

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
Université A.MIRA-BEJAIA
Faculté des Sciences Exacte
Département de Physique



Mémoire de Fin de Cycle

En vue de l'obtention du diplôme de Master en Physique

Spécialité: Physique des Matériaux

Thème

Modélisation et simulation de la réfraction non linéaire d'ordre n

Présenté par :

LEKBAL Oussama & MOUSSOUNI Youcef

Mémoire soutenu le: 13/07/2022 Devant le Jury composé de:

Mr A.LAHRECHE	MCB	Président
Mr F.KESSI	MCA	Encadreur
Mr B.KAHOUADJI	MCA	Examineur

Année universitaire : 2021/2022

Dédicaces

À Mes très chers parents, à mon frère et ma sœur, ainsi qu'à tous mes proches.

À tous mes amis, mes camarades et mon binôme.

À la mémoire des êtres chers qui nous ont quittés.

Oussama

Dédicaces

Je dédie ce modeste travail :

À mes très chers parents,

À mes chères sœurs et mon petit frère.

Comme je le dédie à mes honorables amis :

AIT MABROUK Lamine, MEBARKI Lamine, ADRAR Fayçal,

BARA Anis.

Sans oublier mes camarades de classe des deux dernières promotions.

Mon cher Binôme : LEKBAL Oussama

Et à tous celles et ceux qui ont contribué de loin ou de près à

L'élaboration de notre projet de fin d'étude.

Youcef

Remerciements

Nous tenons à exprimer notre sincère gratitude envers notre très cher encadreur Mr KESSI, pour tout son soutien, sa disponibilité, ses qualités humaines et ses précieux conseils qui nous ont guidés tout au long de ce travail. Nous aimerions lui adresser nos profonds remerciements pour avoir contribué énormément à la réalisation de ce mémoire.

Nous aimerions remercier Mr LAHRECHE, pour avoir aimablement accepté de présider le jury.

Nos remerciements vont également à Mr KAHOUADJI, pour avoir accepté d'examiner ce travail.

A nos chers parents, nous adressons notre profonde reconnaissance pour tous leurs sacrifices et encouragements. Nos remercions nos amis et camarades pour leurs précieux soutiens et ce depuis le début.

.

Sommaire

Introduction générale.....	1
Chapitre 1 : Réfraction non linéaire.....	3
1. Introduction	3
2. Polarisation et susceptibilité non linéaires	3
2.1.Polarisation macroscopique.....	3
2.2.Polarisation microscopique	5
3. Phénomènes d'optique non linéaire du troisième ordre	5
3.1.Polarisation et susceptibilité non linéaire d'ordre 3	6
3.2.Origine des nonlinéarités cubiques.....	8
3.3.Absorption à deux photons.....	8
3.4.Effet Kerr optique.....	9
3.5.Indice de réfraction non linéaire.....	10
4. Techniques expérimentales	11
4.1.Mélange à quatre ondes dégénérées	11
4.2.Méthodes interférométriques.....	13
4.2.1. Configuration à un seul faisceau	13
4.2.2. Configuration à deux faisceaux distincts	14
4.2.3. Configuration à un seul faisceau séparé en un faisceau sonde et un faisceau pompe	15
4.2.4. Couplage à deux faisceaux	16
4.3.La technique Z-scan	16
4.3.1. Principe	16
4.3.2. Dispositif expérimental	16
4.3.3. Les configurations du Z-scan	18
4.3.4. Modèle théorique.....	19
Chapitre 2 : Modélisation de la réfraction non linéaire	21
1. Introduction	21
2. Faisceaux gaussiens.....	21
3. Modèle théorique.....	24

3.1.Hypothèses du modèle	24
3.2.Les équations de propagation	25
3.3.Intensité optique transmise	26
3.4.Variation de phase	27
3.5.Champ électrique transmis	28
3.6.Champ électrique à l'entrée de l'ouverture	29
3.7.Puissance optique et transmittance normalisée	30
3.8.Cas de la réfraction pure.....	31
Chapitre 3 : Simulations, résultats et interprétations.....	35
1. Introduction	35
2. Effet de l'augmentation de l'ordre du processus de réfraction non linéaire	35
3. Effet de la longueur de Rayleigh.....	39
4. Effet du changement de phase.....	40
Conclusion générale	42
Références bibliographiques	44
Listes des tableaux et des figures	47

Introduction Générale

L'optique non linéaire est la branche de l'optique qui étudie le comportement et l'interaction de la matière avec la lumière de très haute intensité. L'avènement des lasers dans les années soixante du siècle dernier a permis d'accéder à cette gamme d'intensité. En effet, ces derniers sont des sources de lumière cohérente, caractérisées par un très haut degré de monochromaticité, une grande directionnalité et une forte intensité. L'interaction de cette lumière de haute intensité avec la matière se traduit par réponse optique non linéaire de cette dernière, représentée par la polarisation. De cette interaction surgissent une variété de phénomènes classés selon différents ordres. L'étude de ces phénomènes donnera naissance à de nouvelles sciences, contribuant ainsi au développement technologique dans de nombreux domaines et différentes applications.

Un bon nombre de ces phénomènes sont liés à l'indice de réfraction non linéaire. Plusieurs phénomènes physiques contribuent à la variation de cet indice. Citons en particulier l'inhomogénéité de la répartition spatiale de cet indice dans un milieu ou de sa variation due à la présence d'ondes optiques. Il existe plusieurs types d'effets différents qui relèvent de cette définition générale.

Parmi les nombreuses techniques de caractérisation de la réfraction et de l'absorption non linéaires, on retrouve le mélange à quatre ondes dégénérées, les méthodes interférométriques, le couplage à deux faisceaux et la méthode Z-scan. Notre choix s'est porté sur la technique Z-scan pour la modélisation de la réfraction non linéaire. Ce choix se justifie par la simplicité et l'efficacité de cette technique expérimentale qui est devenue routinière dans les caractérisations optiques.

Ce mémoire s'inscrit dans le domaine de l'optique non linéaire. Nous nous pencherons plus particulièrement sur l'étude de la réfraction non linéaire. Notre but est d'établir un modèle théorique de la réfraction non linéaire, en rapport avec la méthode Z-scan, en utilisant un faisceau gaussien incident de profil circulaire. Notre approche consiste à généraliser les modèles existant pour un ordre n arbitraire de la nonlinéarité réfractive. Puis nous allons étudier l'influence de quelques paramètres liés essentiellement au faisceau gaussien incidents sur le processus de réfraction non linéaire à travers des simulations.

Dans le premier chapitre, une revue bibliographique générale sera présentée afin de poser quelques notions théoriques en relation avec la réfraction non linéaire. Il s'agira de définir la polarisation et la susceptibilité, plus précisément du troisième ordre. On va aussi aborder l'origine des nonlinéarités cubiques, puis nous allons établir des relations entre la polarisation, la susceptibilité et l'indice de réfraction non linéaire. Finalement, nous allons exposer les différentes techniques expérimentales de caractérisation de la réfraction non linéaire, avec un accent mis sur la technique Z-scan.

Le deuxième chapitre sera dédié à la construction du modèle théorique de la réfraction non linéaire avec un faisceau gaussien incident de profil circulaire. Pour cela, nous allons introduire tout d'abord les faisceaux gaussiens circulaires et détailler leurs propriétés et caractéristiques. Ensuite, nous énoncerons les hypothèses de notre modèle et nous décrirons les différentes étapes à suivre afin de déterminer une expression analytique de la transmittance optique normalisée. Dans cette procédure, nous allons considérer le cas général de la présence simultanée de l'absorption et de la réfraction non linéaire, et nous focaliser ensuite sur le cas particulier de la présence de la réfraction non linéaire et de l'absorption linéaire. Pour obtenir une expression analytique de la transmittance optique normalisée, adaptée à d'éventuels simulations ou réajustements, nous introduirons l'approximation des faibles non linéarités à travers l'hypothèse des faibles variations de phase.

Le dernier chapitre sera consacré à l'étude de l'influence des différents paramètres pertinents sur le processus de réfraction non linéaire via des simulations réalisées avec le logiciel Origin. Il s'agit en particulier de l'ordre de la nonlinéarité, de la longueur de Rayleigh et de la variation de phase. Nous terminerons ce modeste travail par une conclusion générale et des perspectives.

Chapitre 1

La réfraction non linéaire

1. Introduction

Dans ce premier chapitre, nous allons introduire quelques notions sur les phénomènes d'optique non linéaire du troisième ordre, plus particulièrement la réfraction non linéaire sous forme d'une revue bibliographique. En premier lieu, nous allons parler de la polarisation et susceptibilité non linéaires. Ensuite, nous énumérerons quelques phénomènes liés à l'optique non linéaire du troisième ordre. La deuxième partie sera consacrée à diverses techniques expérimentales de caractérisation de la réfraction non linéaire, avec une attention centrée sur la méthode Z-scan.

2. Polarisation et susceptibilité non linéaires

Le champ électrique macroscopique dans lequel est plongé un matériau est généralement différent du champ électrique local qui agit sur les constituants microscopiques (électrons, noyaux) créant ainsi la polarisation. D'où l'importance de différencier entre la polarisation macroscopique et microscopique, ou autrement dit, distinguer la susceptibilité (grandeur macroscopique) de la polarisabilité (grandeur microscopique).

2.1. Polarisation macroscopique

Sous l'effet d'un champ électrique externe négligeable \vec{E} par rapport au champ électronique local, le matériau constitué de particules chargées (noyaux et électrons) se polarise d'une façon proportionnelle au champ électrique \vec{E} . Cette polarisation est due à la déformation et à l'orientation des nuages électroniques, engendrées par la force de Lorentz. Sous l'action de cette force, les noyaux chargés positivement se déplacent dans le même sens que celui du champ électrique, tant dit que, les électrons chargés négativement se déplacent dans son sens inverse.

La relation entre le vecteur du champ électrique externe et le vecteur de polarisation électrique est exprimée par l'équation suivante [1] :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \overleftrightarrow{\chi}^{(1)} : \vec{E} \quad (1.1)$$

Où ε_0 est la permittivité diélectrique du vide et $\overleftrightarrow{\chi}^{(1)}$ est le tenseur de susceptibilité linéaire qui est reliée aux propriétés optiques linéaires d'un matériau, telles que la réfraction, la réflexion et la diffusion de la lumière. Ce tenseur est lié à celui de la permittivité électrique relative $\overleftrightarrow{\varepsilon}_r$ du matériau, par la relation suivante :

$$\overleftrightarrow{\chi}^{(1)} = \overleftrightarrow{\varepsilon}_r - \mathbb{I}_3 \quad (1.2)$$

Les tenseurs $\overleftrightarrow{\chi}^{(1)}$ et $\overleftrightarrow{\varepsilon}_r$ sont d'ordre 1, c'est-à-dire, des matrices carrées d'ordre. Le tenseur \mathbb{I}_3 est matrice unité d'ordre.

L'équation (1.1) fut la relation fondamentale de l'optique jusqu'à l'apparition des lasers. Ces derniers produisent des champs électriques d'intensités très élevées induisant une réponse du milieu qui n'est plus sous forme linéaire, d'où la nécessité d'introduire d'autres termes, dits non linéaires, dans l'expression de la polarisation totale.

Dans le cas de l'optique non linéaire, où le champ électrique externe est supérieur au champ électrique atomique, une dépendance non linéaire des paramètres optiques avec le champ électrique externe peut également se produire. La réponse optique sera décrite en généralisant l'équation (1.1). La procédure consiste à exprimer le vecteur de polarisation électrique \vec{P} comme une série de puissances du vecteur de champ électrique appliqué \vec{E} . Mathématiquement, cela revient à effectuer un développement en série de Taylor de la polarisation écrite sous la forme suivante $P(r, t) = f(\vec{E}(r, t))$ [2]. Ce développement donne l'expression suivante pour la polarisation :

$$\begin{aligned} \vec{P}(t) &= \varepsilon_0 [\overleftrightarrow{\chi}^{(1)} : \vec{E} + \overleftrightarrow{\chi}^{(2)} : \vec{E}^2 + \overleftrightarrow{\chi}^{(3)} : \vec{E}^3 + \dots + \overleftrightarrow{\chi}^{(n)} : \vec{E}^n] \\ &= \vec{P}^{(1)} + \vec{P}^{(2)} + \vec{P}^{(3)} + \dots + \vec{P}^{(n)} \quad (1.3) \end{aligned}$$

Nous remarquons dans ce développement, qu'en plus du terme linéaire, d'autres termes non linéaires, proportionnels à la puissance du champ électrique externe apparaissent.

Dans l'expression de la polarisation :

- les différentes puissances des champs sont des produits tensoriels :

$$\vec{E}^n = \vec{E}\vec{E}\vec{E} \dots \vec{E} \quad (1.4)$$

- Dans le cas général, le matériau est soumis à n champs de mêmes ou de fréquences différentes, et l'expression de la polarisation non linéaire d'ordre n s'écrit :

$$\vec{P}^{(n)} = \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(n)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n) \vec{E}_1(\omega_1) \vec{E}_2(\omega_2) \vec{E}_3(\omega_3) \dots \vec{E}_n(\omega_n) \quad (1.5)$$

- Les tenseurs $\vec{\chi}^{(2)}, \vec{\chi}^{(3)}, \dots, \vec{\chi}^{(n)}$ sont, respectivement, ceux des susceptibilités non linéaires d'ordres 2, 3, ..., n correspondant, respectivement, aux polarisations non linéaires $\vec{P}^{(2)}, \vec{P}^{(3)}, \dots, \vec{P}^{(n)}$ du nième ordre. L'unité de la susceptibilité du énième ordre $\vec{\chi}^{(n)}$ est le $(m/V)^{n-1}$.

2.2. Polarisation microscopique

Du point de vue microscopique, l'effet du champ électrique est d'induire une déformation du nuage électronique de chaque atome ou entité moléculaire, créant ainsi un moment dipolaire induit. Le vecteur de polarisation microscopique est lié au vecteur moment dipolaire par l'équation suivante :

$$\vec{P}_m = N\vec{p} \quad (1.6)$$

Notons que N représente la densité volumique des entités chargés.

La polarisation microscopique est liée au vecteur du champ électrique local \vec{E}_{loc} (champ local de Lorentz) [3] par la relation suivante :

$$\vec{P}_m = N(\vec{\alpha}\vec{E}_{loc} + \vec{\beta}\vec{E}_{loc}^2 + \vec{\gamma}\vec{E}_{loc}^3 + \dots) \quad (1.7)$$

Avec $\vec{\alpha}$ le tenseur de polarisabilité linéaire, $\vec{\beta}$ et $\vec{\gamma}$ représentent les tenseurs de polarisabilité non linéaire d'ordre deux et trois, aussi appelée les tenseurs d'hyperpolarisabilité non linéaire.

