseur de surface d'onde qui possède un agrandissement $g=3$ et à la moyenne temporelle du front d'onde de l'impulsion laser.

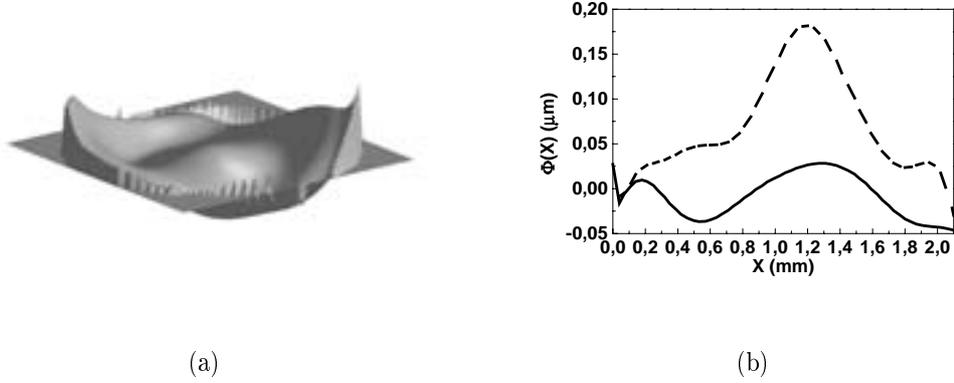


FIG. 4.4 — Faisceau libre sans déformation.

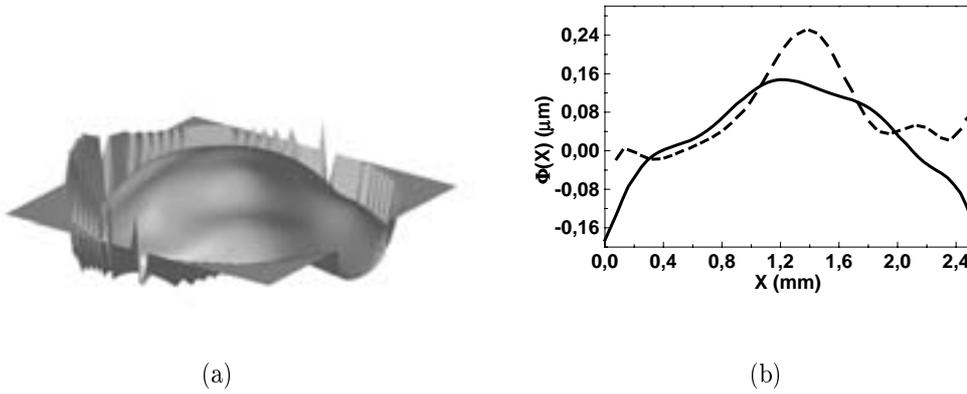


FIG. 4.5 — Faisceau avec traversée du verre de silice.

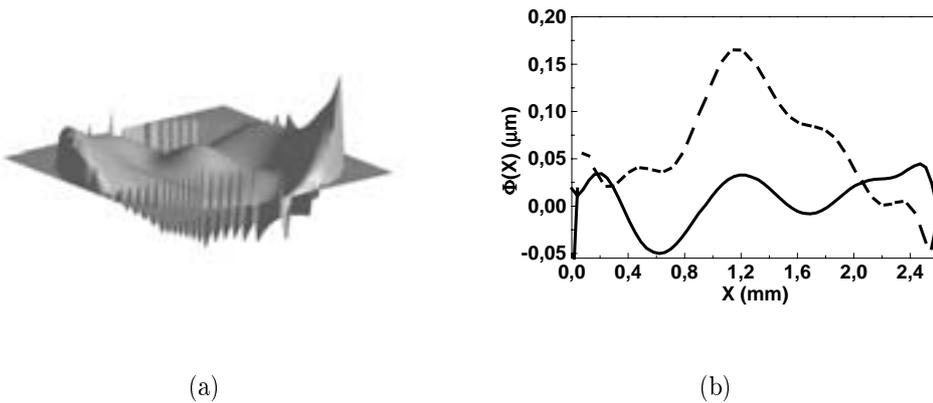


FIG. 4.6 — Faisceau compensé : verre de silice + cristal de BBO ($\Delta k = 38\text{cm}^{-1}$).

FIG. 4.7 — Démonstration expérimentale de la compensation d'un n_2 positif par un n_2 négatif. Sur les figures (b) : coupe suivant Y de la phase (trait plein) et l'intensité reconstruite (segment).

la phase spatiale du faisceau fondamental en l'absence du verre de silice et du cristal doubleur. Cette mesure de phase, présentée sur la figure 4.4, constitue une référence pour notre correction de front d'onde. Nous ajoutons ensuite le verre de silice. Celui-ci induit une phase nonlinéaire due à $n_2^{(Silice)}$ proportionnelle à la susceptibilité d'ordre trois $\chi^{(3)}$. La figure 4.5 représente alors la déformation du front d'onde qui en résulte. Elle est décrite par une forte courbure égale à $R^{Silice} = -3.3$ m (Valeur pic-vallée = 0.350λ). Notons que la phase nonlinéaire induite est importante : $\phi^{(silice)} \sim 2\pi$ rad. Enfin, dans une troisième étape, nous compensons cette phase positive à l'aide d'une phase négative induite dans le cristal doubleur. Pour cela, nous avons choisi un cristal de BBO de 2mm de longueur. Le désaccord de phase Δk du cristal est réglé pour minimiser le rayon de courbure de la phase mesurée après le cristal. Comme le souligne la figure 4.6, un bon point de compensation est trouvé à $\Delta k = 38cm^{-1}$. A ce point, le rayon de courbure est infini (hauteur pic-vallée : 0.05λ). La phase est alors comparable à celle mesurée lors de la propagation libre du faisceau (Fig. 4.4). De plus, nous pouvons noter qu'en champ proche, la forme de l'intensité reconstruite par l'analyseur de surface d'onde varie peu.

Nous démontrons ainsi clairement la possibilité de compenser une intégrale B positive par effet de cascade $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$. Pour mieux appréhender ce point de compensation, nous avons complété notre expérience en faisant varier premièrement le désaccord de phase Δk et deuxièmement l'intensité pompe I_p .

Evolution en fonction du désaccord de phase.

Ainsi, pour chaque désaccord de phase Δk , nous avons relevé autour du point de compensation, l'évolution du rayon de courbure. La phase nonlinéaire mesurée est représentée sur la figure 4.8(a). Lorsque $\Delta k < 0$, la courbe est très bruitée. Ceci est principalement due aux variations de l'intensité du faisceau issu de l'amplificateur régénératif. En effet, dans ce domaine de Δk , la phase nonlinéaire ($\propto I_p^3$) due à l'effet de cascade et celle due à l'effet Kerr s'ajoutent. Ainsi les fluctuations en intensité se traduisent par une forte variation de la phase accumulée. Nous pouvons comparer cette courbe à celle mesurée en l'absence du morceau de silice (Fig. 4.8(b)). Elle représente la phase nonlinéaire due à l'effet de cascade $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ en fonction de Δk . Elle est symétrique et possède un décalage constant avec la courbe 4.8(a). Ce décalage est égal à la valeur de la phase nonlinéaire induite par effet Kerr dans le verre de silice. Cette figure nous permet alors de remarquer que pour cette configuration expérimentale, la phase induite par effet de cascade est juste suffisante pour compenser celle induite par effet Kerr ($\sim 2\pi$) dans le verre de Silice.

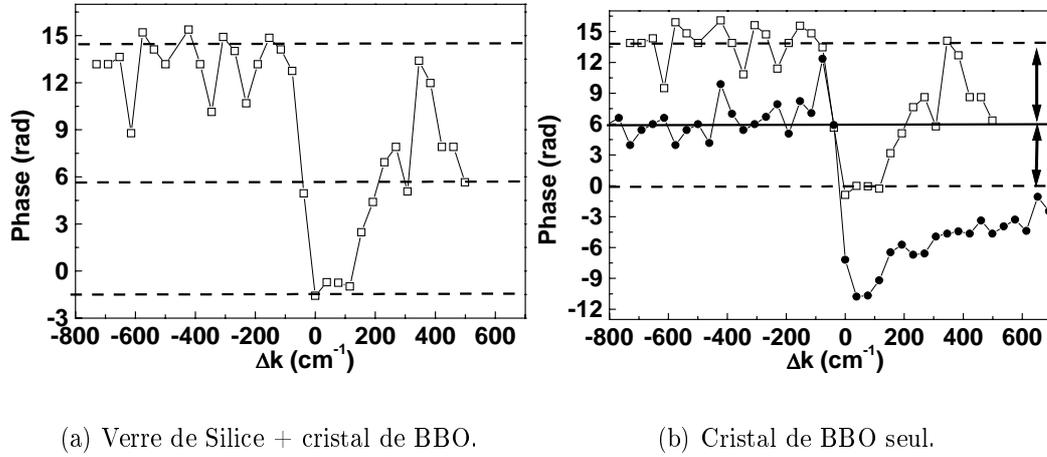


FIG. 4.8 — Evolution de la phase nonlinéaire mesurée en fonction de Δk en présence du verre de silice (\square) et en absence du verre de silice (\circ) (cristal de BBO seul) .

Evolution en fonction de l'intensité.

Il est important d'observer le comportement du point de compensation en fonction de l'intensité. Pour cela, nous avons mesuré l'évolution de la phase compensée en fonction de l'intensité du faisceau laser I_p . Sur la figure 4.9(a), nous montrons que la phase totale mesurée, qui est la somme de la contribution du verre et celle du cristal de BBO, reste constante sur la plage d'intensité considérée. Sur la figure 4.9(b), nous

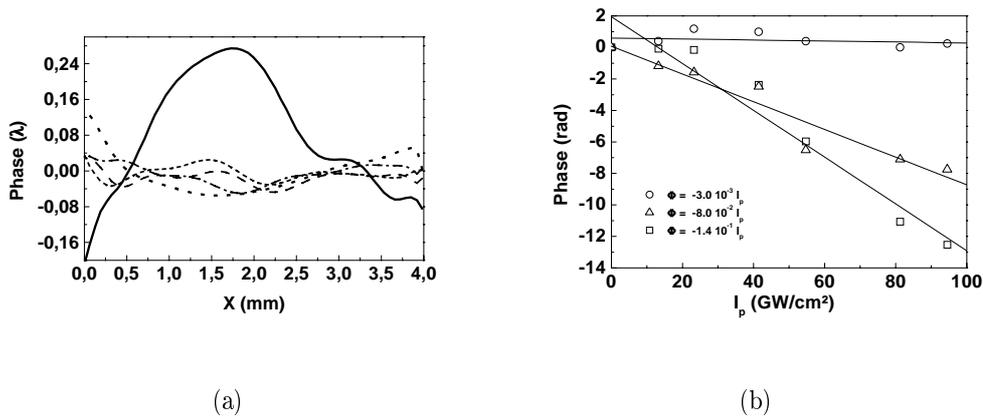


FIG. 4.9 — (a) : Coupe de la phase spatiale mesurée en fonction de I_p au point de compensation (pointillés) (Le trait plein représente la coupe de la phase spatiale induite dans la silice seule et qui a été compensée). (b) Evolution de la phase spatiale totale au point de compensation à $\Delta k = 38\text{cm}^{-1}$ (\circ), à $\Delta k = -38\text{cm}^{-1}$ (Δ) et en l'absence du cristal de BBO (silice seule) (\square).

avons également comparé l'évolution de la phase totale pour $\Delta k = 38\text{cm}^{-1}$ (point

de compensation) et $\Delta k = -38\text{cm}^{-1}$. Dans cette dernière configuration, ou la contribution due à l'effet de cascade et à l'effet Kerr s'additionne, la phase totale mesurée évolue linéairement, comme attendu. Par contre, notons une nouvelle fois que la phase compensée évolue peu en fonction de l'intensité.

