

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



Mémoire de Fin de Cycle

En vue de l'obtention du diplôme de Master en Physique
Option : Physique des Matériaux

Thème

Etude de l'influence des paramètres d'un faisceau laser
gaussien elliptique sur le processus d'absorption non linéaire
d'ordre 2

Présenté par :

ABID RADIA & CHEURFI FAOUZI

Mémoire soutenu le: 19/09/2021 devant le jury composé de :

Mr	<i>A.H. SOUICI</i>	Professeur	Président
Mr	<i>F. KESSI</i>	MCA	promoteur
Mme	<i>N. OULEBSIR</i>	MCA	Examinatrice

2020/2021

Remerciement

Nous remercions d'abord et avant tout le bon dieu tout puissant de nous avoir donné le courage et la force pour réaliser ce travail.

Nous désirons remercier notre promoteur Mr F. KESSI, pour sa disponibilité, sa précieuse aide et ses conseils qui nous ont accompagné tout au long de ce travail. Nous lui sommes très reconnaissants d'avoir cru en nos capacités et d'avoir accordé sa confiance et aussi pour ses qualités scientifiques, pédagogiques et humaines.

Nos remerciements vont aussi à Mr A.H. SOUICI, d'avoir accepté volontairement et aimablement de présider ce Jury.

Nous tenons à remercier également Mme N. OULEBSIR, d'avoir accepté, d'examiner ce travail. Qu'elle trouve ici nos sincères sentiments de gratitude et de respect.

Nous remercions aussi nos parents et proches pour leurs aides et encouragements.

Sans oublier nos amis et camarades pour le soutien qu'ils nous ont apporté.

À tous ceux qui nous ont aidés de près ou de loin à réaliser ce travail, auxquels nous disons tout simplement merci.

Dédicace

Je dédie ce modeste travail à :

*Mes très chers parents qui m'ont toujours aidé, soutenu et encouragé
tout au long de mes études.*

Que dieu les protège et les garde à mes côtés pour une longue vie.

*Et je dédie spécialement ce travail à mon grand-père, que dieu l'accueille
dans son vaste paradis. Il était toujours à mes côtés et me soutien dans la
vie, j'ai souhaité qu'il soit avec moi ce jour-là.*

Je dédie aussi ce modeste travail à

Ma grand-mère

Mes chères sœurs : FAIZA, LYNDA, NORA.

Mes chers frères : BOUDJAMAA, BILAL.

Mes petits neveux : YOUYU, ADAM et YOUCEF.

Mes cousins : DALIS, FARES, SALIM.

*A mes meilleurs amis KHALED, SOFIANE, RAZIK et YOUVA qui ont
été toujours à mes côtés.*

A ma binôme RADIA ainsi que toute sa famille.

A tous ceux que j'estime beaucoup

FAOUZI

Dédicace

*Je dédie ce travail en premier lieu aux êtres, les plus chers au monde : mes
parents.*

*Quoi que je fasse je ne pourrai jamais leurs rendre ce qu'ils ont fait pour moi,
si je suis arrivée là c'est bien grâce à eux que dieu les bénisse, et leurs accorde
longue vie et les protège.*

*Que ce travail vous soit le témoignage sincère et affectueux de ma profonde et
infinie reconnaissance pour tout ce que vous avez fait pour moi, j'espère que
je serai toujours à la hauteur de vos espérances.*

Je dédie aussi ce modeste travail

A ma chère sœur ZAHRA pour son soutien et sa générosité.

A mon cher frère : CHERIF

*A mes cousines et cousins : MELLISA, LAETITIA, ASSIA, ELLANE,
HOUAS et SID_ALI*

*A mes très chère amies les plus fidèles : ASMA, HAYETTE, DOUNIA,
SALIHA, NASSIMA, TISSA et KARIMA.*

A mon cher ami : RAZIK

*Et je dédie spécialement ce travail à mon binôme FAOUZI qui m'a encouragé
durant tout mon parcours universitaire.*

A tous ceux qui me sont chers.

RADIA

TABLE DES MATIERES

Introduction générale	1
------------------------------------	----------

Chapitre 1 : Absorption non linéaire

1.1. Introduction	3
1.2. Polarisation non linéaire	3
1.3. Absorption non linéaire	7
1.3.1. Absorption à deux photons.....	8
1.3.1.1. Absorption à deux photons avec un seul faisceau	9
1.3.1.2. Absorption à deux photons avec deux faisceaux.....	10
1.3.2. Absorption à trois photons	11
1.4. Techniques expérimentales pour l'absorption non linéaire	12
1.4.1. Méthode utilisant la fluorescence induite par l'absorption à deux photons.....	13
1.4.2. Méthodes par transmission.....	13
1.4.2.1. Principe	13
1.4.2.2. Transmission non linéaire.....	14
1.4.2.3. La technique Z-scan.....	15
1.4.2.3.1 Principe.....	15
1.4.2.3.2 Modèle théorique.....	18
a. Configuration Z-scan fermée.....	20
b. Configuration Z-scan intermédiaire.....	22
c. Configuration Z-scan ouverte.....	23

Chapitre 2 : Modélisation de l'absorption non linéaire d'ordre deux

En utilisant un faisceau gaussien

2.1 Introduction.....	24
2.2. Les faisceaux gaussiens	24
2.3. Hypothèse de base et équation de propagation.....	31
2.4. Intensité optique transmise.....	32
2.5. Puissance optique transmise.....	34
2.6. Transmittance optique normalisée.....	35
2.7. Approximation des faibles non linéarités.....	36
2.8. Cas d'un faisceau gaussien incident circulaire.....	43
2.9. La section efficace d'absorption.....	43

Chapitre 3 : Simulation, résultats et interprétations

3.1. Introduction.....	44
3.2. Effet des positions des waists	44
3.3. Effet de l'absorption linéaire.....	48
3.4. Effet de l'absorption non linéaire β	50
3.5. Effet de l'intensité incidente au centre du faisceau	52
3.6. Effet de l'épaisseur de l'échantillon.....	54
3.7. Effet des longueurs de Rayleigh.....	56
3.8. Effet de la réflexion à l'interface	58
3.9. Effet de la forme de l'enveloppe temporelle du pulse laser.....	60

Conclusion générale et perspectives.....	63
---	-----------

Bibliographies

Liste des figures.....	<i>i</i>
-------------------------------	-----------------

Liste des tableaux.....	<i>ii</i>
--------------------------------	------------------

Résumé

Introduction générale

L'optique non linéaire est la branche de l'optique qui décrit le comportement de la lumière dans des milieux non linéaires, c'est-à-dire, des milieux dans lesquels la réponse optique, représentée par la polarisation, dépend d'une manière non linéaire du champ électrique de la lumière. Les nonlinéarités optiques ne sont observables qu'à des intensités lumineuses très élevées, telles que celles fournies par les lasers. Une grande variété de phénomènes peut se produire lorsqu'une lumière intense interagit avec la matière, entraînant la création de nouveaux faisceaux lumineux de différentes longueurs d'onde. Ces différents phénomènes ont donné naissance à plusieurs applications dans divers domaines des sciences et de la technologie.

L'absorption non linéaire à deux photons est parmi les premiers effets optiques non linéaires prédit théoriquement et observé expérimentalement. L'absorption non linéaire à deux photons est un processus non linéaire dans lequel deux photons, de fréquences identiques ou différentes, sont simultanément absorbés par un matériau en raison de son exposition à une lumière laser de haute intensité. L'absorption non linéaire à deux photons se traduit par la modification de la transmittance du matériau en fonction de l'intensité lumineuse.

Il existe plusieurs techniques de caractérisation de l'absorption non linéaire à deux photons, telles que le mélange à trois ondes, le mélange à quatre ondes dégénérées, la fluorescence à deux photons, le Z-scan ...etc. Parmi toutes ces techniques, nous avons choisi la méthode Z-scan pour la modélisation de l'absorption non linéaire à deux photons. Le principe de mesure est relativement simple, il consiste à déplacer un échantillon le long d'un faisceau laser focalisé pour faire varier l'intensité incidente. La variation de transmittance de cet échantillon est ensuite mesurée dans la configuration sans ouverture pour étudier l'absorption non linéaire. Cette technique présente plusieurs avantages. En effet, le montage expérimental de cette technique est relativement simple, elle permet de mesurer de façon simple les parties réelle et imaginaire de la susceptibilité non linéaire d'ordre 2 correspondant à la réfraction et l'absorption non linéaire, respectivement. Cette technique permet aussi de déterminer le signe de ces deux composantes à partir de l'allure des courbes expérimentales. Enfin cette technique peut être utilisée pour étudier un processus d'absorption non linéaire à un nombre de photons supérieur à deux ou processus d'absorption multiphotonique.

Introduction générale

Ce mémoire s'inscrit dans le domaine de l'optique non linéaire. Nous nous intéresserons plus particulièrement à l'étude de l'absorption non linéaire à deux photons. L'objectif de ce travail est d'une part, l'élaboration d'un modèle théorique de l'absorption non linéaire à deux photons avec un faisceau gaussien incident de profil spatial elliptique, en rapport avec la technique Z-scan et d'autre part, l'étude de l'influence des paramètres du faisceau gaussien incident et des propriétés de l'échantillon sur l'absorption non linéaire à deux photons, à travers des simulations.

Dans le premier chapitre et dans le but de définir la problématique de notre travail et le situé par rapport aux autres travaux, nous présenterons une revue bibliographique de l'absorption non linéaires en général et l'absorption à deux photons en particulier. Notre approche consistera à introduire ce phénomène à partir du cadre générale de l'optique non linéaire, à travers la polarisation non linéaire. La fin de ce chapitre sera consacrée aux techniques expérimentales de caractérisation de l'absorption non linéaire à deux photons, et en particulier la technique Z-scan. Le modèle théorique associé à cette technique dans les configurations ouverte, fermée et intermédiaire, permettant d'établir l'expression de la transmittance normalisée dans le cas d'un faisceau gaussien incident de profil spatial circulaire, sera également exposé.

Le second chapitre sera entièrement dédié à la construction du modèle théorique de l'absorption non linéaire à deux photons avec un faisceau gaussien incident de profil spatial elliptique. Nous commencerons tout d'abord par introduire les faisceaux gaussiens elliptiques ainsi que leurs propriétés et caractéristiques. Ensuite, nous poserons les bases et hypothèses du modèle et décrirons les différentes étapes à suivre. Le but étant de déterminer une expression analytique de la transmittance optique normalisée. On terminera ce chapitre en introduisant l'approximation des faibles nonlinéarités qui va nous permettre d'obtenir une expression analytiques de la transmittance normalisée adaptée à d'éventuels simulations ou réajustements.

Dans le dernier chapitre, nous étudierons, à travers des simulations, l'influence des paramètres du faisceau gaussien incident, tels que les positions des waists, les paramètres de Rayleigh, l'enveloppe temporelle du pulse laser et de l'intensité incidente au centre du faisceau ainsi que les propriétés de l'échantillon, tels que l'épaisseur et ses coefficients d'absorption linéaire et non linéaire, sur l'absorption non linéaire à deux photons. Nous terminerons ce modeste travail par une conclusion générale et des perspectives.

Chapitre 1

Absorption non linéaire

1.1. Introduction

Dans ce premier chapitre, nous allons dresser une revue bibliographique de l'absorption non linéaire en général et l'absorption à deux photons en particulier. Dans un premier temps, nous allons introduire l'absorption multiphotonique dans le cadre générale de l'optique non linéaire, à travers la polarisation non linéaire. Ensuite, nous allons traiter les cas particuliers de l'absorption à deux photons avec un seul ou deux faisceaux, l'absorption à trois photons et d'une manière générale l'absorption multiphotonique ou à n photons. La fin de ce chapitre sera consacrée aux techniques expérimentales de caractérisation de l'absorption non linéaire. L'accent sera mis sur la technique dite Z-scan. Le modèle théorique associée permettant d'établir l'expression de la transmittance normalisée dans le cas d'un faisceau gaussien incident de profil spatial circulaire sera également exposé.

1.2. Polarisation non linéaire

Les matériaux étudiés en optique sont souvent considérés comme un ensemble de particules chargées constituées d'électrons chargés négativement et d'ions chargés positivement (noyaux des atomes). Lorsqu'un milieu est soumis à un champ électrique oscillant \vec{E} (voir Figure 1.1), les charges positives sont entraînées dans le sens du champ, alors que les charges négatives sont entraînées dans le sens inverse, créant ainsi un dipôle oscillant. Dans le cas d'une excitation faible, le déplacement des électrons peut être représenté par un simple dipôle microscopique oscillant $\vec{p} = \vec{\alpha}^{(1)}\vec{E}$, proportionnel au champ, ce qui conduit à la génération d'une polarisation linéaire au niveau macroscopique $\vec{P} = \epsilon_0\vec{\chi}^{(1)}\vec{E}$, qui représente la densité des moments dipolaires, où $\vec{\alpha}^{(1)}$ et $\vec{\chi}^{(1)}$ sont les tenseurs d'hyperpolarisabilité et de susceptibilité linéaires du premier ordre. Notons qu'on a considéré un milieu homogène mais anisotrope.

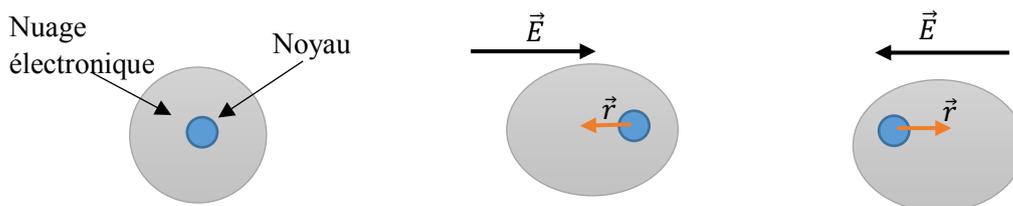


Figure 1.1 : Représentation schématique de la déformation du nuage électronique d'un atome soumis à un champ électrique oscillant, où \vec{r} représente le déplacement.

Chapitre 1

Il existe 3 mécanismes de polarisation de la matière :

- Polarisation électronique : elle est liée à la modification de la répartition des charges internes dans chaque atome ou ion.
- Polarisation atomique : elle concerne les déplacements des atomes ou des ions par rapport à leurs positions d'équilibre dans l'édifice auquel ils appartiennent (molécule ou réseau cristallin).
- Polarisation d'orientation : celle-ci concerne les édifices atomiques ou moléculaires possédant un moment dipolaire permanent.

L'hypothèse de linéarité du milieu optique traversé par la lumière admet des conséquences importantes :

- Le champ électromagnétique suit le principe de superposition : si deux champs peuvent se propager dans le milieu, alors il en est de même de toute combinaison linéaire de ces deux champs ;
- L'indice de réfraction du milieu est indépendant de l'intensité de la lumière.
- La pulsation de la lumière est inchangée lorsqu'elle traverse le milieu.
- Deux faisceaux de lumière traversant la même région d'un milieu linéaire n'interagissent pas entre eux (conséquence du principe de superposition).

Cependant, si le champ électrique de l'onde lumineuse est beaucoup plus intense, c'est-à-dire, si le champ appliqué n'est plus négligeable devant le champ atomique ($> 10^{10}$ V/m), l'approximation de la réponse optique linéaire n'est plus valable. Cette forte intensité donne lieu à une polarisation non linéaire dans le matériau. De nouvelles propriétés optiques ont ainsi pu être révélées :

- L'indice de réfraction varie avec l'intensité lumineuse.
- La lumière peut changer de pulsation. Elle peut par exemple passer du rouge au bleu lorsqu'elle traverse un milieu non linéaire.
- Deux faisceaux lumineux peuvent interagir dans un milieu non linéaire.

Lorsqu'on parle d'optique non linéaire, il faut garder à l'esprit que la propriété de non linéarité concerne le milieu traversé par la lumière et non pas la lumière elle-même. D'ailleurs, aucun phénomène non linéaire ne peut apparaître quand la lumière se propage dans l'espace libre.

Chapitre 1

La réponse optique non linéaire d'un matériau soumis à un champ électrique intense consiste à induire une polarisation microscopique. Cette dernière est alors développée en fonction de champ électrique local comme suit [1] :

$$\vec{p} = \vec{p}_0 + \vec{p}^{(1)} + \vec{p}^{(2)} + \vec{p}^{(3)} + \dots = \vec{p}_0 + \vec{\alpha}^{(1)}\vec{E} + \vec{\alpha}^{(2)}\vec{E}\vec{E} + \vec{\alpha}^{(3)}\vec{E}\vec{E}\vec{E} + \dots \quad (1.1)$$

Où \vec{p}_0 est le moment dipolaire permanent, $\vec{p}^{(1)}$ est le moment dipolaire linéaire, $\vec{p}^{(2)}$ et $\vec{p}^{(3)}$ sont les moments dipolaires non linéaires des 2^{ème} et 3^{ème} ordres, respectivement, $\vec{\alpha}^{(1)}$ est le tenseur de la polarisabilité linéaire, $\vec{\alpha}^{(2)}$ et $\vec{\alpha}^{(3)}$ sont les tenseur d'hyperpolarisabilité des 2^{ème} et du 3^{ème} ordre, respectivement. Notons que les quantités $\vec{E}\vec{E}$ et $\vec{E}\vec{E}\vec{E}$ représentent des produits tensoriel. Par exemple, le moment dipolaire d'ordre 2 est défini comme suit :

$$\vec{p}^{(2)} = \vec{\alpha}^{(2)}\vec{E}\vec{E} \quad (1.2)$$

Tel que :

$$p_i^{(2)} = \sum_{j,k=1}^3 \alpha_{ijk}^{(2)} E_j E_k ; i = (1(x), 2(y), 3(z)) \quad (1.3)$$

Dans le cas où on considère le matériau comme une distribution volumique de dipôles induits, la polarisation macroscopique \vec{P} est définie comme la résultante de tous les dipôles microscopiques. Cette dernière s'exprime de la même façon que la polarisation microscopique, c'est-à-dire, par un développement en série de Taylor en fonction du champ électrique de l'onde lumineuse incidente [1] :

$$\vec{P} = \vec{P}^{(1)} + \vec{P}^{(2)} + \vec{P}^{(3)} + \dots = \varepsilon_0 (\vec{\chi}^{(1)}\vec{E} + \vec{\chi}^{(2)}\vec{E}\vec{E} + \vec{\chi}^{(3)}\vec{E}\vec{E}\vec{E} + \dots) \quad (1.4)$$

Où ε_0 est la permittivité diélectrique de vide, $\vec{P}^{(1)}$, $\vec{P}^{(2)}$ et $\vec{P}^{(3)}$ sont les polarisations linéaire et non linéaires du 2^{ème} et 3^{ème} ordre, respectivement, $\vec{\chi}^{(1)}$, $\vec{\chi}^{(2)}$ et $\vec{\chi}^{(3)}$ sont les tenseur de susceptibilité linéaire et non linéaires des 2^{ème} et 3^{ème} ordres, respectivement.

La quantité $\vec{\chi}^{(1)}$ est une grandeur sans dimension qui est de l'ordre de l'unité, $\vec{\chi}^{(2)}$ a la dimension de l'inverse du champ électrique (m/V) et $\vec{\chi}^{(3)}$ a la dimension de l'inverse du carré du champ électrique (m^2/V^2).