3. Phénomènes d'optique non linéaire du troisième ordre

Dans cette partie, nous allons décrire certains phénomènes non linéaires du troisième ordre liés au tenseur de susceptibilité non linéaire $\vec{\chi}^{(3)}$. Plusieurs effets non linéaires peuvent être engendrés par la nonlinéarité d'ordre trois, tel que l'effet Kerr optique, l'indice de la réfraction non linéaire, absorption a deux photons...etc.

3.1. Polarisation et susceptibilité non linéaire d'ordre 3

Considérons trois ondes monochromatiques, ayant des pulsations ω_1, ω_2 et ω_3 , traversant un milieu non linéaire. On aboutit à l'expression suivante du champ électrique externe :

$$\vec{E}(t) = \vec{E}_1 e^{-i\omega_1 t} + \vec{E}_2 e^{-i\omega_2 t} + \vec{E}_3 e^{-i\omega_3 t} + c. c \quad (1.8)$$

Où $c. c$ désigne le complexe conjugué. En utilisant la relation (1.5) et la notation d'Einstein, la composante suivant l'axe (OX) de la polarisation non linéaire du troisième ordre se présente sous la forme :

$$P_i^{(3)}(t) = \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l(t) \quad (1.9)$$

C'est une polarisation qui contient 44 termes, dont 22 correspondent à des ondes dont les fréquences ont la même direction de propagation que les ondes incidentes, tandis que les 22 autres ont une direction inverse [4]. Ces fréquences sont représentées ci-dessous :

$$\begin{aligned} &\omega_1, \omega_2, \omega_3, 3\omega_1, 3\omega_2, 3\omega_3, (\omega_1 + \omega_2 + \omega_3), (\omega_1 + \omega_2 - \omega_3), (\omega_2 + \omega_3 - \omega_1), \\ &(\omega_1 + \omega_3 - \omega_2), (2\omega_1 \pm \omega_3), (2\omega_1 \pm \omega_2), (2\omega_2 \pm \omega_3), (2\omega_2 \pm \omega_1), \\ &(2\omega_3 \pm \omega_2), (2\omega_3 \pm \omega_1) \quad (1.10) \end{aligned}$$

Donc, on voit que la propagation des trois ondes incidentes à l'intérieur du matériau non linéaire engendre des nouvelles ondes avec de nouvelles fréquences. On dit qu'il y a eu interaction (ou couplage) entre les ondes incidentes via le milieu non linéaire. Ces nouvelles ondes correspondent à de nouveaux phénomènes optiques.

Le tenseur de la susceptibilité électrique du troisième ordre $\chi_{ijkl}^{(3)}$ est une grandeur qui décrit les effets optiques du troisième ordre au niveau macroscopique. Il représente un tenseur de rang 4 qui possède au total $3^4 = 81$ composantes. Cela voudrait dire, que lorsque l'on veut déterminer la susceptibilité non linéaire du troisième ordre du milieu étudié, nous essayons de trouver toutes les composantes de ce tenseur. Ce qui représente une tâche fastidieuse.

Cependant, le nombre de termes du tenseur $\chi_{ijkl}^{(3)}$ peut significativement être réduit en faisant appel à certaines symétries et approximations, ne laissant ainsi qu'un nombre de

termes limités et indépendantes [5]. Citons en particulier la symétrie cristalline, la symétrie de Kleinman, la centrosymétrie, le cas d'un milieu sans perte, la symétrie intrinsèque de permutation et l'approximation de la réponse locale.

Pour ce qui est des milieux isotropes, le tenseur possède les caractéristiques de symétries désigné par ces équations :

$$\chi_{xxxx} = \chi_{yyyy} = \chi_{zzzz} = \chi_{xxyy} + \chi_{xyxy} + \chi_{xyyx} \quad (1.11 - a)$$

$$\chi_{yyzz} = \chi_{zzyy} = \chi_{zzxx} = \chi_{xxzz} = \chi_{xxyy} = \chi_{yyxx} \quad (1.11 - b)$$

$$\chi_{yzyz} = \chi_{zyzy} = \chi_{zxzx} = \chi_{xzxz} = \chi_{xyxy} = \chi_{yxyx} \quad (1.11 - c)$$

$$\chi_{yzzy} = \chi_{zyyz} = \chi_{zxzx} = \chi_{xzxz} = \chi_{xyyx} = \chi_{yxyx} \quad (1.11 - d)$$

Le tenseur de la susceptibilité non linéaire du troisième ordre $\chi_{ijkl}^{(3)}$ ne contient donc que trois composantes non nulles et indépendantes χ_{xxyy} , χ_{xyxy} et χ_{xyyx} .

Ces composantes du tenseur de la susceptibilité non linéaire d'ordre 3 sont généralement complexes et s'écrivent sous la forme suivante

$$\chi^{(3)} = \chi'^{(3)} + i\chi''^{(3)} \quad (1.12)$$

La partie réelle de la susceptibilité non linéaire $\chi'^{(3)}$, appelée indice non linéaire exprime les variations non linéaires de l'indice de réfraction. Son expression est la suivante

$$\chi'^{(3)} = \left(\frac{4n_0^2 \epsilon_0 c}{3} \right) n_2 \quad (1.13)$$

Où n_0 est l'indice de réfraction linéaire du milieu, c est la vitesse de la lumière et n_2 l'indice de réfraction non linéaire d'ordre 2 du milieu.

La partie imaginaire de la susceptibilité du troisième ordre $\chi''^{(3)}$ correspond aux processus impliquant le transfert d'énergie. Elle est liée aux phénomènes d'absorption non linéaire de la lumière selon la relation suivante :

$$\chi''^{(3)} = \left(\frac{n_0^2 \epsilon_0 c \lambda}{3\pi} \right) \beta \quad (1.14)$$

Où β représente le coefficient d'absorption non linéaire d'ordre 2 du milieu étudié.

3.2. Origine des nonlinéarités cubiques

Lors de l'exposition d'un matériau à une source d'excitation lumineuse intense, comme celle produite par un laser et produisant des effets non linéaires, un certain nombre de processus (électrostriction, échauffement) sont susceptibles de se produire et de provoquer des changements dans les propriétés de ce matériau.

Plusieurs processus peuvent contribuer à une réponse non linéaire du troisième ordre, allant de processus très rapides jusqu'à très lents. On peut en distinguer quatre contributions ayant des origines différentes qui sont : électronique, nucléaire électrostrictive et thermique [6].

- Les processus électroniques sont dus à la distorsion du nuage électronique sous l'effet du champ électrique et du potentiel créé par la structure moléculaire figée. Ce sont des processus très rapides, de l'ordre de la femtoseconde.
- Les processus nucléaires sont dus aux vibrations et rotations des molécules. Leurs mobilités lentes par rapport aux mouvements électroniques induisent des temps de réponse pouvant être plus longs (entre 100fs et quelques nanosecondes).
- Les processus électrostrictifs sont dus aux propagations d'ondes acoustiques induites par le faisceau laser dans le matériau. Les temps de réponses de ces effets dépendent du temps de parcours d'une onde acoustique dans chaque matériau, qui est de l'ordre de la nanoseconde.
- Les processus thermiques (variation de température induite par absorption) : dans un milieu absorbant, l'énergie absorbée provoque une élévation locale de la température et par conséquent, une variation de l'indice de réfraction. Ce processus est généralement lent.

3.3. Absorption à deux photons

Le processus d'absorption à deux photons (ADP) est un phénomène qui a été prédit théoriquement par Maria Goeppert-Mayer en 1931 [7]

Faisant partie des phénomènes non linéaires du troisième ordre, c'est un processus optique qui permet à un système de passer d'un état fondamental (énergie basse) à un état excité (niveau d'énergie supérieur), en absorbant simultanément deux photons dont la somme est égale à la différence des deux niveaux d'énergie (voir figure 1.1).

En hautes fréquences, les photons sont absorbés lors de la transition électronique entre la bande de valence et la bande de conduction. En basses fréquences, les photons sont absorbés par les vibrations interatomiques du matériau.

La probabilité du processus de l'absorption à deux photons est faible par rapport à l'absorption à un seul photon, pour cela il est nécessaire d'utiliser une source lumineuse assez intense.

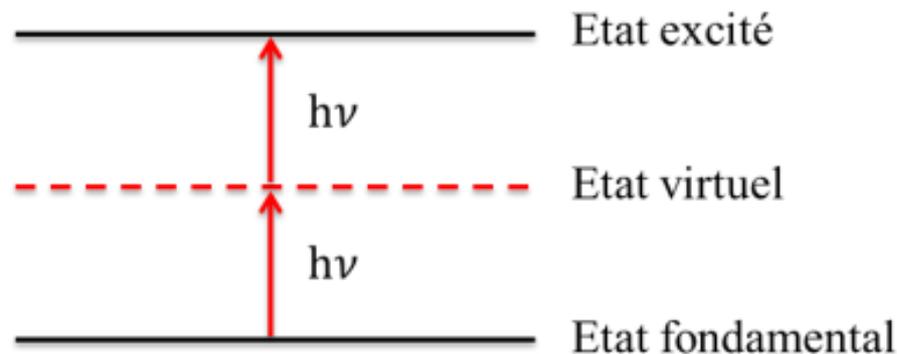


Figure 1.1 : Représentation des processus de l'absorption à deux photons (ADP)

3.4.Effet Kerr optique

L'effet Kerr optique est un processus non linéaire du troisième ordre, c'est la biréfringence optique photo-induite. La polarisation électronique et nucléaire des molécules sous l'effet de la lumière cause une variation de l'indice de réfraction.

Bien que la réponse électronique soit essentiellement instantanée, la biréfringence électronique disparaît immédiatement suite à l'interruption du champ électrique. Quant à la biréfringence nucléaire, qui implique une orientation des molécules, sa décroissance prend un certain temps due à la réorientation de ces mêmes molécules.

L'anisotropie optique créée dans le système par une lumière laser linéairement polarisée définit ce qu'on appelle le milieu Kerr, dans lequel l'indice de réfraction n est proportionnel à l'intensité de la lumière d'excitation. On représente cette proportionnalité par l'équation suivante [8] :

$$n = n_0 + n_2 I \quad (1.15)$$

Où n est l'indice de réfraction du milieu et I l'intensité de la lumière incidente.

Il est possible d'exprimer les quatre contributions à l'indice non linéaire ayant différentes origines dont on a donné les détails auparavant. Donc, l'indice non linéaire peut aussi prendre la forme suivante :

$$n_2 = n_{2\text{électronique}} + n_{2\text{nucléaire}} + n_{2\text{électrostréctive}} + n_{2\text{thermique}} \quad (1.16)$$

La modulation de l'indice de réfraction due à l'effet Kerr optique peut aussi être exprimée en fonction du champ électrique selon l'équation suivante

$$n = n_0 + n_2|E|^2 \quad (1.17)$$

Où $|E|^2$ représente est la moyenne temporelle quadratique du champ, qui représente également l'intensité optique.

C'est cet effet qui est à l'origine de l'auto-focalisation (self-focusing) des faisceaux lasers de très forte intensité.

3.5.Indice de réfraction non linéaire

La contribution à la polarisation non linéaire de l'indice de réfraction n'est plus négligeable lors de la présence d'une source lumineuse cohérente et intense. Afin d'étudier le phénomène on va considérer un milieu isotrope et centrosymétrique ($\chi^{(2)} = 0$), où seuls les phénomènes du troisième ordre se manifestent. L'onde optique incidente se propage sous forme d'une onde plane de fréquence ω dans la direction Z . Dans ce cas, la polarisation du troisième ordre est donnée par l'équation suivante [9] :

$$P^{(3)}(\omega) = 3\varepsilon_0\chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega, -\omega)E(\omega)E(\omega)E^*(\omega) \quad (1.18)$$

Où $E^*(\omega) = E(-\omega)$. Pour des raisons de simplification, nous allons éliminer les indices des vecteurs et des tenseurs ($\chi^{(3)} = \chi_{xxxx}^{(3)}$). La polarisation totale devient donc :

$$P(\omega) = \varepsilon_0\chi_{eff}E(\omega) \quad (1.19)$$

Où $\chi_{eff} = \chi^{(1)} + \chi^{(3)}|E(\omega)|^2$ représente la susceptibilité effective. En considérant la contribution non linéaire pour χ_{eff} négligeable par rapport à la contribution linéaire, on obtient l'expression générale suivante de l'indice de réfraction :

$$n = \sqrt{1 + Re\{\chi_{eff}\}} \approx n_0 + \frac{3}{2n_0}\chi_R^{(3)}|E(\omega)|^2 \quad (1.20)$$

La partie non linéaire de la réfraction sera décrite par l'équation suivante :

$$\Delta n = n - n_0 = n_2 I \quad (1.21)$$

Où n_2 est relié à la partie réelle de la susceptibilité χ_R du troisième ordre $\chi^{(3)}$ par la relation suivante :

$$n_2 = \frac{3}{4n_0^2} \chi_R^{(3)} \quad (1.22)$$

On peut à partir des équations (1.20) et (1.21) déduire que pour la lumière incidente d'une faible intensité, l'indice de réfraction d'un milieu est constant car la contribution de Δn est négligeable. Cependant lorsque l'intensité augmente, l'indice de réfraction varie en fonction de l'intensité de la lumière. D'une manière générale, l'indice de réfraction d'un milieu non linéaire se présente sous la forme suivante :

$$n(I) = n_0 + n_2 I + \gamma_3 I^2 + \dots + \gamma_n I^{n-1} \quad (1.23)$$

Où $\gamma_3, \dots, \gamma_n$ sont les indices de réfraction non linéaire d'ordre 3, ..., n, respectivement.

4. Techniques expérimentales

Dans cette section, nous allons passer en revue quelques techniques expérimentales de caractérisation de la réfraction non linéaire.

4.1. Mélange à quatre ondes dégénérées

Le mélange à quatre ondes est une technique utilisée pour estimer l'indice de la réfraction non-linéaire, c'est d'ailleurs la première méthode employée et la seule disponible pour une étude précise de tous les termes du tenseur de la susceptibilité non linéaire du troisième ordre, et ce grâce à l'interaction de plusieurs ondes de pulsations différentes. Cette méthode est issue des expérimentations de Maker et Terhune [10] durant l'année 1965. Elle repose sur l'étude spectrale des pulsations des ondes mélangées. Il est toutefois préalable de connaître les symétries du cristal étudié car cela permet d'éliminer certains termes du tenseur de susceptibilité et de trouver des relations entre les termes restants. Pour le cas d'un cristal à symétrie cubique, par exemple, le tenseur de la susceptibilité du troisième ordre possède 21 éléments non-nuls sur les 81 composants du tenseur, dont 7 éléments au minimum sont indépendants [11]. Dans ces conditions, une étude spectrométrique de la lumière générée par les interactions à l'intérieur du cristal dans diverses configurations permet de déterminer plusieurs, voire tous les éléments du tenseur de la susceptibilité [12].