4.4 Conclusion.

Dans ce chapitre, une intégrale $B \sim 4\pi$ rad induite par effet Kerr dans un verre de silice a été compensée par effet de cascade. La forte courbure de phase ainsi induite a été parfaitement corrigée. Nous avons expérimentalement étudié ce point de compensation en faisant varier l'intensité de l'onde pompe. Nous en concluons qu'une variation d'intensité du faisceau laser ne modifie pas la valeur du désaccord de phase qui permet la compensation. Cette étude expérimentale a été réalisée par des mesures de front d'onde. D'après nos mesures, cette méthode est bien adaptée à la caractérisation de la phase spatiale, linéaire et nonlinéaire, des impulsions courtes issues d'un amplificateur régénératif. Ainsi, la connaissance précise en champ proche de la phase spatiale fournit l'information complète sur la propagation du faisceau laser après le cristal compensateur. A partir de celle-ci, il est possible de prédire le champ gaussien à n'importe quelle distance de propagation.

De plus, notons que cette méthode a été validée par une mesure de l'indice nonlinéaire d'un verre de silice n_2^{silice} . C'est une mesure monocoup qui peut être facilement étendue à différentes longueurs d'ondes.

Conclusion

Le travail de thèse rapporté dans ce manuscrit est le fruit d'une collaboration étroite entre le laboratoire de physique des lasers (Département des Lasers de Puissances au C.E.A.) et le laboratoire C.P.M.O.H. (Université Bordeaux I). L'objectif fixé au départ de la thèse consistait à compenser les phénomènes nonlinéaires présents dans une chaîne laser de puissance par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux. Pendant ces trois années, plusieurs études expérimentales et théoriques ont ainsi été développées amenant d'une part à une meilleure compréhension des phénomènes mis en jeu, d'autre part à la compensation d'une intégrale B positive par une intégrale B négative induite via la génération de second harmonique.

Etudes des phénomènes de cascades en présence de génération de second harmonique et de redressement optique.

Nous avons étudié longuement les deux voies possibles de cascades de phénomènes nonlinéaires d'ordre deux via des expériences pompe-sonde réalisées à l'échelle femtoseconde. La première voie est originale et consiste à utiliser le redressement optique (génération d'onde TeraHertz) comme premier processus nonlinéaire d'ordre deux. La seconde voie, plus classique, est basée sur la génération de second harmonique.

Processus de cascade en présence d'une onde TeraHertz.

L'étude de la variation d'indice en présence d'une onde redressée (THz) a été réalisée dans le cadre d'une expérience d'effet Kerr hétérodyne résolue en temps à l'échelle femtoseconde. Elle donne accès à l'évolution temporelle de la variation d'indice induite par une onde THz se propageant dans un cristal nonlinéaire. La variation d'indice est induite et analysée par une impulsion pompe et sonde femtosecondes dans le proche infrarouge. Nous avons étudié la dynamique temporelle de la nonlinéarité n_2^{THz} associée. Cette étude originale a permis la première mise en évidence de ce type de phénomène nonlinéaire de cascade. Nous avons ainsi montré que la variation d'indice nonlinéaire

est principalement due à la composante spectrale THz présentant un accord de phase avec l'onde optique qui la génère. A l'accord de phase, la composante THz générée et le paquet d'onde optique interagissent tout au long de leur propagation dans le cristal et la variation d'indice est alors maximale. Par contre, nous avons démontré que l'acceptance spectrale de ce processus de différence de fréquence est faible. Il est donc mal adapté à des impulsions à spectre large car de nombreuses composantes THz, générées à désaccord de phase positif ou négatif, voient leur efficacité diminuée. En outre, elles présentent des vitesses de phases différentes de la vitesse de groupe de l'onde optique. Ceci induit des régimes de propagation particuliers où l'onde TeraHertz générée se propage plus ou moins rapidement par rapport à l'onde optique.

Pour analyser nos résultats expérimentaux, nous avons proposé un calcul analytique complet. Ainsi, nous avons pu analyser chaque étape du processus de cascade : la génération d'une onde TeraHertz et la rétroaction de celle-ci sur une onde optique. Les expressions analytiques décrivent très précisément les phénomènes physiques mesurés. Ces expressions permettent également d'analyser les évolutions spatiales du phénomène. Cette étude n'a pas été abordée au niveau expérimental et constitue une extension naturelle de ce travail.

Toutefois, ce phénomène n'est pas adapté à notre objectif de départ : la compensation de l'intégrale B d'une chaîne laser de puissance utilisant des impulsions nanosecondes. A l'heure actuelle, l'amplitude de la nonlinéarité ne semble pas suffisante même pour le régime nanoseconde où les limitations spectrales sont moins importantes. Dans l'avenir, il nous semble important et intéressant de rechercher les conditions permettant une augmentation de l'amplitude de la nonlinéarité induite. Ceci pourrait être effectué en étudiant, par exemple, de nouveaux cristaux, isotropes ou anisotropes, et en variant les configurations de polarisation des ondes interagissant dans le cristal. Il faut noter que cette étude offre des perspectives intéressantes pour le contrôle de la phase des impulsions courtes. Les applications concernées touchent plus particulièrement à la mise en forme temporelle d'impulsions ou à la propagation solitonique d'impulsions courtes en présence de la nonlinéarité n_2^{THz} en optique guidée.

Processus de cascade en présence d'une onde harmonique.

La variation d'indice nonlinéaire n_2^{GSH} en présence de génération de second harmonique a été plus largement étudiée dans la littérature. Bien que de nombreuses applications aient démontré son importance comme nonlinéarité de type Kerr, peu d'études ont été dédiées à une caractérisation précise et détaillée du phénomène. Nos études expérimentales, réalisées en régime pompe-sonde, nous ont permis d'une part de mettre en évidence des propriétés nouvelles de ce phénomène notamment pour les

impulsions à spectre large. D'autre part, elles nous ont permis de progresser dans la compréhension et la description des phénomènes de cascade via la génération de second harmonique.

Dans le domaine spatial et spectral, des mesures complémentaires en intensité et en phase ont été réalisées.

- La mesure des intensités des ondes diffractées au cours d'expériences d'auto-diffraction spectrale et spatiale a donné accès à une mesure directe de la nonlinéarité induite. Elle a ainsi permis de quantifier l'intégrale B dans deux types de cristaux doubleurs (KDP et BBO) largement usités. Nous avons également indiqué les avantages des techniques utilisées. Pour de fortes intensités crêtes, nous avons démontré que le processus d'auto-diffraction permet d'une part la mise en évidence de couplages entre les nonlinéarités d'ordre trois $\chi^{(3)}$ et de cascade $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$. Il permet d'autre part l'observation de phénomènes d'ordre supérieur de type $\chi^{(5)}$. Dans le cas de l'auto-diffraction spatiale, nous avons souligné que la géométrie non-colinéaire permettait une étude simple de la réponse temporelle du réseau nonlinéaire induit via le couplage entre une onde pompe et une onde sonde. Ces réseaux non-sinusoïdaux diffractent les faisceaux à la fréquence fondamentale et harmonique dans des directions particulières. Il est alors possible d'étudier spécifiquement la réponse temporelle de chaque onde diffractée et ainsi de démontrer le caractère nonlocal en temps et en espace de la variation d'indice induite par effet de cascade.
- Pour aller plus loin dans notre analyse, nous avons également mesuré la phase spectrale et spatiale de l'onde sonde se propageant dans le cristal. En présence de l'onde pompe, le cristal doubleur agit alors comme une lentille nonlinéaire au niveau spatial et temporel. La connaissance de la phase nonlinéaire spectrale et spatiale offre ainsi un point de vue nouveau sur l'effet de cascade via la génération de second harmonique. Notre étude s'est focalisée plus particulièrement sur l'évolution de la phase de l'onde sonde en fonction du désaccord de phase Δk entre l'onde fondamentale et l'onde harmonique.

La mesure de la modulation de phase croisée entre un faisceau pompe et un faisceau sonde a été réalisée par interférométrie spectrale. Nous avons montré que lorsque $\Delta k \neq 0$, la phase spectrale induite est égale, au premier ordre, à une valeur constante sur tout le spectre de l'impulsion sonde. La valeur de cette constante dépend de l'intensité de l'onde pompe et du désaccord de phase considéré. Lorsque $\Delta k \sim 0$, nous avons clairement démontré expérimentalement la dispersion de la nonlinéarité de cascade. Nous avons également mesuré l'évolution de la partie réelle et imaginaire de la phase spectrale. Ce phénomène souligne que lorsque $\Delta k \sim 0$, une description correcte du phénomène nécessite la prise en compte

de la modification de l'amplitude et de la phase des ondes se propageant dans le cristal. Ces résultats apportent un point de vue original, notamment sur le comportement de l'effet de cascade à désaccord de phase nul.

Dans le domaine spatial, nous avons caractérisé la lentille nonlinéaire induite par l'onde pompe en mesurant précisément la modification du front d'onde du faisceau sonde au cours de la génération de second harmonique. Cette mesure effectuée avec un analyseur de type Shack-Hartmann montre clairement, précisément et directement l'inversion du front d'onde en fonction du désaccord de phase Δk . Soulignons que la précision de ce type de mesure de phase, qui est une mesure absolue, a permis de montrer la possibilité d'induire des courbures de phases négatives. Leur amplitude est suffisante pour permettre de compenser une intégrale B positive dans le domaine spatial.