La polarisation totale est donc la somme d'une polarisation linéaire et d'une polarisation non linéaire :

$$\vec{P} = \vec{P}_L + \vec{P}_{NL} \quad (1.5)$$

Chapitre 1

La partie non linéaire fait intervenir les susceptibilités optiques $\vec{\chi}^{(n)}$ qui sont des tenseurs de rang $(n + 1)$. Par exemple, la polarisation non linéaire d'ordre 2 est définie comme suit :

$$P_i^{(2)} = \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)} \vec{E} \vec{E} = \varepsilon_0 \sum_{j,k=1}^3 \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k ; i = (1(x), 2(y), 3(z)) \quad (1.6)$$

La polarisation linéaire décrit les phénomènes optiques linéaires (réfraction, réflexion, diffraction), et rend compte des propriétés optiques linéaires du matériau. Dans le cas d'un milieu linéaire, isotrope et homogène, le tenseur de susceptibilité se réduit à un nombre complexe et on peut ainsi définir [1] :

- L'indice de réfraction linéaire :

$$n = \Re \left(\sqrt{1 + \chi^{(1)}} \right) \quad (1.7)$$

- Le coefficient d'absorption linéaire :

$$\alpha_0 = \Im m \left(\sqrt{1 + \chi^{(1)}} \right) \quad (1.8)$$

Le deuxième terme dans la relation (1.4) correspond aux effets non linéaires du deuxième ordre tels que la génération de seconde harmonique. Ces effets dépendent fortement de la symétrie du milieu. On peut préciser que les effets liés aux nonlinéarités d'ordre 2 (plus généralement les effets non linéaires d'ordre pair) n'existent pas dans un milieu centrosymétrique (qui possède un centre d'inversion). En effet, si le milieu considéré est centrosymétrique, la polarisation non linéaire induite par le champ \vec{E} doit être opposée à celle induite par un champ $(-\vec{E})$:

$$\vec{P}^{(2)}(\vec{E}) = -\vec{P}^{(2)}(-\vec{E}) \Rightarrow \vec{\chi}^{(2)} \vec{E} \vec{E} = -\vec{\chi}^{(2)} \vec{E} \vec{E} \Rightarrow \vec{\chi}^{(2)} = \vec{0} \quad (1.9)$$

Dans ce cas, la susceptibilité d'ordre 2 ne peut être que nulle.

Le troisième terme dans la relation (1.4) correspond aux effets non linéaires du troisième ordre tel que la génération de troisième harmonique, la diffusion Raman stimulée, effet Kerr optique etc. Ces effets ne dépendent pas de la symétrie du milieu.

Dans le cas de la propagation suivant l'axe (OZ) d'une onde électromagnétique monochromatique plane de pulsation ω , le champ électrique est de la forme :

$$E(t, z) = E_0 \cos(\omega t - kz) \quad (1.10)$$

Où E_0 est l'amplitude de l'onde et k le vecteur d'onde, dans un milieu homogène et isotrope, la polarisation prend la forme suivante :

$$P = \varepsilon_0 (\chi^{(1)} E_0 \cos(\omega t - kz) + \chi^{(2)} E_0^2 \cos^2(\omega t - kz) + \chi^{(3)} E_0^3 \cos^3(\omega t - kz) + \dots) \quad (1.11)$$

En utilisant les identités trigonométriques appropriées, il vient :

$$P = \varepsilon_0 \left(\chi^{(1)} E_0 \cos(\omega t - kz) + \frac{1}{2} \chi^{(2)} E_0^2 [1 + \cos(2\omega t - 2kz)] + \chi^{(3)} E_0^3 \left[\frac{3}{4} \cos(\omega t - kz) + \frac{1}{4} \cos(3\omega t - 3kz) \right] + \dots \right) \quad (1.12)$$

On obtient ainsi de nouvelles composantes fréquentielles dues à la polarisation non linéaire :

- Génération de seconde harmonique : 2ω
- Génération de troisième harmonique : 3ω

Par conséquent, les phénomènes optiques non linéaires peuvent être considérés comme des processus de mélange d'ondes, où les ondes échangent leurs énergies entre elles à travers le matériau non linéaires. En général, les phénomènes non linéaires du second ordre peuvent être décrits par l'étude de l'interaction entre deux ondes de fréquences différentes ω_1 et ω_2 qui génèrent une troisième onde de fréquence ω_3 . De même, pour les phénomènes non linéaires du troisième ordre où il faut les considérer comme des processus d'interaction entre trois ondes de fréquences différentes. Le tableau 1.1 illustre quelques effets et applications des processus non linéaires quadratiques et cubiques [2,3].

Tableau 1.1 : Quelques effets et applications des processus linéaires, non linéaires quadratiques et cubiques [2,3].

Ordre	Tenseur	Effets	Application
1	$\chi^{(1)}$	Absorption et émission linéaires, Réfraction	fibre optique
2	$\chi^{(2)}$	Génération de seconde harmonique : $2\omega ; \omega, \omega$ Transposition de fréquence $\omega_3 ; -\omega_1, \pm \omega_2$ Effet Pockels : $(\omega ; \omega, 0)$	Doubleurs de fréquences Amplification et oscillateur paramétrique optique Modulateurs électro-optiques
3	$\chi^{(3)}$	Génération de troisième harmonique $3\omega ; \omega, \omega, \omega$ Mélanges à 4 ondes $\omega_4 ; \omega_1, \pm \omega_2, \pm \omega_3$ Effet Kerr optique $(\omega ; \omega, -\omega, \omega)$	Spectroscopie Effet Raman stimulé Portes optiques ultra-rapides

1.3. Absorption non linéaire

L'absorption non linéaire fait référence à l'absorption de plusieurs photons simultanément et instantanément lorsqu'un matériau est exposé à un faisceau lumineux très intense, tel que celui produit par les lasers. L'absorption non linéaire se traduit par la variation de la transmittance

d'un matériau en fonction de l'intensité ou de la fluence. À des intensités suffisamment élevées, la probabilité qu'un matériau absorbe plus d'un photon avant de se relaxer à l'état fondamental peut être fortement augmentée. Dès 1931, Goepfert-Mayer [4] a calculé la probabilité de transition dans un système en utilisant la théorie des perturbations quantiques du second ordre. Depuis l'invention du laser [5], non seulement ce phénomène d'absorption simultanée de deux photons a été observé dans une grande variété de matériaux [6], mais l'absorption multiphotonique a également été largement étudiée [7-10]. En outre, la redistribution de la population induite par des champs laser intenses conduit à des processus intéressants d'émission et d'absorption stimulées, à des transitions énergétiques compliquées dans des systèmes moléculaires complexes et à la génération de porteurs libres dans les solides. Ces phénomènes se manifestent optiquement par une absorption réduite (saturable) ou accrue (saturable inverse).

Les nombreux et différents effets produits par l'absorption non linéaire à travers la transmittance d'un matériau non linéaire en fonction de la fréquence ont conduit à plusieurs applications dans les sciences et la technologie. Celles-ci incluent des domaines aussi divers que la spectroscopie non linéaire [11], la limitation optique [12,13], les dommages induits par le laser [14,15], la microscopie à fluorescence [16], l'imagerie par luminescence [17]....etc.

1.3.1. Absorption à deux photons

L'absorption à deux photons (2PA) implique une transition de l'état fondamental d'un système vers un état supérieur du même système par l'absorption simultanée de deux photons, provoquée par un ou deux champs électriques incidents. Ce processus implique des règles de sélection différentes de celles de l'absorption à un seul photon. Par conséquent, la spectroscopie à deux photons complète la spectroscopie d'absorption linéaire dans l'étude des états excités des systèmes [18].

Deux situations possibles sont illustrées à la figure 1.2. Dans la première situation, deux photons d'un même champ optique oscillant à la fréquence ω sont absorbés pour réaliser la transition, qui est approximativement résonante à la fréquence 2ω . Dans la deuxième situation, deux champs optiques aux fréquences ω_e et ω_p sont présents et un photon de chaque champ est absorbé pour réaliser la transition, qui est approximativement résonante à la fréquence $\omega_e + \omega_p$. Dans ce cas, le premier champ peut être considéré comme le faisceau pompe ou d'excitation, avec un indice e , tandis que le second peut être considéré comme le faisceau sonde, avec un indice p . Dans les deux cas, l'état intermédiaire ou virtuel n'est pas réel ; c'est-à-dire qu'il

n'implique pas un état stationnaire réel du système. Le système doit donc absorber les deux photons simultanément. Cela rend le processus sensible à l'intensité optique incidente.

Bien que la transition n'implique pas un état intermédiaire réel, il y a souvent des impuretés présentes qui induisent une faible absorption linéaire. Cependant, cette absorption ne contribue pas à la transition vers l'état final, mais sert uniquement de mécanisme de perte supplémentaire. L'absorption en deux étapes, impliquant un état intermédiaire pompé par un seul photon, est décrite comme une absorption vers un état excité.

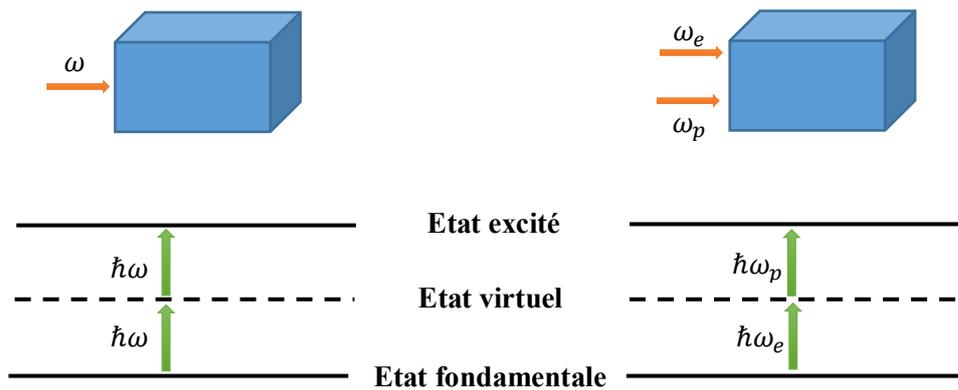


Figure 1.2 : Schéma de l'absorption à deux photons : à gauche avec un seul faisceau et à droite avec deux faisceaux.

1.3.1.1. Absorption à deux photons avec un seul faisceau

Dans ce cas, l'absorption non linéaire est proportionnelle au carré de l'intensité instantanée I . L'équation différentielle décrivant la perte optique ou la propagation du faisceau à l'intérieur du matériau non linéaire homogène est isotrope est donnée par [1] :

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha_0 I - \beta I^2 \quad (1.13)$$

Où z est l'axe optique du faisceau et β (noté également β_2) est le coefficient d'absorption à deux photons.

Le coefficient β est un paramètre macroscopique caractérisant le matériau. Par contre, la molécule individuelle ou l'atome sont décrits par la section efficace d'absorption σ_2 . La relation entre β et σ_2 est donnée par [1] :

$$\sigma_2 = \frac{\hbar\omega\beta}{N} \quad (1.14)$$

Où N est le nombre des molécules ou atomes absorbants dans le matériau et $\hbar\omega$ est l'énergie des photons dans le champ optique incident.

Le coefficient d'absorption à deux photons β est également lié à la susceptibilité de troisième ordre $\chi^{(3)}$ via l'expression suivante [1] :

$$\beta = \frac{3\pi}{\varepsilon_0 n^2 c \lambda} \text{Im} \left[\chi_{xxxx}^{(3)}(-\omega; \omega, \omega, -\omega) \right] \quad (1.15)$$

Où c est la vitesse de la lumière et λ la longueur d'onde du faisceau incident. Donc, la partie imaginaire de $\chi^{(3)}$ détermine l'intensité de l'absorption non linéaire. Notons que la susceptibilité est complexe, ce qui signifie que l'un des dénominateurs de la fréquence de résonance est proche de zéro et que la partie imaginaire de la fréquence de transition n'est pas négligeable, comme on le suppose dans les phénomènes purement réactifs. Ce dénominateur correspond à une transition énergétique du système qui est résonante au voisinage de $2\hbar\omega$. De plus, on suppose que la lumière incidente est polarisée linéairement et que le milieu est centrosymétrique, de sorte que seule la composante $\chi_{xxxx}^{(3)}$ du tenseur de susceptibilité est pertinente.

1.3.1.2. Absorption à deux photons avec deux faisceaux

Ce processus, représenté sur la figure 1.2, implique l'absorption simultanée de deux photons de fréquences différentes. Celles-ci sont désignées par la fréquence pompe ou d'excitation ω_e et la fréquence de sonde ω_p . L'intensité de chacun de ces faisceaux peut être comparable, mais le plus souvent $I_p \ll I_e$.

Les coefficients d'absorption à deux photons impliqués dans ce processus sont à nouveau liés à la susceptibilité de troisième ordre via l'expression suivante [1] :

$$\beta_{ep} = \frac{3\pi}{\varepsilon_0 n_e n_p c \sqrt{\lambda_e \lambda_p}} \text{Im} \left(\chi_{ep}^{(3)} \right) \quad (1.16)$$

Où :

$$\chi_{ep}^{(3)} = \chi_{iijj}^{(3)}(-\omega_e; \omega_e, \omega_p, -\omega_p) = \chi_{jjii}^{(3)}(-\omega_p; \omega_p, \omega_e, -\omega_e) \quad (1.17)$$

Cette relation de symétrie signifie qu'un seul coefficient d'absorption non linéaire relie l'absorption des photons des deux faisceaux. Le fait que les champs d'excitation et de sonde puissent avoir une polarisation orthogonale implique que ce processus non linéaire peut conduire à un dichroïsme induit dans le matériau.

Les équations différentielles décrivant l'atténuation des faisceaux et leur propagation dans le matériau non linéaire homogène et isotrope sont [1] :

$$\frac{dI_e}{dz} = -\alpha_{0e}I_e - 2\left(\frac{\omega_e}{\omega_p}\right)^{\frac{1}{2}}\beta_{ep}I_eI_p - \beta_{ee}I_e^2 \quad (1.18 - 1)$$

$$\frac{dI_p}{dz} = -\alpha_{0p}I_e - 2\left(\frac{\omega_p}{\omega_e}\right)^{\frac{1}{2}}\beta_{ep}I_pI_e - \beta_{pp}I_p^2 \quad (1.18 - 2)$$

Où I_e et I_p sont les intensités optiques des faisceaux sonde et pompe, respectivement.

Les premiers et derniers termes de ces équations décrivent respectivement l'absorption linéaire (α_{0e}, α_{0p}) et l'absorption auto-induite (avec un seul faisceau) à deux photons ($\alpha_{ee}^{(2)}, \alpha_{pp}^{(2)}$), tandis que les termes du milieu sont ce qui donne lieu au dichroïsme induit.

1.3.3. Absorption à trois photons

Le phénomène d'absorption résonante à trois photons (3PA) est illustré à la figure 1.3, où trois cas sont présentés, impliquant un, deux et trois faisceaux.

Dans le cas de la présence d'un seul faisceau incident et en supposant que les impuretés introduisent une certaine absorption linéaire de fond, l'équation décrivant la propagation et l'atténuation du faisceau à l'intérieur du matériau non linéaire, homogène et isotrope est donnée par [1] :

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha_0I - \beta^{(3)}I^3 \quad (1.19)$$

Où $\beta^{(3)}$ est le coefficient d'absorption à trois photons. L'absorption à trois photons est un processus non linéaire d'ordre 5, le coefficient $\beta^{(3)}$ est lié à la susceptibilité d'ordre 5 via l'expression suivante [1] :

$$\beta^{(3)} = \frac{5\pi}{\varepsilon_0 n^3 c^2 \lambda} \text{Im} \left[\chi_{xxxxxx}^{(5)}(-\omega; \omega, \omega, \omega, -\omega, -\omega) \right] \quad (1.20)$$

Qui est valable pour un faisceau polarisé linéairement et pour un milieu centrosymétrique.

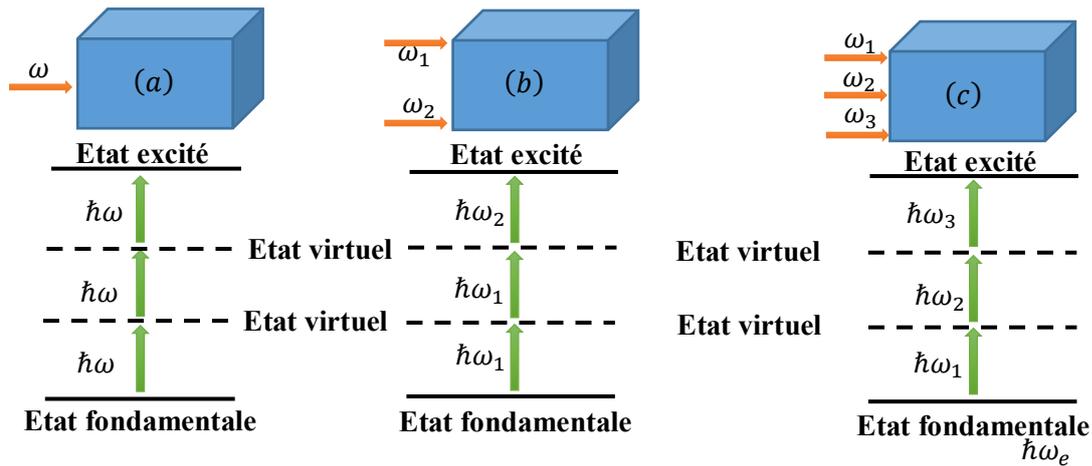


Figure 1.3 : Schéma de l'absorption à trois photons avec : (a) un seul faisceau ; (b) deux faisceaux ; (c) trois faisceaux.

Les résultats obtenus précédemment peuvent être étendus à un nombre arbitraire de photons absorbés. L'absorption multiphotonique fait référence à l'absorption simultanée de n photons provenant d'un seul faisceau ou de plusieurs faisceaux. D'une manière analogue aux relations (1.13) et (1.19), l'équation de propagation et d'atténuation du faisceau dans le cas de l'absorption à n photons se présente sous la forme :

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha_0 I - \beta_n I^n \quad (1.21)$$

Où β_n est le coefficient d'absorption non linéaire d'ordre n . Notons qu'il est possible que plusieurs processus d'absorption non linéaires coexistent au même temps [19,20]. Le cas général sera exposé dans le chapitre 2.

1.4. Techniques expérimentales pour l'absorption non linéaire

Il existe plusieurs méthodes expérimentales pour déterminer des coefficients d'absorption non linéaire à deux photons. Pendant longtemps, deux classes de méthodes ont été employées [1] :

- les méthodes qui tirent parti de la fluorescence induite lors du processus de désexcitation du milieu.
- Les méthodes par transmission : telles que les technique du mélange à trois ondes, mélange dégénéré à quatre ondes et Z-scan ;

Plus récemment on a vu apparaître une troisième classe de méthodes qui traitent plutôt de la chaleur ou des vibrations induites dans le milieu lors du processus de désexcitation : ce sont respectivement les méthodes thermo-optiques et photo-acoustique [21]. Dans cette partie, nous mettrons davantage l'accent sur la technique Z-scan. Notons qu'à chaque technique est associée

une théorie propre qui permet, par ajustement des courbes expérimentales, de déterminer le coefficient d'absorption non linéaire à deux photons.

1.4.1. Méthode utilisant la fluorescence induite par l'absorption à deux photons

Lors du processus de l'absorption à deux photons, le matériau se trouvant dans un état excité pourra se désexciter en émettant un seul photon d'énergie deux fois supérieur à celle des photons excitateurs. La probabilité de transition de ces états est très faible en comparaison à l'absorption d'un photon unique, d'où la nécessité de disposer d'une forte puissance laser pour obtenir une très grande concentration volumique de photons.

Dans ce cas, un matériau irradié avec une onde lumineuse de longueur d'onde λ pourrait présenter une absorption à deux photons qui le feront passer dans un état excité. Cet état n'est pas stable et il a une durée de vie limitée. Le matériau aura tendance à revenir à son état initial en émettant de la lumière à une longueur d'onde λ_f différente de la longueur d'onde d'excitation λ . C'est ce qu'on appelle la fluorescence induite par l'absorption à deux photons. Le schéma de la figure 1.4 présente d'une manière simple le principe de la fluorescence induite par l'absorption à deux photons.