Particulièrement, dans le cas de l'étude de la variation de l'indice de réfraction dans une configuration à un seul faisceau, l'élément de susceptibilité qui nous intéresse est le terme $\chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega, -\omega)$.

La méthode de mélange à quatre ondes dégénérées est la méthode la plus pratique pour l'étude de ce terme du tenseur de susceptibilité ; dégénéré, car c'est un mélange à quatre ondes sur lequel deux des ondes impliquées ont la même pulsation [13].

La plus simple configuration expérimentale de cette technique est schématisée sur la figure 1.2.

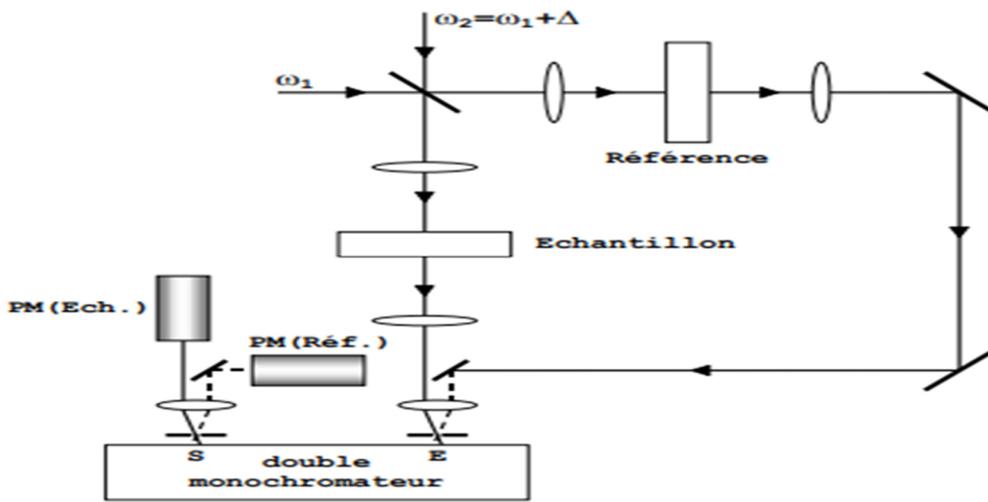


Figure 1.2 : Configuration expérimentale de mélange dégénéré à 4 ondes

Dans ce genre de paramétrage, deux faisceaux de pulsation ω_1 viennent interagir avec un troisième faisceau possédant une fréquence $\omega_2 = \omega_1 + \Delta\omega$. Au sein de tous les termes de la polarisation du troisième ordre, se trouve un terme en particulier qui s'écrit comme suit :

$$P^{(3)}(2\omega_1 - \omega_2) = 3\chi^{(3)}(2\omega_1 - \omega_2, \omega_1, -\omega_2)E^{(2)}(\omega_1)[E(\omega_2)]^* \quad (1.24)$$

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

$$I_3 = K \times |\chi^{(3)}(2\omega_1 - \omega_2)|^2 \times I_1^2 I_2 L^2 \quad (1.25)$$

Où I_1 et I_2 sont les intensités des faisceaux de pulsations ω_1 et ω_2 , et L représente l'épaisseur de l'échantillon. Il est néanmoins difficile de donner une valeur précise au

coefficient K puisqu'il dépend des conditions expérimentales. L'utilisation d'une voie de référence identique comportant un matériau non-linéaire devient alors indispensable pour se débarrasser du coefficient K . D'ailleurs la nécessité d'utiliser un matériau de référence est le majeur handicap de cette méthode puisqu'elle ne donne pas des mesures absolues. Par contre, elle peut permettre une mesure relative précise. En outre, il est important de préciser que les méthodes de mélange à quatre ondes ne sont susceptibles qu'aux nonlinéarités répondant à des excitations temporelles très rapides ($<10^{13}$ s).

4.2.Méthodes interférométriques

Afin de mesurer la variation photo-induite de l'indice de réfraction dans un échantillon non-linéaire de façon plus directe, les scientifiques ont élaboré une méthode fondée sur l'interférométrie. Ce type de méthode est basé sur l'interférence d'au moins deux faisceaux en procédant à une division d'un faisceau incident en deux faisceaux, afin de les faire interférer dans une configuration de type Michelson [14, 15] ou Mach-Zender [16] par exemple. Contrairement aux méthodes basées sur le mélange à 4 ondes, la méthode interférométrique est, naturellement, sensible à toute variation photo-induite de l'indice de réfraction. La détermination de la valeur absolue de l'indice de réfraction devient possible, si on prend en compte, l'étude des caractéristiques spatio-temporelles du faisceau incident.

4.2.1. Configuration a un seul faisceau

La figure 1.3 représente une configuration de type Michelson à un seul faisceau. Dans ce genre de configuration, les franges d'interférences sont imagées sur une caméra CCD. Il est important de noter que pour pouvoir observer un déplacement de franges d'interférences dues à la variation photo-induite de l'indice de réfraction dans le matériau, une augmentation graduelle de l'intensité du faisceau incident est essentielle. Cette méthode nous permet de détecter des variations de chemin optique de l'ordre de la longueur d'onde. Afin de déterminer le signe de l'indice de réfraction non-linéaire de façon claire et sans ambivalence, il est primordial de calibrer le montage et ce pour relier le sens de déplacement des franges avec le signe de variation de l'indice [14].

Cette configuration mono-faisceau est difficile à réaliser. En pratique, le choix des optiques et l'alignement de tels composants interférométriques sont rendus difficiles par la nécessité d'utiliser des lasers pulsés. Cependant, ces lasers ne sont pas toujours stables en termes de puissance, et souffrent d'un fort désalignement. De plus, les intensités et les flux peuvent être très élevés, ce qui nécessite l'utilisation de miroirs et de lames séparatrices très tolérantes aux flux. La configuration pompe-sonde peut-être plus pratique et offre de nombreuses autres possibilités. Plusieurs situations peuvent alors être envisagées.

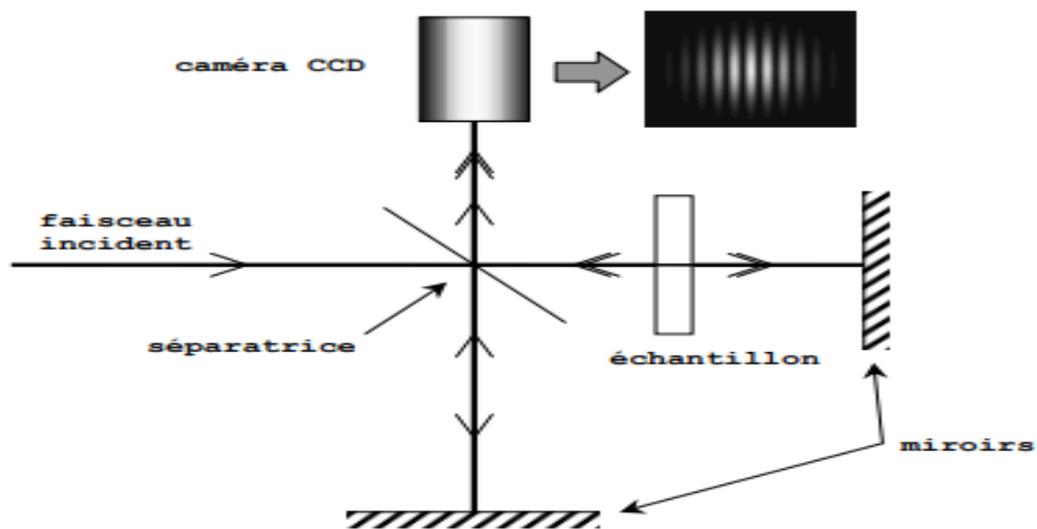


Figure 1.3 : Montage interférométrique de type Michelson réglé en franges parallèles

4.2.2. Configuration à deux faisceaux distincts

Dans ce cas, le faisceau pompe du laser pulsé induit une variation de l'indice dans l'échantillon, puis l'échantillon est placé sur l'un des bras du réseau interférométrique aligné avec un autre laser (exemple : un laser continu simplifiant l'alignement de l'assemblage et assurant la stabilité). Alors il faut soit superposer et séparer les deux faisceaux à l'aide de miroirs dichroïques, si leurs longueurs d'ondes sont différentes, soit bombarder l'échantillon sous différents angles, dans le cas échéant. Cependant, dans ce cas de figure, la susceptibilité non linéaire mesurée caractérise l'effet du faisceau pompe à une pulsation ω_1 sur le faisceau sonde à une pulsation ω_2 . Le terme susceptibilité non linéaire n'est pas un terme qui décrit l'effet Kerr à faisceau unique.

4.2.3. Configuration à un seul faisceau séparé en un faisceau sonde et un faisceau pompe

Une méthode efficace pour éviter le problème mentionné ci-dessus est d'utiliser un seul laser impulsif auquel on retranche une partie pour constituer le faisceau sonde. Ce dernier est utilisé dans un montage interférométrique (l'exemple choisit dans ce cas est de type Mach-Zender). L'échantillon est posé sur un des bras du montage interférométrique et afin de permettre une variation de l'indice de réfraction, le faisceau pompe est focalisé sur l'échantillon (voir figure 1.4). Il est judicieux de noter que dans ce cas précis, seul un angle d'attaque différent sur l'échantillon permet une division des deux faisceaux. L'utilisation de deux faisceaux pompe et sonde confondus nécessite, éventuellement, de croiser leurs polarisations pour permettre de les séparer. Cela dit, dans une telle configuration, le terme de susceptibilité mesuré est uniquement lié à $\chi_{xyxy}^{(3)}$.

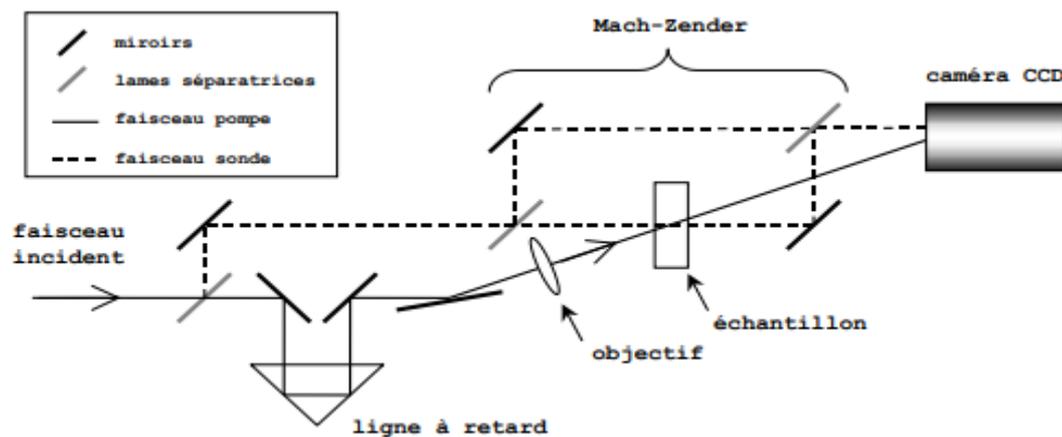


Figure 1.4 : Montage interférométrique de type Mach-Zender en configuration pompe sonde

4.2.4. Couplage à deux faisceaux

Le couplage à deux faisceaux fait allusion au phénomène dans lequel l'interaction de deux faisceaux dans un milieu non linéaire entraîne l'échange d'énergie entre eux. Un couplage à deux faisceaux peut avoir lieu dans une expérience pompe-sonde générale. Dans une telle expérience, un pompage fort induit des effets dans le milieu non linéaire, dont les résultats sont sondés par un second faisceau faible. Ces types de méthodes sont couramment utilisés pour caractériser les propriétés d'absorption et de réfraction non linéaire des matériaux.

Pour observer les effets transitoires et les temps de décroissance des excitations non linéaires, la pulsation de la sonde est retardée par rapport à la pompe, et l'évolution des propriétés optiques du milieu sont surveillées à mesure que le temps de retard change. En général, le temps de retard est balayé à partir des valeurs négatives (c'est-à-dire, la sonde arrivant avant la pompe) jusqu'à des valeurs positives pour établir le temps origine (le recouvrement exact des deux impulsions). L'évolution du système se produit après un long délai, avec les deux pulsations bien séparées dans le temps. Cela dit, la nonlinéarité peut induire une interaction entre les deux pulsations durant le court laps de temps où elles se chevauchent.

4.3. La technique Z-scan

Le Z-scan est une technique développée en 1990 par le physicien Sheik-Bahae et ses collaborateurs [18]. Elle sert à déterminer les propriétés optiques non linéaires du troisième ordre. En particulier, la valeur et le signe de l'indice de réfraction non linéaire du milieu étudié ainsi que son coefficient d'absorption non linéaire, permettant ainsi la détermination de la susceptibilité électrique non linéaire du troisième ordre.

Simple et pratique, la technique Z-scan est utilisée dans plusieurs applications dans le domaine optique [19]. Récemment, des améliorations ont été apportées à cette technique en utilisant des faisceaux avec fentes quasi-unidimensionnelles pour caractériser la nonlinéarité optique du troisième ordre [20].

4.3.1. Principe

Le principe est basé sur le phénomène de distorsion d'un faisceau laser lors de sa propagation dans le matériau non linéaire. L'idée consiste à déplacer longitudinalement un échantillon à face parallèle le long d'un faisceau laser focalisé afin de varier l'intensité incidente sur ce dernier. Les deux phénomènes mesurables connectés avec la technique Z-scan sont l'absorption non linéaire (NLA) et la réfraction non linéaire (NLR), ce qui permet d'en déduire la valeur des paramètres non linéaires correspondants. Ces derniers sont associés à la partie réelle et la partie imaginaire de la susceptibilité non linéaire du troisième ordre.

4.3.2. Dispositif expérimental

Le principe de fonctionnement de cette technique expérimentale consiste à faire varier la position (déplacer) l'échantillon non linéaire (S) sur une platine de translation (TS)

le long de la direction de propagation (Z) d'un faisceau focalisé grâce à une lentille convergente (L).

Le laser est envoyé sur l'échantillon en passant par une lame demi-onde et un polariseur qui a pour rôle de varier l'énergie du faisceau incident si nécessaire. Une lame séparatrice (BS), qui sert à synchroniser l'acquisition, va prendre une partie du faisceau incident sur la première photodiode (Phs). Et pour dévier le chemin optique du faisceau laser, des miroirs (M) ont été utilisés. Les mesures des propriétés optiques non linéaires du troisième ordre dans une telle expérience se fait par l'utilisation de deux photomultiplicateurs (PMT1 et PMT2). Ces deux photomultiplicateurs jouent le rôle de détecteurs.