Les mesures expérimentales de la modulation de phase croisée en présence de l'effet de cascade ont été riches d'enseignements. Elles ont permis de valider les modèles analytiques que nous avons développés. Ceux-ci sont basés sur un développement perturbatif et sont des fonctions du rendement de génération de second harmonique. Ils nous ont permis de décrire avec précision les phénomènes de modulation de phase croisée dans le domaine temporel et spatial. Nous avons également souligné les limites de ces modèles. Nous avons ainsi montré qu'une description complète de la nonlinéarité (partie réelle et imaginaire, nonlocalité ou phénomènes d'ordres supérieurs) passait nécessairement par une étude numérique des équations couplées de génération de second harmonique.

La caractérisation des phases nonlinéaires dans le domaine spatial et temporel ouvre des perspectives dans l'étude de la propagation et la manipulation d'impulsions courtes, perspectives qui nous semblent importantes à exploiter. Citons ici deux exemples :

1. Les caractérisations que nous avons effectuées posent invariablement des questions sur le couplage spatio-temporel induit par des nonlinéarités de type Kerr. Par exemple dans notre étude, nous avons mesuré et analysé les effets spatiaux et temporels en supposant qu'ils étaient découplés. Ceci est mathématiquement incorrect. L'étape suivante consiste donc à étudier l'amplitude et l'influence de ces couplages. Ce travail aura, nous le pensons, des répercussions dans le domaine de la propagation solitonique dans les milieux quadratiques en présence d'impulsions courtes.
2. Nos études soulignent également qu'il est possible de mettre en forme des impulsions, spatialement et temporellement, par automodulation ou modulation de phase croisée via les effets de cascade. Il nous semble que cette voie peu exploitée est maintenant plus accessible.

Application à la compensation de l'intégrale de rupture.

Il apparaît clairement que la variation d'indice nonlinéaire via la génération de second harmonique est seule susceptible de compenser une intégrale B due à un phénomène de type Kerr. Nous avons démontré qu'une telle compensation était expérimentalement réaliste via une nonlinéarité de type Kerr induite par une cascade de nonlinéarités d'ordre deux. Une intégrale B de l'ordre de 4π induite dans un verre de silice a été compensée par un cristal de BBO de longueur 2 mm. Cette compensation a été réalisée en ajustant l'accord de phase Δk dans le cristal de BBO de manière à compenser la phase nonlinéaire induite dans le verre de silice. Nous avons démontré que la phase totale mesurée après le verre de silice et le cristal de BBO est bien corrigée spatialement. Nous avons aussi montré que cette compensation était obtenue sur une plage d'intensité importante, largement supérieure aux fluctuations en intensité du faisceau laser.

Les perspectives ouvertes par cette démonstration sont importantes. Maintenant que la faisabilité d'une telle compensation est démontrée, la perspective logique est la mise en place d'un tel système sur une chaîne laser de puissance. Pour cela, il faudra tout d'abord déterminer l'intégrale B de la chaîne à compenser d'un point de vue spatial et temporel. Dans le domaine spatial, l'analyseur de surface d'onde semble adaptée à ce genre de mesure. Dans le domaine temporel, une mesure simple est en cours d'étude dans le laboratoire. Connaissant alors précisément la forme et l'amplitude de l'intégrale B de la chaîne, le dimensionnement de la compensation implique de déterminer l'angle d'accord de phase et le type de cristal nonlinéaire à utiliser. Rappelons que pour les chaînes lasers de très forte énergie ($> \text{Joule}$), seul un cristal de KDP est aujourd'hui envisageable.

Quatrième partie

Annexes.

Annexe I.

Calcul du signal Hétérodyne.

Description analytique du signal d'effet Kerr en configuration heterodyne.

Pour effectuer notre analyse², nous nous placerons dans le repère géométrique du cristal, la face incidente étant définie par le plan (ZX) tandis que la direction de polarisation se fait suivant la direction Y (cf. Fig. 1.4). Dans ce cas, le champ électrique de l'onde sonde s'écrit :

$$\vec{E}_s^1(t, z) = \frac{A_s(t)}{\sqrt{1 + \alpha^2}} \begin{pmatrix} \cos(\theta) - i\alpha \sin(\theta) \\ 0 \\ \sin(\theta) + i\alpha \cos(\theta) \end{pmatrix} \quad (4.4)$$

où $A_s(t, z)$, α et θ représentent respectivement l'amplitude temporelle du champ électrique, l'ellipticité de la polarisation et l'angle du grand axe de cette ellipse par rapport à X. Après propagation dans le cristal, l'onde sonde subit une modification de phase induite par un faisceau pompe d'intensité I_p suivant la direction X. Nous supposons que le champ électrique de l'onde sonde subit un déphasage $\phi_X \propto I_p$ sans modification de son amplitude. Le champ électrique s'écrit :

$$\vec{E}_s^2(t, z) = \frac{A_s(t)}{\sqrt{1 + \alpha^2}} \begin{pmatrix} [\cos(\theta) - i\alpha \sin(\theta)]e^{i\phi_X} \\ 0 \\ \sin(\theta) + i\alpha \cos(\theta) \end{pmatrix} \quad (4.5)$$

²On ne tiendra pas compte dans le paragraphe de la dépendance temporelle des champs

Le champ électrique modifié est ensuite analysé. La direction de l'analyseur étant définie

par le vecteur $\vec{V}_A = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} -1 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$, le signal mesuré sur la photodiode est :

$$\begin{aligned} I^{ph} &= \langle |\vec{E}_s^2(t, z) \cdot \vec{V}_A|^2 \rangle \\ &= \langle \frac{I_s(t)}{2(1+\alpha^2)} |(-\cos(\theta) + i\alpha \sin(\theta))e^{i\phi_X} + \sin(\theta) + i\alpha \cos(\theta)|^2 \rangle \\ &= \langle \frac{I_s(t)}{2(1+\alpha^2)} [1 + \alpha^2 + (\alpha^2 - 1) \cos(\phi_X) \sin(2\theta) - 2\alpha \sin(\phi_X)] \rangle \quad (4.6) \end{aligned}$$

où $\langle \rangle$ désigne la valeur moyenne en fonction du temps due à la photodiode mesurant la fuite issue de l'analyseur. La modulation mécanique des faisceaux pompe et sonde à des fréquences incommensurables f_p et f_s permet à l'aide de la détection synchrone, un filtrage efficace du signal évoluant à la fréquence somme $f_p + f_s$. Mathématiquement, ceci conduit à ne conserver dans l'équation 4.6 que les termes proportionnels à la puissance n de $I_p I_s$ car nous avons une modulation carrée des faisceaux. Le signal obtenu sur la détection synchrone se décompose alors en un terme dit homodyne - indépendant de l'ellipticité α - et un terme dit hétérodyne - dépendant linéairement de α au premier ordre :

$$S^{synchrone} = S_{homodyne}^{synchrone} + S_{heterodyne}^{synchrone} \quad (4.7)$$

avec

$$S_{homodyne}^{synchrone} = \langle \frac{I_s(t)}{2(1+\alpha^2)} (\cos(\theta)^2 - \sin(2\theta) \cos(\phi_X)) \rangle \quad (4.8)$$

$$S_{heterodyne}^{synchrone} = \langle \frac{I_s(t)}{2(1+\alpha^2)} (\alpha^2 \sin(\theta)^2 + \alpha^2 \sin(2\theta) \cos(\phi_X) - 2\alpha \sin(\phi_X)) \rangle \quad (4.9)$$

La différence des deux signaux mesurés pour α et $-\alpha$ permet de ne garder que la composante proportionnelle à la phase nonlinéaire alors que le signal homodyne est éliminé.

$$\begin{aligned} S^{final} &= S^{synchrone}(\alpha) - S^{synchrone}(-\alpha) \\ &= \langle \frac{2I_s(t)}{1+\alpha^2} \alpha \sin(\phi_X) \rangle \propto \alpha \langle I_s(t) \phi_X(t) \rangle \quad (4.10) \end{aligned}$$

L'acquisition simultanée des signaux aux angles d'hétérodynage $+\alpha$ et $-\alpha$ permet donc d'obtenir une mesure directement proportionnelle à la phase nonlinéaire induite dans l'échantillon.

Annexe II.

Les équations de base de Maxwell.

Les équations de Maxwell mettent en jeu les champs électrique et magnétique $\vec{\mathcal{E}}$ et $\vec{\mathcal{H}}$ ainsi que les inductions électriques et magnétiques $\vec{\mathcal{D}}$ et $\vec{\mathcal{B}}$. Il est à noter que ces grandeurs sont réelles et vectorielles, elles sont régies par les équations suivantes :

$$rot(\vec{\mathcal{E}}) = -\frac{\partial \vec{\mathcal{B}}}{\partial t} \quad (4.11)$$

$$rot(\vec{\mathcal{H}}) = \frac{\partial \vec{\mathcal{D}}}{\partial t} + \vec{j} \quad (4.12)$$

$$div(\vec{\mathcal{D}}) = \rho \quad (4.13)$$

$$div(\vec{\mathcal{B}}) = 0 \quad (4.14)$$

Dans les matériaux que nous utilisons, nous supposons toujours qu'il n'y a ni charges libres, ni flux de courant. De plus, nous supposons que les champs et inductions sont reliées par les relations suivantes :

$$\vec{\mathcal{B}} = \mu_0 \vec{\mathcal{H}} \quad (4.15)$$

$$\vec{\mathcal{D}} = \epsilon_0 \vec{\mathcal{E}} + \vec{\mathcal{P}} \quad (4.16)$$

avec $\mu_0 = (\epsilon_0 c^2)^{-1}$. $\vec{\mathcal{P}}$ est appelée polarisation, c'est une grandeur qui dépend du champ électrique. Nous utiliserons par la suite la relation suivante déduite des équations de Maxwell simplifiées :

$$\Delta \vec{\mathcal{E}} - \vec{grad}(div(\vec{\mathcal{E}})) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{E}}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{P}}}{\partial t^2} \quad (4.17)$$

Relation entre la polarisation et le champ électrique.