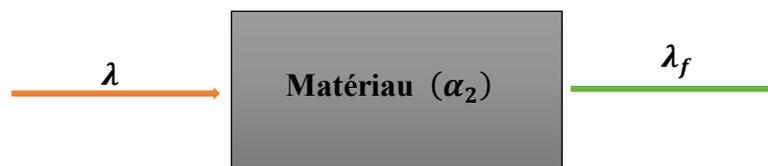


Figure 1.4 : Principe de la fluorescence induite par l'absorption à deux photons

Cette technique offre une meilleure sensibilité que les méthodes par transmission. Elle convient en particulier à l'étude des matériaux fluorescents. Cette technique est donc plus sélective et plus adaptée à l'étude de ce genre de matériaux. En revanche, pour les matériaux non fluorescents ou légèrement fluorescents, cette technique n'est pas efficace.

1.4.2. Méthodes par transmission

1.4.2.1. Principe

Les méthodes par transmission consistent en la mesure de l'intensité de la lumière transmise par l'échantillon en fonction de l'intensité d'entrée. Ces méthodes sont très utilisées dans la pratique pour étudier l'absorption à deux photons [1]. Le principe de la mesure consiste à irradier un matériau non linéaire avec un faisceau laser. Les effets non linéaires induits dans le matériau,

sous l'effet de la forte intensité du laser, vont provoquer des variations au niveau de l'intensité transmise. Une mesure de cette intensité à l'aide d'un détecteur permettra de caractériser ces effets non linéaires, et ainsi mesurer les paramètres caractéristiques du matériau non linéaire. Le schéma de la figure 1.5 explique d'une façon simplifiée le principe de cette mesure.

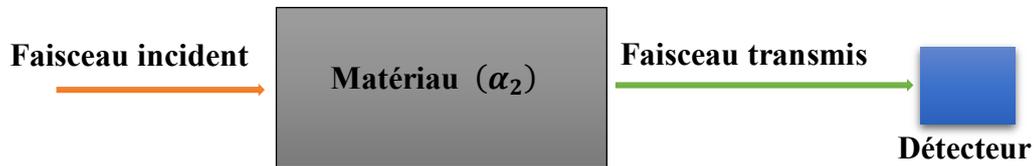


Figure 1.5 : Schéma descriptif de la méthode de transmission à un faisceau

Pour observer l'absorption à deux photons avec ces méthodes, une intensité laser de quelques centaines de MW/cm^2 au moins est nécessaire dans de nombreux matériaux. À une telle intensité, de nombreux types de phénomènes non linéaires, tels que la diffusion stimulée (diffusion Rayleigh et Raman), l'absorption des états excités ou l'auto modulation de phase, peuvent concurrencer fortement avec l'absorption à deux photons. Dans de nombreux cas, il est très difficile d'interpréter les données correctement. Par conséquent, la prudence s'impose lors de l'utilisation des méthodes par transmission.

Deux situations sont envisagées. Dans les deux cas, la longueur de l'échantillon est supposée petite par rapport à la longueur de Rayleigh du faisceau gaussien. Dans la première situation, l'échantillon est fixe et on fait varier l'intensité. Dans la deuxième situation, la puissance ou l'énergie du faisceau est maintenue constante et l'échantillon est translaté le long du faisceau, pour faire varier l'intensité incidente sur l'échantillon.

1.4.2.2. Transmission non linéaire

La figure 1.6 montre le montage expérimental utilisé dans le cas de la méthode par transmission non linéaire (TNL) [1]. Dans cette technique, Un laser puissant est utilisé pour irradier le matériau étudié qui est fixé au voisinage du point focal de la lentille de focalisation L_f ou du waist du faisceau incident. On fait ensuite varier l'énergie du faisceau laser d'excitation à l'aide d'un filtre d'intensité composé d'un cube polariseur (CP) et d'une lame demi-onde ($\lambda/2$). La variation de l'énergie est obtenue en faisant tourner simplement la lame demi onde. La transmittance normalisée T de l'échantillon est mesurée en fonction de la variation de l'énergie E du faisceau incident $T = f(E)$.

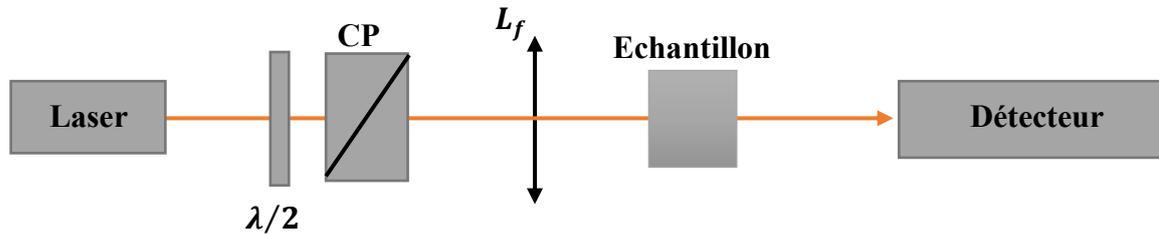


Figure 1.6 : Principe de mesure de la transmission non linéaire

Dans le cas d'absence d'effet non linéaire, la courbe $T = f(E)$ est une droite horizontale qui représente la courbe de la transmittance linéaire de l'échantillon. En présence de l'absorption non linéaire, on constate une diminution de la transmittance en fonction de l'augmentation de l'énergie du faisceau d'excitation. La figure 1.7 montre les courbes de transmittance obtenues dans ces deux cas.

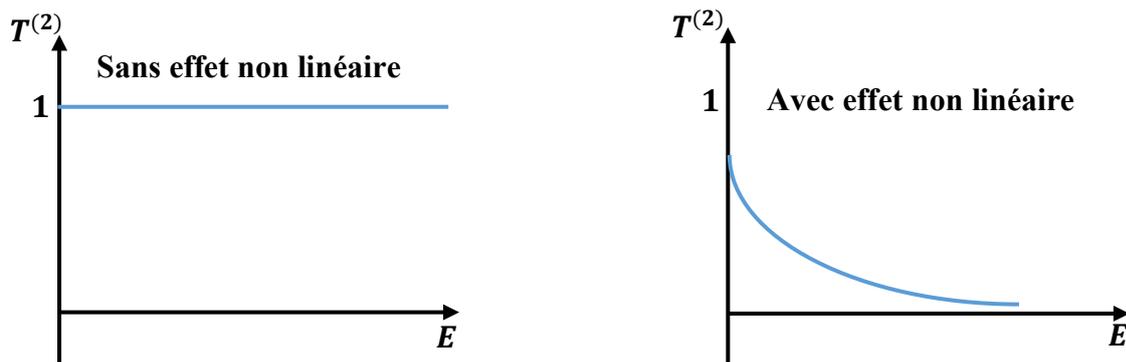


Figure 1.7 : Courbes de transmittance en fonction de l'énergie incidente

1.4.2.3. Technique Z-scan

1.4.2.3.1 Principe

La technique Z-scan est une méthode fiable qui permet de déterminer la valeur et le signe de l'indice de réfraction non linéaire n_2 d'un milieu ainsi que le coefficient d'absorption non linéaire β de ce milieu. Cette méthode est une technique à un seul faisceau développée par Sheik-Bahae et ses collaborateurs en 1990 [22, 23, 24]. Elle est basée sur le phénomène de distorsion d'un faisceau laser lors de sa propagation dans le matériau non linéaire. Le principe de base de la méthode de Z-scan est illustré sur la figure 1.8. Il consiste à faire déplacer longitudinalement un échantillon à faces parallèles le long de l'axe optique d'un faisceau focalisé à l'aide d'une lentille convergente. Ce balayage va induire un changement de l'intensité du faisceau incident dépendant de la position, et donc une variation de l'indice de réfraction de

l'échantillon. Cette variation de l'indice induira une focalisation (ou une défocalisation) du faisceau dépendante de la position de l'échantillon. Une lame séparatrice prélève une partie du faisceau incident sur un premier détecteur (Détecteur1), pour synchroniser l'acquisition et contrôler les fluctuations énergétiques du laser d'un tir à l'autre. Les effets non linéaires observés dépendent du profil spatial du faisceau laser et de son intensité, et par conséquent de la position de l'échantillon par rapport au foyer de la lentille ou le waist du faisceau.

Un diaphragme (ouverture), placé en champ lointain devant un deuxième détecteur (détecteur 2), permet de quantifier la variation de l'énergie du faisceau en fonction de la position de l'échantillon. Le signal utile (trace Z-scan) s'obtient en mesurant l'énergie captée par le deuxième détecteur, 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 linéaires, 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.

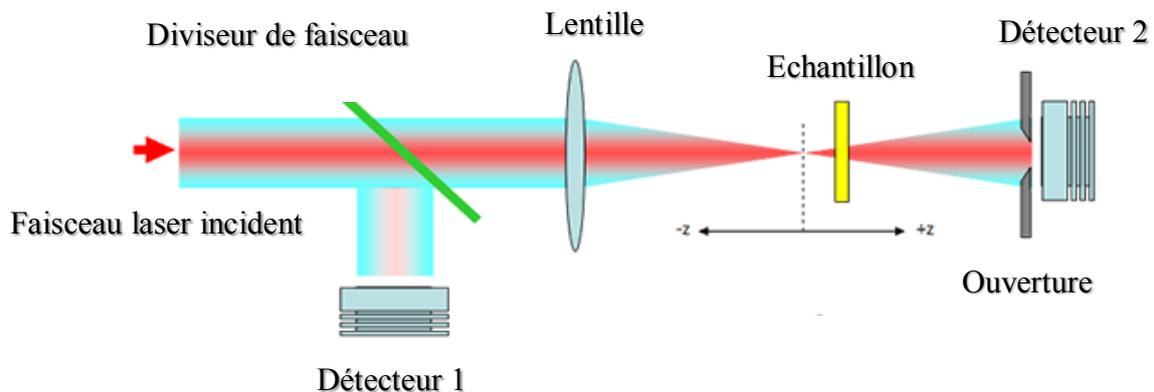


Figure 1.8 : Schéma du montage expérimental de la technique Z-scan

Pour expliquer plus précisément le principe de cette technique, prenons l'exemple d'un milieu non linéaire ayant un indice de réfraction non linéaire négatif ($n_2 < 0$, auto-défocalisation) et qui est déplacé de part et d'autre du plan focal de la lentille en allant des z négatifs vers les z positifs. Loin du plan focal en dans le côté des z négatifs, l'intensité du faisceau est faible et par conséquent, la transmittance du milieu non linéaire mesurée reste inchangée, en d'autres termes, elle est indépendante de z . Au fur et à mesure de son déplacement vers le plan focal, le milieu non linéaire va focaliser le faisceau dans l'ouverture du diaphragme. La transmittance détectée va augmenter jusqu'à atteindre un maximum (pic). Ensuite, le faisceau va voir sa divergence augmenter suite à l'effet de défocalisation induit par le milieu non linéaire, ce qui se traduit par

une diminution de la transmittance détectée. En traversant le plan focal et passer vers z positifs, l'intensité du faisceau va diminuer ainsi que la transmittance jusqu'à atteindre un minimum (vallée). Loin du plan focal, la transmittance redevienne de nouveau indépendante de z . Dans le cas d'un milieu ayant un indice de réfraction non linéaire positif ($n_2 > 0$, auto-focalisation), on obtient le cas contraire, c'est-à-dire, un minimum (vallée) suivi d'un maximum (pic). En résumé, 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 1.9.

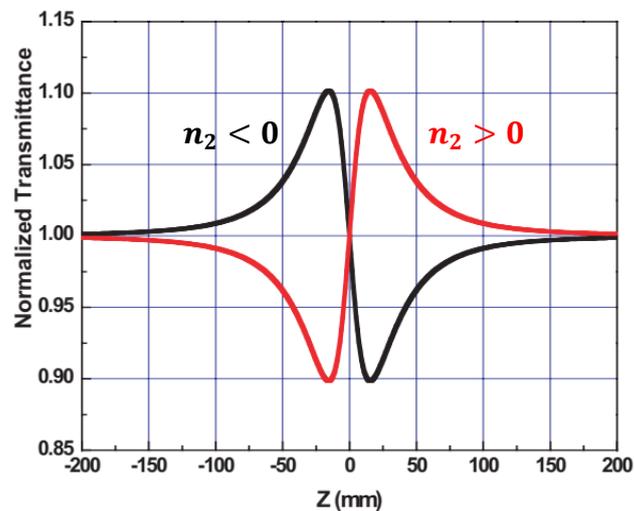


Figure 1.9 : Allure des courbes de transmission normalisée dans le cas d'une variation d'indice positive ou négative dans l'échantillon.

La technique Z-scan permet aussi de déterminer le coefficient d'absorption non linéaire, en mesurant la transmission normalisée en fonction de z sans diaphragme. Deux cas aussi peuvent se présenter, une absorption saturable inversés (valley), lorsque l'échantillon transmet moins au point focal et une absorption saturable (pic), lorsque le matériau transmet plus au point focal. La figure 1.10 montre la première situation...

Donc, il existe deux configurations pour la Technique Z-scan. Une configuration avec diaphragme, dite configuration Z-scan fermée (Closed Z-scan en anglais), et une configuration sans diaphragme, dite configuration Z-scan ouverte (Open Z-scan en anglais).

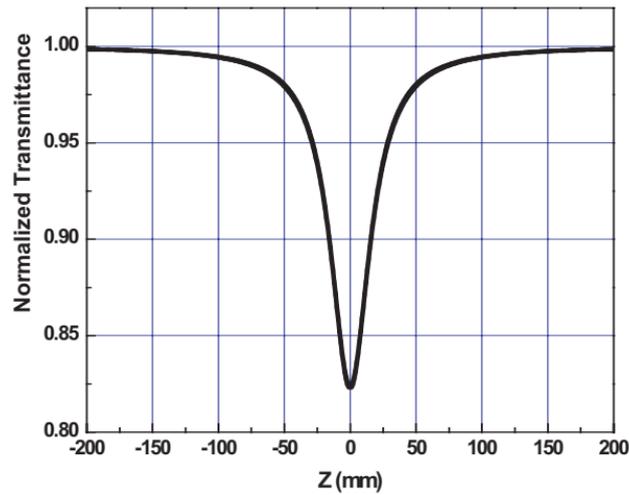


Figure 1.10 : Allure de la courbe de transmission en configuration Z-scan

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 [25] que la présence de l'absorption non linéaire tend à diminuer la valeur de la transmittance au niveau des pics et vallées, comme l'illustre la figure 1.11.

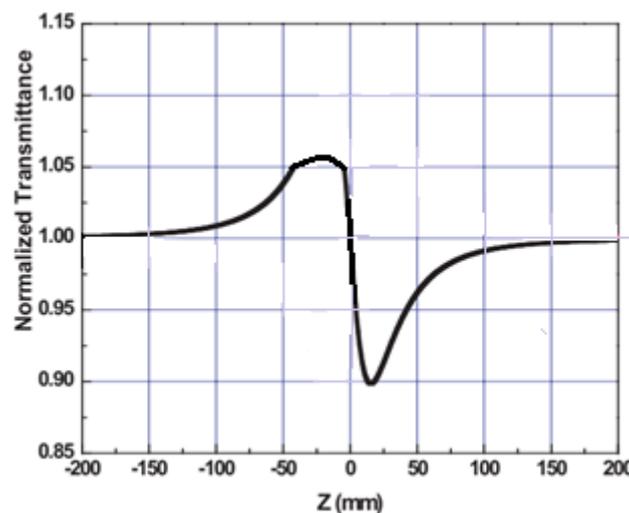


Figure 1.11 : Allure de la courbe de transmission en configuration z-scan intermédiaire.

1.4.2.3.2 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 et d'absorption non linéaire, 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 des coefficients d'absorption et de réfraction non linéaires.

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 [22, 23, 24].

Dans ce modèle, on considère un faisceau gaussien de profil spatial circulaire incident sur un matériau non linéaire mince. L'amplitude complexe du champ électrique associé à ce type de faisceau gaussien est donnée par la relation suivante [26] :

$$E(r, z, t) = E_0(t) \frac{w_0}{W(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{W^2(z)} - \frac{ikr^2}{2R(z)}\right) \exp(-i\phi(z, t)) \quad (1.22)$$

Avec :

$$W^2(z) = W_0^2 \left(1 + \frac{z^2}{z_R^2}\right) \quad (1.22 - 1)$$

$$R(z) = z \left(1 + \frac{z_R^2}{z^2}\right) \quad (1.22 - 2)$$

$$z_R = \frac{kW_0^2}{2} \quad (1.22 - 3)$$

$$k = \frac{2\pi}{\lambda} \quad (1.22 - 4)$$

Où $W(z)$ désigne le rayon du faisceau à la position z et W_0 le plus petit rayon du faisceau au point focal de la lentille (le waist). La quantité $R(z)$ est le rayon de courbure du front d'onde à la position z , et $E_0(t)$ représente le champ électrique du faisceau gaussien au foyer et contient l'enveloppe temporelle $h(t)$ de l'impulsion laser. Le terme $\exp(-i\phi(z, t))$ comprend toutes les variations radiales uniformes de phase. Ces différentes caractéristiques des faisceaux gaussiens sont représentées sur la figure 1.12 et seront détaillées dans le chapitre 2.

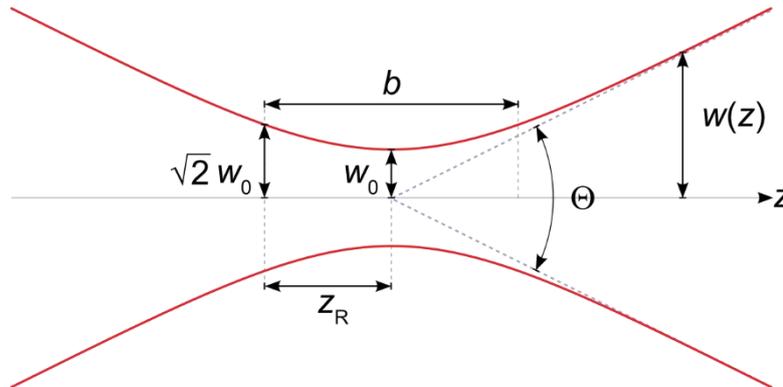


Figure 1.12 : Illustration des paramètres d'un faisceau gaussien circulaire

La propagation du faisceau dans le milieu non linéaire est donnée, dans l'approximation des enveloppes lentement variables, par les relations suivantes [22-24] :

$$\frac{d(\Delta\phi)}{dz'} = -kn_2I \quad (1.23 - 1)$$

$$\frac{dI}{dz'} = -\alpha_0I - \beta I^2 \quad (1.23 - 2)$$

Où z' désigne la distance de propagation dans le matériau (à ne pas confondre avec la position de l'échantillon z) et la variation de phase (déphasage).

a. Configuration Z-scan fermée

Considérons un échantillon 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.