La figure 1.5 illustre le montage expérimental qu'on vient de décrire.

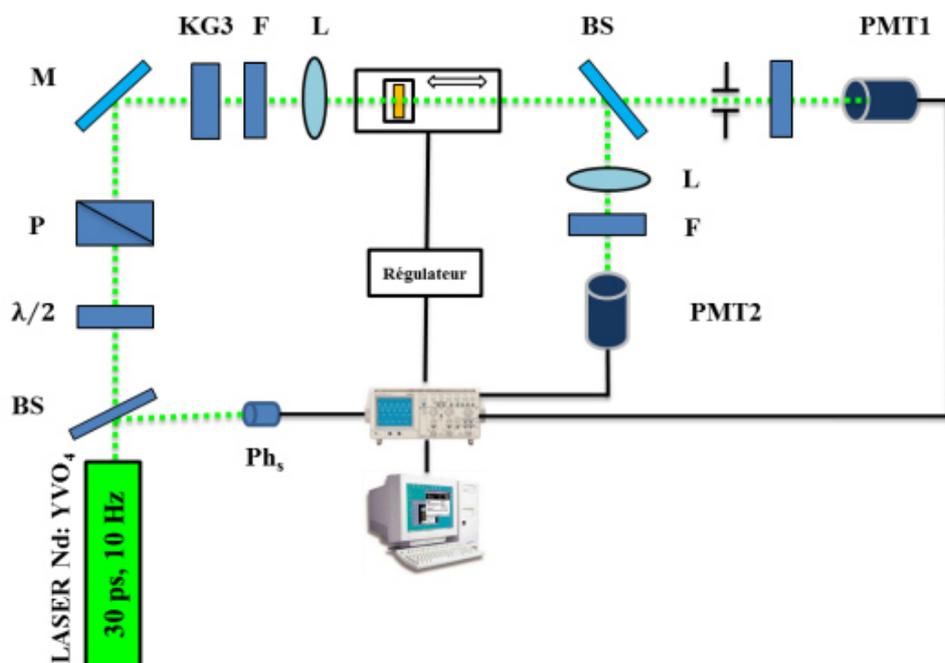


Figure 1.5 : Illustration du dispositif expérimental pour la technique z-scan

Le signal utile (trace Z-scan) s'obtient en mesurant l'énergie captée par les photomultiplicateurs normalisée par rapport à l'énergie mesurée lorsque l'échantillon se trouve loin du plan focal ou l'énergie du faisceau incident (régime linéaire). La quantité qu'on vient de définir s'appelle transmittance normalisée. En l'absence d'effets non linéaires dans l'échantillon, le signal transmis reste constant. En présence d'effets non linéaire, on s'intéresse à l'évolution de la transmittance normalisée en fonction de la position longitudinale de l'échantillon z sur l'axe optique du faisceau.

4.3.3. Les configurations du Z-scan

Il existe deux configurations pour la Technique Z-scan :

- Une configuration sans diaphragme, dite configuration Z-scan ouverte (Open Z-scan en anglais). Elle correspond à la situation où le signal Z-scan est détecté entièrement et uniquement par le photomultiplicateur PMT2. Dans ce cas, ce dernier est uniquement sensible à la variation de l'intensité du signal. Cette configuration met en évidence le phénomène d'absorption non linéaire.
- Une configuration avec diaphragme ou ouverture, dite configuration Z-scan fermée (Closed Z-scan en anglais). Elle correspond à la situation où le signal Z-scan est détecté uniquement par le photomultiplicateur PMT1, devant lequel se trouve une ouverture. Dans ce cas, le photomultiplicateur PMT1 est uniquement sensible aux distorsions du faisceau transmis. Deux cas peuvent se présenter selon le signe de l'indice de réfraction non linéaire (négatif ou positif). L'allure de la transmittance normalisée en fonction de la position de l'échantillon présente, soit une configuration « pic-vallée » lorsque le milieu se comporte comme une lentille divergente ($n_2 < 0$), ou bien une configuration « vallée-pic » lorsque le milieu se comporte comme une lentille convergente ($n_2 > 0$).

L'allure des courbes de transmittance normalisée est représentée sur la figure 1.6.

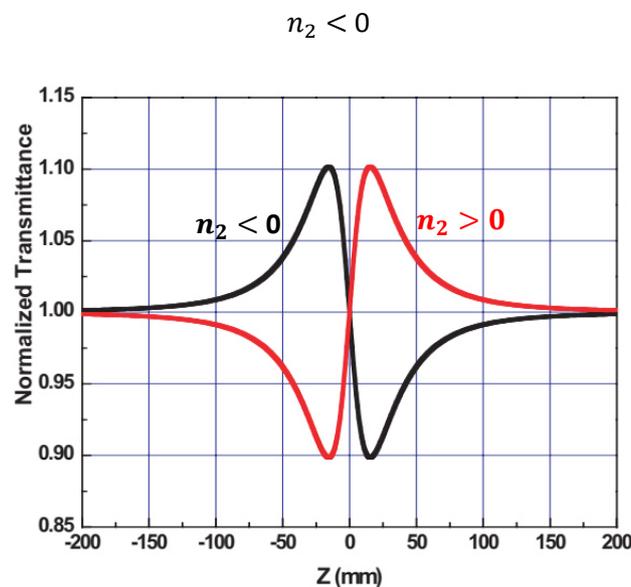


Figure 1.6 : Allure des courbes de transmission normalisée dans le cas d'une variation d'indice positive ou négative dans l'échantillon

Notons que la sensibilité de la configuration Z-scan fermée dépend du rayon de l'ouverture. En effet, la diminution de ce rayon améliore la sensibilité. En augmentant

ce rayon, on augmente la contribution de l'absorption non linéaire dans la transmittance normalisée. Il est ainsi possible de définir une configuration Z-scan intermédiaire dans laquelle coexistent au même temps la réfraction et l'absorption non linéaire. L'expérience montre [21] que la présence de l'absorption non linéaire tend à diminuer la valeur de la transmittance au niveau des pics et vallée.

4.3.4. Modèle théorique

L'obtention des courbes expérimentales ou traces Z-scan permet d'accéder à certaines informations, comme la nature du phénomène étudié (réfraction ou absorption) et le signe du coefficient de réfraction non linéaire. Cependant, pour déterminer les valeurs des coefficients de réfraction non linéaires, il est nécessaire d'élaborer un modèle théorique qui donne l'expression de la transmittance normalisée en fonction du déplacement de l'échantillon, des propriétés des matériaux et des caractéristiques du faisceau incident. Ainsi, l'ajustement des traces Z-scan par cette expression permet de déterminer les valeurs de ces coefficients.

Dans cette section, nous allons décrire brièvement le modèle Théorique de base associé à la technique z-scan à ouverture fermée. Ce dernier a été élaboré par Sheik-Bahae et ses collaborateurs [18, 21, 22]. Dans ce modèle, on considère un faisceau gaussien de profil spatial circulaire incident sur un matériau non linéaire mince.

Dans cette section, nous allons décrire le modèle Théorique de base associé à la technique z-scan. Ce dernier a été élaboré par Sheik-Bahae et ses collaborateurs [18, 21, 22].

La propagation du faisceau dans le milieu non linéaire mince, c'est-à-dire d'épaisseur L négligeable devant la distance de Rayleigh z_R ($L \ll z_R$), possédant un indice de réfraction n_2 négatif est donnée, dans l'approximation des enveloppes lentement variables, par les relations suivantes [18-21-23] :

$$\frac{d(\Delta\phi)}{dz'} = -kn_2I \quad (1.26 - a)$$

$$\frac{dI}{dz'} = -\alpha_0 I \quad (1.26 - b)$$

Où z' désigne la distance de propagation dans le matériau (à ne pas confondre avec la position de l'échantillon z), α_0 est le coefficient d'absorption linéaire et $\Delta\phi$ la variation de phase (déphasage).

Dans ce cas, la résolution du système d'équations différentielles (1.26-a) et (1.26-b) donne l'expression du déphasage $\Delta\phi$, provoqué par la variation d'indice de réfraction non linéaire :

$$\Delta\phi(r, z, t) = \Delta\phi_0(z, t) \exp\left(-\frac{2r^2}{W^2(z)}\right) \quad (1.27)$$

Avec :

$$\Delta\phi_0(z, t) = \frac{\Delta\phi_0(t)}{1 + \frac{z^2}{z_0^2}} \quad (1.28)$$

Où $W(z)$ est la largeur du faisceau z_0 et la longueur de Rayleigh. La quantité $\Delta\phi_0(z, t)$ représente le déphasage induit sur l'axe optique en $z = 0$ et $\Delta\phi_0(t)$ celui induit au point focale (centre ou waist). Ce dernier est défini par la relation suivante :

$$\Delta\phi_0(t) = kn_2 I_0(t) L_{eff}^{(2)} \quad (1.29)$$

où $I_0(t)$ l'intensité mesurée au centre du faisceau et $L_{eff}^{(2)}$ est l'épaisseur effective de l'échantillon corrigé par l'absorption linéaire α_0 donnée par :

$$L_{eff}^{(2)} = \frac{1 - \exp(-\alpha_0 L)}{\alpha_0} \quad (1.30)$$

Sheik-Bahae et ses collaborateurs ont montré qu'on peut, dans la limite d'un faible déphasage ($|\Delta\phi_0| \ll 1$) et dans le cas d'une observation en champ lointain et pour un pulse laser de profil temporel gaussien, exprimer la transmission normalisée d'un échantillon par :

$$T^{(2)}(x, \Delta\phi_0) = 1 + \frac{4\Delta\phi_0 x}{(1 + x^2)(9 + x^2)} \quad (1.31)$$

Où $x = z/z_0$ est une grandeur sans dimensions.

On introduit généralement le paramètre $\Delta T_{p-v}^{(2)}$ qui est défini comme étant la différence de transmittance normalisée entre les deux extrema des signatures Z-scan (pic et vallée). Moyennant quelques approximations, et dans le cas où $S < 1$, ce paramètre est proportionnel à l'indice de réfraction non linéaire et est donné par la relation suivante :

$$\Delta T_{p-v}^{(2)} = 0.406(1 - S)^{0.25} |\Delta\Phi_0| \quad (1.32)$$

Dans le cas où les hypothèses précédentes sont respectées (faible épaisseur, faisceau gaussien et faible nonlinéarité), on peut, si l'ouverture utilisée lors de la mesure est très petite devant la taille du faisceau ($S \ll 1$), estimer la différence de transmittance entre le pic et la vallée par la formule compacte suivante :

$$\Delta T_{p-v}^{(2)} = 0.406 |\Delta \Phi_0| \quad (1.33)$$

Selon les mêmes hypothèses, la distance Δz entre le maximum et le minimum est donnée par :

$$\Delta z = 1.717 z_0 \quad (1.34)$$

Ces deux dernières équations sont très utiles en pratique pour obtenir une estimation rapide de l'amplitude de la nonlinéarité et son signe.

Chapitre 2

Modélisation de la réfraction non linéaire

1. Introduction

Dans ce chapitre, nous allons construire un modèle théorique pour la réfraction non linéaire avec un faisceau gaussien incident de profil spatial circulaire. Dans un premier temps, nous introduirons les faisceaux gaussiens circulaires comme solution de l'équation d'onde non linéaire dans le cadre de l'approximation paraxiale. Cela nous permettra d'obtenir l'expression de l'enveloppe scalaire complexe du champ électrique associé à ce type de faisceau gaussien. Les paramètres de ce faisceau seront décrits par la suite. Il s'agit des ceintures du faisceau, de ses enveloppes ou sa largeur, des longueurs de Rayleigh, des rayons de courbures du front d'onde et des angles de divergence du faisceau. On introduira aussi l'intensité et la puissance optiques du faisceau gaussien circulaire. Dans un second temps, nous allons développer le modèle en question qui sera en conformité avec la technique Z-scan. Les hypothèses de base de ce modèle ainsi que l'équation de propagation du faisceau à l'intérieur du matériau non linéaire seront tout d'abord explicitées. Ensuite, nous détaillerons les différentes étapes à suivre. Dans cette procédure, nous allons déterminer successivement les expressions de trois grandeurs dépendantes les unes des autres : l'intensité optique transmise, la puissance optique transmise et la transmittance optique normalisée.

Pour pouvoir exploiter l'expression de la transmittance optique normalisée dans d'éventuelles ajustements et simulations, nous avons procédé à sa simplification en faisant appel à l'approximation des faibles non linéarités.

2. Faisceaux gaussiens

Lors de la résolution des différents problèmes en optique linéaire et non linéaires, on utilise une approximation tiré d'un cas idéaliste où l'onde possède une extension spatiale infinie, une amplitude et une phase constantes dans le plan transverse (le plan xy par exemple). Ce type d'onde est appelé onde plane et son amplitude complexe est une fonction de deux variables seulement qui sont la direction de propagation (z par exemple) et le temps t . En revanche, le faisceau laser possède une extension spatiale finie dans le plan transverse et varie spatialement dans ce plan.

Dans le cadre l'approximation paraxiale, qui suppose une faible divergence du faisceau optique par rapport à son axe de propagation, l'équation d'onde non linéaire se présente sous la forme suivante [24] :

$$\left[\Delta_{\perp} \vec{A}(\vec{r}) - 2ik \frac{\partial \vec{A}(\vec{r})}{\partial z} \right] = -\frac{\omega^2}{\epsilon_0 c^2} \vec{P}^{NL}(\vec{r}) e^{-i\Delta k z} \quad (2.1)$$

Où k est le nombre d'onde, ω la fréquence et Δ_{\perp} le laplacien transverse donné par :

$$\Delta_{\perp} = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \quad (2.2)$$

Dans le cas où le terme source s'annule ($P_n^{(NL)} = 0$), la solution de l'équation (2.1) est une onde caractérisée par une distribution en intensité transverse gaussiennes et présentant une symétrie cylindrique [25]. Son amplitude complexe est donnée par :

$$A(r, z) = E_0 \frac{W_0}{W(z)} \exp\left[-\frac{r^2}{W^2(z)}\right] \exp[i\theta(z)] \exp\left[-i\frac{kr^2}{2R(z)}\right] \quad (2.3)$$

C'est le mode fondamental noté TM_{00} d'un faisceau gaussien circulaire. Le champ électrique associé est :

$$\begin{aligned} \vec{E}(r, z, t) &= A(r, z) e^{-ikz} e^{i\omega t} \hat{n} \\ &= E_0(t) \frac{W_0}{W(z)} \exp\left[-\frac{r^2}{W^2(z)}\right] \exp[i\theta(z)] \exp(-ikz) \exp\left[-i\frac{kr^2}{2R(z)}\right] e^{i\omega t} \hat{n} \end{aligned} \quad (2.4)$$

Où \hat{n} représente le vecteur unitaire indiquant la polarisation de l'onde et $r^2 = x^2 + y^2$.