Nous relierons la polarisation au champ électrique via le formalisme de fonction réponse. Dans cette approche, nous omettrons les dépendances spatiales des champs pour plus de simplicité.

$$\vec{\mathcal{P}}(t, z) = \epsilon_0 \int \mathcal{R}^{(1)}(t - \tau) \vec{\mathcal{E}}(\tau, z) d\tau + \epsilon_0 \int \mathcal{R}^{(2)}(t - \tau_1, t - \tau_2) \vec{\mathcal{E}}(\tau_1, z) \vec{\mathcal{E}}(\tau_2, z) d\tau_1 d\tau_2 +$$

$$\epsilon_0 \int \mathcal{R}^{(3)}(t - \tau_1, t - \tau_2, t - \tau_3) \vec{\mathcal{E}}(\tau_1, z) \vec{\mathcal{E}}(\tau_2, z) \vec{\mathcal{E}}(\tau_3, z) d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3 + \dots \quad (4.18)$$

$\mathcal{R}^{(j)}$ sont les fonctions réponse d'ordre j et mettent en jeu des puissances j^{ieme} du champ électrique. Pour nos applications, nous arrêtons le développement à l'ordre 3. Ces fonctions réponses ont quelques propriétés intéressantes. Nous supposons qu'elles sont causales : $\mathcal{R}^{(j)}(t - \tau_i) = 0$ dès que $t - \tau_i < 0$. En général, nous utiliserons plutôt les transformées de Fourier des fonctions réponse, ce sont les susceptibilités :

$$\chi^{(1)}(\omega) = \int \mathcal{R}^{(1)}(t) e^{i\omega t} dt \quad (4.19)$$

$$\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \int \mathcal{R}^{(2)}(t_1, t_2) e^{i(\omega_1 t_1 + \omega_2 t_2)} dt_1 dt_2 \quad (4.20)$$

$$\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) = \int \mathcal{R}^{(3)}(t_1, t_2, t_3) e^{i(\omega_1 t_1 + \omega_2 t_2 + \omega_3 t_3)} dt_1 dt_2 dt_3 \quad (4.21)$$

Comme les fonctions réponse sont réelles, nous avons les relations suivantes :

$$\chi^{(1)}(-\omega) = \chi^{(1)*}(\omega) \quad (4.22)$$

$$\chi^{(2)}(-\omega_1, -\omega_2) = \chi^{(2)*}(\omega_1, \omega_2) \quad (4.23)$$

$$\chi^{(3)}(-\omega_1, -\omega_2, -\omega_3) = \chi^{(3)*}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) \quad (4.24)$$

En utilisant le formalisme de Fourier, nous avons également la relation suivante :

$$\begin{aligned} \tilde{\mathcal{P}}(\omega, z) &= \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \tilde{\mathcal{E}}(\omega, z) \\ &+ \frac{\epsilon_0}{2\pi} \int \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) \tilde{\mathcal{E}}(\omega_1, z) \tilde{\mathcal{E}}(\omega_2, z) \delta(\omega - \omega_1 - \omega_2) d\omega_1 d\omega_2 \\ &+ \frac{\epsilon_0}{(2\pi)^2} \int \chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) \tilde{\mathcal{E}}(\omega_1, z) \tilde{\mathcal{E}}(\omega_2, z) \tilde{\mathcal{E}}(\omega_3, z) \delta(\omega - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3) d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3 \end{aligned} \quad (4.25)$$

Développement des équations pour une onde à la fréquence optique.

Dorénavant, nous omettrons l'écriture vectorielle afin d'alléger les équations. Nous allons reprendre les équations de Maxwell et les développer dans des cas intéressants : pour les ondes à la fréquence optique (onde PHz). Dans un premier temps, nous allons simplifier l'équation 4.17 en étant dans le domaine des fréquences optiques et ensuite nous utiliserons l'approximation de l'enveloppe lentement variable pour obtenir l'expression de propagation nonlinéaire classique. Tout d'abord, nous négligerons le terme $\vec{grad}(div(\mathcal{E}))$ en se plaçant par exemple dans un milieu isotrope faiblement nonlinéaire. De plus, nous négligerons l'absorption en prenant une susceptibilité linéaire réelle. Nous utiliserons les notations suivantes pour la représentation du champ dans

l'approximation de l'enveloppe lentement variable :

$$\begin{aligned}\mathcal{E}(t, z) &= E(t, z)e^{i(k_0z - \omega_0t)} + c.c. \\ \mathcal{P}(t, z) &= P(t, z)e^{i(k_0z - \omega_0t)} + c.c.\end{aligned}\quad (4.26)$$

E et P sont les enveloppes des champs réels \mathcal{E} et \mathcal{P} . Nous avons la relation suivante dans le domaine spectral : $\tilde{\mathcal{E}}(\omega, z) = \tilde{E}(\omega - \omega_0, z)e^{ik_0z} + \tilde{E}^*(-\omega - \omega_0, z)e^{-ik_0z}$. Nous supposons que $\tilde{E}(\Omega)$ et $\tilde{P}(\Omega)$ sont centrés en zéro et sont non nuls sur une largeur spectrale beaucoup plus petite que la fréquence centrale ω_0 . Cette remarque est également valable par rapport à la variable de propagation z . Classiquement, nous séparons la partie linéaire de la polarisation :

$$\Delta\mathcal{E}(t, z) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\mathcal{E}(t, z) + \frac{1}{\epsilon_0} \mathcal{P}_L(t, z)) = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathcal{P}_{NL}(t, z) \quad (4.27)$$

Pour simplifier l'équation, il est nécessaire de calculer le terme $\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\mathcal{E}(t, z) + \frac{1}{\epsilon_0} \mathcal{P}_L(t, z))$.

$$\begin{aligned}\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\mathcal{E}(t, z) + \frac{1}{\epsilon_0} \mathcal{P}_L(t, z)) &= \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left(\frac{1}{2\pi} \int (\tilde{\mathcal{E}}(\omega, z) + \frac{1}{\epsilon_0} \tilde{\mathcal{P}}_L(\omega, z)) e^{-i\omega t} d\omega \right) \\ &= -\frac{1}{c^2} \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty \tilde{\mathcal{E}}(\omega, z) \omega^2 (1 + \chi^{(1)}(\omega)) e^{-i\omega t} d\omega \\ &\quad + c.c.\end{aligned}\quad (4.28)$$

Posons $k(\omega)^2 = \omega^2 \frac{1 + \chi^{(1)}(\omega)}{c^2}$. Nous supposons qu'il est valide d'effectuer un développement autour de la fréquence optique centrale ω_0 . Nous obtenons alors :

$$k(\omega)^2 \simeq k_0^2 + ik_i^2 + 2k_0k_0'(\omega - \omega_0) + (k_0''k_0 + (k_0')^2)(\omega - \omega_0)^2 \quad (4.29)$$

avec $k_0^2 = \text{Re}(k(\omega_0)^2)$ et $k_i^2 = \text{Im}(k(\omega_0)^2)$. Nous ne prenons en compte ici la partie imaginaire de la susceptibilité qu'à l'ordre 0, car en général elle est ensuite négligeable.

En injectant cette expression dans 4.28, nous avons :

$$\begin{aligned}\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\mathcal{E}(t, z) + \frac{1}{\epsilon_0} \mathcal{P}_L(t, z)) &= -\frac{1}{2\pi} \int_0^\infty \tilde{\mathcal{E}}(\omega, z) (k_0^2 + ik_i^2 + 2k_0k_0'(\omega - \omega_0) + (k_0''k_0 + (k_0')^2)(\omega - \omega_0)^2) e^{-i\omega t} d\omega \\ &= -k_0^2 \mathcal{E}(t, z) - \left(\frac{1}{2\pi} \int_0^\infty \tilde{E}(\omega - \omega_0, z) e^{ik_0z} (ik_i^2 + 2k_0k_0'(\omega - \omega_0) + (k_0''k_0 + (k_0')^2)(\omega - \omega_0)^2) e^{-i\omega t} d\omega \right) \\ &= -k_0^2 \mathcal{E}(t, z) - \left(\frac{1}{2\pi} \int_{-\omega_0}^\infty \tilde{E}(\Omega, z) (ik_i^2 + 2k_0k_0'\Omega + (k_0''k_0 + (k_0')^2)\Omega^2) e^{-i\Omega t} d\Omega e^{i(k_0z - \omega_0t)} \right) \\ &= -k_0^2 \mathcal{E}(t, z) - \left(\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^\infty \tilde{E}(\Omega, z) (ik_i^2 + 2k_0k_0'\Omega + (k_0''k_0 + (k_0')^2)\Omega^2) e^{-i\Omega t} d\Omega e^{i(k_0z - \omega_0t)} \right)\end{aligned}$$

Nous avons remplacé $-\omega_0$ par $-\infty$ car $\tilde{E}(\Omega, z)$ est supposé nul à ces fréquences.

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\mathcal{E}(t, z) + \frac{1}{\epsilon_0} \mathcal{P}_L(t, z)) = \quad (4.30)$$

$$-(k_0^2 + ik_i^2)E(t, z)e^{i(k_0z - \omega_0t)} - 2ik_0k_0' \frac{\partial E(t, z)}{\partial t} e^{i(k_0z - \omega_0t)} + (k_0''k_0 + (k_0')^2) \frac{\partial^2 E(t, z)}{\partial t^2} e^{i(k_0z - \omega_0t)} + c.c. \quad (4.31)$$

Finalement l'équation 4.27 peut s'écrire :

$$\Delta(E(t, z)e^{i(k_0z - \omega_0t)}) + (k_0^2 + ik_i^2)E(t, z)e^{i(k_0z - \omega_0t)} + 2ik_0k_0' \frac{\partial E(t, z)}{\partial t} e^{i(k_0z - \omega_0t)} - (k_0''k_0 + (k_0')^2) \frac{\partial^2 E(t, z)}{\partial t^2} e^{i(k_0z - \omega_0t)} + c.c. = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (P_{NL}(t, z)e^{i(k_0z - \omega_0t)}) + c.c. \quad (4.32)$$

Il suffit de résoudre cette équation pour $(E(t, z)e^{i(k_0z - \omega_0t)})$ car l'équation conjuguée sera automatiquement vérifiée. La somme donnant l'équation 4.32, le champ réel \mathcal{E} associé vérifiera l'équation 4.32. Nous travaillerons donc désormais sur l'équation de l'enveloppe complexe associée au champ réel $\mathcal{E}(t, z)$. Pour aller plus loin, il faut se placer dans le repère mouvant de l'onde. Pour cela, nous effectuons le changement de variables : $\tau = t - \frac{z}{v_g}$ et $\eta = z$ avec $v_g = \frac{1}{k_0}$. Les dérivées partielles sont transformées en : $\frac{\partial}{\partial t} \rightarrow \frac{\partial}{\partial \tau}$ et $\frac{\partial}{\partial z} \rightarrow \frac{\partial}{\partial \eta} - \frac{1}{v_g} \frac{\partial}{\partial \tau}$. Dans ce repère, l'équation 4.32 s'écrit :

$$\Delta_{\perp} E(\tau, \eta) + \frac{\partial^2 E(\tau, \eta)}{\partial \eta^2} - \frac{2}{v_g} \frac{\partial^2 E(\tau, \eta)}{\partial \eta \partial \tau} + 2ik_0 \frac{\partial E(\tau, \eta)}{\partial \eta} - k_0''k_0 \frac{\partial^2 E(\tau, \eta)}{\partial \tau^2} + ik_i^2 E(\tau, \eta) = \quad (4.33)$$

$$\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \left(\frac{\partial^2 P_{NL}(\tau, \eta)}{\partial \tau^2} - 2i\omega_0 \frac{\partial P_{NL}(\tau, \eta)}{\partial \tau} - \omega_0^2 P_{NL}(\tau, \eta) \right) \quad (4.34)$$