Dans ce cas, le déphasage $\Delta\phi$, provoqué par la variation d'indice de réfraction non linéaire, s'écrit sous la forme suivante :

$$\Delta\phi(r, z, t) = \Delta\phi_0(z, t) \exp\left(-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right) \quad (1.24)$$

Avec :

$$\Delta\phi_0(z, t) = \frac{\Delta\phi_0(t)}{1 + \frac{z^2}{z_R^2}} \quad (1.25)$$

Où $\Delta\phi_0(z, t)$ est 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 :

$$\Delta\phi_0(t) = kn_2I_0(t)L_{eff}^{(2)} \quad (1.26)$$

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 :

$$L_{eff}^{(2)} = \frac{1 - \exp(-\alpha_0 L)}{\alpha_0} \quad (1.27)$$

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 :

$$T^{(2)}(z, \Delta\phi_0) = 1 + \frac{4\Delta\phi_0(z/z_R)}{\left(1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2\right)\left(9 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2\right)} \quad (1.28)$$

La transmission du diaphragme placé devant le détecteur s'écrit, dans le cas d'un faisceau à profil gaussien comme suit :

$$S = 1 - e^{-\frac{r_a^2}{w_a^2}} \quad (1.29)$$

Où r_a et W_a représentent respectivement le rayon du diaphragme et la valeur du waist du faisceau au niveau du plan du diaphragme. A partir d'une étude numérique du signal de Z-scan, M. Sheik-Bahae et ses collaborateurs ont montré que la sensibilité de la technique Z-scan dans la configuration ouverte pour la mesure de l'indice de réfraction non-linéaire décroît en $(1 - S)^{0.25}$ si $S < 0,7$. Il faut signaler que le maximum de sensibilité est atteint lorsque $S \ll 1$, c'est à dire lorsque le diamètre du diaphragme est faible devant le diamètre du faisceau.

Dans toutes les mesures expérimentales de Z-scan, on travaille avec une sensibilité de 1% afin de se placer dans le cas $S \ll 1$, pour lequel le maximum de sensibilité est atteint.

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 il est donné par la relation suivante :

$$\Delta T_{p-v}^{(2)} = 0.406(1 - S)^{0.25} |\Delta \Phi_0| \quad (1.30)$$

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 :

$$\Delta T_{p-v}^{(2)} = 0.406 |\Delta \Phi_0| \quad (1.31)$$

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

$$\Delta z = 1.717 z_R \quad (1.32)$$

Ces deux dernières équations sont très utiles en pratique pour obtenir une estimation rapide de l'amplitude du non linéarité et le signe du fescceau.

Signalons que l'indice de réfraction non linéaire n_2 est donné par :

$$n_2(esu) = \frac{cn_0}{40\pi} \delta \quad (1.33)$$

Où n_0 est l'indice de réfraction linéaire et c la vitesse de la lumière. La grandeur δ est définie comme suit :

$$\delta = \frac{\Delta \Phi_0 \lambda}{2\pi I_0 L_{eff}} \quad (1.34)$$

b. Configuration Z-scan intermédiaire

On montre dans ce cas que le déphasage $\Delta\phi$, provoqué par la variation d'indice de réfraction non linéaire, et l'intensité transmise, atténuée par l'absorption non linéaire, sont données par les relations suivantes :

$$I_{out}(r, z, t) = \frac{I_{inc}(r, z, t) \exp(-\alpha_0 L)}{1 + q(r, z, t)} \quad (1.35)$$

$$\Delta\phi(r, z, t) = \frac{kn_2}{\beta} \ln[1 + q(r, z, t)] \quad (1.36)$$

Où $q(r, z, t) = \beta I_{inc}(r, z, t) L_{eff}^{(2)}$ et $I_{inc}(r, z, t)$ l'intensité incidente sur l'échantillon. En combinant les équations (1.35) et (1.36), on obtient l'amplitude complexe du champ transmis par l'échantillon :

$$E_{out}(r, z, t) = E_{inc}(r, z, t) \exp\left(-\frac{\alpha_0 L}{2}\right) (1 + q(r, z, t))^{\left(\frac{ikn_2}{\beta} - \frac{1}{2}\right)} \quad (1.37)$$

En général, une transformée de Hankel d'ordre zéro [27] de (1.26) donnera la distribution de champ à l'ouverture. Cette dernière peut être ensuite utilisée dans le calcul de la transmittance. Pour $|q| < 1$ et suite à un développement binomiale en puissances de q , l'équation (1.26) peut être réécrite comme une somme infinie de faisceaux gaussiens :

$$E_{out}(r, z, t) = E_{inc}(r, z, t) \exp\left(-\frac{\alpha_0 L}{2}\right) \sum_{m=0}^{\infty} \frac{q(r, z, t)^m}{m!} \left[\prod_{n=0}^m \left(\frac{ikn_2}{\beta} - \frac{1}{2} - n + 1\right) \right] \quad (1.38)$$

Où le profil spatial du faisceau gaussien est implicite dans les expressions de $q(r, z, t)$ et $E_{inc}(r, z, t)$. On détermine ensuite l'amplitude complexe du champ électrique au niveau du plan de l'ouverture, comme dans le cas de la réfraction non linéaire (configuration Z-scan fermée), mais en introduisant un nouveaux paramètre :

$$f_m = \frac{(i\Delta\phi_0(z, t))^m}{m!} \prod_{n=0}^m \left(1 + i(2n - 1) \frac{\beta}{2kn_2}\right) \quad (1.39)$$

Avec $f_0 = 1$. Notons que le facteur de couplage $(\beta/2kn_2)$ est le rapport des parties imaginaire et réelle de la susceptibilité non linéaire de troisième ordre $\chi^{(3)}$.

L'expression de la transmittance normalisée peut être calculée en suivant la même procédure que celle décrite dans le cas réfractif. Il ressort de l'expression (1.28) que les contributions de l'absorption et de la réfraction non linéaires dans la transmittance normalisée sont couplées.

c. Configuration Z-scan ouverte

Lorsque l'ouverture est supprimée ($S = 1$), la transmittance normalisée est insensible aux distorsions du faisceau et elle est uniquement en fonction de l'absorption non linéaire. Dans ce cas, la puissance transmise à travers l'échantillon est donnée par :

$$P(z, t) = P_{inc}(t) \exp(-\alpha_0 L) \frac{\ln[1+q_0(z,t)]}{q_0(z,t)} \quad (1.40)$$

Où :

$$q_0(z, t) = \frac{\beta I_0(t) L_{eff}^{(2)}}{1 + \frac{z^2}{z_R^2}} \quad (1.41)$$

Et $P_{inc}(t)$ est l'intensité incidente définie par :

$$P_{inc}(t) = \frac{1}{2} \pi W_0^2 I_0(t) \quad (1.42)$$

Pour une impulsion laser de profil temporel gaussien, l'expression de la transmittance normalisée s'écrit comme suit :

$$T^{(2)}(z) = \frac{1}{\sqrt{\pi} q_0(z,0)} \int_{-\infty}^{+\infty} \ln[1 + q_0(z,0) e^{-t^2}] dt \quad (1.43)$$

Pour $|q_0| < 1$, cette transmittance peut être exprimée sous une forme d'une somme, plus adaptée à une évaluation numérique, en utilisant un développement limité de la fonction logarithmique :

$$T^{(2)}(z) = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[-q_0(z,0)]^m}{(m+1)^{3/2}} \quad (1.44)$$

Ainsi, une fois qu'une expérience Z-scan en configuration ouverte est effectuée, le coefficient d'absorption non linéaire β peut être déduit sans ambiguïté en ajustant les traces Z-scan obtenues avec l'expression (1.44). Avec β connu, l'expérience Z-scan en configuration fermée ($S < 1$) peut être utilisée pour extraire l'inconnu restant, à savoir l'indice de réfraction non linéaire n_2 , en ajustant les traces Z-scan obtenues avec l'expression (1.28).

Chapitre 2

Modélisation de l'absorption non linéaire d'ordre deux en utilisant un faisceau gaussien

2.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous allons construire un modèle théorique pour l'absorption non linéaire à deux photons avec un faisceau gaussien incident de profil spatial elliptique. Dans un premier temps, nous allons introduire les faisceaux gaussiens elliptiques comme solution particulière de l'équation de Helmholtz paraxiale. Ceci nous permettra d'obtenir l'expression de l'enveloppe scalaire complexe du champ électrique associé à ce type de faisceau gaussien. Les différents paramètres de ce faisceau seront ensuite décrits. Il s'agit essentiellement des ceintures ou waists du faisceau, des enveloppes ou largeurs du faisceau, des longueurs de Rayleigh, des rayons de courbures du front d'onde et des angles de divergence du faisceau ou phases de Gouy. L'intensité et la puissance optiques du faisceau gaussien elliptique seront également définies. Dans un second temps, nous allons développer le modèle en question. 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 nonlinéarités. On terminera ce chapitre en introduisant la notion de section efficace d'absorption, en examinant le cas particulier mais néanmoins très utilisé dans la pratique et la théorie du faisceau gaussien circulaire.

2.2. Les faisceaux gaussiens

La lumière peut-elle être confinée dans l'espace et transportée dans l'espace libre sans propagation angulaire ? Bien que la nature ondulatoire de la lumière exclue la possibilité d'un tel transport idéalisé, la lumière peut, en fait, être confinée sous forme de faisceaux qui se rapprochent le plus possible d'ondes non divergentes et localisées dans l'espace. Les deux extrêmes du confinement angulaire et spatial sont l'onde plane et l'onde sphérique. Les rayons

Chapitre 2

de courbures du front d'onde d'une onde plane coïncident avec la direction de déplacement de l'onde, de sorte qu'il n'y a pas de propagation angulaire, mais l'énergie s'étend spatialement à tout l'espace. L'onde sphérique, en revanche, provient d'un seul point de l'espace, mais ses rayons de front d'onde divergent dans toutes les directions de l'espace.

Les ondes dont les rayons du front d'onde font de petits angles avec l'axe z sont appelées ondes paraxiales. Elles doivent satisfaire l'équation de Helmholtz paraxiale. Le faisceau gaussien est une solution particulière et importante de cette équation qui présente les caractéristiques suivantes :

- La puissance du faisceau est principalement concentrée dans un petit cylindre qui entoure l'axe du faisceau (axe z).
- La distribution de l'intensité dans tout plan transversal est une fonction gaussienne. La largeur de cette fonction est minimale au niveau de la ceinture du faisceau (waist), et devient progressivement plus grande à mesure que la distance à la ceinture du faisceau augmente dans les deux directions (x et y).
- Les fronts d'onde sont approximativement plans à proximité de la ceinture du faisceau, puis s'incurvent progressivement au fur et à mesure que la distance à cette ceinture augmente, et deviennent finalement approximativement sphériques loin de la ceinture du faisceau.
- La divergence angulaire des rayons du front d'onde prend la valeur minimale permise par l'équation d'onde pour une largeur de faisceau donnée.

Historiquement, la notion de faisceaux gaussiens est liée à l'optique, en particulier au domaine des lasers où ils permettent de formuler avec une bonne approximation la propagation des faisceaux et leurs interactions avec les matériaux et les systèmes optiques.

Un faisceau gaussien est une solution particulière dans le cadre de l'approximation paraxiale de l'équation de propagation, dite équation de Helmholtz, donnée par l'expression suivante [28] :

$$\Delta E + k^2 E = 0 \quad (2.1)$$

Soit z la direction de propagation du faisceau. Il est pratique d'extraire de l'expression de l'amplitude complexe du champ électrique E le facteur de propagation dans la direction z :

$$E(x, y, z) = u(x, y, z) \exp(-jkz) \quad (2.2)$$

Chapitre 2

Où $u(x, y, z)$ est l'enveloppe scalaire complexe qui décrit l'évolution spatiale du faisceau. L'approximation paraxiale suppose une faible divergence du faisceau par rapport à son axe de propagation [28] :

$$\left| \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right| \ll \left| 2k \frac{\partial u}{\partial z} \right| \text{ ou } \left| \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \right| \text{ ou } \left| \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \right| \quad (2.3)$$

Sous ces hypothèses, l'équation de propagation ou l'équation de Helmholtz paraxiale, devient [28] :

$$\left| \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \right| + \left| \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \right| - 2jk \frac{\partial u}{\partial z} = 0 \quad (2.4)$$

La résolution de l'équation (2.4), permettant de construire une onde de profil quelconque, conduit à une famille de solutions à base de polynômes d'Hermite en coordonnées cartésiennes ou de Gauss-Laguerre en coordonnées cylindriques, formant une base orthogonale complète. Au premier ordre (mode fondamental), on a [29,30] :

$$u(x, y, z, t) = \left(\frac{W_{0x} W_{0y}}{W_x(z) W_y(z)} \right)^{\frac{1}{2}} \exp \left(-\frac{x^2}{W_x^2(z)} - \frac{y^2}{W_y^2(z)} \right) \exp \left(-\frac{ikx^2}{2R_x(z)} - \frac{iky^2}{2R_y(z)} \right) \exp[-j\theta(z)] \quad (2.5)$$

Les distances $W_x(z)$ et $W_y(z)$ correspondent aux positions de l'enveloppe du faisceau dans les plans (XOZ) et (YOZ) pour lesquelles l'amplitude du champ est divisée par e par rapport à sa valeur sur l'axe. Les paramètres $W_x(z)$ et $W_y(z)$ sont appelés les enveloppes ou largeurs du faisceau et valent :

$$W_x = W_{0x} \left[1 + \left(\frac{z - z_{0x}}{z_{R_x}} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (2.6 - 1)$$

$$W_y = W_{0y} \left[1 + \left(\frac{z - z_{0y}}{z_{R_y}} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (2.6 - 2)$$

Les grandeurs z_{R_x} et z_{R_y} sont les distances pour lesquelles

$$W_x(z) = \sqrt{2}W_{0x} \text{ Et } W_y(z) = \sqrt{2}W_{0y}.$$

Chapitre 2

Les paramètres z_{Rx} et z_{Ry} sont appelés facteurs d'échelle, distances ou portées de Rayleigh et valent :

$$z_{Rx} = \frac{kW_{0x}^2}{2} \quad (2.7 - 1)$$

$$z_{Ry} = \frac{kW_{0y}^2}{2} \quad (2.7 - 2)$$

Pour $z = z_{0x}$ et $z = z_{0y}$, les largeurs du faisceau prennent pour valeurs respectivement W_{0x} et W_{0y} . Les paramètres W_{0x} et W_{0y} , représentant les rayons minima du faisceau selon x et y , sont appelés les waists ou ceintures du faisceau.

Les termes $R_x(z)$ et $R_y(z)$ représentent les rayons de courbure du front d'onde sur l'axe z et valent :

$$R_x(z) = (z - z_{0x}) \left[1 + \left(\frac{z_{Rx}}{z - z_{0x}} \right)^2 \right] \quad (2.8 - 1)$$

$$R_y(z) = (z - z_{0y}) \left[1 + \left(\frac{z_{Ry}}{z - z_{0y}} \right)^2 \right] \quad (2.8 - 2)$$

Au niveau de la ceinture, le front équiphase est plan. Ailleurs, le front d'onde est quadratique et en particulier sphérique à l'infini au niveau de l'axe z .

Le long de la direction de propagation z , le terme :

$$\theta(z) = \theta_x(z) + \theta_y(z) = \frac{1}{2} \tan^{-1} \left(\frac{z - z_{0x}}{z_{Rx}} \right) + \frac{1}{2} \tan^{-1} \left(\frac{z - z_{0y}}{z_{Ry}} \right) \quad (2.9)$$

Fait acquérir au faisceau un décalage de phase par rapport à celle d'une onde plane de même fréquence. Cette différence de phase est appelée décalage ou phase de Gouy [31]. Il en résulte un décalage dans la position des fronts d'onde, le front d'onde d'un faisceau gaussien se propageant plus rapidement que celui d'une onde plane (sa vitesse de phase est plus grande).

Nous avons représenté sur la figure 2.1, l'ensemble de ces paramètres pour une coupe dans le plan (XOZ) d'un faisceau gaussien.

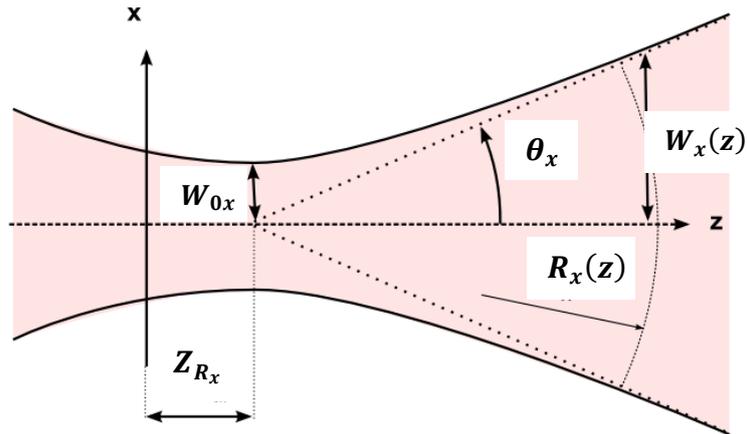


Figure 2.1 : Illustration des paramètres d'un faisceau gaussien classique dans le plan (XOZ)

Lorsque les couples de paramètres (W_{0x}, W_{0y}) et (z_{0x}, z_{0y}) sont égaux, le faisceau possède une symétrie de révolution autour de l'axe de propagation Oz et il est dit circulaire (voir figure 2.2). Le front d'onde d'un tel faisceau est plan au niveau de son waist et devient sphérique à l'infini.

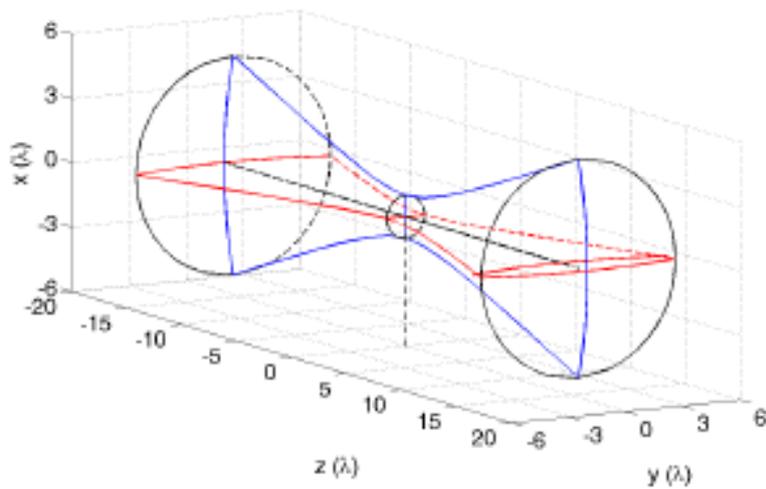


Figure 2.2 : Faisceau gaussien

Lorsque seuls les paramètres z_{0x}, z_{0y} sont égaux, l'enveloppe du champ dans le plan de la ceinture est une ellipse dont les demi-grands axes sont W_{0x}, W_{0y} . Le faisceau est alors dit elliptique (voir figure 2.3). Au niveau de sa ceinture et à l'infini, les fronts d'onde conservent les mêmes propriétés que celles du faisceau gaussien circulaire, c'est-à-dire que son front d'onde est plan au niveau de la ceinture et devient sphérique à l'infini.

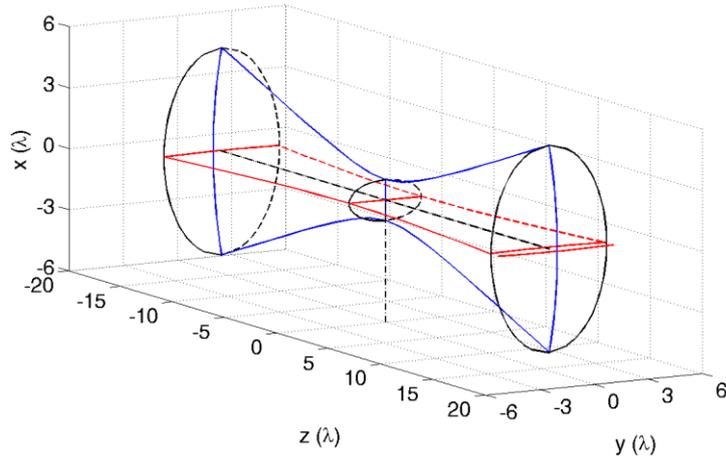


Figure 2.3 : Faisceau gaussien elliptique

Enfin, lorsque les distances z_{0x} , z_{0y} sont différentes, le faisceau est dit astigmatique (voir figure 2.4). Au niveau de chaque waist, les fronts d'onde sont cylindriques et sphériques à l'infini.