La quantité $W(z)$ mesure la décroissance gaussienne de l'amplitude avec la distance à l'axe optique Z . Ce paramètre est la distance au bout de laquelle l'amplitude est égale à $1/e$ fois sa valeur sur l'axe. Le rayon $W(z)$ est donc une mesure de l'extension radiale du faisceau. Il est donné par l'équation suivant :

$$W(z) = W_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2} \quad (2.5)$$

Où $W_0 = W(z = 0)$. La quantité $2W_0$ représente le diamètre du faisceau en $z = 0$. On l'appelle rayon de ceinture (pincement) ou waist. C'est la taille minimale à partir de laquelle le faisceau diverge.

La longueur de Rayleigh z_0 est la distance, comptée à partir du waist, au bout de laquelle la taille du faisceau augmenté d'un facteur $\sqrt{2}$. Il définit la distance sur laquelle le faisceau garde une taille relativement constante. Il est donné par la relation suivante :

$$z_0 = \frac{n\pi W_0}{\lambda} = \frac{kW_0^2}{2} \quad (2.6)$$

Où n est l'indice de réfraction linéaire du milieu et λ la longueur d'onde optique dans le vide du faisceau. La grandeur $R(z)$ est le rayon du front d'onde du faisceau gaussien, on l'appelle aussi rayon de courbure du faisceau. Il est donné par la relation suivante :

$$R(z) = z \left[1 + \left(\frac{z_0}{z} \right)^2 \right] \quad (2.7)$$

La quantité $\theta(z)$ est le retard de phase qui varie entre $-\frac{\pi}{2}$ ($z = -\infty$) et $+\frac{\pi}{2}$ ($z = +\infty$) .Il correspond au retard des fronts d'onde par rapport à ceux d'une onde sphérique. Le retard total accumulé lorsque l'onde se propage de ($z = -\infty$) à ($z = +\infty$) est donc π . Ce phénomène est connu sous le nom d'effet Gouy (phase de Gouy). Le retard de phase $\theta(z)$ est donné par la relation suivante :

$$\theta(z) = -\arctan\left(\frac{z}{z_0}\right) \quad (2.8)$$

Enfin, on définit la divergence angulaire du faisceau donné par :

$$\xi = \frac{\lambda}{\pi W_0} \quad (2.9)$$

Tous les paramètres qu'on vient de décrire sont représentés sur la Figure 2.2 [23].

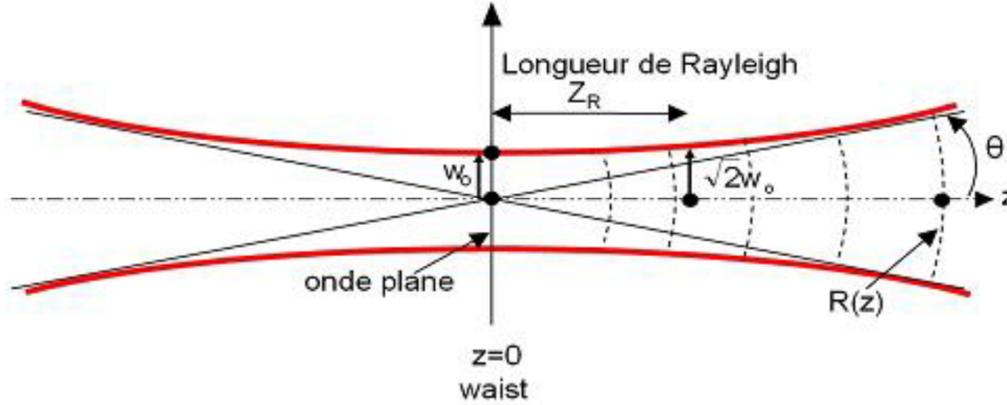


Figure 2.2 : Propriétés d'un faisceau gaussien [25]

Dans les travaux théoriques, il est beaucoup plus avantageux de représenter l'amplitude complexe d'un faisceau gaussien dans une forme compacte mais moins intuitive [26] :

$$A(r, z) = \frac{E_0}{1 - i\zeta} \exp\left[-\frac{r^2}{w_0^2(1 - i\zeta)}\right] \quad (2.10)$$

Où $\zeta = \frac{2z}{b}$ est une coordonnée longitudinale sans dimension définie en fonction du paramètre confocal :

$$b = \frac{2\pi W_0^2}{\lambda} = 2z_0 = kW_0^2 \quad (2.11)$$

Le paramètre confocal représente l'extension longitudinale de la région focale du faisceau gaussien.

3. Modèle théorique

3.1. Hypothèses du modèle

Considérons un faisceau laser de profil spatial gaussien et de mode TM_{00} , se déplaçant le long de la direction (+z) avec un nombre d'onde k et une longueur d'onde λ . Ce faisceau est incident sur un matériau mince non linéaire d'épaisseur L . L'amplitude complexe du champ électrique associé à ce faisceau est donnée par la relation :

$$E(r, z, t) = E_0(t) \frac{W_0}{W(z)} \exp\left[-\frac{r^2}{W^2(z)}\right] \exp\left[-i\frac{kr^2}{2R(z)}\right] \exp[ikz + i\theta(z)] \quad (2.12)$$

Le facteur temps $\exp(-i\omega t)$ a été omis dans l'équation (2.4), où ω est la fréquence angulaire du faisceau gaussien incident.

La coordonnée z est la position de l'échantillon par rapport au référentiel du laboratoire et $E_0(t)$ est l'amplitude du champ électrique sur l'axe au foyer, définie comme suit :

$$E_0(t) = E(0,0) = \sqrt{I_0 h(t)} \quad (2.13)$$

Ici $I_0 = I(0,0)$ est l'intensité du faisceau incident sur l'axe au foyer et la fonction $h(t)$ est le profil temporel du pulse du faisceau laser incident.

On suppose que l'échantillon est mince, ce qui signifie que son épaisseur est négligeable par rapport à la longueur de Rayleigh du faisceau incident dans l'air ($L \ll z_0$). Par conséquent, l'amplitude de ce faisceau ne peut pas être influencée par la diffraction ou la focalisation non linéaire lors de sa propagation dans l'échantillon. Cependant, cette amplitude peut être affectée par l'absorption linéaire et non linéaire. La phase du faisceau incident peut être altérée par une réfraction non linéaire.

3.2. Les équations de propagation

Dans le cadre de l'approximation des enveloppes lentement variables, qui stipule que l'amplitude complexe (dite également enveloppe) varie dans la direction de propagation bien moins vite qu'une période d'oscillation (longueur d'onde), les pertes optiques et la distorsion de phase $\Delta\varphi$ du faisceau laser optique incident, à l'intérieur du matériau non linéaire, sont décrites par les deux équations différentielles suivantes [27,28] :

$$\frac{d\Delta\varphi(r, z', t)}{dz'} = \Delta n(I)k \quad (2.14 - a)$$

$$\frac{dI(r, z', t)}{dz'} = -\alpha(I)I \quad (2.14 - b)$$

Où z' est la distance de propagation du faisceau gaussien à l'intérieur du matériau non linéaire, $I(r, z', t)$ est l'intensité instantanée du faisceau, $\Delta n(I)$ est la variation de l'indice de réfraction et $\alpha(I)$ est le coefficient d'absorption total. Ces deux dernières grandeurs dépendent de l'intensité $I(r, z', t)$. En présence de l'absorption linéaire et des processus d'absorption et de réfraction non linéaire de même ordre arbitraire n , la variation de l'indice de réfraction et le coefficient d'absorption total s'écrivent comme suit [27,28] :

$$\Delta n(I) = \gamma_n I^{n-1} \quad (2.15 - a)$$

$$\alpha(I) = \alpha_0 + \alpha_n I^{n-1} \quad (2.15 - b)$$

Le système d'équations différentielles (2.14-a) et (2.14-b) devient :

$$\frac{d\Delta\varphi(r, z', t)}{dz'} = k\gamma_n I^{n-1} \quad (2.16 - a)$$

$$\frac{dI(r, z', t)}{dz'} = -\alpha_0 I - \alpha_n I^n \quad (2.16 - b)$$

Où α_0 est le coefficient d'absorption linéaire, α_n est le coefficient d'absorption non linéaire d'ordre n et γ_n est l'indice de réfraction non linéaire d'ordre n .

3.3. Intensité optique transmise

La première étape consisté à déterminer l'expression de l'intensité optique transmise $I_{out}(r, z, t)$ à travers l'échantillon, en intégrant l'équation différentielle (2.16-b). Cette dernière est connue en mathématiques sous le nom d'équation différentielle de Bernoulli. Pour la résoudre, on effectue le changement de variable $y = I^{1-n}$. Ce qui donne :

$$I = y^{\frac{1}{1-n}} \Rightarrow \frac{dI}{dz'} = \frac{dI}{dy} \frac{dy}{dz'} = \frac{1}{1-n} y^{\frac{n}{1-n}} \frac{dy}{dz'} \quad (2.17)$$

L'équation différentielle (2.17) devient :

$$\frac{1}{1-n} \frac{dy}{dz'} = -\alpha_0 y - \alpha_n \quad (2.18)$$

On aboutit ainsi une équation différentielle linéaire du premier ordre en y . La résolution de cette équation ne présente aucune difficulté et on obtient :

$$y(z') = A e^{(n-1)\alpha_0 z'} - \frac{\alpha_n}{\alpha_0} \quad (2.19)$$

Où A est une constante d'intégration. En termes d'intensité optique, nous aurons :

$$I(z') = y^{\frac{1}{1-n}} = \left[A e^{(n-1)\alpha_0 z'} - \frac{\alpha_n}{\alpha_0} \right]^{\frac{1}{1-n}} \quad (2.20)$$

Pour déterminer l'expression de la constante d'intégration, on fait appel à la condition aux limites $I(z' = 0) = I_{inc}$, où I_{inc} est l'intensité du faisceau incident. Cette condition aux limites exprime le fait que l'intensité optique à la face d'entrée de l'échantillon est la même que celle du faisceau incident. Après quelques manipulations, on trouve :

$$A = I_{inc}^{1-n} + \frac{\alpha_n}{\alpha_0} \quad (2.21)$$

En Insérant l'expression de A dans l'équation (2.20), on obtient :

$$I(r, z', t) = \frac{I_{inc}(r, z, t) \exp(-\alpha_0 z')}{\left[1 + \alpha_n \left(\frac{1 - \exp[-(n-1)\alpha_0 z']}{\alpha_0}\right) I_{inc}^{n-1}(r, z, t)\right]^{\frac{1}{n-1}}} \quad (2.22)$$

L'intensité optique transmise (à la sortie de l'échantillon) s'obtient en mettant simplement $z' = L$:

$$I_{out}(r, z, t) = \frac{I_{inc}(r, z, t) \exp(-\alpha_0 L)}{\left[1 + (n-1)\alpha_n L_{eff}^{(n-1)} I_{in}^{n-1}(r, z, t)\right]^{\frac{1}{n-1}}} \quad (2.23)$$

Où nous avons introduit la longueur effective de l'échantillon $L_{eff}^{(n-1)}$ d'ordre $(n-1)$ définie par la relation :

$$L_{eff}^{(n-1)} = \frac{1 - \exp[-(n-1)\alpha_0 L]}{\alpha_0(n-1)} \quad (2.24)$$

3.4. Variation de phase

Dans la seconde étape, nous allons résoudre l'équation différentielle (2.16-a). Dans un premier temps, on insert l'expression de $I(r, z', t)$, donnée par la relation (2.23), dans l'équation (2.16-a), ce qui donne :

$$\frac{d\Delta\varphi}{dz'} = k\gamma_n \frac{I_{inc}^{n-1}(r, z, t) \exp(-(n-1)\alpha_0 z')}{1 + (n-1)\alpha_n \left(\frac{1 - \exp[-(n-1)\alpha_0 z']}{\alpha_0(n-1)}\right) I_{in}^{n-1}(r, z, t)} \quad (2.25)$$

Où en termes d'intégrale :

$$\Delta\varphi = k\gamma_n \int_0^L \frac{I_{inc}^{n-1}(r, z, t) \exp(-(n-1)\alpha_0 z')}{1 + (n-1)\alpha_n \left(\frac{1 - \exp[-(n-1)\alpha_0 z']}{\alpha_0(n-1)}\right) I_{in}^{n-1}(r, z, t)} dz' \quad (2.26)$$

Afin d'évaluer cette intégrale, nous utilisons le changement de variable suivant :

$$q = (n-1)\alpha_n L_{eff}^{(n-1)}(z') I_{in}^{n-1}(r, z, t) = \alpha_n \left(\frac{1 - \exp[-(n-1)\alpha_0 z']}{\alpha_0}\right) I_{in}^{n-1}(r, z, t) \quad (2.27)$$

On trouve alors :

$$\Delta\varphi(r, z, t) = \frac{k\gamma_n}{(n-1)\alpha_n} \ln(1 + q_n) \quad (2.28)$$

Où :

$$q_n = (n-1)\alpha_n L_{eff}^{(n-1)}(L) I_{in}^{n-1}(r, z, t) \quad (2.29)$$

3.5. Champ électrique transmis

Par conséquent, le champ électrique transmis, c'est-à-dire, sortant du plan de l'échantillon, devient :

$$E_{out}(r, z + L, t) \approx E_{out}(r, z, t) = E_{inc}(r, z, t) \exp\left(-\frac{\alpha_0 L}{2}\right) \exp[i\Delta\varphi(r, z, t)] \quad (2.30)$$

Si on insère l'équation (2.28) dans l'équation (2.30), on obtient :

$$E_{out}(r, z, t) = E_{inc}(r, z, t) \exp\left(-\frac{\alpha_0 L}{2}\right) (1 + q_n)^{\frac{ik\gamma_n}{(n-1)\alpha_n} - \frac{1}{2(n-1)}} \quad (2.31)$$

En utilisant la formule du binôme de Newton, l'expression (2.31) devient :

$$E_{out}(r, z, t) = E_{inc}(r, z, t) \exp\left(-\frac{\alpha_0 L}{2}\right) \sum_{m=0}^{\infty} \frac{q_n(r, z, t)^m}{m!} \left[\prod_{p=1}^m \left(\frac{ik\gamma_n}{(n-1)\alpha_n} - \frac{1}{2(n-1)} - p + 1 \right) \right] \quad (2.32)$$

Sachant que l'intensité d'incidence optique est donné par :

$$I_{inc}(r, z, t) = |E_{inc}(r, z, t)|^2 = I_0 h(t) \frac{W_0^2}{W^2(z)} \exp\left(-\frac{2r^2}{W^2(z)}\right) \quad (2.33)$$

Enfin, on obtient :

$$E_{out}(r, z, t) = E_0(t) \frac{W_0}{W(z)} \exp\left(-\frac{\alpha_0 L}{2}\right) \exp\left(-\frac{ikr^2}{2R(z)}\right) \exp[-ikz + i\theta(z)] \sum_{m=0}^{\infty} f_{mn}(z, t) \exp\left(-\frac{(2m(n-1) + 1)r^2}{W^2(z)}\right) \quad (2.34)$$

Où :

$$f_{mn}(z, t) = \frac{(i\Delta\varphi_{0n}(z, t))^m}{m!} \left[\prod_{p=1}^m \left[1 + i \left(\frac{1}{(n-1)} + 2(p-1) \right) \frac{(n-1)\alpha_n}{2k\gamma_n} \right] \right] \quad (2.35 - a)$$

$$\Delta\varphi_{0n}(z, t) = \frac{\Delta\varphi_{0n}(t)}{\left[1 + \frac{z^2}{z_0^2} \right]^{(n-1)}} \quad (2.35 - b)$$

$$\Delta\varphi_{0n}(t) = k\gamma_n L_{eff}^{(n-1)} I_0^{n-1} h(t)^{n-1} \quad (2.35 - c)$$

Donc, le champ optique à la sortie de l'échantillon peut être considéré comme un ensemble ou une somme infini de faisceaux gaussiens de la forme :

$$E_{out}^{(m,n)}(r, z, t) = E_0(t) \frac{W_0}{W(z)} \exp\left(-\frac{\alpha_0 L}{2}\right) f_{mn}(z, t) \exp\left(-\frac{r^2}{W_0^{(m,n)}}\right) \exp\left(-\frac{ikr^2}{2R(z)}\right) \exp[-ikz + i\theta(z)] \quad (2.36)$$

Avec :

$$W_0^{(m,n)}(z) = \frac{W(z)}{\sqrt{2m(n-1) + 1}} \quad (2.37)$$

Cette procédure est la fameuse méthode de la décomposition gaussienne [18].