Nous pouvons alors faire les transformations liées à l'approximation de l'enveloppe lentement variable. En effet, les termes $\frac{\partial^2 E(\tau, \eta)}{\partial \eta^2}$ et $\frac{2}{v_g} \frac{\partial^2 E(\tau, \eta)}{\partial \eta \partial \tau}$ sont négligeables devant $2ik_0 \frac{\partial E(\tau, \eta)}{\partial \eta}$. De même nous négligerons les termes $\frac{\partial^2 P_{NL}(\tau, \eta)}{\partial \tau^2}$ et $\omega_0 \frac{\partial P_{NL}(\tau, \eta)}{\partial \tau}$ devant $\omega_0^2 P_{NL}(\tau, \eta)$. Finalement, nous obtenons dans le repère lié à l'onde l'équation :

$$\Delta_{\perp} E(\tau, \eta) + 2ik_0 \frac{\partial E(\tau, \eta)}{\partial \eta} - k_0''k_0 \frac{\partial^2 E(\tau, \eta)}{\partial \tau^2} + ik_i^2 E(\tau, \eta) = -\frac{\omega_0^2}{\epsilon_0 c^2} P_{NL}(\tau, \eta) \quad (4.35)$$

Dans le repère du laboratoire nous obtenons l'équation finale :

$$\frac{1}{2ik_0} \Delta_{\perp} E(t, z) + \frac{\partial E(t, z)}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial E(t, z)}{\partial t} + i\sigma \frac{\partial^2 E(t, z)}{\partial t^2} + \alpha E(t, z) = i \frac{\omega_0^2}{2k_0 \epsilon_0 c^2} P_{NL}(t, z) \quad (4.36)$$

avec $\sigma = \frac{k_0''}{2}$ et $\alpha = \frac{k_i^2}{2k_0}$. Généralement, on introduit l'indice n_0 vu par l'onde :

$$n_0 = \sqrt{1 + \chi_r^{(1)}} \quad (4.37)$$

avec $\chi_r^{(1)} = \text{Re}(\chi^{(1)})$. En utilisant l'indice, nous pouvons écrire :

$$\frac{1}{2ik_0} \Delta_{\perp} E(t, z) + \frac{\partial E(t, z)}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial E(t, z)}{\partial t} + i\sigma \frac{\partial^2 E(t, z)}{\partial t^2} + \alpha E(t, z) = i \frac{\omega_0}{2\epsilon_0 n_0 c} P_{NL}(t, z) \quad (4.38)$$

et $\alpha = \frac{\omega_0 \chi_i^{(1)}}{2n_0 c}$. avec $\chi_i^{(1)} = \text{Im}(\chi^{(1)})$.

Annexe III

Calcul du champ sonde en sortie du cristal.

Soit un champ vectoriel à 2 dimensions $F(z)$ vérifiant le système différentiel suivant :

$$\frac{\partial}{\partial z} F(z) = ig(z) \begin{pmatrix} a & b \\ b & -a \end{pmatrix} F(z) \quad (4.39)$$

avec $g(z)$ une fonction réelle. La matrice $\begin{pmatrix} a & b \\ b & -a \end{pmatrix}$ est symétrique réelle. Elle est diagonalisable avec comme valeurs propres λ et $-\lambda$ où $\lambda = \sqrt{a^2 + b^2}$. Il existe donc une matrice de rotation $R(\delta)$ telle que :

$$R(\delta) \begin{pmatrix} a & b \\ b & -a \end{pmatrix} R(-\delta) = \begin{pmatrix} \lambda & 0 \\ 0 & -\lambda \end{pmatrix} \quad (4.40)$$

avec

$$R(\delta) = \begin{pmatrix} \cos \delta & -\sin \delta \\ \sin \delta & \cos \delta \end{pmatrix} \quad (4.41)$$

Il est possible de montrer de plus la relation importante :

$$\lambda \cos 2\delta = a \quad (4.42)$$

Soit H le champ vectoriel dans le repère associé à la matrice diagonalisée, $H(z) = R(\delta)F(z)$. Ce champ vérifie le système différentiel :

$$\frac{\partial}{\partial z} H(z) = \begin{pmatrix} ig(z)\lambda & 0 \\ 0 & -ig(z)\lambda \end{pmatrix} H(z) \quad (4.43)$$

Ce système se résout facilement, nous trouvons :

$$H(z) = \begin{pmatrix} e^{i \int_0^z \lambda g(u) du} & 0 \\ 0 & e^{-i \int_0^z \lambda g(u) du} \end{pmatrix} H(0) \quad (4.44)$$

En revenant dans le repère initial, nous obtenons le champ $F(z)$:

$$F(z) = R(-\delta) \begin{pmatrix} e^{i \int_0^z \lambda g(u) du} & 0 \\ 0 & e^{-i \int_0^z \lambda g(u) du} \end{pmatrix} R(\delta) F(0) \quad (4.45)$$

Après développement, nous trouvons :

$$\frac{F(z)}{F(0)} = \begin{pmatrix} \cos^2(\delta) e^{i \int_0^z \lambda g(u) du} + \sin^2(\delta) e^{-i \int_0^z \lambda g(u) du} & -i \sin(2\delta) \sin \int_0^z \lambda g(u) du \\ -i \sin(2\delta) \sin \int_0^z \lambda g(u) du & \sin^2(\delta) e^{i \int_0^z \lambda g(u) du} + \cos^2(\delta) e^{-i \int_0^z \lambda g(u) du} \end{pmatrix} \quad (4.46)$$

Signal hétérodyne analytique

Sur le même modèle que la première section de cet appendice, nous pouvons maintenant calculer le signal hétérodyne à partir de l'expression 4.46.

Pour cela nous savons que le champ $F(z)$ a une polarisation initiale légèrement elliptique : $F(\vec{0}) = \frac{1}{\sqrt{2(1+\alpha^2)}} \begin{pmatrix} 1 - i\alpha \\ 1 + i\alpha \end{pmatrix}$.

Le signal qui nous intéresse est l'intensité en sortie de l'analyseur $\vec{V}_A = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} -1 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$ placé en sortie du cristal.

$$I = \frac{1}{2} | \vec{V}_A \cdot F(z) |^2 \quad (4.47)$$

En remplaçant $\vec{F}(z)$ par son expression, nous obtenons :

$$I = \frac{1}{4(1+\alpha^2)} | \vec{V}_A \begin{pmatrix} \cos^2(\delta) e^{i \int_0^z \lambda g(u) du} + \sin^2(\delta) e^{-i \int_0^z \lambda g(u) du} & -i \sin(2\delta) \sin \int_0^z \lambda g(u) du \\ -i \sin(2\delta) \sin \int_0^z \lambda g(u) du & \sin^2(\delta) e^{i \int_0^z \lambda g(u) du} + \cos^2(\delta) e^{-i \int_0^z \lambda g(u) du} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 - i\alpha \\ 1 + i\alpha \end{pmatrix} |^2 \quad (4.48)$$

Comme α est petit nous pouvons négliger α^2 par rapport à 1 au dénominateur. Après quelques calculs, nous trouvons :

$$I = \cos^2(2\delta) \sin^2 \left(\int_0^z \lambda g(u) du \right) + \alpha^2 \cos^2 \left(\int_0^z \lambda g(u) du \right) - \alpha \cos(2\delta) \sin \left(2 \int_0^z \lambda g(u) du \right) + \alpha^2 \sin^2(\delta) \sin^2 \left(\int_0^z \lambda g(u) du \right) \quad (4.49)$$

Après hétérodynage, nous obtenons simplement :

$$I = 2\alpha \cos(2\delta) \sin\left(2 \int_0^z \lambda g(u) du\right) \quad (4.50)$$

Si nous avons affaire à des faibles déphasages, nous pouvons développer au premier ordre le sinus :

$$I = 4\alpha \cos(2\delta) \lambda \int_0^z g(u) du \quad (4.51)$$

En utilisant la relation 4.42, nous obtenons :

$$I = 4\alpha a \int_0^z g(u) du \quad (4.52)$$

Annexe IV.

Description des cristaux nonlinéaires utilisés pour l'étude de n_2^{GSH} .

Les cristaux que nous avons choisis sont communément utilisés pour la génération de second harmonique : le KDP et le BBO³ sont des cristaux uniaxes ayant respectivement les symétries $\bar{4}2m$ et $3m$. Leur taille de coupe (θ et ϕ) a été calculée pour maximiser le coefficient de susceptibilité d'ordre deux d_{eff} dans une interaction nonlinéaire de type I (ooe). Les paramètres qui caractérisent ces cristaux sont résumés dans le tableau IV. Les longueurs des cristaux ont été choisies en fonction de la différence de vitesse de groupe $\Delta v_g(\lambda_0)$ existant entre les ondes polarisées suivant l'axe ordinaire (fondamentales) et extraordinaire (harmoniques).

Cristaux		BBO	KDP
Longueur du cristal	L (cm)	0.1 ou 0.2	1 ou 2
Angles de coupe	$(\theta_{(\delta k=0)}, \phi)$ (°)	(22.9496,90)	(41.1790,45)
Susceptibilité d'ordre deux	$d_{eff} \left(\frac{pm}{V} \right)$	2.18	0.257
Acceptance spectrale	$\frac{\partial \Delta k}{\partial \lambda} \left(\frac{cm^{-1}}{nm} \right)$	-2.99	0.18
Acceptance angulaire	$\frac{\partial \Delta k}{\partial \theta} \left(\frac{cm^{-1}}{mrad} \right)$	-11.07	-4.99
Différence de vitesse de groupe	$\Delta v_g(\lambda_0) \left(\frac{fs}{mm} \right)$	88.4	5.05
Puissance critique	$P_c(GW)$	0.035	1.886
Phase nonlinéaire maximum	$\Phi^{max}(rad)$		

Dans nos conditions expérimentales, les polarisations des ondes sont perpendiculaires au plan de travail. Elles sont parallèles à l'axe ordinaire du cristal. L'accord de phase se fait alors en tournant le cristal autour de cette axe ordinaire. Le pas du désaccord donné par le moteur pas à pas $\delta\theta \sim 10^{-2^\circ}$ est suffisant pour décrire avec précision les phénomènes en fonction du désaccord de phase. A chaque pas du moteur, la variation d'accord de phase pour les cristaux de BBO et de KDP sont respectivement

³KDP : KH_2PO_4 , BBO : $\beta - BaB_2O_4$

$|\delta(\Delta k)^{BBO}| = 1.93\text{cm}^{-1}$ et $|\delta(\Delta k)^{KDP}| = 0.87\text{cm}^{-1}$. La géométrie d'accord de chaque est représentée sur la figure 4.10. L'accord de phase doit être réalisée pour la second