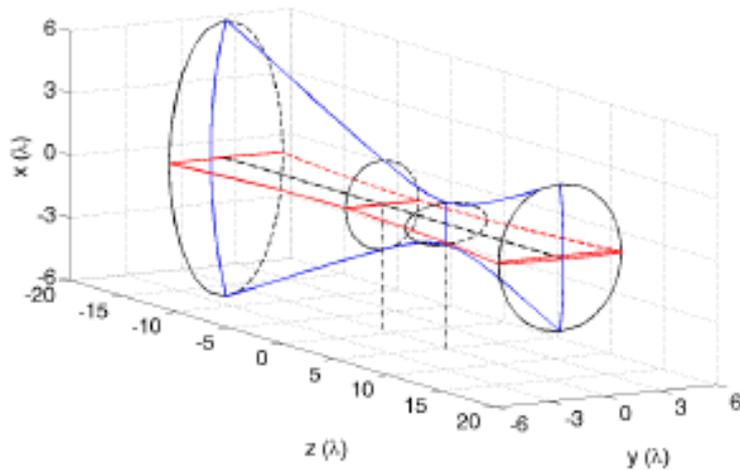


Figure 2.4 : Faisceau gaussien astigmatique

L'expérience a montré que la technique Z-scan est très sensible à la forme du faisceau gaussien incident. En effet, cette technique est basée justement sur la distorsion ou la déformation du faisceau gaussien. Par conséquent, toute altération de la forme du faisceau gaussien incident, dues à l'astigmatisme engendré par des désalignements ou des instabilités de la source laser, peut compromettre les résultats, et il sera difficile dans ce cas de distinguer la contribution de chaque distorsion. Pour tenir compte de ce fait, nous avons utilisé des faisceaux gaussiens incidents astigmatique et en particulier elliptique pour modéliser l'absorption non linéaire à deux photons.

Chapitre 2

L'amplitude scalaire complexe du champ électrique associé à ce faisceau, qui décrit son évolution spatiale, au premier ordre (mode fondamentale TM_{00}) est donnée par la relation suivante [29,30] :

$$E(x, y, z, t) = E_0(t) \left(\frac{W_{0x}W_{0y}}{W_x(z)W_y(z)} \right)^{\frac{1}{2}} \exp \left(-\frac{x^2}{W_x^2(z)} - \frac{y^2}{W_y^2(z)} \right) \exp \left(-\frac{ikx^2}{2R_x(z)} - \frac{iky^2}{2R_y(z)} \right) \exp[-jkz + j\theta(z)] \quad (2.10)$$

Où $E_0(t)$ est l'amplitude du champ électrique au niveau du waist et contient l'enveloppe temporelle $h(t)$ de l'impulsion et k est le nombre d'onde.

L'intensité optique correspondante à ce faisceau est donnée [1] :

$$I(x, y, z) = |E(x, y, z, t)|^2 = I_0(t) \left(\frac{W_{0x}W_{0y}}{W_x(z)W_y(z)} \right) \exp \left(-\frac{2x^2}{W_x^2(z)} - \frac{2y^2}{W_y^2(z)} \right) \quad (2.11)$$

Où $I_0(t) = |E_0(t)|^2 = I_0h(t)$. Sur l'axe du faisceau ($x = y = 0$), cette intensité se réduit à :

$$I(0, z) = I_0h(t) \left(\frac{W_{0x}W_{0y}}{W_x(z)W_y(z)} \right) = \frac{I_0h(t)}{\left[1 + \left(\frac{z-z_{0x}}{z_{Rx}} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \left[1 + \left(\frac{z-z_{0y}}{z_{Ry}} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}} \quad (2.12)$$

Globalement, le centre du faisceau ($x = y = z = 0$) est l'endroit où l'intensité est la plus forte :

$$I_0 = I(0,0,0) \quad (2.13)$$

La puissance optique totale transportée par le faisceau est l'intégrale de l'intensité optique sur sa section transversale (à une position z fixe). En coordonnées cartésiennes, elle se présente sous la forme [1] :

$$P = \iint_{(S)} I(x, y, z) dx dy \quad (2.14)$$

Dans le plan transverse XY ($z = 0$) et après un passage vers les coordonnées polaires généralisées, l'expression de la puissance s'écrit :

$$P(t) = \frac{\pi}{2} I_0 h(t) W_{0x} W_{0y} \quad (2.15)$$

2.3. Hypothèse de base et équation de propagation

L'échantillon est considéré comme mince, ce qui signifie que son épaisseur est plus petite que les longueurs de Rayleigh $z_{R_{x,y}}$. Dans ce cas, les changements des dimensions du faisceau lors de sa propagation à l'intérieur de l'échantillon, dues à la diffraction ou la réfraction non linéaires, peuvent être négligés et les équations décrivant cette propagation prennent les formes

$$[30,32] : \quad \frac{d\Delta\varphi}{dz'} = -\Delta n(I)k \quad (2.16 - 1)$$

$$\frac{dI}{dz'} = -\beta(I)I \quad (2.16 - 2)$$

Où z' est la distance de propagation à l'intérieur de l'échantillon, $\Delta\varphi(x, y, z', t)$ est le déphasage induit dans l'échantillon par la variation de l'indice non linéaire $\Delta n(I)$ et $I(x, y, z', t)$ l'intensité du faisceau à l'intérieur du matériau. La variation de l'indice non linéaire $\Delta n(I)$ est donnée par la relation suivante [30,32] :

$$\Delta n(I) = n_0 I + n_2 I^2 + n_3 I^3 + \dots + n_n I^n + \dots + n_N I^N \quad (2.17)$$

Où n_n est l'indice de réfraction non linéaire d'ordre n et N l'ordre de nonlinéarité le plus élevé. La grandeur $\alpha(I)$ est le coefficient d'absorption total, donné par l'équation [30,32] :

$$\alpha(I) = \alpha_0 + \beta_2 I + \beta_3 I^2 + \dots + \beta_n I^{n-1} + \dots + \beta_N I^{N-1} \quad (2.18)$$

Où α_0 est le coefficient d'absorption linéaire, β_n le coefficient d'absorption non linéaire d'ordre n ou coefficient d'absorption à n photons et N l'ordre de nonlinéarité le plus élevé.

Dans le cadre de ce travail, on s'intéresse uniquement à l'absorption non linéaire. De plus, on ne considère qu'un seul processus d'absorption non linéaire d'ordre 2 (absorption à deux photons avec un seul faisceau) en présence de l'absorption linéaire. Dans ce cas, le système d'équations (2.16-1) et (2.16-2) se réduit à l'équation suivante :

$$\frac{dI}{dz'} = -\alpha_0 I - \beta I^2 \quad (2.19)$$

La figure 2.5 représente le processus d'absorption non linéaire dans un matériau mince d'épaisseur L ($L \ll z_{R_{x,y}}$), où z est la position de l'échantillon, $I_{inc}(z)$ est l'intensité incidente sur l'échantillon, donnée par l'équation (2.11), et $I_{out}(z)$ l'intensité transmise par l'échantillon.

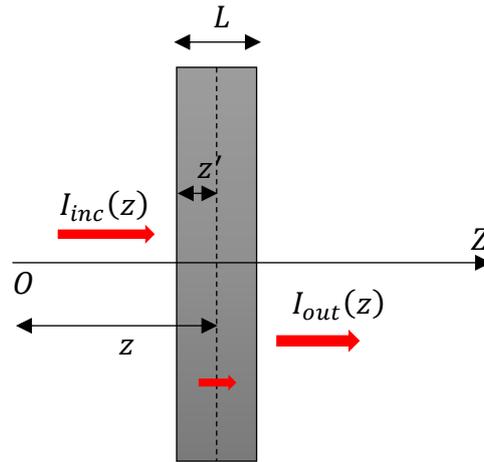


Figure 2.5 : Illustration du processus d'absorption non linéaire dans un matériau d'épaisseur L

La procédure générale et habituelle de l'étude d'un processus d'absorption non linéaire comporte trois étapes complémentaires :

- a. Détermination de l'intensité optique transmise.
- b. Détermination de la puissance optique transmise.
- c. Détermination de la transmittance optique normalisée.

2.4. Intensité optique transmise

L'équation de propagation (19) est une équation différentielle ordinaire non linéaire du premier ordre, dont le second membre est une fonction polynomiale de l'intensité. Ce type d'équations est connu en mathématiques sous le nom d'équation différentielle polynomiale. Les équations d'Abel et de Bernoulli sont des exemples d'équations différentielles polynomiales [33]. L'équation (2.19) est justement un cas particulier de l'équation différentielle de Bernoulli, dont la forme générale est :

$$a(x) \frac{dy}{dx} + b(x)y = c(x)y^m \quad (m \in \mathbb{R} - \{0,1\}) \quad (2.20)$$

Dans notre cas $y = I, x = z', a(x) = 1, b(x) = \alpha_0, c(x) = -\beta$ et $m = 2$. Pour résoudre l'équation (2.19), on effectue tout d'abord le changement de variable suivant :

$$p = \frac{1}{I} \Rightarrow I = \frac{1}{p} \Rightarrow \frac{dI}{dz'} = -\frac{1}{p^2} \frac{dp}{dz'} \quad (2.21)$$

L'équation (2.19) prend alors la forme suivante :

$$-\frac{1}{p^2} \frac{dp}{dz'} = -\alpha_0 \frac{1}{p} - \beta \frac{1}{p^2} \Rightarrow \frac{dp}{dz'} = \alpha_0 p + \beta \quad (2.22)$$

Chapitre 2

On obtient donc une équation différentielle du premier ordre, linéaire, à coefficients constants et inhomogène (avec second membre). La résolution de cette équation nous donne :

$$p(z') = A \exp(\alpha_0 z') - \frac{\beta}{\alpha_0} \quad (2.23)$$

Où A est une constante d'intégration. Le retour à la variable initiale, qui est l'intensité, donne :

$$I(z') = \frac{1}{p} = \frac{1}{A \exp(\alpha_0 z') - \frac{\beta}{\alpha_0}} \quad (2.24)$$

Pour déterminer la constante d'intégration A , on utilise la condition aux limites $I(z' = 0) = I_{inc}(z)$, qui exprime le fait que l'intensité à l'entrée de l'échantillon est égale à l'intensité incidente. Après calcul, on trouve :

$$A = \frac{\beta}{\alpha_0} + \frac{1}{I_{inc}(z)} \quad (2.25)$$

En injectant l'équation (2.25) dans l'équation (2.24), on obtient l'expression de l'intensité optique transmise, c'est-à-dire l'intensité sortante de l'échantillon ($z' = L$) :

$$I_{out}(x, y, z, t) = \frac{I_{inc}(x, y, z, t) \exp(-\alpha_0 L)}{1 + \beta L_{eff}^{(2)} I_{inc}(x, y, z, t)} \quad (2.26)$$

Où $L_{eff}^{(2)}$ est l'épaisseur effective d'ordre 2 de l'échantillon, corrigée par l'absorption linéaire, donnée par la relation (1.27).

Finalement, en remplaçant l'intensité incidente donnée par la relation (2.11), l'expression de l'intensité optique transmise prend la forme suivant :

$$I_{out}(x, y, z, t) = I_0 h(t) \left(\frac{W_{0x} W_{0y}}{W_x(z) W_y(z)} \right) \exp(-\alpha_0 L) \frac{\exp\left(-\frac{2x^2}{w_x^2(z)} - \frac{2y^2}{w_y^2(z)}\right)}{1 + C_2 \exp\left(-\frac{2x^2}{w_x^2(z)} - \frac{2y^2}{w_y^2(z)}\right)} \quad (2.27)$$

Où nous avons introduit la quantité C_2 définie par :

$$C_2 = \beta L_{eff}^{(2)} I_0 h(t) \frac{W_{0x} W_{0y}}{W_x(z) W_y(z)} \quad (2.28)$$

2.5. Puissance optique transmise

La puissance totale s'obtient en intégrant l'intensité optique transmise sur la section transverse du faisceau [1] :

$$P_T^{(2)}(z, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} I_{out}(x, y, z, t) dx dy \quad (2.29)$$

Pour calculer cette intégrale, effectuant tout d'abord le changement de variable suivant :

$$\begin{cases} x = \frac{r^2}{w_x(z)} \cos \theta \\ y = \frac{r^2}{w_y(z)} \sin \theta \end{cases} \quad (2.30 - 1)$$

$$(2.30 - 2)$$

Où (r, θ) sont les coordonnées polaires. L'élément de surface s'écrit alors :

$$dx dy = \frac{2r^2}{w_x(z)w_y(z)} dr d\theta \quad (2.31)$$

On obtient :

$$P_T^{(2)}(z, t) = 2I_0 h(t) \exp(-\alpha_0 L) \left(\frac{w_{0x} w_{0y}}{(w_x(z)w_y(z))^2} \right) \int_0^{2\pi} \int_0^{+\infty} \frac{\exp\left[-2\frac{r^4}{(w_x(z)w_y(z))^2}\right] r^3 dr d\theta}{1 + C_2 \exp\left[-2\frac{r^4}{(w_x(z)w_y(z))^2}\right]} \quad (2.32)$$

Après intégration sur la variable θ , on aboutit à :

$$P_T^{(2)}(z, t) = 4\pi I_0 h(t) \exp(-\alpha_0 L) \left(\frac{w_{0x} w_{0y}}{(w_x(z)w_y(z))^2} \right) \int_0^{+\infty} \frac{\exp\left[-2\frac{r^4}{(w_x(z)w_y(z))^2}\right] r^3 dr d\theta}{1 + C_2 \exp\left[-2\frac{r^4}{(w_x(z)w_y(z))^2}\right]} \quad (2.33)$$

Pour calculer l'intégrale figurant dans l'expression (2.33), effectuons le second changement de variable suivant :

$$w = \exp\left[-2\frac{r^4}{(w_x(z)w_y(z))^2}\right] \quad (2.34 - 1)$$

Soit :

$$dw = -\frac{8r^3}{(W_x(z)W_y(z))^2} \exp\left[-2\frac{r^4}{(W_x(z)W_y(z))^2}\right]$$

$$\Rightarrow r^3 \exp\left[-2\frac{r^4}{(W_x(z)W_y(z))^2}\right] dr = -\frac{(W_x(z)W_y(z))^2}{8} dw \quad (2.34 - 2)$$

Sachant que les bornes d'intégration se transforment comme suit :

$$\begin{cases} r \rightarrow 0 \Rightarrow w \rightarrow 1 \\ r \rightarrow +\infty \Rightarrow w \rightarrow 0 \end{cases} \quad (34.3)$$

On aboutit à l'expression suivante :

$$P_T^{(2)}(z, t) = \frac{\pi}{2} I_0 h(t) W_{0x} W_{0y} \exp(-\alpha_0 L) \int_0^1 \frac{dw}{1+C_2 w} \quad (2.35)$$

Le calcul de l'intégrale apparaissant dans cette expression ne présente aucune difficulté. Finalement, on obtient l'expression suivante pour la puissance optique transmise :

$$P_T^{(2)} = \frac{P_{inc}(t) \exp(-\alpha_0 L)}{C_2} \ln(1 + C_2) \quad (2.36)$$

Où $P_{inc}(t)$ est la puissance incidente donnée par l'équation (2.15).

2.6. Transmittance optique normalisée

La transmittance optique normalisée est définie comme le rapport entre l'énergie optique transmise et l'énergie optique incidente [1] :

$$T^{(2)}(z) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} P_T^{(2)}(z, t) dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} P_{in}(t) dt} \quad (2.37)$$

Où l'intégrale est estimée par rapport au temps pour une forme ou une expression de l'enveloppe temporelle $h(t)$ du pulse laser. En remplaçant la puissance optique transmise $P_T^{(2)}(z, t)$, la puissance incidente $P_{in}(t)$ et le paramètre C_2 par leurs expressions, données par les relations (2.37), (2.15) et (2.28), respectivement, l'expression de la transmittance optique normalisée se présente sous la forme suivante :

$$T^{(2)}(z) = \frac{\exp(-\alpha_0 L)}{q_0} \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \ln(1+q_0 h(t)) dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} h(t) dt} \quad (2.38)$$

Où nous avons introduit le paramètre q_0 défini comme suit :

$$q_0 = \frac{c_2}{h(t)} = \beta L_{eff}^{(2)} I_0 \left(\frac{W_{0x} W_{0y}}{W_x W_y} \right) \quad (2.39)$$

Connaissant le profil temporel $h(t)$ du pulse laser, il est possible en principe, de déterminer l'expression de la transmittance normalisée grâce à la relation (2.39). Cependant, cette dernière se présente sous forme d'une intégrale dont l'évaluation est rendue compliquée par la forme mathématique de $h(t)$ (gaussienne par exemple). Il est donc très difficile de trouver une expression analytique de la transmittance normalisée. De plus, même si on arrive à trouver cette expression, elle sera en général complexe et inadéquate pour une utilisation simple et rapide exigée par les expérimentateurs. En effet, cette expression sera utilisée pour l'ajustement des courbes expérimentales (traces Z-scan).

Pour remédier à ce problème, une première approche consiste à faire appel à une méthode numérique pour évaluer l'intégrale figurant dans l'expression de la transmittance. Cependant, les traitements numériques sont généralement lourds et fastidieux, et de plus ils nécessitent la présence de données expérimentales. Or, le but de notre travail est de réaliser des simulations à partir d'une expression établie au préalable de la transmittance optique normalisée. Une autre alternative est donc nécessaire.

La seconde approche consiste à trouver une expression approchée ou quasi-analytique de la transmittance normalisée en utilisant une approximation physiquement acceptable. C'est cette voie qu'on va explorer dans le prochain paragraphe.

2.7. Approximation des faibles non linéarités

Cette approximation stipule que l'intensité lumineuse nécessaire pour exciter un processus d'absorption non linéaire est directement proportionnelle à l'ordre de ce processus. En d'autres termes, l'intensité nécessaire pour exciter un processus d'absorption non linéaire augmente avec l'ordre de ce processus.

Le tableau 2.1 donne des valeurs typiques de l'intensité lumineuse, de la section efficace d'absorption et du coefficient d'absorption non linéaires pour des processus d'absorption non linéaires à 2, 3, 4 et 5 photons. On voit clairement que l'intensité lumineuse augmente d'une manière linéaire avec l'ordre du processus non linéaire. Par contre, la section efficace d'absorption et le coefficient d'absorption non linéaire diminue également d'une manière quasi-linéaire. La section efficace d'absorption est interprétée comme la surface « effective » d'interaction entre le matériau et le rayonnement électromagnétique incident. Par contre, le

Chapitre 2

coefficient d'absorption non linéaire dépend de la probabilité pour qu'un photon soit absorbé, or cette probabilité dépend du nombre d'entités absorbantes rencontrées (atomes ou molécules) et donc de la concentration [1].

En réalité, cette approximation est contenue implicitement dans l'équation (2.18). En effet, le développement limité du coefficient d'absorption totale en fonction de l'intensité indique clairement que chaque processus d'absorption non linéaire est une correction du processus précédent. Dans notre cas, le processus d'absorption non linéaire à deux photons est une faible perturbation par rapport à l'absorption linéaire qui est dominante (coefficient d'absorption linéaire d'ordre 10^{-1} , une section efficace d'absorption d'ordre 10^{-2} pour une intensité lumineuse d'ordre 50 Gw/cm^2).

Tableau 2.1 : Valeurs typiques de l'intensité lumineuse, de la section efficace d'absorption et du coefficient d'absorption non linéaire pour des processus d'absorption non linéaires à 2, 3, 4 et 5 photons [34].