3.6. Champ électrique à l'entrée de l'ouverture

Chaque faisceau gaussien du type (2.36) peut se propager sur une distance d du plan extérieur de l'échantillon au plan d'ouverture. En utilisant les lois standards de la propagation [22], le champ électrique optique à l'entrée de l'ouverture (détecté) devient :

$$E_a^{(m,n)}(r, z, t) = E_{inc}(r = 0, z, t) \exp\left(-\frac{\alpha_0 L}{2}\right) f_{mn}(z, t) \frac{W_0^{(m,n)}(z)}{W^{(m,n)}(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{[W^{(m,n)}(z)]^2} - \frac{ikr^2}{2R^{(m,n)}(z)} + i\theta^{(m,n)}(z)\right) \quad (2.38)$$

Où :

$$E_{inc}(r = 0, z, t) = E_0(t) \frac{W_0}{W(z)} \quad (2.39 - a)$$

$$d^{(m,n)}(z) = \frac{k[W_0^{(m,n)}(z)]^2}{2} \quad (2.39 - b)$$

$$W^{(m,n)}(z) = W_0^{(m,n)}(z) \left[g^2 + \frac{d^2}{[d^{(m,n)}(z)]^2} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (2.39 - c)$$

$$R^{(m,n)}(z) = d \left[1 - \frac{g}{g^2 + \frac{d^2}{[d^{(m,n)}(z)]^2}} \right]^{-1} \quad (2.39 - d)$$

$$\theta^{(m,n)}(z) = \tan^{-1} \left[\frac{d/d^{(m,n)}(z)}{g} \right] \quad (2.39 - e)$$

$$g(z) = 1 + \frac{d}{R(z)} \quad (2.39 - f)$$

Enfin, tous les faisceaux optiques individuels qui se propagent sur une distance d sont sommés pour restaurer le champ optique total dans le plan d'ouverture. Ce dernier est donné par la relation suivante :

$$E_a(r, z, t) = \sum_{m=0}^{+\infty} E_a^{(m,n)}(r, z, t) = E_0(t) \frac{W_0}{W(z)} \exp\left(-\frac{\alpha_0 L}{2}\right) \sum_{m=0}^{+\infty} f_{mn}(z, t) \frac{W_0^{(m,n)}(z)}{W^{(m,n)}(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{[W^{(m,n)}(z)]^2} - \frac{ikr^2}{2R^{(m,n)}(z)} + i\theta^{(m,n)}(z)\right) \quad (2.40)$$

3.7. Puissance optique et transmittance normalisée

La puissance optique transmise à travers l'ouverture est obtenue par l'intégration spatiale de l'intensité optique transmise ($I_a(r, z, t) = |E_a(r, z, t)|^2$) à travers la surface circulaire de rayon r_a :

$$P_T^{(n)}(z, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} I_a(r, z, t) dx dy \quad (2.41)$$

En prenant en considération la dépendance temporelle du pulse laser, la transmittance normalisée est donné par la relation suivante :

$$T^{(n)}(z) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} P_T^{(n)}(z, t, \Delta\varphi_{0n}) dt}{S \int_{-\infty}^{+\infty} P_i(t) dt} \quad (2.42)$$

Où :

$$P_i(t) = \frac{1}{2} \pi W_0^2 I_0(t) = \frac{1}{2} \pi W_0^2 I_0 h(t) \quad (2.43 - a)$$

$$S = 1 - \exp\left(-\frac{2r_a^2}{W_a^2}\right) \quad (2.43 - b)$$

Qui sont, respectivement, la puissance incidente instantanée et la transmittance linéaire de l'ouverture. Les quantités r_a et W_a sont, respectivement, le rayon de l'ouverture et la largeur du faisceau à la traversée de l'ouverture en régime linéaire.

Quand l'ouverture est enlevée, le détecteur reçoit l'intégralité de l'intensité optique transmise. Dans ce cas, la transmittance optique normalisé est insensible aux distorsions du faisceau et n'est qu'une fonction de l'absorption non linéaire [29]. A présent, nous allons uniquement nous intéresser sur la réfraction non linéaire d'ordre n .

3.8.Cas de la réfraction pure

Suivant la procédure développée par Sheikh Bahae et al [18,21,22] nous allons établir l'expression de la transmittance optique normalisée pour une nonlinéarité d'ordre n et une faible variation de phase ($|\Delta\varphi_{0n}| \ll 1$). Dans ce cas, le champ optique total au niveau du plan d'ouverture peut être obtenu simplement en posant $r = 0$ et $\alpha_n = 0$ dans l'équation (2.40). De plus, seuls deux termes dans la somme (2.40) peuvent être retenus, si l'on adopte l'approximation des petits changements de phase. Dans ces conditions, cette somme se réduit à l'expression suivante :

$$E_a(r = 0, z, \Delta\varphi_{0n}) = E_0(t) \frac{W_0}{W(z)} \exp\left(-\frac{\alpha_0 L}{2}\right) \left[\frac{W_0^{(0,n)}(z)}{W^{(0,n)}(z)} \exp\left(i\theta^{(0,n)}(z)\right) + (i\Delta\varphi_{0n}(z, t)) \frac{W_0^{(1,n)}(z)}{W^{(1,n)}(z)} \exp\left(i\theta^{(1,n)}(z)\right) \right] \quad (2.44)$$

En utilisant l'équation (2.39-c), cette relation devient :

$$E_a(r = 0, z, \Delta\varphi_{0n}) = E_0(t) \frac{W_0}{W(z)} \exp\left(-\frac{\alpha_0 L}{2}\right)$$

$$\left[\left(g + i \frac{d}{d^{(0,n)}} \right)^{-1} + (i\Delta\varphi_{0n}(z, t)) \left(g + i \frac{d}{d^{(1,n)}} \right)^{-1} \right] \quad (2.45)$$

Le champ optique total, en régime linéaire, au plan de l'ouverture est donc donné par :

$$E_a(r = 0, z, \Delta\varphi_{0n} = 0) = E_0(t) \frac{W_0}{W(z)} \exp\left(-\frac{\alpha_0 L}{2}\right) \left(g + i \frac{d}{d^{(0,n)}} \right)^{-1} \quad (2.46)$$

En négligeant l'absorption linéaire et les variations temporelles de l'impulsion laser, l'expression de la transmittance optique normalisée peut s'écrire :

$$T^{(n)}(z, \Delta\varphi_{0n}) = \frac{|E_a(r = 0, z, \Delta\varphi_{0n})|^2}{|E_a(r = 0, z, \Delta\varphi_{0n} = 0)|^2} \quad (2.47)$$

En utilisant les équations (2.45) et (2.46), cette relation devient :

$$T^{(n)}(z, \Delta\varphi_{0n}) = \frac{\left| \left(g + i \frac{d}{d^{(0,n)}} \right)^{-1} + (i\Delta\varphi_{0n}(z, t)) \left(g + i \frac{d}{d^{(1,n)}} \right)^{-1} \right|^2}{\left| \left(g + i \frac{d}{d^{(0,n)}} \right)^{-1} \right|^2} \quad (2.48)$$

L'utilisation de la condition de champ lointain ($d \gg z_0$) permet de simplifier l'expression de la transmittance. En effet, cette condition permet de simplifier l'expression du facteur g comme suit :

$$g = 1 + \frac{d}{R(z)} \approx \frac{d(z/z_0)}{z_0 \left(1 + \frac{z_0^2}{z^2} \right)} \quad (2.49)$$

En injectant l'expression de g et celles $d^{(0,n)}$, $d^{(1,n)}$, $W_0^{(m,n)}(z)$ et $W(z)$ données par les équations (2.39-f), (2.39-b), (2.37) et (2.5), respectivement, et après quelques manipulations, l'expression de la transmittance devient :

$$T^{(n)}(x, \Delta\varphi_{0n}) = 1 + \frac{2(2n-2)\Delta\varphi_{0n}x}{(1+x^2)^{n-1}((2n-1)^2+x^2)} \quad (2.50)$$

Où $x = z/z_0$ est une quantité sans dimension. L'introduction de cette quantité donne une transmittance normalisée indépendante de la géométrie.

Les positions du pic et de la vallée de la transmittance peuvent être déterminées en résolvant l'équation $dT^{(n)}(z, \Delta\varphi_{0n})/dz = 0$. Les solutions de cette équation sont données par :

$$x_{p,v}^{(n)} = \pm \sqrt{\frac{\sqrt{[1 + (2n-1)^2(2n-3)]^2 + 4(2n-1)^3} - [1 + (2n-1)^2(2n-3)]}{2(2n-1)}} \quad (2.51)$$

Par conséquent, nous pouvons écrire la distance de séparation pic-vallée comme suit :

$$\Delta Z_{p,v}^{(n)} = 2x_{p,v}^{(n)} z_0 \quad (2.52)$$

De plus, l'insertion des valeurs de $x_{p,v}^{(n)}$ dans l'expression de la transmittance normalisée (2.50) donne le changement ou la différence de transmittance pic-vallée :

$$\Delta T_{p,v}^{(n)} = T_p^{(n)} - T_v^{(n)} = \frac{4(2n-2)|x_{p,v}^{(n)}|}{(1 + (x_{p,v}^{(n)})^2)^{n-1} ((2n-1)^2 + (x_{p,v}^{(n)})^2)} \Delta\varphi_{0n} \quad (2.53)$$

A noter que deux cas peuvent se présenter selon le signe de l'indice de réfraction non linéaire (négatif ou positif). L'allure de la transmittance normalisée en fonction de la position de l'échantillon, soit une configuration "pic-vallée" lorsque le milieu se comporte comme une lentille divergente ($\gamma_n < 0$), soit une configuration "vallée-pic" lorsque le milieu se comporte comme une lentille convergente ($\gamma_n > 0$). Le cas que nous avons traité correspondait à $\gamma_n > 0$. Dans le cas où $\gamma_n < 0$, la transmittance normalisée est donnée par :

$$T^{(n)}(x, \Delta\varphi_{0n}) = 1 - \frac{2(2n-2)\Delta\varphi_{0n}x}{(1+x^2)^{n-1}((2n-1)^2+x^2)} \quad (2.54)$$

Habituellement, nous pouvons écrire la transmittance optique normalisée sous la forme compacte suivante :

$$T^{(n)}(x, \Delta\varphi_{0n}) = 1 + \frac{2(2n-2)|\Delta\varphi_{0n}|x}{(1+x^2)^{n-1}((2n-1)^2+x^2)} \quad (2.55)$$

Où :

$$|\Delta\varphi_{0n}| = \begin{cases} -\Delta\varphi_{0n} & \text{si } \gamma_n < 0 \quad (2.56 - a) \\ +\Delta\varphi_{0n} & \text{si } \gamma_n > 0 \quad (2.56 - b) \end{cases}$$

L'expression de la transmittance optique normalisée peut être utilisée pour ajuster les traces expérimentales Z-scan, et ainsi obtenir les valeurs numériques de $\Delta\varphi_{0n}$ et donc la valeur de l'indice de réfraction non linéaire en utilisant la relation (2.35-c). Enfin, notre modèle reproduit

les résultats de Sheikh Bahae et ses collaborateurs dans le cas d'une nonlinéarité cubique ($n = 2$) [18,21,22].

Chapitre 3

Simulations, résultats et interprétations

1. Introduction

Dans ce chapitre, nous allons appliquer les résultats du modèle théorique de la réfraction non linéaire adapté à la technique Z-scan, élaboré dans le chapitre 2, à travers des simulations. Ces dernières consistent à représenter l'expression de la transmittance normalisée, donnée par la relation (2.55), pour les quatre premiers ordres des nonlinéarités réfractives $n = 2, 3, 4$ et 5 . Les effets de l'ordre du processus de réfraction non linéaire, de la longueur de Rayleigh et de la variation de phase sur les caractéristiques des courbes Z-scan obtenues seront étudiés.

2. Effet de l'augmentation de l'ordre du processus de réfraction non linéaire

Dans le tableau 3.1, nous avons donné l'expression de la transmittance optique normalisée, les valeurs des positions du pic et de la vallée de cette transmittance, la séparation pic-vallée et le changement ou la différence de transmittance pic-vallée pour les deux cas $\gamma_n > 0$ ($\Delta\varphi_{0n} > 0$) et $\gamma_n < 0$ ($\Delta\varphi_{0n} < 0$), pour les processus de réfraction non linéaire d'ordres $n = 2, 3, 4, 5$.

Les traces Z-scan correspondantes sont représentées sur la figure 3.1. Les valeurs de la longueur de Rayleigh et de la variation de phase utilisées dans ces simulations sont $z_0 = 0.5 \text{ cm}$ et $\Delta\varphi_0 = \pm 0.1 \text{ rd}$, respectivement. Il est à noter que nous avons pris la même valeur de variation de phase $\Delta\varphi_0$ pour tous les ordres, ce qui correspond, selon la relation (2.35-c), à des valeurs différentes de l'intensité incidente et de l'indice de réfraction non linéaire pour chaque ordre.