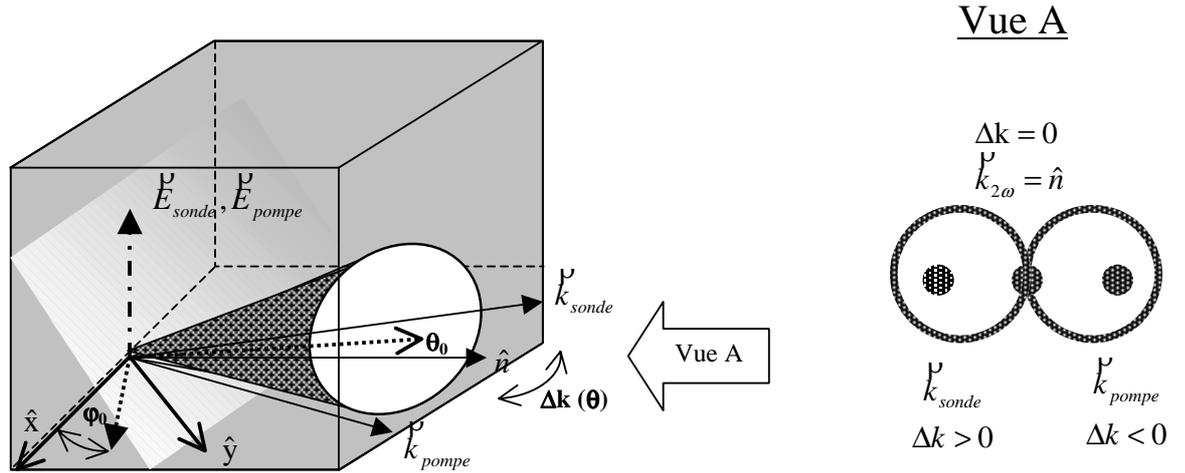


FIG. 4.10 — Schéma du cristal décrivant la configuration d'accord de phase utilisé.

harmonique générée sur la bissectrice (axe z). Avec notre configuration expérimentale, l'accord de phase n'est réalisé que dans une seule direction. Ainsi, si la normale du cristal est orientée suivant la bissectrice des deux faisceaux, l'accord de phase pour le génération de second harmonique est nul. Nous notons cette situation expérimentale comme $\Delta k^{GSH} = 0$. Il faut noter que dans ce cas, l'angle entre les faisceaux pompe et sonde était de l'ordre de 2° . Ainsi, l'accord de phase pour ces faisceaux à la fréquence fondamentale est non nul et opposé l'un de l'autre. Dans notre situation expérimentale, si $\Delta k^{GSH} = 0$, pour le BBO nous avons :

$$\Delta k^{sonde} = -\Delta k^{pompe} = 386\text{cm}^{-1} \quad (4.53)$$

tandis que pour le KDP,

$$\Delta k^{sonde} = -\Delta k^{pompe} = 174\text{cm}^{-1} \quad (4.54)$$

Ceci nous permet déjà de noter un point expérimental important. Comme l'accord de phase n'est pas réalisé pour les ondes évoluant à la fréquence fondamentale, celles-ci seront peu dépeuplées lors de la conversion de fréquence.

Annexe V.

Propagation d'une onde gaussienne dans un système afocal

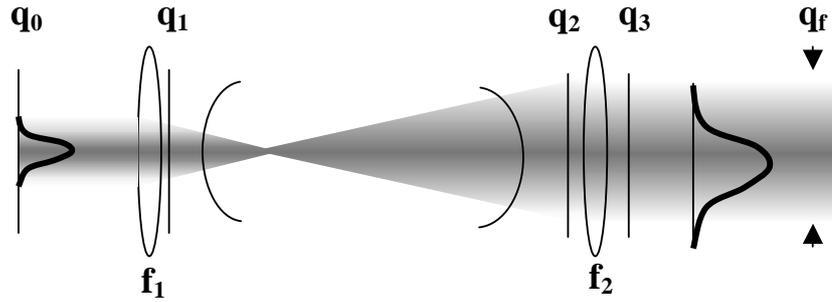


FIG. 4.11 — Système d'imagerie utilisé pour la mesure des fronts d'onde.

L'objectif est de calculer la propagation du paramètre gaussien $q_f(z)$ à partir du paramètre initial $\frac{1}{q_0} = \frac{1}{R_0} - i\frac{\lambda}{\pi w_0^2 n}$. Nous calculons l'image du plan d'onde du faisceau placé à la distance f_1 de la première lentille. Pour cela, nous considérons :

$$q_1 = q_0 + f_1; \quad (4.55)$$

En optique géométrique, l'image (notée p') d'un plan d'onde placé à la distance p , par une lentille de focale f_1 , est donnée par la relation :

$$\frac{1}{p'} = \frac{1}{p} - \frac{1}{f_1} \quad (4.56)$$

En l'appliquant dans notre cas, nous obtenons

$$\frac{1}{q_2} = \frac{1}{q_1} - \frac{1}{f_1} \quad (4.57)$$

Le faisceau est focalisé à la distance f_1 et se propage alors sur une distance $l = f_1 + f_2$. Avant la deuxième lentille, le paramètre gaussien, q_3 , s'écrit :

$$q_3 = q_2 + l \quad (4.58)$$

Pour la deuxième lentille, la transformation est la même :

$$\frac{1}{q_4} = \frac{1}{q_3} - \frac{1}{f_2} \quad (4.59)$$

Au plan focal de la deuxième lentille, le paramètre devient :

$$q_f = q_4 + f_2 = f_2 + \frac{1}{\frac{1}{\frac{1}{q_0} + f_1} - \frac{1}{f_1} + f_1 + f_2} - \frac{1}{f_2} \quad (4.60)$$

En considérant le paramètre $g = \frac{f_1}{f_2}$, le développement de ce calcul donne :

$$q_f = \frac{\frac{1}{R_0}}{g^2 \left[\left(\frac{1}{R_0} \right)^2 + \left(\frac{\lambda}{\pi w_0^2 n} \right)^2 \right]} + I \frac{\frac{\lambda}{\pi w_0^2 n}}{g^2 \left[\left(\frac{1}{R_0} \right)^2 + \left(\frac{\lambda}{\pi w_0^2 n} \right)^2 \right]} \quad (4.61)$$

il est intéressant de revenir à l'inverse de q_f . Ceci permet de faire l'analogie avec l'expression 3.62. La solution du calcul se simplifie :

$$\frac{1}{q_f} = \frac{g^2}{R_0} + i g^2 \frac{\lambda}{\pi w_0^2 n} = g^2 q_0 \quad (4.62)$$

Notons que si $g = 1$, nous obtenons $q_f = q_0$. De plus, nous vérifions bien ici, qu'un front d'onde plan ($R = \infty$), imagé par un télescope de grandeur $g = 1$ se propage sans déformation.

Table des figures

1	Schéma de principe du filtrage spatial.	4
2	Schéma de principe de l'effet de cascade $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$	5
1.1	Contributions Kerr et cascade à la variation d'indice nonlinéaire.	15
1.2	Schéma de principe de la mesure d'effet Kerr optique.	16
1.3	Expérience d'effet Kerr optique hétérodyne résolue en temps.	18
1.4	Configuration des polarisations pompe et sonde pour le calcul du signal hétérodyne.	19
1.5	Configuration des polarisations pompe et sonde pour le cristal de ZnTe coupé dans le plan $\langle 110 \rangle$	23
1.6	(a) : Signaux d'effet Kerr mesurés à $\theta = 90^\circ$ homodyne pour $\alpha > 0$ (segment) et $\alpha < 0$ (trait plein). (b) : Signaux d'effet Kerr hétérodyne pour $\theta = 90^\circ$ (signal $\alpha > 0$ - signal $\alpha < 0$).	24
1.7	Signaux d'effet Kerr hétérodynes mesurés pour deux angles de polarisation θ de l'onde pompe.	25
1.8	(a) : (o) Signal d'effet Kerr mesuré à $\theta = 62^\circ$, (-) Paramétrage du signal Kerr à $\tau = 0ps$. (b) Signal dû à l'effet de cascade : différence du signal Kerr avec la gaussienne paramétrée.	25
1.9	(a) : Amplitude du signal Kerr à retard nul ($\tau = 0$) en fonction de θ . (b) : Amplitude de la première oscillation en fonction de θ ($\tau \neq 0$).	26
1.10	Paramétrage de l'évolution de l'amplitude des contributions instantanées (a) et non instantanées (b) au signal d'effet Kerr.	30
1.11	(a) : Forme temporelle du champ électrique THz généré (trait plein) obtenue à partir de l'enveloppe gaussienne de l'onde optique. (b) : Dispersion de l'indice (trait plein) dans la région spectrale THz (pointillés). Les points représentent l'indice de groupe optique à $\lambda = 800nm$	32

1.12	Accord de phase réalisé pour le cristal de ZnTe ($\lambda_0 = 800nm$).	33
1.13	Configuration des polarisations pompe et sonde pour le cristal de ZnTe coupé dans le plan $\langle 110 \rangle$	34
1.14	(a) : Densité spectrale $\tilde{I}^{THz}(\Omega, z)$ du champ électrique THz généré. (Notons qu'il est possible de comparer le spectre initial $\tilde{I}^{THz}(\Omega, z = 0)$ (T=0.2ps) avec le spectre à la sortie du cristal $\tilde{I}^{THz}(\Omega, z = L)$ (T=17 ps). (b) : Forme temporelle $I^{THz}(t, z)$ pour trois temps de propagation T. Les pointillés représentent la forme temporelle de l'impulsion pompe $ S(t) ^2$	38
1.15	Superposition de la forme temporelle de l'onde sonde avec celle de l'onde TeraHertz pour deux retards pompe-sonde τ positif et négatif à l'entrée du cristal.	42
1.16	Evolution des signaux Kerr et contribution des phénomènes de cascade (a) : $S^{(Kerr)}(\tau)$ (pointillé) et $S^{(THz)}(\tau)$ (trait plein) (b) $\tilde{S}^{(THz)}(\Omega)$	44
1.17	Signaux Kerr enregistrés (cercles) pour deux angles de polarisation $\theta = 0^\circ$ et $\theta = 90^\circ$ pour le ZnTe (Fig. (a) et (b)) et le ZnSe (Fig. (c) et (d)). Les traits pleins représentent le paramétrage des courbes avec les équations 1.53 et 1.54.	45
1.18	Longueur de cohérence pour le cristal de ZnTe et de ZnSe dans le domaine TeraHertz.	47
1.19	(a) et (c) Simulation ($\theta = 0^{(o)}$) du signal Kerr $S^{Kerr}(\tau)$ (pointillés) et cascade $S^{cascade}(\tau)$ (trait plein) pour le cristal de ZnTe et de ZnSe. (b) et (d) Simulation ($\theta = 0^{(circ)}$) de la densité spectrale $\tilde{S}(\Omega)$ pour le ZnTe et le ZnSe.	48
1.20	Signal expérimental (cercle) enregistré à $\theta = 40^\circ$ dans le cas du ZnTe. Le trait plein : paramétrage par les expressions 1.53 et 1.54.	49
2.1	Principe d'auto-diffraction spatiale.	58
2.2	Principe d'auto-diffraction spectrale.	58
2.3	Schéma de principe pour la création de nouvelles fréquences à partir de processus $\chi^{(2)}$	60
2.4	Schéma expérimental du dispositif d'auto-diffraction spectrale.	61
2.5	Spectre de l'impulsion laser issue de l'amplificateur régénératif.	62
2.6	Schema de principe pour le filtrage expérimental des deux composantes spectrales.	62