Nombre de photons	$n = 2$	$n = 3$	$n = 4$	$n = 5$
Intensité lumineuse $I(\text{Gw/cm}^2)$	100	150	200	250
Section efficace d'absorption d'ordre n (σ_n)	$35.3 \cdot 10^{-12}$ (cm/W)	$1.6 \cdot 10^{-22}$ (cm^3/W^2)	$4.4 \cdot 10^{-34}$ (cm^5/W^3)	$9 \cdot 10^{-45}$ (cm^7/W^4)
Coefficient d'absorption non linéaire d'ordre n (β_n)	$100 \cdot 10^{-50}$ ($\text{cm}^4 \cdot \text{s} \cdot \text{phot}^{-1}$)	$1.26 \cdot 10^{-78}$ ($\text{cm}^6 \cdot \text{s}^2 \cdot \text{phot}^{-2}$)	$10.1 \cdot 10^{-109}$ ($\text{cm}^8 \cdot \text{s}^3 \cdot \text{phot}^{-3}$)	$58.4 \cdot 10^{-140}$ ($\text{cm}^{10} \cdot \text{s}^4 \cdot \text{phot}^{-4}$)

Pour les transitions non résonnantes et en termes de sections efficaces d'absorption σ , ce fait se traduit par la relation suivante [1] :

$$\frac{\sigma_{n+1}}{\sigma_n} \sim 10^{-34} \quad (2.40)$$

Où σ_{n+1} et σ_n sont les sections efficaces d'absorption d'ordre n et $n + 1$, respectivement.

Chapitre 2

Elles sont données par les relations suivantes :

$$\sigma_n = \frac{\beta_n (h\nu)^{n-1}}{N_0} \quad (2.41 - 1)$$

$$\sigma_{n+1} = \frac{\beta_{n+1} (h\nu)^n}{N_0} \quad (2.41 - 2)$$

Où $(h\nu)$ est l'énergie du photon incident (h est la constante de Planck et ν la fréquence) et N_0 est le nombre d'entités absorbantes (atomes, molécules). En divisant l'équation (2.41.2) par l'équation (2.41.1), on trouve ;

$$\frac{\sigma_{n+1}}{\sigma_n} = \frac{\beta_{n+1}}{\beta_n} (h\nu) \sim 10^{-34} \quad (2.42)$$

Dans la région du visible du spectre électromagnétique, l'énergie moyenne du photon correspondant est $h\nu \sim 10^{-19} J$. Par conséquent, on obtient :

$$\frac{\beta_{n+1}}{\beta_n} \sim \frac{10^{-34}}{(h\nu)} = \frac{10^{-34}}{10^{-19}} = 10^{-15} \quad (2.43)$$

En multipliant cette relation par l'intensité du faisceau incident I , on obtient :

$$\frac{\beta_{n+1}}{\beta_n} I \sim 10^{-15} I \quad (2.44)$$

Pour une intensité lumineuse de l'ordre de 1 GW/cm^2 , qui est négligeable devant celle nécessaire pour exciter le processus d'absorption non linéaire d'ordre 2 ($\sim 100 \text{ GW/cm}^2$), on a :

$$\frac{\beta_{n+1}}{\beta_n} I \sim 10^{-6} \quad (2.45)$$

Explicitement, la relation de récurrence (46) pour différents ordres s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{\beta_{n+1}}{\beta_n} I &\sim 10^{-6} \\ \frac{\beta_n}{\beta_{n-1}} I &\sim 10^{-6} \\ \frac{\beta_{n-1}}{\beta_{n-2}} I &\sim 10^{-6} \\ &\vdots \\ &\vdots \\ &\vdots \\ \frac{\beta_4}{\beta_3} I &\sim 10^{-6} \\ \frac{\beta_3}{\beta_2} I &\sim 10^{-6} \\ \frac{\beta_2}{\alpha_0} I &\sim 10^{-6} \end{aligned} \quad (2.46)$$

La multiplication de ces expressions terme à terme donne :

$$\frac{\beta_{n+1}}{\alpha_0} I^n \sim 10^{-6n} \ll 1 \quad (2.47)$$

Ce résultat montre que la quantité $(\beta_{n+1}/\alpha_0)I^n$ est très petite (très proche de zéro) et elle est d'autant plus petite que l'ordre du processus n est grand. Ce résultat montre, que plus l'ordre d'un processus d'absorption non linéaire est élevé, plus l'intensité lumineuse requise pour l'exciter est également élevée. Dans notre cas, on a ;

$$\frac{\beta}{\alpha_0} I \sim 10^{-6} \ll 1 \quad (2.48)$$

Ce résultat signifie également que, dans le développement limité de la quantité $(\beta_{n+1}/\alpha_0)I^n$, les termes supérieurs à l'ordre deux peuvent légitimement être négligés, donnant lieu aux approximations suivantes :

$$\left(1 \pm \frac{\beta_{n+1}}{\alpha_0} I^n\right)^k \sim \begin{cases} 1 : \text{ordre } 0 \\ 1 \pm k \frac{\beta_{n+1}}{\alpha_0} I^n : \text{ordre } 1 \end{cases} \quad (2.49)$$

Où k est un nombre réel. Dans notre cas, ces approximations se présentent sous la forme suivante :

$$\left(1 \pm \frac{\beta}{\alpha_0} I\right)^k \sim \begin{cases} 1 : \text{ordre } 0 \\ 1 \pm k \frac{\beta}{\alpha_0} I : \text{ordre } 1 \end{cases} \quad (2.50)$$

Notre modèle est basé essentiellement sur ces deux approximations, qui vont être réutilisées dans les calculs précédents afin de nous permettre de trouver une expression analytique de la transmittance optique normalisée.

En utilisant l'approximation d'ordre 1 dans la relation (2.50), l'expression de l'intensité optique transmise, donnée par la relation (2.26), se réduit à la forme suivante :

$$I_{out}(x, y, z, t) = I_{inc}(x, y, z, t) \exp(-\alpha_0 L) \left[1 - \beta L_{eff}^{(2)} I_{inc}(x, y, z, t)\right] \quad (2.51)$$

Ou :

$$I_{out}(x, y, z, t) = I_0 h(t) \left(\frac{W_{0x} W_{0y}}{W_x(z) W_y(z)}\right) \exp(-\alpha_0 L) \left[1 - C_2 \exp\left(-\frac{2x^2}{w_x^2(z)} - \frac{2y^2}{w_y^2(z)}\right)\right] \exp\left(-\frac{2x^2}{w_x^2(z)} - \frac{2y^2}{w_y^2(z)}\right) \quad (2.52)$$

En remplaçant l'intensité incidente $I_{inc}(x, y, z, t)$ par son expression, donnée par la relation (2.11) et en introduisant le paramètre C_2 défini par la relation (2.28).

Chapitre 2

Pour obtenir l'expression de la puissance optique transmise, nous suivons le même procédé développé dans le paragraphe (2.4) et on obtient :

$$P_T^{(2)}(z, t) = P_{inc}(t) \exp(-\alpha_0 L) \int_0^1 (1 - C_2 w) dw \quad (2.53)$$

Qui donne après intégration :

$$P_T^{(2)}(z, t) = P_{inc}(t) \exp(-\alpha_0 L) \left[1 - \frac{C_2}{2}\right] \quad (2.54)$$

Cette expression peut se mettre sous la forme suivante :

$$P_T^{(2)}(z, t) = P_{inc}(t) \exp(-\alpha_0 L) \left[1 - \frac{q_0}{2} h(t)\right] \quad (2.55)$$

En introduisant le paramètre q_0 défini par la relation (2.39).

L'expression de la transmittance optique normalisée est déterminée par la relation (2.37). En injectant les expressions de $P_T^{(2)}(z, t)$ et $P_{inc}(t)$, données par les équations (2.55) et (2.15), respectivement, dans cette relation, on obtient :

$$\begin{aligned} T^{(2)}(z) &= \exp(-\alpha_0 L) \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \left[1 - \frac{q_0}{2} h(t)\right] h(t) dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} h(t) dt} \\ &= \exp(-\alpha_0 L) \left[\frac{\int_{-\infty}^{+\infty} h(t) dt - \frac{q_0}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} [h(t)]^2 dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} h(t) dt} \right] \\ &= \exp(-\alpha_0 L) \left[1 - \frac{q_0}{2} \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} [h(t)]^2 dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} h(t) dt} \right] \end{aligned} \quad (2.56)$$

En remplaçant le paramètre q_0 par sa valeur, donnée par la relation (2.39), l'expression de la transmittance optique normalisée devient :

$$T^{(2)}(z) = \exp(-\alpha_0 L) \left[1 - \beta F_2 \left(\frac{W_{0x} W_{0y}}{W_x(z) W_y(z)} \right) \right] \quad (2.57)$$

Où nous avons introduit le paramètre constant F_2 défini par la relation suivante :

$$F_2 = \frac{L_{eff}^{(2)} I_0 \int_{-\infty}^{+\infty} [h(t)]^2 dt}{2 \int_{-\infty}^{+\infty} h(t) dt} \quad (2.58)$$

En plus de la longueur effective de l'échantillon $L_{eff}^{(2)}$ et de l'intensité au centre du faisceau I_0 , le paramètre F_2 dépend essentiellement de l'enveloppe temporelle $h(t)$ du pulse laser.

Chapitre 2

Le tableau 2.2 donne quelques formes ou fonctions mathématiques de cette enveloppe. Les plus utilisées dans la pratique et la théorie sont les formes gaussienne, super-gaussienne et sécante hyperbolique. Des travaux [35] ont démontré que la forme temporelle de l'impulsion laser a une influence significative sur les traces Z-scan et, par conséquent sur les valeurs des coefficients d'absorption et de réfraction non linéaires obtenues. En effet, ces derniers peuvent différer considérablement de la valeur réelle si la forme d'impulsion appropriée n'est pas prise en compte

Tableau 2.2 : Quelques formes mathématiques de l'enveloppe temporelle du pulse [35]

Type d'impulsion	Forme mathématique $h(t)$
Gaussienne	$\exp(-t^2)$
Super-Gaussien	$\exp(-t^4)$
Sécante hyperbolique	$\frac{2}{\exp(-t^2) + \exp(+t^2)}$
Lorentzienne I	$\frac{1}{1 + t^2}$
Lorentzienne II	$\frac{1}{\sqrt{1 + t^2}}$
Sinc	$\frac{\sin(t)}{t}$

Afin de formuler la dépendance de la transmittance optique normalisée avec z et les caractéristiques du faisceau gaussien, il est nécessaire d'explicitier les largeurs du faisceau $W_x(z)$ et $W_y(z)$, dont les expressions sont données par les relations (2.6-1) et (2.6-2). Finalement, la transmittance optique normalisée prend la forme suivante :

$$T^{(2)}(z) = \exp(-\alpha_0 L) \left[1 - \frac{\beta F_2}{\left[\left(1 + \left(\frac{z-z_{0x}}{z_{R_x}} \right)^2 \right) \left(1 + \left(\frac{z-z_{0y}}{z_{R_y}} \right)^2 \right) \right]^{\frac{1}{2}}} \right] \quad (2.59)$$

Nous obtenons une expression simple et adéquate pour un éventuel ajustement des résultats des expériences Z-scan ou traces Z-scan. Il est ainsi possible d'extraire les valeurs du coefficient d'absorption non linéaire β et les paramètres du faisceau gaussien incident. En effet, l'ajustement des courbes expérimentales avec la relation (2.59) permet de déterminer les valeurs des longueurs de Rayleigh $z_{R_{x,y}}$ et les paramètres $z_{0_{x,y}}$. A partir de ces valeurs, il est aisé de remonter aux autres paramètres du faisceau gaussien incident, tels que les ceintures ou waists du faisceau, les enveloppes ou largeurs du faisceau et les rayons de courbure du front d'onde.

Généralement, l'expression de la transmittance normalisée est corrigée par le coefficient de réflexion de Fresnel (R) [28] à l'interface du matériau avec l'air :

$$T^{(2)}(z) = (1 - R)^2 \exp(-\alpha_0 L) \left[1 - \frac{\beta F_2}{\left[\left(1 + \left(\frac{z-z_{0x}}{z_{R_x}} \right)^2 \right) \left(1 + \left(\frac{z-z_{0y}}{z_{R_y}} \right)^2 \right) \right]^{\frac{1}{2}}} \right] \quad (2.60)$$

L'expression (2.60) est celle de transmittance normalisée d'un faisceau gaussien astigmatique, si on considéré que $z_{0x} \neq z_{0y}$ et $W_{0x} \neq W_{0y}$.

Dans le cas particulier d'un faisceau gaussien incident de profile spatiale elliptique, les paramètres du faisceau gaussien sont reliés par les relations suivantes :

$$z_{0x} = z_{0y} = z_0 \quad (2.61 - 1)$$

$$W_{0x} \neq W_{0y} \quad (2.61 - 2)$$

$$z_{R_x} \neq z_{R_y} \quad (2.61 - 3)$$

Et la transmittance normalisée prend la forme suivante :

$$T^{(2)}(z) = (1 - R)^2 \exp(-\alpha_0 L) \left[1 - \frac{\beta F_2}{\left[\left(1 + \left(\frac{z-z_0}{z_{R_x}} \right)^2 \right) \left(1 + \left(\frac{z-z_0}{z_{R_y}} \right)^2 \right) \right]^{\frac{1}{2}}} \right] \quad (2.62)$$

2.8. Cas d'un faisceau gaussien incident circulaire

Dans ce paragraphe, on considère le cas particulier très utilisé en théorie et en pratique, d'un faisceau gaussien incident de profile spatiale circulaire. Dans ces conditions, les composantes suivant x et y des paramètres du faisceau gaussien sont égaux :

$$z_{0x} = z_{0y} = z_0 \quad (2.63 - 1)$$

$$z_{Rx} = z_{Ry} = z_R \quad (2.63 - 2)$$

Pour un pulse laser d'enveloppe temporelle gaussienne :

$$h(t) = \exp(-t^2) \quad (2.64 - 1)$$

On a :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} h(t) dt = \sqrt{\pi} \quad (2.64 - 2)$$

$$\int_{-\infty}^{+\infty} [h(t)]^2 dt = \sqrt{\frac{\pi}{2}} \quad (2.64 - 3)$$

$$F_2 = \frac{L_{eff}^{(2)} I_0}{2\sqrt{2}} \quad (2.64 - 4)$$

Et l'expression de la transmittance optique normalisée se réduit à la forme suivante :

$$T^{(2)}(z) = (1 - R)^2 \exp(-\alpha_0 L) \left[1 - \frac{\beta F_2}{1 + \left(\frac{z-z_0}{z_R}\right)^2} \right] \quad (2.65)$$

2.9. Section efficace d'absorption

L'absorption peut également être quantifiée en utilisant la section efficace d'absorption σ . Dans le régime linéaire, cette section efficace est constante. Cependant, dans le cas du régime non linéaire (absorption multiphotonique), cette section dépend de l'intensité incidente.

Connaissant le coefficient d'absorption à deux photons β via l'ajustement des traces Z-scan par la relation (2.60) et le nombre d'entités absorbantes par unité de volume (concentration, densité N_0), nous pouvons déduire la section efficace d'absorption d'ordre 2 donnée par la relation (1.14).

Chapitre 3

Simulation, résultats et interprétations

3.1. Introduction

Dans ce dernier chapitre, nous allons étudier à travers des simulations, sur la base du modèle que nous avons construit dans le second chapitre et qui nous a permis d'obtenir l'expression de la transmittance normalisée, l'influence des paramètres du faisceau gaussien incident ainsi que les propriétés de l'échantillon sur cette transmittance. Concernant les paramètres du faisceau gaussien incident, il s'agit des positions des waists, des paramètres de Rayleigh, de l'enveloppe temporelle du pulse laser et de l'intensité incidente au centre du faisceau. Concernant les propriétés du matériau, il s'agit de son épaisseur et ses coefficients d'absorption linéaire et non linéaire. La procédure consiste à faire varier un paramètre ou une propriété en considérant le reste des paramètres et propriétés constants ou négligeables. Les valeurs numériques de certains paramètres et propriétés sont extraites de la littérature [34].

3.2. Effet des positions des waists

Nous avons signalé dans le premier chapitre que le profil spatial d'un faisceau gaussien dépend des waists et de leurs positions suivant les directions X et Y . On a distingué ainsi trois types de profil spatial : circulaire, gaussien et elliptique. Dans cette section, nous allons examiner l'effet de la variation des positions des waists (z_{0x}, z_{0y}) sur l'absorption à deux photons. Pour ce faire, nous avons considéré deux cas. Dans chaque cas, on fixe la position du waist suivant une direction (X ou Y) et on la varie suivant l'autre direction (X ou Y).

Dans le premier cas, nous avons fixé la valeur de z_{0x} , que nous avons pris égale à zéro, et varier la valeur de z_{0y} . Pour les simulations, nous avons pris, pour les différents paramètres, les valeurs numériques suivantes :

$$L = 0.2 \text{ cm} ; I_0 = 100 \text{ Gw. cm}^{-2} ; \beta = 35.3 \cdot 10^{-12} \text{ cm. w}^{-1}$$

$$W_{0x} = W_0 = 20 \mu\text{m} ; W_{0y} = 2W_{0x} = 2W_0 ; \alpha_0 = 0$$

$$z_{R_x} = z_R = 0.5 \text{ cm} ; z_{R_y} = 4z_{R_x} = 4z_R ; h(t) = \exp(-t^2) ; R = 0$$

Nous avons négligé l'absorption linéaire en prenant sa valeur égale à zéro. Par conséquent, la longueur effective de l'échantillon s'identifie à sa vraie longueur :

$$L_{eff} = \lim_{\alpha_0 \rightarrow 0} \left(\frac{1 - \exp(-\alpha_0 L)}{\alpha_0} \right) = L \quad (3.1)$$

Sous ces conditions, l'expression de la transmittance normalisée, donnée par l'expression (2.60), se présente sous la forme suivante :

$$T(z) = \left[1 - \frac{0.250}{\left[\left(1 + \left(\frac{z}{0.5} \right)^4 \right) \left(1 + \left(\frac{z - z_{0y}}{2} \right)^2 \right) \right]^{\frac{1}{2}}} \right] \quad (3.2)$$

Dans le second cas, nous avons fixé la valeur de z_{0y} , que nous avons pris égale à zéro, et varier la valeur de z_{0x} . Nous avons utilisé les mêmes valeurs numériques pour les différents paramètres. L'expression de la transmittance normalisée se présente sous la forme suivante :

$$T(z) = \left[1 - \frac{0.250}{\left[\left(1 + \left(\frac{z - z_{0x}}{0.5} \right)^4 \right) \left(1 + \left(\frac{z}{2} \right)^2 \right) \right]^{\frac{1}{2}}} \right] \quad (3.3)$$

Les figures 3.1, 3.2, 3.3 et 3.4 représentent les courbes de transmittance normalisée obtenues en utilisant la relation (3.2) et (3.3) et la variation du minimum de la transmittance normalisée correspondante, pour différentes valeurs des paramètres z_{0y} et z_{0x} , respectivement.