La valeur de $\Delta\varphi_0$ est assez faible pour que l'inégalité ($|\Delta\varphi_{0n}| \ll 1$) soit valide assurant le caractère perturbatif de notre modèle. La figure 3.1 montre que les principaux effets de l'augmentation de l'ordre du processus de réfraction non linéaire sont la diminution des valeurs des positions du pic et de vallée, de la séparation pic-vallée et du changement de transmittance pic-vallée. Ces résultats peuvent être expliqués dans le cadre de l'approximation des faibles nonlinéarités [28,29]. Cette approximation stipule que l'intensité lumineuse nécessaire pour exciter un processus de réfraction non linéaire est directement proportionnelle à l'ordre de ce processus. En d'autres termes, l'intensité requise pour exciter un processus de réfraction non linéaire augmente avec son ordre.

n	$T^{(n)}(z, \Delta\varphi_{0n})$	$x_{p,v}^{(n)}$	$\Delta Z_{p,v}^{(n)}$	$\Delta T_{p,v}^{(n)}$
2	$1 \pm \frac{4\Delta\varphi_{02}x}{(1+x^2)(9+x^2)}$	± 0.858	$1.716 z_0$	$0.406\Delta\varphi_{02}$
3	$1 \pm \frac{8\Delta\varphi_{03}x}{(1+x^2)^2(25+x^2)}$	± 0.567	$1.134 z_0$	$0.205\Delta\varphi_{03}$
4	$1 \pm \frac{12\Delta\varphi_{04}x}{(1+x^2)^4(49+x^2)}$	± 0.445	$0.89 z_0$	$0.127\Delta\varphi_{04}$
5	$1 \pm \frac{16\Delta\varphi_{05}x}{(1+x^2)^5(81+x^2)}$	± 0.377	$0.754 z_0$	$0.088\Delta\varphi_{05}$

Tableau 3.1 : Transmittance optique normalisée, valeurs des positions du pic et de la vallée de cette transmittance, séparation pic-vallée et le changement de transmittance pic-vallée pour les processus de réfraction non linéaire d'ordres $n = 2, 3, 4$ et 5 .

Cette approximation est implicitement contenue dans les équations (2.15-a) et (2.15-b). En fait, le second terme de l'équation (2.15-a) est le résultat d'un développement de Taylor de l'indice de réfraction non linéaire total en fonction de l'intensité optique. Cela indique clairement que la contribution de chaque processus de réfraction non linéaire est faible par rapport à la contribution du processus précédent. Les comportements observés sont les mêmes pour $\Delta\varphi_0 = 0.1$ et $\Delta\varphi_0 = -0.1$.

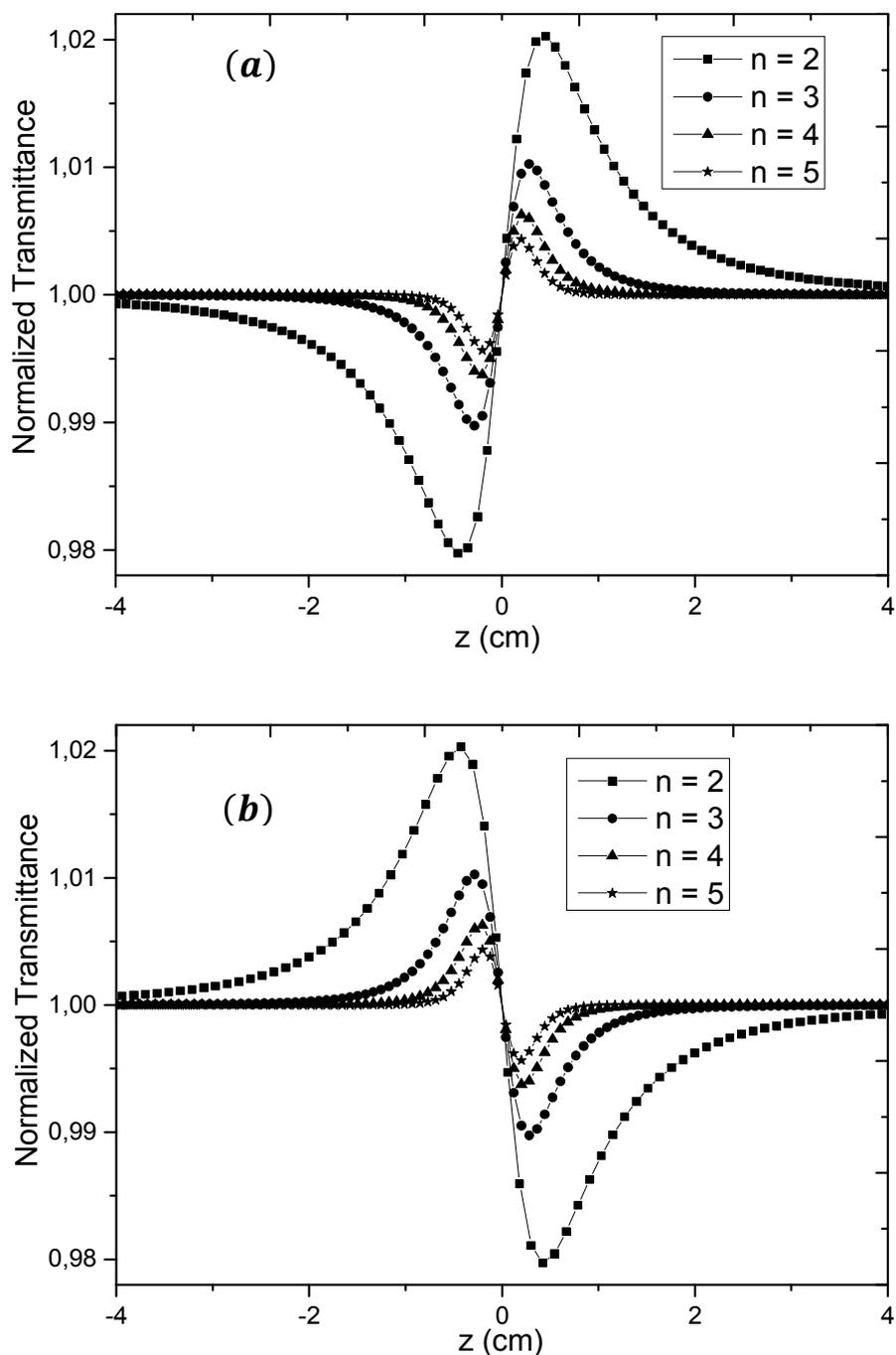


Figure 3.1 : Simulations de la transmittance optique normalisée pour les processus de réfraction non linéaires d'ordres $n = 2, 3, 4$ et 5 et pour les deux valeurs de la variation de phase : (a) $\Delta\varphi_0 = +0.1$ (b) $\Delta\varphi_0 = -0.1$

3. Effet de la longueur de Rayleigh

La figure 3.2 représente les résultats des simulations de la transmittance optique normalisée pour différentes valeurs de la longueur de Rayleigh. Dans ces simulations, nous n'avons considéré que l'ordre $n = 5$. En effet, d'autres simulations que nous n'avons pas reproduit ici montrent que les effets de la longueur de Rayleigh sur le comportement des traces Z-scan sont les mêmes pour tous les ordres, en d'autres termes, ce comportement est indépendant de l'ordre du processus de réfraction non linéaire. Les courbes Z-scan obtenues montrent que la variation du paramètre de Rayleigh n'affecte que les valeurs des positions du pic et de la vallée $x_{p,v}^{(5)}$ et donc, la séparation pic-vallée $\Delta Z_{p,v}^{(5)}$. D'autre part, la différence de transmission pic-vallée n'est pas affectée par la variation de la longueur de Rayleigh. Ces résultats sont prévisibles car seules les valeurs des positions du pic et de la vallée et la séparation pic-vallée dépendent de la distance de Rayleigh, en conformité avec l'équation (2.52) et la relation $x = z/z_0$. Les comportements observés sont les mêmes pour $\Delta\varphi_0 = 0.1$ et $\Delta\varphi_0 = -0.1$.

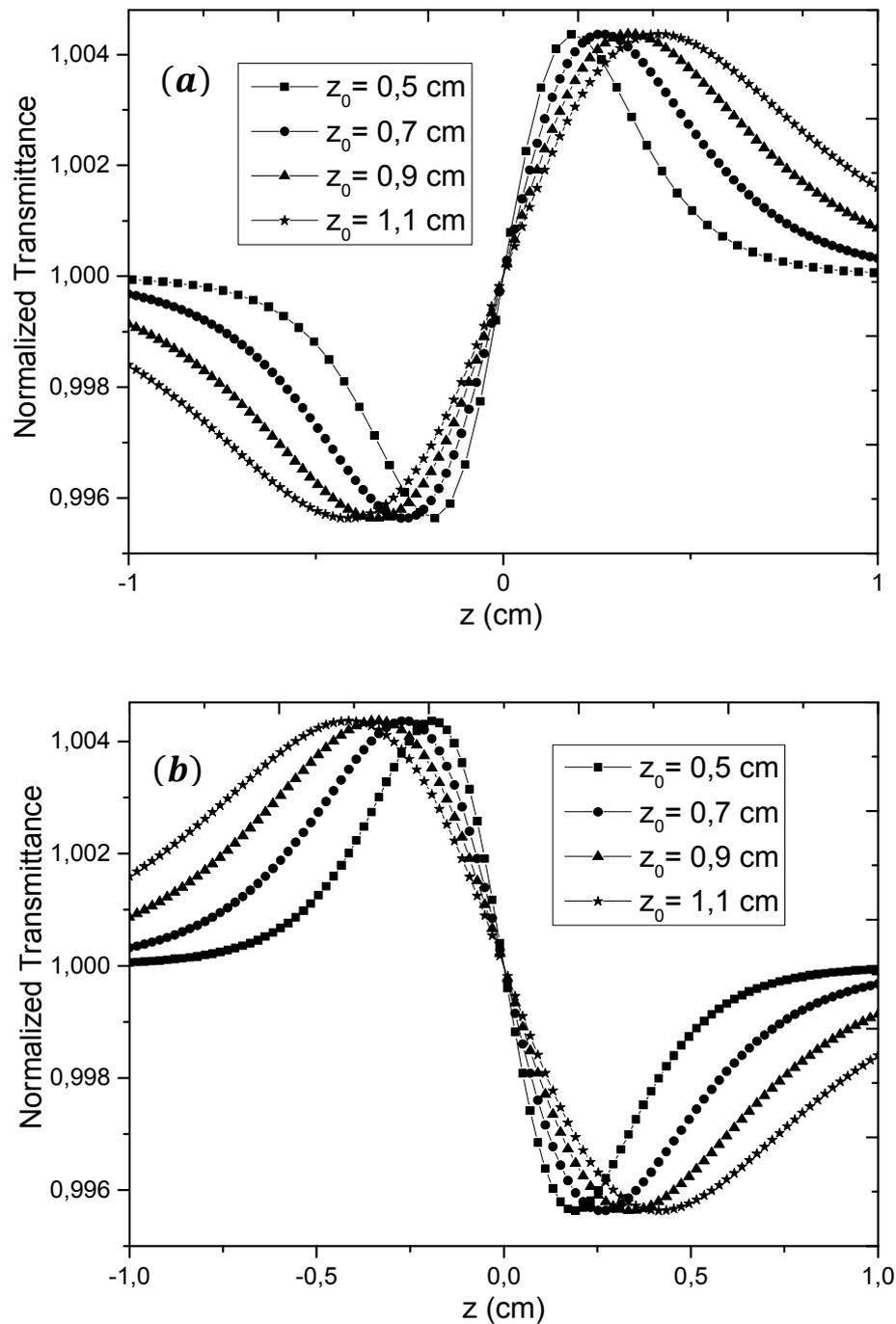


Figure 3.2 : Simulations de la transmittance optique normalisée correspondant au processus de réfraction non linéaire d'ordre $n = 5$, pour différentes valeurs du paramètre de Rayleigh et pour les deux valeurs de la variation de phase : (a) $\Delta\varphi_0 = +0.1$ (b) $\Delta\varphi_0 = -0.1$

4. Effet du changement de phase

La figure 3.3 montre les résultats des simulations de la transmittance optique normalisée pour différentes valeurs de la variation de phase $\Delta\varphi_0$. Pour la même raison, citée en haut, nous ne considérons que le processus de réfraction d'ordre $n = 5$. Par ailleurs, nous avons choisi une longueur de Rayleigh $z_0 = 0.5 \text{ cm}$. La figure 3.3 montre clairement que l'effet de l'augmentation de la variation de phase $\Delta\varphi_0$ se manifeste par l'augmentation des profondeurs de la vallée et du pic, résultant dans l'augmentation de la différence de transmittance pic-vallée. Cependant, les valeurs des positions du pic et de la vallée et la distance de séparation pic-vallée ne sont pas affectées par l'augmentation de la variation de phase. Ces résultats sont cohérents avec les prédictions du modèle théorique proposé. En effet, selon la relation (2.53) et pour un ordre n donné de la nonlinéarité réfractive, seule la différence de transmittance pic-vallée dépend de la variation de phase.