2.7	Mesure du spectre filtré par le masque d'amplitude ((a) échelle linéaire et (b) semi-logarithmique).	63
2.8	Mesure du spectre harmonique à $\Delta k = 0$ ((a) échelle linéaire et (b) semi-logarithmique).	64
2.9	Mesure du spectre fondamental à $\Delta k = 0$ ((a) échelle linéaire et (b) semi-logarithmique).	64
2.10	(a) : Evolution de l'amplitude des pics générés à $\omega + 3\Delta\omega$ (\square) et $(\omega - 3\Delta\omega)$ (\circ) et (b) : Evolution de l'amplitude des pics générés à 2ω (\square) et $(2\omega + 4\Delta\omega)$ (\circ).	65
2.11	Evolution de l'amplitude du pic à $\omega_0 \pm 3\Delta\omega$ en fonction de Δk (pointillées : contribution constante du $\chi^{(3)}$).	66
2.12	Densité spectrale simulée pour les ondes fondamentales et harmoniques à $\Delta k = 0$ en échelle linéaire et logarithmique.	69
2.13	Comparaison entre les résultats expérimentaux et les solutions analytiques (trait plein) pour le spectre harmonique et fondamental.	73
2.14	Evolution de l'amplitude du pic à $\omega_0 \pm 3\Delta\omega$ en fonction de Δk avec (a) et sans (b) la contribution du $\chi^{(3)}$ (trait plein : expression analytique).	74
2.15	Schéma de principe pour la création de nouvelles fréquences spatiales à partir de processus $\chi^{(2)}$	77
2.16	Réseau nonlinéaire généré par le couplage entre l'onde pompe et l'onde sonde à travers la génération de second harmonique.	78
2.17	Schéma expérimental du dispositif d'auto-diffraction spatiale.	79
2.18	Observation des fréquences fondamentales diffractées.	80
2.19	Observation des fréquences harmoniques diffractées.	80
2.20	Trace d'auto-corrélation mesurée dans trois directions : (Δ) l'onde harmonique $I^{(2)}(\tau)$ suivant la bissectrice, (\circ) onde fondamentale diffractée $I^{(3)}(\tau)$ et (\square) onde harmonique diffractée $I^{(4)}(\tau)$	83
2.21	Maximum des traces d'auto-corrélation mesurée dans trois directions : (\square) l'onde harmonique $I^{(2)}(\tau)$ suivant la bissectrice, (Δ) onde fondamentale diffractée $I^{(3)}(\tau)$ et (\circ) onde harmonique diffractée $I^{(5)}(\tau)$	84
2.22	Trace d'auto-corrélation $I^{(2)}(\tau)$ mesurée dans la direction de la bissectrice pour $\Delta k = 120\text{cm}^{-1}$, $\Delta k = 0\text{cm}^{-1}$ et $\Delta k = -120\text{cm}^{-1}$	85
2.23	(a) : Evolution de l'amplitude de $I^{(2)}(\tau = 0)$ en fonction de Δk et (b) : Evolution de la durée à mi-hauteur de $I^{(2)}(\tau)$ en fonction de Δk	86

2.24	Evolution des traces d'auto-corrélation $I^{(3)}(\tau, \Delta k)$ en fonction de l'intensité pompe pour trois Δk différents.	87
2.25	Evolution de $I^{(2)}(\tau, \Delta k)$ (\circ), $I^{(3)}(\tau, \Delta k)$ (\triangle) et $I^{(4)}(\tau, \Delta k)$ (\square) en fonction de Δk . (b) Zoom sur les courbes $I^{(3)}(\tau, \Delta k)$ (\triangle) et $I^{(4)}(\tau, \Delta k)$ (\square).	89
2.26	$I^{(4)}(\tau, \Delta k = 0)$	90
3.1	Schéma de principe d'une expérience d'interférométrie spectrale. La modification du chemin optique par le milieu induit un décalage de frange.	97
3.2	Etapas de la reconstruction de phase.	101
3.3	Simulation du décalage de frange.	103
3.4	Montage d'expérimental pompe-sonde d'interférométrie spectrale (S : Séparatrice, CC : coin de cube).	104
3.5	Dispositif pour créer les deux répliques sur la voie du faisceau sonde.	105
3.6	Description de la phase de référence permettant de caractériser notre interféromètre.	107
3.7	Interférogrammes mesurés pour deux désaccords de phase différents (KDP 1cm 100 μJ).	108
3.8	Décalage des interférogrammes pour (a) $\Delta k = -3cm^{-1}$ et (b) $\Delta k = 3cm^{-1}$. Les franges en pointillés représentent l'interférogramme de référence	109
3.9	Phase retirée $\Phi(\omega)$ pour $\Delta k = \pm 3cm^{-1}$	110
3.10	Evolution de $B(\Delta k)$ pour le cristal de KDP.	111
3.11	Phase nonlinéaire en fonction de Δk pour différentes configurations expérimentales.	111
3.12	Comparaison de $B(\Delta k)$ pour les cristaux de KDP et de BBO.	112
3.13	Interférogramme $S(\omega)$ et phase $\Phi(\omega)$ autour de $\Delta k = 0$ (trait épais).	114
3.14	Modification du temps retard et de la courbure de la phase spectrale en fonction de Δk pour les cristaux de KDP (\circ : L = 1 cm, $E_p = 100\mu J$, \square) L = 2 cm, $E_p = 30\mu J$ et \triangle : L = 2 cm, $E_p = 100\mu J$	114
3.15	Mesure de l'intensité intégré sur le spectre $I(\Delta k)$	115
3.16	Schéma de l'onde plane modulée.	117
3.17	Comparaison entre la phase mesurée et la phase calculée en fonction de Δk . (Cercles : résultats expérimentaux, trait plein : expression analytique et segments : résultats numériques.	122

3.18	Lentille nonlinéaire créée par une nonlinéarité de type Kerr et par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux : analogie avec une lentille épaisse.	126
3.19	Montage d'expérimental pompe-sonde de la mesure de front d'onde du faisceau sonde (S : Séparatrice, CC : coin de cube).	129
3.20	Schéma de principe de l'analyseur de surface d'onde en 3D et en 2D. La pente local α permet de remonter à l'inclinaison du vecteur d'onde local.	130
3.21	Exemple de mesure d'intensité (a) et de phase (b) et (c) (tilt et focus) mesuré par l'analyseur de surface d'onde.	132
3.22	Mesure de front d'onde après le transport du faisceau modifié par la phase nonlinéaire $\Phi(x, y) \propto I(x, y)$.	133
3.23	Illustration de l'inversion du front d'onde en présence du faisceau pompe pour un cristal de BBO de 2 mm avec $E_p = 300 \mu J$.	135
3.24	Phase spatiale (coupe suivant Y) de l'onde sonde pour $\Delta k = \pm 20 cm^{-1}$ (trait plein), et $\Delta k = 0 cm^{-1}$ (pointillés).	136
3.25	Evolution du Rayon de courbure et de la vergence ($\propto \frac{1}{R}$) en fonction de Δk pour un cristal de BBO de 2 mm avec $E_p = 300 \mu J$.	137
3.26	Evolution du Rayon de courbure et de la vergence ($\propto \frac{1}{R}$) en fonction de Δk pour un cristal de BBO de 2 mm avec $E_p = 100 \mu J$.	138
3.27	Evolution de la vergence ($\propto \frac{1}{R}$) en fonction de Δk pour différents cristaux de BBO et de KDP.	139
4.1	Montage d'expérimental.	144
4.2	(a) Mesure de la phase spatiale du faisceau en propagation libre sans le verre de silice ni le cristal doubleur. (b) Coupe suivant Y de la phase (trait plein) et de l'intensité reconstruite (segment).	145
4.3	(a) Mesure de la phase spatiale du faisceau avec le verre de silice et sans le cristal doubleur. (b) Coupe suivant Y de la phase (trait plein) et de l'intensité reconstruite (segment). (c) Evolution et paramétrage de la phase spatiale en fonction de l'intensité laser I_p .	146
4.4	Faisceau libre sans déformation.	148
4.5	Faisceau avec traversée du verre de silice.	148
4.6	Faisceau compensé : verre de silice + cristal de BBO ($\Delta k = 38 cm^{-1}$).	148
4.7	Démonstration expérimentale de la compensation d'un n_2 positif par un n_2 négatif. Sur les figures (b) : coupe suivant Y de la phase (trait plein) et l'intensité reconstruite (segment).	148

4.8	Evolution de la phase nonlinéaire mesurée en fonction de Δk en présence du verre de silice (\square) et en absence du verre de silice (\circ) (cristal de BBO seul)	150
4.9	(a) : Coupe de la phase spatiale mesurée en fonction de I_p au point de compensation (pointillés) (Le trait plein représente la coupe de la phase spatiale induite dans la silice seule et qui a été compensée). (b) Evolution de la phase spatiale totale au point de compensation à $\Delta k = 38cm^{-1}$ (\circ), à $\Delta k = -38cm^{-1}$ (\triangle) et en l'absence du cristal de BBO (silice seule) (\square).	150
4.10	Schéma du cristal décrivant la configuration d'accord de phase utilisé.	172
4.11	Système d'imagerie utilisé pour la mesure des fronts d'onde.	173