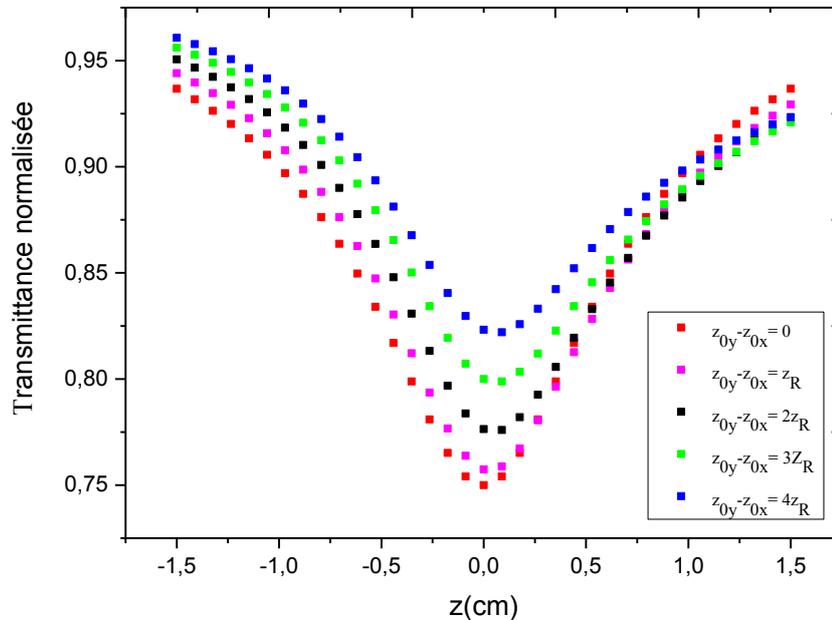


Figure 3.1 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs du paramètre (z_{0y})

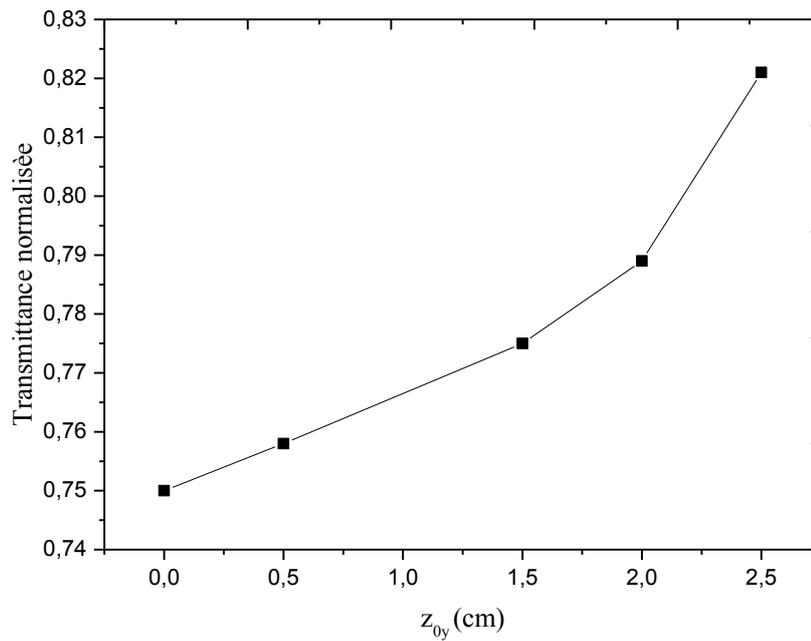


Figure 3.2 : Variation du minimum de la transmittance normalisée en fonction du paramètre z_{0y}

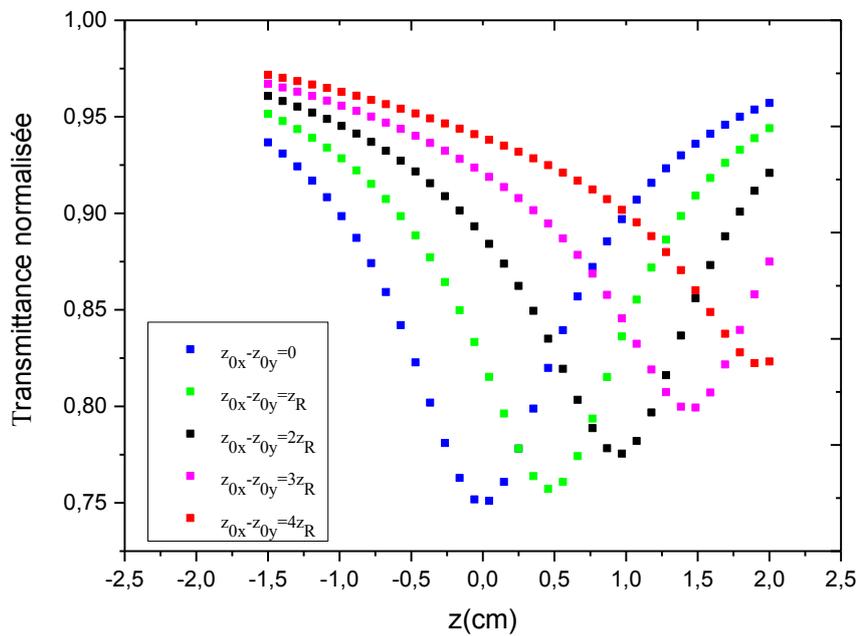


Figure 3.3 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs du paramètre (z_{0x})

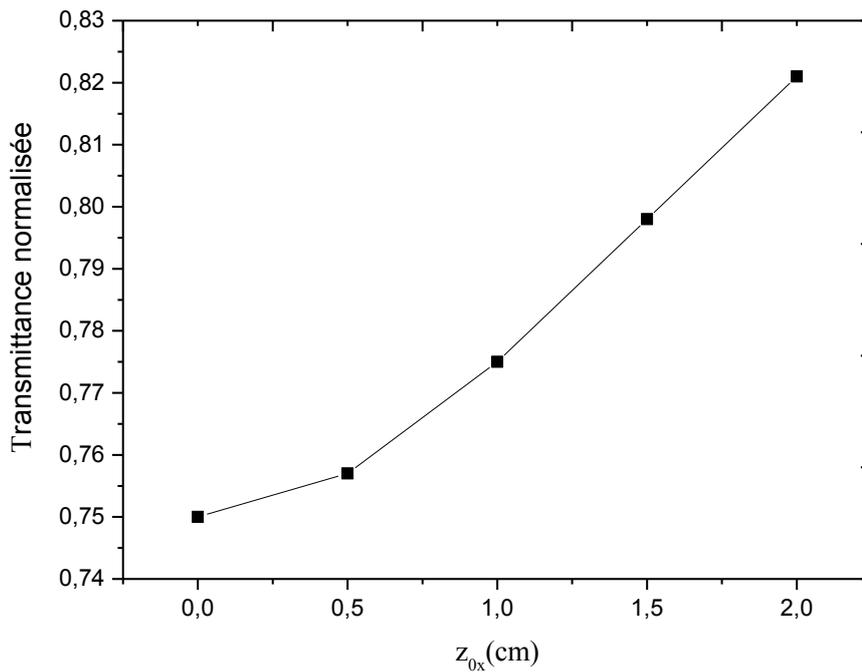


Figure 3.4 : Variation du minimum de la transmittance normalisée en fonction du paramètre (z_{0x}).

En augmentant les valeurs des paramètres z_{0x} et z_{0y} , on remarque un décalage des courbes de la transmittance vers les z positifs accompagné d'un accroissement de la valeur du minimum de cette transmittance, en d'autres termes, d'une diminution de l'absorption non linéaire. Cependant ce décalage est prononcé dans le cas de z_{0x} . On remarque également qu'on obtient des courbes de transmittance normalisée asymétriques par rapport à la droite qui passe par le minimum. Enfin, on constate que la valeur de la transmittance normalisée n'atteint pas sa valeur en régime linéaire en dépit de l'augmentation de la distance de balayage. Un phénomène de coupure se produit.

En considérant des faisceaux elliptiques ou circulaires, pour lesquels $z_{0x} = z_{0y}$, on obtient des courbes de transmittance normalisée régulières, c'est-à-dire, symétriques de part et d'autres des waists et sans phénomène de coupure. Dans le cas d'un faisceau gaussien elliptiques, la différence entre les waists a pour effet de créer une différence d'intensité entre les directions X et Y , selon que $W_{0x} > W_{0y}$ ou $W_{0y} < W_{0x}$. Ce qui se traduit à son tour par une différence dans l'absorption non linéaire suivant les deux directions X et Y .

Lorsque les valeurs des positions des waists suivant les deux directions orthogonales X et Y différent, le faisceau gaussien devient astigmatique. L'astigmatisme du

faisceau a pour effet de créer une inhomogénéité ou non uniformité de l'intensité dans le plan qui contient l'axe optique (plan perpendiculaire au plan (XY)). En augmentant les valeurs de z_{0x} ou z_{0y} , les courbes de transmittance obtenues se décalent et l'intensité de part ou d'autre de l'axe optique diminue, ce qui explique l'asymétrie observée dans les courbes de transmittance. Cependant, cette diminution entraîne une coupure lorsque l'intensité d'une part ou d'autre de l'axe optique devient faible ou nulle.

En principe, on devait avoir les mêmes courbes de transmittance de part et d'autres de l'axe optique, c'est-à-dire, les mêmes de courbes en augmentant z_{0x} ou z_{0y} des mêmes quantités. Cette absence de symétrie est dû au fait que les longueurs de Rayleigh sont différentes suivant les deux directions X et Y.

Enfin, on remarque que le minimum de la transmittance ($z = 0$) suit une loi de la forme :

$$T_{min} = \left[1 - \frac{0.250}{\left[1 + \left(\frac{z - z_{0x,y}}{z_{R,x,y}} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}} \right] \quad (3.4)$$

Dans la suite de ce chapitre et pour étudier l'effet des autres paramètres, nous allons considérer un profil spatial de type elliptique pour le faisceau gaussien incident.

3.3. Effet de l'absorption linéaire

Pour étudier l'influence du coefficient d'absorption linéaire sur l'absorption non linéaire à deux photons, nous avons utilisées pour les différents paramètres, les valeurs numériques suivantes :

$$L = 0.2 \text{ cm} ; I_0 = 100 \text{ Gw. cm}^{-2} ; \beta = 35.3 \cdot 10^{-12} \text{ cm. w}^{-1}$$

$$z_{0x} = z_{0y} = 0 ; W_{0x} = W_0 = 20 \mu\text{m} ; W_{0y} = 2W_{0x} = 2W_0$$

$$z_{Rx} = z_R = 0.5 \text{ cm} ; z_{Ry} = 4z_{Rx} = 4z_R ; h(t) = \exp(-t^2) ; R = 0$$

Sachant que l'absorption linéaire est résiduelle et faible ($\alpha \ll 1$), nous avons effectué un développement limité au premier ordre des quantités suivantes :

$$\exp(-\alpha_0 L) = 1 - \alpha_0 L \quad (3.5 - 1)$$

$$L_{eff} = \frac{1 - \exp(-\alpha_0 L)}{\alpha_0} \approx L \quad (3.5 - 2)$$

Sous ces conditions, l'expression de la transmittance normalisée se présente sous la forme suivante :

$$T(z) = (1 - 0.2\alpha_0) \left[1 - \frac{0.250}{\left[\left(1 + \left(\frac{z}{0.5}\right)^1\right) \left(1 + \left(\frac{z}{2}\right)^2\right) \right]^{\frac{1}{2}}} \right] \quad (3.6)$$

La figure 3.5 et 3.6 représentent les courbes de transmittance normalisée obtenues en utilisant la relation (3.6) et la variation du minimum de la transmittance normalisée pour différentes valeurs du coefficient d'absorption linéaire, respectivement.

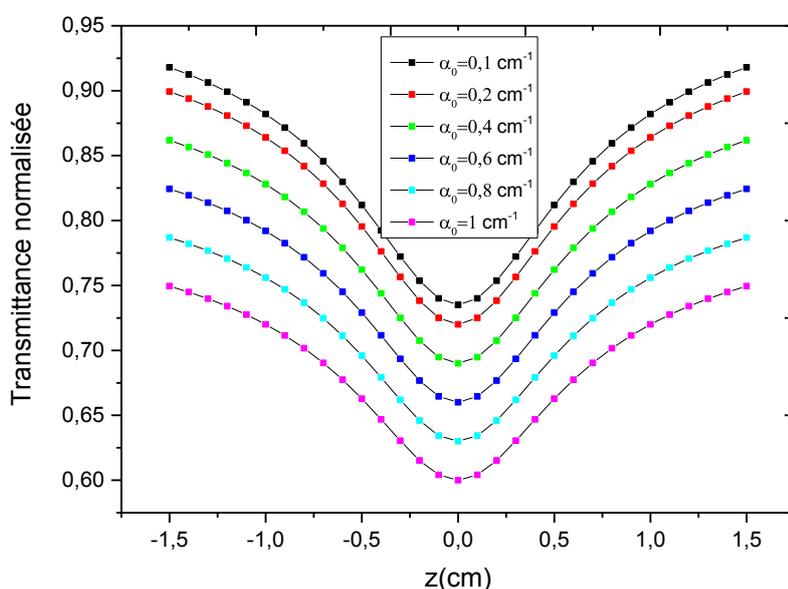


Figure 3.5 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs du coefficient d'absorption linéaire

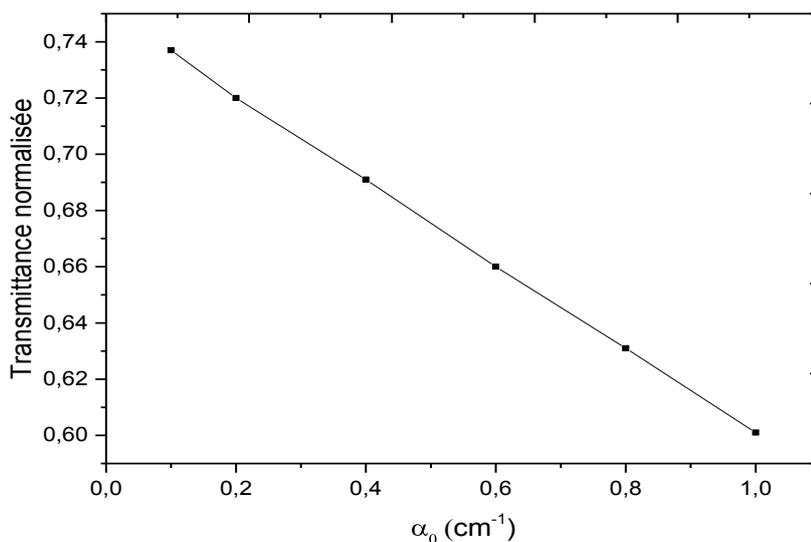


Figure 3.6 : Variation du minimum de la transmittance normalisée en fonction du coefficient d'absorption linéaire.

On remarque que la transmittance optique de l'échantillon diminue avec l'augmentation de son coefficient d'absorption linéaire, en d'autres termes, l'absorption non linéaire de l'échantillon augmente. Ce résultat est prévisible car l'absorption linéaire n'est qu'un autre mécanisme supplémentaire qui vient renforcer l'absorption non linéaire. On remarque également que la diminution du minimum de la transmittance suit une loi linéaire. Sachant que le dénominateur dans l'expression (3.6) est égale 1 ($z = 0$), la pente de la droite obtenue est approximativement égale à $0.750L$.

3.4. Effet de l'absorption non linéaire β

Pour étudier l'influence du coefficient d'absorption non linéaire sur l'absorption non linéaire à deux photons, nous avons utilisées pour les différents paramètres, les valeurs numériques suivantes :

$$I_0 = 100 \text{ Gw.cm}^{-2}; L = 0.2 \text{ cm}; \alpha_0 = 0; L_{eff} = L$$

$$z_{0x} = z_{0y} = 0; W_{0x} = W_0 = 20\mu\text{m}; W_{0y} = 2W_{0x} = 2W_0$$

$$z_{R_x} = z_R = 0.5 \text{ cm}; z_{R_y} = 4z_{R_x} = 4z_R; h(t) = \exp(-t^2); R = 0$$

Sous ces conditions, l'expression de la transmittance normalisée se présente sous la forme suivante :

$$T(z) = \left[1 - \frac{7.07.10^9 \beta}{\left[\left(1 + \left(\frac{z}{0.5} \right)^4 \right) \left(1 + \left(\frac{z}{2} \right)^2 \right) \right]^{\frac{1}{2}}} \right] \quad (3.7)$$

Les figures 3.7 et 3.8 représentent les courbes de transmittance normalisée obtenues en utilisant la relation (3.7) et la variation du minimum de la transmittance normalisée pour différentes valeurs du coefficient d'absorption non linéaire, respectivement.

On remarque que la transmittance optique de l'échantillon diminue avec l'augmentation de coefficient d'absorption non linéaire, en d'autres termes, l'absorption non linéaire de l'échantillon augmente. L'augmentation du coefficient d'absorption non linéaire signifie que la probabilité pour qu'un photon soit absorbé augmente également. Or, cette dernière dépend du nombre d'entités absorbantes (atomes ou molécules) qui va également augmenter à son tour, ce qui a comme effet d'accroître l'absorption non linéaire de l'échantillon. On remarque également que la diminution du minimum de la transmittance suit une loi quasi-linéaire. Sachant que le

dénominateur dans l'expression est égale à 1 ($z = 0$), la pente de cette droite est approximativement égale à $I_0 L$.

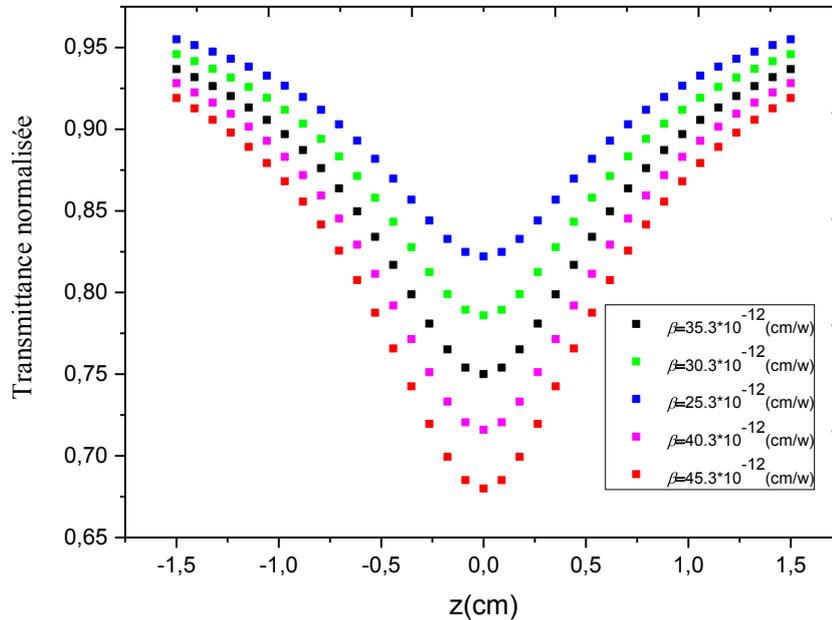


Figure 3.7 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs du coefficient d'absorption non linéaire.

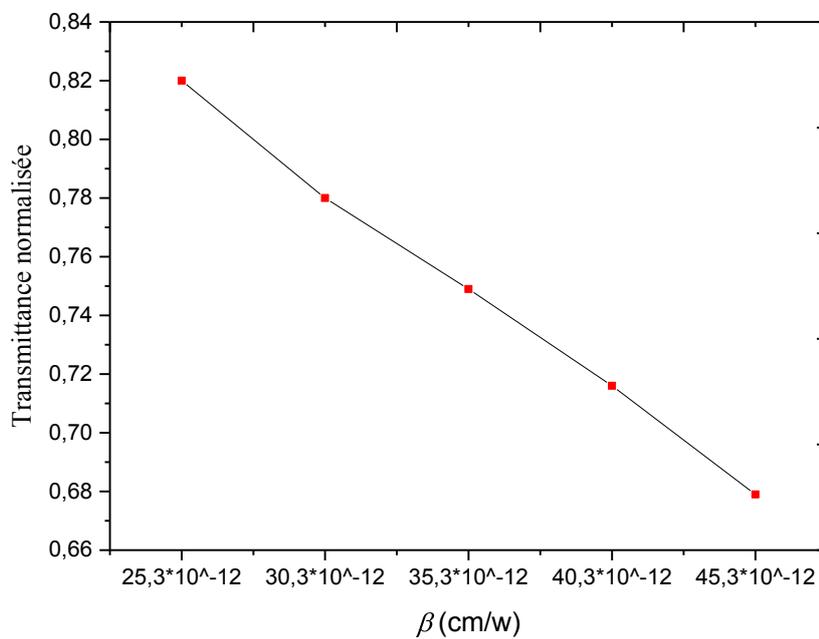


Figure 3.8 : Variation du minimum de la transmittance normalisée en fonction du coefficient d'absorption non linéaire.