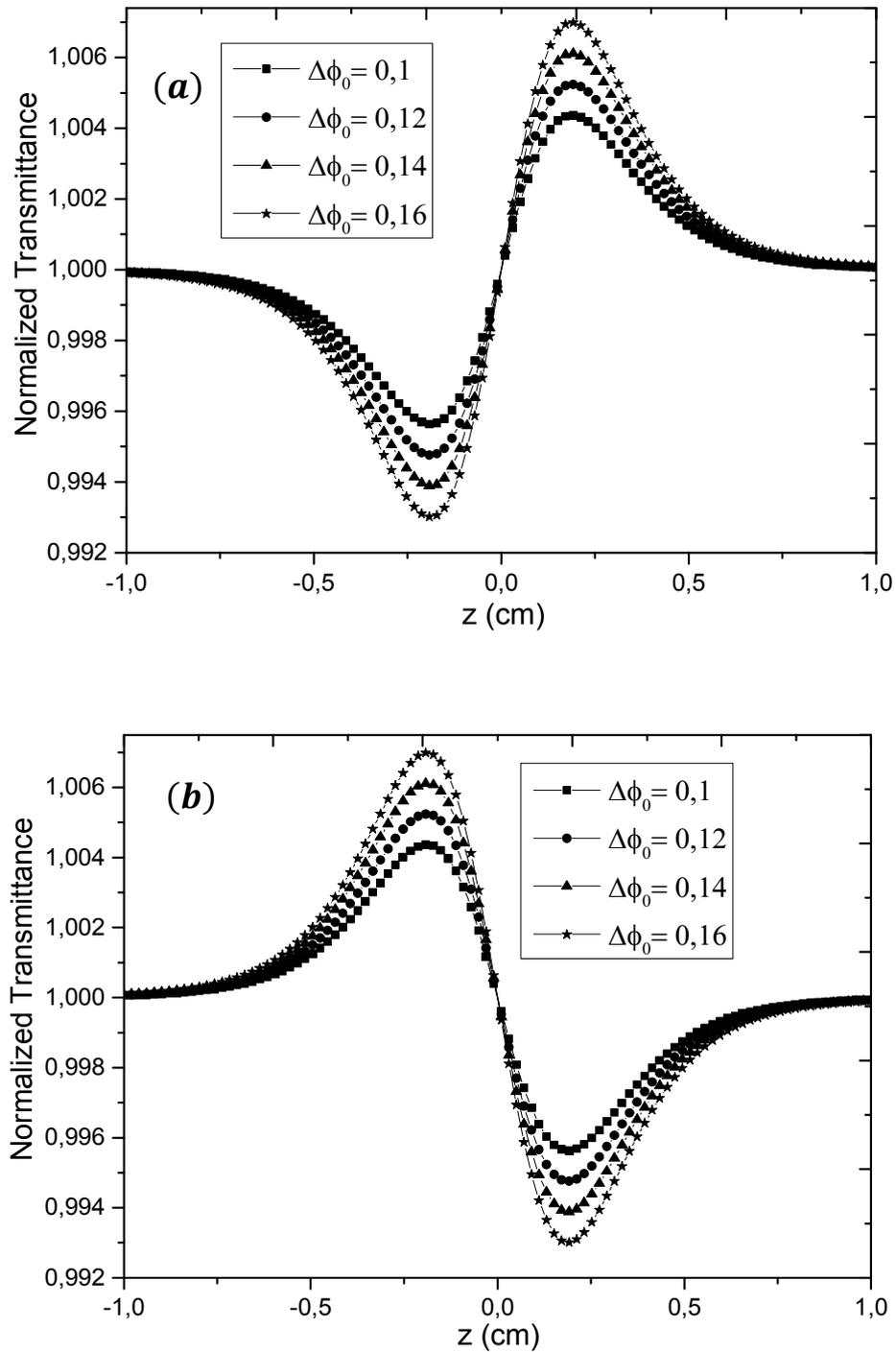


Figure 3.3 : Simulations de la transmittance optique normalisée correspondant au processus de réfraction non linéaire $n = 5$ pour différentes valeurs de la variation de phase : (a) $\Delta\phi_0 > 0$ (b) $\Delta\phi_0 < 0$

Conclusion générale et Perspectives

Le but de notre travail était la modélisation et la simulation du processus de réfraction non linéaire pour un ordre n quelconque. Ce dernier a eu un double objectif : d'une part, construire un modèle théorique pour la réfraction non linéaire et d'autre part, étudier l'influence de certains paramètres importants sur ce processus à travers des simulations.

Basé sur la méthode de la décomposition gaussienne, un modèle théorique d'absorption et de réfraction non linéaires avec un faisceau gaussien incident de profil spatial circulaire a été proposé. Ce modèle théorique a été élaboré en conformité avec la technique expérimentale Z-scan avec une ouverture fermée (closed Z-scan en anglais). La théorie a été ensuite réduite et adaptée au cas particulier où seules la réfraction non linéaire et l'absorption linéaire coexistent. Sous l'hypothèse d'une faible variation de phase, l'expression de la transmittance optique normalisée en champ lointain a été obtenue pour un ordre n arbitraire de la nonlinéarité réfractive et pour les deux configurations « pic-vallée » et « vallée-pic ». Notre modèle reproduit les résultats de Sheikh Bahae et ses collaborateurs dans le cas d'une nonlinéarité cubique ($n = 2$). L'expression de la transmittance optique normalisée obtenue peut être utilisée pour ajuster les traces expérimentales Z-scan, permettant ainsi la détermination de l'indice de réfraction non linéaire du matériau. Les expressions de certains paramètres importants très utiles dans la pratique, tels que les valeurs des positions du pic et de vallée, la séparation pic-vallée et la différence de transmittance pic-vallée sont également explicitées. Enfin, des simulations ont été effectuées pour les quatre premiers ordres des nonlinéarités réfractives ($n = 2,3,4,5$) et les effets de l'ordre du processus de réfraction non linéaire, de la longueur de Rayleigh et de la variation de phase ont été étudiés.

Les simulations réalisées ont montré que :

- Les principaux effets de l'augmentation de l'ordre du processus de réfraction non linéaire sont la diminution des valeurs des positions du pic et de vallée, de la séparation pic-vallée et du changement de transmittance pic-vallée. Ces effets s'expliquent parfaitement en faisant appel à l'approximation des faibles nonlinéarités liée à l'hypothèse des faibles variations de phase que nous avons adoptée.
- Les traces Z-scan obtenues pour l'ordre de la nonlinéarité réfractive $n = 5$ montre que la variation du paramètre de Rayleigh n'affecte que les valeurs des positions du pic et de la vallée et donc, de la séparation pic-vallée. D'autre part, la différence de transmission pic-vallée n'est pas altérée par le changement de la longueur de Rayleigh. Par ailleurs, ces effets

liés à la variation des paramètres de Rayleigh sont identiques à ceux observées pour n'importe quel ordre de la nonlinéarité réfractive.

- L'effet de l'accroissement de la variation de phase $\Delta\varphi_0$ se manifeste par l'augmentation de la différence de transmittance pic-vallée. En effet, les traces Z-scan obtenues pour l'ordre de la nonlinéarité réfractive $n = 5$ montrent une augmentation des profondeurs de la vallée et du pic. Cependant, les valeurs des positions du pic et de la vallée et la distance de séparation pic-vallée ne sont pas affectées par l'augmentation de la variation de phase. Comme pour l'effet de longueurs de Rayleigh, les effets de la variation de phase sont reproductibles pour n'importe quel ordre du processus de réfraction non linéaire.

Le modeste travail que nous venons de réaliser ouvre la voie à plusieurs perspectives. Citons en particulier :

- L'extension du modèle élaboré au cas plus réaliste d'un faisceau gaussien incident de profil spatiale elliptique.
- La mise en œuvre d'un modèle théorique dans lequel plusieurs processus de réfraction non linéaire coexistent simultanément.

Références bibliographiques

- [1] M.D. Aggarwal, J. Choi, W.S. Wang, K. Bhat, R.B. Lal, A.D. Shield, B.G. Penn, D.O.Frazier, J. Cryst. Growth 204 (1999) 179.
- [2] Robert Boyd. «The Nonlinear Optical Susceptibility.» Nonlinear Optics 3rd Edition, Academic Press, 2008, 640 p. page 2
- [3] Hasnaa El Ouazzani. Propriétés optiques non linéaires du deuxième et troisième ordre de nouveaux systèmes organiques conjugués de type push-pull. Thèse de Doctorat. Université d'Angers, 2012.
- [4] Said Taboukhat. Etude et diagnostic des propriétés optiques non linéaires de composés organiques et organométalliques hautement conjugués en vue d'application dans des dispositifs optoélectroniques. Thèse de Doctorat. Université d'Angers et Université Hassan II (Casablanca, Maroc), 2018.
- [5] G. Rodríguez, M. Albrecht, J. Schoenmaker, A. Ford, M. Lutz, A.L. Spek, G. van Koten, Bifunctional Pincer-type Organometallics as Substrates for Organic Transformations and as Novel Building Blocks for Polymetallic Materials, J. Am. Chem. Soc. 124 (2002) 5127–5138. doi:10.1021/ja0177657.
- [6] Y.R. Shen. The Principles of Nonlinear Optics. Wiley, 1984.
- [7] M. Göppert-Mayer, Ann. Phys. 273–294 (1931).
- [8] A. Royon, L. Canioni, B. Bousquet, M. Couzi, V. Rodriguez, C. Rivero, T. Cardinal, E. Fargin, M. Richardson and K. Richardson, Phys. Rev B. 75, 104207 (2007).
- [9] Kamil Fedus. Development of methods for measuring optical nonlinearities of third order. Thèse de Doctorat. Université d'Angers, 2011.
- [10] C.-C. Hsu, S.-S. Hu, T.-J. Chen, C.-Y. Lin, S.-Y. Tsai, J.-J. Wu. The essentials of the Kerr effect for polymer-stabilized blue phase liquid crystal. Optics Communications. 322, 78–81 (2014).
- [11] P. D. Maker and R. W. Terhune. Study of optical effects due to an induced polarization third order in the electrical field strength. Physical Review, 137, A801-A818 (1964).

- [12] P. N. Butcher and D. Cotter. The elements of nonlinear optics. Cambridge University Press, 1990.
- [13] P. D. Maker and R. W. Terhune. Study of optical effects due to an induced polarization third order in the electrical field strength. *Phys. Rev.*, 137(3A), A801–A818, August 1964.
- [14] M. D. Levenson. Feasibility of measuring the nonlinear index of refraction by thirdorder frequency mixing. *IEEE J. Quantum Electron.* 10(2), 110–115 (1974).
- [15] D. Milam and J. Weber. Measurement of nonlinear refractive index coefficients using time-resolved interferometry: Application to optical materials for high-power neodymium lasers. *J. Appl. Phys.* 47(6), 2497–2501 (1976).
- [16] R. Quintero-Torres and M. Thakur. Measurement of the nonlinear refractive index of polydiacetylene using Michelson interferometry and z-scan. *J. Appl. Phys.* 85(1), 401–403 (1999).
- [17] G. Boudebs, M. Chis, and X. Nguyen Phu. Third-order susceptibility measurement by a new mach-zender interferometry technique. *J. Opt. Soc. Am. B*, 18(5), 623– 627 (2001).
- [18] M. Sheik-Bahae, A. A. Said and E. W. Van Stryland, High-sensitivity, single-beam n_2 measurements, *Opt. Lett.* 14, 955 (1989).
- [19] V. Singh and P. Aghamkar. Z-scan: A Simple Technique for Determination of Third order Optical Nonlinearity. *AIP Conf. Proc.* 1675, 030095 (2015).
- [20] Z. Mousavi, B. Ghafary and M. H. Majles Ara. Fifth- and third- order nonlinear optical responses of olive oil blended with natural turmeric dye using z-scan technique. *J. Mol. Liq.* 285, 444 (2019).
- [21] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T. H. Wei, D. J. Hagan and E. W. Van Stryland. Sensitive measurement of n_2 using a single beam, *Proc. SPIE* 1438, 126 (1989).

- [22] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T. H. Wei, D. J. Hagan and E. W. Van Stryland. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam. *IEEE J. Quantum Electron.* 26, 760 (1990).
- [23] V. Singh and P. Aghamkar. Z-scan: A Simple Technique for Determination of Third order Optical Nonlinearity. *AIP Conf. Proc.* 1675, 030095 (2015).
- [24] Ferhat Kessi. Elaboration et étude des propriétés des agrégats métalliques. Thèse de Doctorat. Tizi-Ouzou, 2013
- [25] B. E. A. Saleh and M .C. Teich. *Fundamentals of photonics*. Wiley, New Jersey, 2007.
- [26] Boyd R. W. *Nonlinear Optics*. Academic Press, 2003.
- [27] G. Tsigaridas, M. Fakis, I. Polyzos, P. Persephonis and V. Giannetas. Z-scan analysis for high order nonlinearities through Gaussian decomposition. *Opt. Commun.* 225 , 253 (2003).
- [28] R. L. Sutherland, *Handbook of Nonlinear Optics* 2nd Ed. CRC Press, New York, 2003.
- [29] F. Kessi and H. Naima. Analytical model for a single multiphoton absorption process. *J. Nonlinear Opt. Phys. Mater.* 28, 1950004 (2019).

Listes tableaux et figures

Liste de tableaux

Tableau 3.1 : Transmittance optique normalisée, valeurs des positions du pic et de la vallée de cette transmittance, séparation pic-vallée et le changement de transmittance pic-vallée pour les processus de réfraction non linéaire d'ordres $n = 2, 3, 4$ et 5

Liste des figures

Figure 1.1 : Représentation des processus de l'absorption a deux photons (ADP)....

Figure 1.2 : Configuration expérimentale de mélange dégénéré à 4 ondes....

Figure 1.3 : Montage interférométrique de type Michelson réglé en franges parallèles...

Figure 1.4 : Montage interférométrique de type Mach-Zender en configuration pompe sonde

Figure 1.5 : Illustration du dispositif expérimentale pour la technique z-scan

Figure 1.6 : Allure des courbes de transmission normalisée dans le cas d'une variation d'indice positive ou négative dans l'échantillon

Figure 2.2 : Propriétés d'un faisceau gaussien

Figure 3.1 : Simulations de la transmittance optique normalisée pour les processus de réfraction non linéaires d'ordres $n = 2, 3, 4$ et 5 et pour les deux valeurs de la variation de phase : (a) $\Delta\varphi_0 = +0.1$ (b) $\Delta\varphi_0 = -0.1$

Figure 3.2 : Simulations de la transmittance optique normalisée correspondant au processus de réfraction non linéaire d'ordre $n = 5$, pour différentes valeurs du paramètre de Rayleigh et pour les deux valeurs de la variation de phase : (a) $\Delta\varphi_0 = +0.1$ (b) $\Delta\varphi_0 = -0.1$

Figure 3.3 : Simulations de la transmittance optique normalisée correspondant au processus de réfraction non linéaire $n = 5$ pour différentes valeurs de la variation de phase : (a) $\Delta\varphi_0 > 0$ (b) $\Delta\varphi_0 < 0$

Résumé

Dans ce travail, un modèle théorique a été construit et des simulations ont été réalisées pour étudier le processus de réfraction non linéaire. En utilisant la méthode de la décomposition gaussienne, nous avons obtenu une expression de la transmittance optique normalisée pour un ordre n arbitraire de la nonlinéarité réfractive. Grâce à cette expression, nous avons réalisé des simulations pour étudier l'effet de l'ordre de la nonlinéarité, du paramètre de Rayleigh et de la variation de phase.

Mots clés : réfraction non linéaire, Z-scan, faisceau gaussien, transmittance optique normalisée, simulations, paramètre de Rayleigh, variation de phase.

Abstract

In this work, a theoretical model was developed and simulations were performed to study the nonlinear refraction process. Using the Gaussian decomposition method, we obtained an expression of the normalized optical transmittance for an arbitrary n -order of the refractive nonlinearity. Using this expression, we performed simulations to study the effect of the nonlinearity order, the Rayleigh parameter and the phase variation.

Keywords: nonlinear refraction, Z-scan, Gaussian beam, normalized optical transmittance, simulations, Rayleigh range, phase variation.