Bibliographie

- [1] L.A Ostrowsky, *JETP Lett.*, **5**, 272-5 (1967)
- [2] G.I. Stegeman, D.J Hagan et L. Torner, *Opt. and Quant. Electron.*, **28**, 1691 (1996)
- [3] I. Ledoux, C. Lepers, A. Perigaud, J. Badan et J. Zyss, *Opt. Commun.* **80**, 149 (1990)
- [4] Ch. Bosshard, R. Speiter, M. Zgonik et P. Gunter, *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 2816-19 (1995)
- [5] T.K. Gustafson, J.P.E. Taran, P.L. Kelley et R.Y. Chiao, *Opt. Commun.*, **2**, 17-21 (1970)
- [6] Ch. Bosshard, R. Speiter, M. Zgonik et P. Gunter, *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 2816-19 (1995)
- [7] Y.H. Jin et X.C. ZHANG *J. of Nonlinear Opt. Phys. and Mat.*, **4**, 459-495 (1995)
- [8] Y.R. Shen, *The principles of nonlinear optics*, Ed. John Wiley and Sons
- [9] B. Lawrence, M. Cha, J.U. Kang, W. Torruellas, G.I. Stegeman, G. Baker, J. Meth et S. Etemad, *Electron. Lett.*, **30**, 447-8 (1994)
- [10] S. Montant, *Thèse de l'Université Bordeaux I*, no 2131 bis, "Etude des nonlinéarités d'ordre deux et trois de verres" (1997)
- [11] E.D. Palick *Handbook of optical constants*, Academic, New York (1985)
- [12] A. Nahata, A. S. Weling and T. F. Heinz, *Appl. Phys. Lett.*, **69**, 2321 (1996)
- [13] A. Bonvalet, M. Joffre, J. L. Martin, and A. Migus, *Appl. Phys. Lett.*, **67**, 2907 (1995)
- [14] H. J. Bakker, S. Hunsche, and H. Kurz, *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 2823 (1992)
- [15] R. DeSalvo, D.J Hagan, M. Sheik-Bahae, G. Stegeman, E.W. Van Stryland et H. Vanherzeele, *Opt. Lett.*, **17**, 28 (1992)
- [16] G. Gallot et D. Grischkowsky, *J. Opt. Soc. Am. B*, **16**, 1204 (1999)
- [17] G.D. Boyd and M.A. Pollack, *Phys. Rev. B*, **7**, 5345 (1973)

- [18] D.H. Auston, *Appl. Phys. Lett.*, **43**,713 (1983)
- [19] T.E. Stevens, J.K. Wahlstrand, J. Kuhl et R. Merlin *Science*, **291**,628 (2001)
- [20] D.H. Auston et M.C. Nuss, *IEEE J. of Quant. Electron.*, **24**, 184 (1988)
- [21] O. Albert et J. Etchepare, *Opt. Commun.*, **154**,345 (1998)
- [22] R. DeSalvo, D.J Hagan, M. Sheik-Bahae, G. Stegeman, E.W. Van Stryland et H. Vanherzeele, *Opt. Lett.*, **17**, 28 (1992)
- [23] F. Hache, A. Zéboulon, G. Gallot et G.M. Gale, *Opt. Lett.*, **20**,1995-8 (1995)
- [24] S. Ashihara, J. Nishina, T. Shimura et K. Kuroda, *J. Opt. Soc. Am. B.*, **19**,2505 (2002)
- [25] L.J. Qian , X. Liu et F.W. Wise, *Opt. Lett.*, **24**,166 (1999)
- [26] X. Liu, L.J. Qian et F.W. Wise, *Opt. Lett.*, **82**,4631 (1999)
- [27] M. Born et E. Wolf, "Principles of Optics", *Pergamon Press*, 6^{eme} Ed.
- [28] C. Froehly, A. Lacourt et J.C. Vienot, *J. Opt.*, **4**,183 (1973)
- [29] J. Piasecki, B. Colombeau, M. Vampouille, C. Froehly et J.A. Arnaud, *Appl. Opt.*, **19**,3749 (1980)
- [30] L. Lepetit, G. Chériaux et M. Joffre, *J. Opt. Soc. Am. B.*, **12**,2467 (1995)
- [31] L. Kador, *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 2938 (1995)
- [32] A. Yariv, "Quantum Ekelectronics", *J. Wiley and sons*, (1989)
- [33] R. Danielus, P. Di Trapani, A. Dubietis, A. Piskarskas, D. Podenas et G.P. Banfi, *Opt. Lett.*, **18**,574 (1993)
- [34] A.E. Siegman,"LASERS", *Univ. Sc. Books*, (1986)
- [35] R. Danielus, P. Di Trapani, A. Dubietis, A. Piskarskas, D. Podenas et G.P. Banfi, *Opt. Lett.*, **18**,574 (1993)
- [36] H. Tan, G.P. Banfi et A. Tomeselli *Appl. Phys. Lett.*, **63**, 2472 (1993)
- [37] C. Sauteret, J.P. Hermann, R. Frey. F. Pradere, J Ducuing, R.H. Baughman et R.R. Chance *Phys. Rev. Lett.*, **36**, 956 (1976)
- [38] N.R. Belashenkov, S.V. Gagarskii et M.V. Inochkin, *Opt. Spectrosc.*, **66**,806-808 (1989)
- [39] R. DeSalvo, D.J Hagan, M. Sheik-Bahae, G. Stegeman, E.W. Van Stryland et H. Vanherzeele, *Opt. Lett.*, **17**, 28 (1992)
- [40] G.I. Stegeman, M. Sheik-Bahae, E.W. Van Stryland et G. Assanto, *Opt. Lett.*, **18**,13 (1992)
- [41] J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing et P.S. Pershan, *Phys. Rev.*, **127**,1918 (1962)

- [42] L. Videau, Cl. Rouyer, J. Garnier et A. Migus, *J. Opt. Soc. Am. B.*, **17**, 1008 (2000)
- [43] A. C. L. Boscheron, *thèse de Doctorat*, Université de Paris XI, France (1996)
- [44] F. Hache, A. Zéboulon, G. Gallot et G.M. Gale, *Opt. Lett.*, **20**,1995-8 (1995)
- [45] K.A. Stankov et J. Jethwa, *Opt.Commun.*, **66**,41-6 (1988)
- [46] A. Cerrullo, S. De Silvestri, A. Monguzzi, D. Segala et V. Magni, *Opt. Lett.*, **20**, 746-8(1995)
- [47] Y. Wang et R. Draglia, *Phys. Rev. A*, **41**,5645-9 (1990)
- [48] A. Umbrasas, J.C. Diels, J. Jacob, G. Valiulis et A. Piskarskas *Opt. Lett.*, **20**, 2228-30 (1995)
- [49] R. Trebino, K. W. Delong, D.Fittinghoff, J. N. Sweetser, M. A. Krumbügel, B. Richman et D.J. Kane, *Rev. Sci. Instrum.*, **68**, 3277 (1997)
- [50] A. Kwok, L. Jusinski, M. A. Krumbügel, J. N. Sweetser, D.Fittinghoff et R. Trebino,*IEEE J. of Selected topics in Quant. Electron.*, **4**, 271 (1998)
- [51] S. Ito, H. Nagaoka, T. Miura, K. Kobayashi, A. Endo et K. Torizuka, *Appl. Phys. Lett.*,**74**, 343-347 (2002)
- [52] F. Druon, G. Chériaux, J. Faure, J. Nees, M. Nantel, A. Maksimchuk, G. Mourou, J.C. Chanteloup et G. Vlodin, *Opt. Lett.*,**23**, 1043 (1998)
- [53] J.C. Guyot, A. Bettinger et D. Auric, *Revue de physiques appliquée*, **13**, 198 (1973)
- [54] J.C. Chanteloup, F. Druon, A. Maksimchuk et G. Mourou, *Opt. Lett.*,**23**, 621 (1996)
- [55] O.A. Konoplev et D.D. Meyerhofer, *IEEE J. of Selected topics in Quant. Electron.*, **4**, 459 (1998)
- [56] K. Beckwitt, F. W. Wise, L. Qian, L.A. Walker II et E. Canto-Said, *Opt. Lett.*, **26**, 1696 (2001)
- [57] S. Santran, *Thèse de l'Université Bordeaux I*, no 2342, "Caractérisation nonlinéaire de composants optiques d'une chaîne laser de forte puissance", (2000)

**CHARACTERIZATION OF THE NONLINEAR REFRACTION INDEX
INDUCED BY CASCADING PHENOMENA VIA SECOND
HARMONIC GENERATION OR TERAHERTZ OPTICAL
RECTIFICATION :
APPLICATION TO THE COMPENSATION OF THE B-INTEGRAL IN
HIGH-POWER LASER CHAINS.**

SUMMARY

The aim of this work was to compensate for the B-integral present in high power laser chain using a cascade of nonlinear second order phenomena. The two ways providing a Kerr-like nonlinearity were studied.

A Kerr experimental set-up evidenced the nonlinear phase accumulated via a Tera-Hertz (THz) wave. The temporal femtosecond dynamic and the competition with the intrinsic Kerr nonlinearity are presented. The analytical model describes each stage of the cascading process : The THz wave generation and the subsequent optical wave modification.

The nonlinear phase-shift accumulated via an harmonic wave, n_2^{SHG} , was characterized using broad bandwidth spectrums. Self-diffraction experiments measure the n_2^{SHG} amplitude whereas phase measurements precisely describe the spectral et spatial nonlinearity n_2^{SHG} .

These studies indicate that n_2^{GSH} is suitable for compensation of the nonlinear phase of short pulses. Experimentally, a B-integral of 4π , was compensated by a BBO crystal on a significant intensity range.

KEY-WORDS :

Nonlinear optic	Second order cascading phenomena
Heterodyne optical Kerr effect	Nonlinear femtosecond pulse characterization
Nonlinear spectral phase measurements	Femtosecond pulse wave-front analyser
Nonlinear refraction index measurements	Break-up integral

**CARACTÉRISATION DE L'INDICE NONLINÉAIRE INDUIT EN
PRÉSENCE DE GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE OU DE
REDRESSEMENT OPTIQUE :
APPLICATION À LA COMPENSATION DE L'INTÉGRALE DE
RUPTURE.**

RÉSUMÉ :

L'objectif consistait à compenser l'intégrale B présente dans les chaînes laser de puissance par cascade d'effets nonlinéaires d'ordre deux. Les deux voies amenant une nonlinéarité de type Kerr ont été étudiées.

Le déphasage nonlinéaire via une onde TeraHertz (THz) a été mesuré à l'aide d'une expérience d'effet Kerr. Sa dynamique femtoseconde nonlocale et la compétition avec la nonlinéarité d'ordre trois sont présentées. Le modèle analytique permet de décrire chaque étape du processus : la génération d'onde THz et la rétroaction sur une onde optique.

Le déphasage nonlinéaire via une onde harmonique, n_2^{GSH} , a été caractérisé pour des impulsions à spectre large. Les expériences d'auto-diffraction mesurent l'amplitude tandis que les mesures de phase précisent la forme spectrale et spatiale de n_2^{GSH} .

Ces études indiquent que n_2^{GSH} est susceptible de corriger l'intégrale B. Expérimentalement, une intégrale $B \sim 4\pi$ a été compensée par un cristal de BBO sur une plage d'intensité importante.

MOTS-CLEFS :

Optique nonlinéaire

Caractérisation nonlinéaire d'impulsion courte

Mesure de phase nonlinéaire spectrale

Mesure d'indice nonlinéaire

Cascade de phénomènes nonlinéaires d'ordre deux

Effet Kerr optique hétérodyne

Analyse de front d'onde d'impulsion courte

Intégrale de rupture