3.5. Effet de l'intensité incidente au centre du faisceau

Pour étudier l'influence de l'intensité incidente au centre du faisceau I_0 sur l'absorption non linéaire à deux photons, nous avons utilisées pour les différents paramètres, les valeurs numériques suivantes :

$$L = 0.2 \text{ cm} ; \alpha_0 = 0 ; \beta = 35.3 \cdot 10^{-12} \text{ cm} \cdot \text{w}^{-1} ; L_{eff} = L$$

$$z_{0x} = z_{0y} = 0 ; W_{0x} = W_0 = 20 \mu\text{m} ; W_{0y} = 2W_{0x} = 2W_0$$

$$z_{R_x} = z_R = 0.5 \text{ cm} ; z_{R_y} = 4z_{R_x} = 4z_R ; h(t) = \exp(-t^2) ; R = 0$$

Sous ces conditions, l'expression de la transmittance normalisée se présente sous la forme suivante :

$$T(z) = \left[1 - \frac{\beta F_2}{\left[\left(1 + \left(\frac{z}{0.5} \right)^2 \right) \left(1 + \left(\frac{z}{2} \right)^2 \right) \right]^{\frac{1}{2}}} \right] \quad (3.8)$$

Les figures 3.9 et 3.10 représentent les courbes de la transmittance normalisée obtenues en utilisant la relation (3.8) et la variation du minimum de la transmittance normalisée pour différentes valeurs de l'intensité optique incidente au centre du faisceau, respectivement.

On remarque que la transmittance optique de l'échantillon diminue avec l'augmentation de l'intensité incidente au centre du faisceau, en d'autres termes, l'absorption non linéaire augmente. Pour augmenter l'intensité incidente au centre du faisceau, il faut augmenter la puissance optique incidente conformément à la relation (2.15). L'augmentation de l'intensité incidente au centre du faisceau signifie également l'augmentation de l'énergie incidente et par conséquent, l'augmentation de la section efficace d'absorption, conformément à la relation (2.41). En d'autres termes, la surface effective d'interaction entre le faisceau lumineux incident et l'échantillon augmente, ce qui fait accroître à son tour le nombre d'entités absorbantes (atomes, molécules) et par conséquent l'absorption non linéaire. On remarque également que la diminution du minimum de la transmittance suit une loi quasi-linéaire. Sachant que le dénominateur dans l'expression est égale à 1 ($z = 0$), la pente de cette droite est approximativement égale à βL .

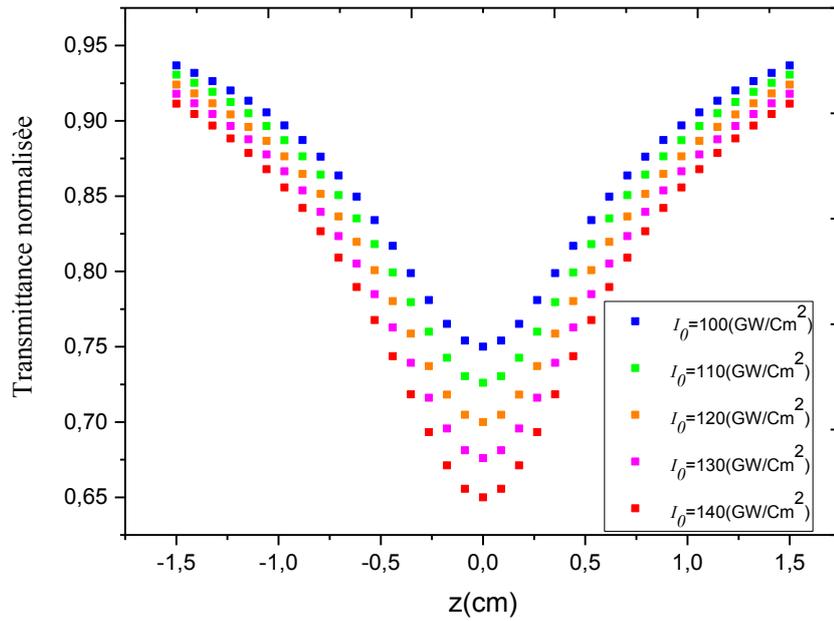


Figure 3.9 : Courbes de la transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs de l'intensité incidente.

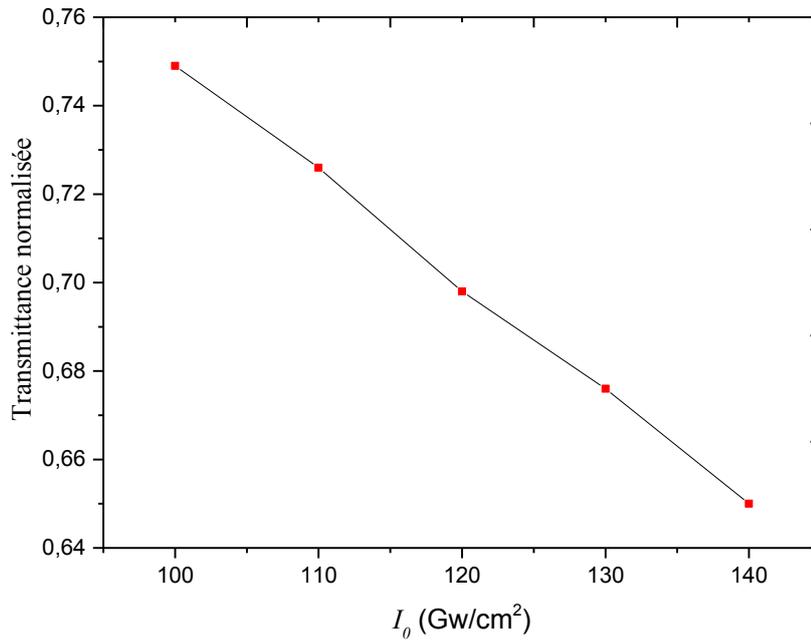


Figure 3.10 : Variation du minimum de la transmittance normalisée en fonction de l'intensité incidente.

3.6. Effet de l'épaisseur de l'échantillon

Pour étudier l'influence de l'épaisseur de l'échantillon L sur l'absorption non linéaire à deux photons, nous avons utilisées pour les différents paramètres, les valeurs numériques suivantes :

$$I_0 = 100 \text{ Gw. cm}^{-2}; \alpha_0 = 0; \beta = 35.3 \cdot 10^{-12} \text{ cm. w}^{-1}; L_{eff} = L$$

$$z_{0x} = z_{0y} = 0; W_{0x} = W_0 = 20 \mu\text{m}; W_{0y} = 2W_{0x} = 2W_0$$

$$z_{Rx} = z_R = 0.5 \text{ cm}; Z_{Ry} = 4Z_{Rx} = 4Z_R; h(t) = \exp(-t^2); R = 0$$

Sous ces conditions, l'expression de la transmittance normalisée se présente sous la forme suivante :

$$T(z) = \left[1 - \frac{\beta F_2}{\left[\left(1 + \left(\frac{z}{0.5} \right)^1 \right) \left(1 + \left(\frac{z}{2} \right)^2 \right) \right]^{\frac{1}{2}}} \right] \quad (3.9)$$

Les figures 3.11 et 3.12 représentent les courbes de transmittance normalisée obtenues en utilisant la relation (3.9) et la variation du minimum de la transmittance normalisée pour différentes valeurs de l'épaisseur de l'échantillon, respectivement.

On remarque que lorsqu'on augmente l'épaisseur de l'échantillon, la transmittance optique diminue et donc l'absorption non linéaire augmente. Ce phénomène s'explique par le fait que la longueur effective de l'échantillon augmente avec son épaisseur réelle. Or, cette dernière représente la longueur effective sur laquelle un photon est absorbé. Par conséquent, l'accroissement de l'épaisseur de l'échantillon conduit à une augmentation du nombre d'entités absorbantes (atomes, molécules) et de photons absorbés, et par la suite de l'absorption non linéaire. On remarque également que la dépendance du minimum de la transmittance optique en fonction de l'épaisseur de l'échantillon est linéaire. Sachant que le dénominateur dans l'expression est égale à 1 ($z = 0$), la pente de cette droite est approximativement égale à βI_0 .

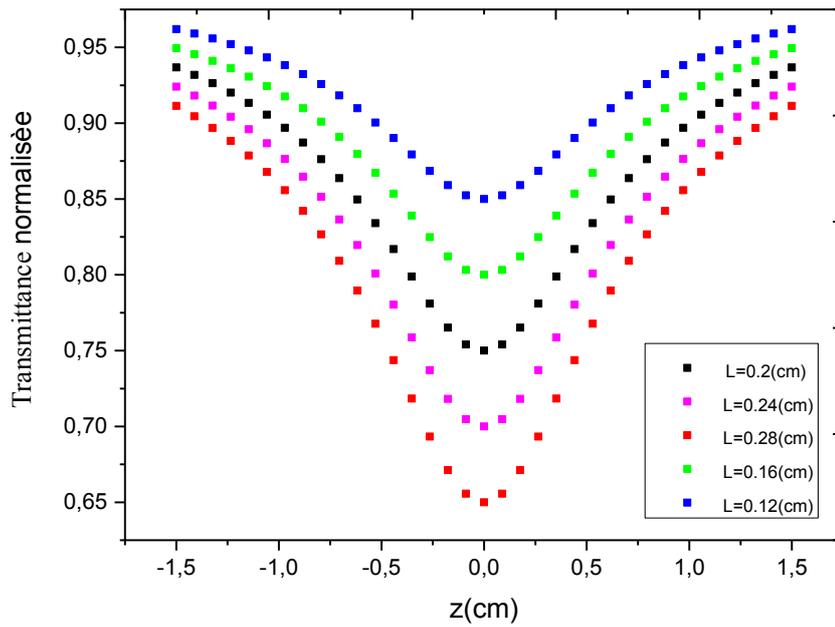


Figure 3.11 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs de l'épaisseur de l'échantillon.

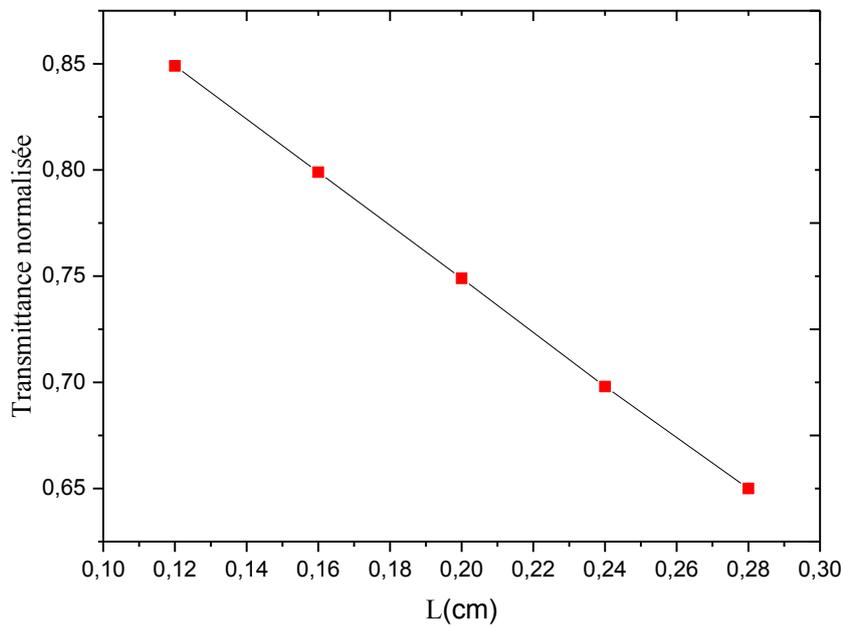


Figure 3.12 : Variation du minimum de la transmittance normalisée en fonction de l'épaisseur de l'échantillon.

3.7. Effet des longueurs de Rayleigh

Pour étudier l'influence des longueurs de Rayleigh suivant les deux directions $X(z_{R_x})$ et $Y(z_{R_y})$ sur l'absorption non linéaire à deux photons, nous avons envisagés, comme pour le cas des positions des waists, deux situations. Dans chaque situation, on fixe une longueur de Rayleigh suivant une direction et on la varie suivant l'autre direction. Dans le premier cas, nous avons fixé la valeur de z_{R_x} , que nous avons pris égale à une certaine valeur z_R , et varier la valeur de z_{R_y} . Pour les simulations, nous avons pris, pour les différents paramètres, les valeurs numériques suivantes :

$$L = 0.2 \text{ cm} ; I_0 = 100 \text{ Gw.cm}^{-2} ; \beta = 35.3 \cdot 10^{-12} \text{ cm.w}^{-1} ; \alpha_0 = 0 ; L_{eff} = L$$

$$z_{0x} = z_{0y} = 0 ; W_{0x} = W_0 = 20 \mu\text{m} ; W_{0y} = 2W_{0x} = 2W_0$$

$$z_{R_x} = z_R = 0.5 \text{ cm} ; h(t) = \exp(-t^2) ; R = 0$$

Sous ces conditions, l'expression de la transmittance normalisée se présente sous la forme suivante :

Dans le second cas, nous avons fixé la valeur de z_{R_y} , que nous avons pris égale à une certaine valeur z_R , et varier la valeur de z_{R_x} . Nous avons utilisé les mêmes valeurs pour les différents paramètres, et l'expression de la transmittance normalisée se présente sous la forme suivante :

$$T(z) = \left[1 - \frac{0.250}{\left[\left(1 + \left(\frac{z}{z_{R_x}} \right)^2 \right) \left(1 + \left(\frac{z}{0.5} \right)^2 \right) \right]^{\frac{1}{2}}} \right] \quad (3.10)$$

Les deux expressions de la transmittance normalisée correspondant aux deux situations représentent en fait la même fonction du point de vue mathématique. C'est pour cette raison que nous nous sommes contentés de représenter les courbes de la transmittance normalisée dans le cas où z_{R_y} varie uniquement.

La figure 3.13 représente les courbes de transmittance normalisée obtenues en utilisant la relation (3.10) pour différentes valeurs de la longueur de Rayleigh z_{R_y} suivant la direction Y .

Pour faire varier les paramètres z_{R_x} et z_{R_y} , il faut faire varier les waists du faisceau, puisque ces derniers sont reliés aux longueurs de Rayleigh par les relations (2.7). Or, les waists dépendent de la puissance incidente via la relation (2.15). Donc, une variation des paramètres de Rayleigh

est une conséquence d'un changement de puissance. Signalons que ces changements s'opèrent en supposant que l'intensité incidente au centre du faisceau I_0 est constante.

Rappelons que les longueurs de Rayleigh z_{R_x} et z_{R_y} sont les distances (comptées en partant des waists) au bout desquelles la taille du faisceau augmente d'un facteur de $\sqrt{2}$ dans les deux directions X et Y . C'est des paramètres importants, car ils définissent la distance sur laquelle le faisceau laser garde une taille relativement constante, et par conséquent une intensité constante. Les distances $2z_{R_x}$ et $2z_{R_y}$ définissent ce qu'on appelle le paramètre confocal. En dehors de cette zone, l'intensité décroît rapidement.

Par conséquent, en augmentant ces paramètres, on augmente la distance sur laquelle l'absorption non linéaire est maximale. Ce fait se traduit dans les courbes obtenues par un étalement du minimum de la transmittance. On remarque également que ce minimum est indépendant des longueurs de Rayleigh, puisque l'intensité incidente au centre du faisceau est constante.

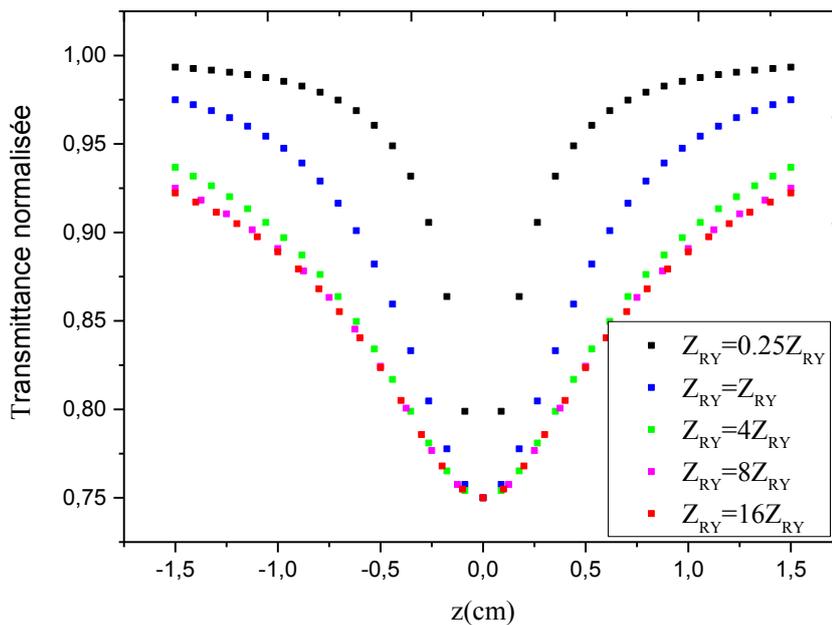


Figure 3.13 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs du paramètre z_{R_y} .

3.8. Effet de la réflexion à l'interface

Pour étudier l'influence de la réflexion à l'interface de l'échantillon sur l'absorption non linéaire à deux photons, nous avons utilisées pour les différents paramètres, les valeurs numériques suivantes :

$$L = 0.2 \text{ cm} ; I_0 = 100 \text{ Gw.cm}^{-2} ; \beta = 35.3 \cdot 10^{-12} \text{ cm.w}^{-1} ; \alpha_0 = 0 ; L_{eff} = L$$

$$z_{0x} = z_{0y} = 0 ; W_{0x} = W_0 = 20 \mu\text{m} ; W_{0y} = 2W_{0x} = 2W_0$$

$$z_{Rx} = z_R = 0.5 \text{ cm} ; Z_{Ry} = 4Z_{Rx} = 4Z_R ; h(t) = \exp(-t^2)$$

Sous ces conditions, l'expression de la transmittance normalisée se présente sous la forme suivante :

$$T(z) = (1 - R) \left[1 - \frac{0.250}{\left[\left(1 + \left(\frac{z}{0.5} \right)^1 \right) \left(1 + \left(\frac{z}{2} \right)^2 \right) \right]^{\frac{1}{2}}} \right] \quad (3.11)$$

Les figures 3.14 et 3.15 représentent les courbes de transmittance normalisée obtenues en utilisant la relation (3.11) et la variation du minimum de la transmittance normalisée pour différentes valeurs du coefficient de réflexion de Fresnel (R).

Ces résultats montrent que la transmittance optique de l'échantillon diminue avec l'augmentation du coefficient de réflexion. Ce phénomène est prévisible puisque la quantité de lumière qui traverse l'échantillon diminue à cause des pertes par réflexion sur la surface d'entrée de l'échantillon. Cependant, une diminution de la transmission ne signifie pas, dans ce cas, une augmentation de l'absorption, comme pour les autres paramètres. Au contraire, une augmentation du taux de réflexion à la surface va entraîner une diminution de l'absorption non linéaire, à cause de la diminution de l'intensité lumineuse qui traverse l'échantillon. On remarque également que la dépendance fonctionnelle du minimum de la transmittance optique avec le coefficient de réflexion de Fresnel est linéaire. Sachant que le dénominateur dans l'expression est égale à 1 ($z = 0$), la pente de cette droite est approximativement égale à 0.750.

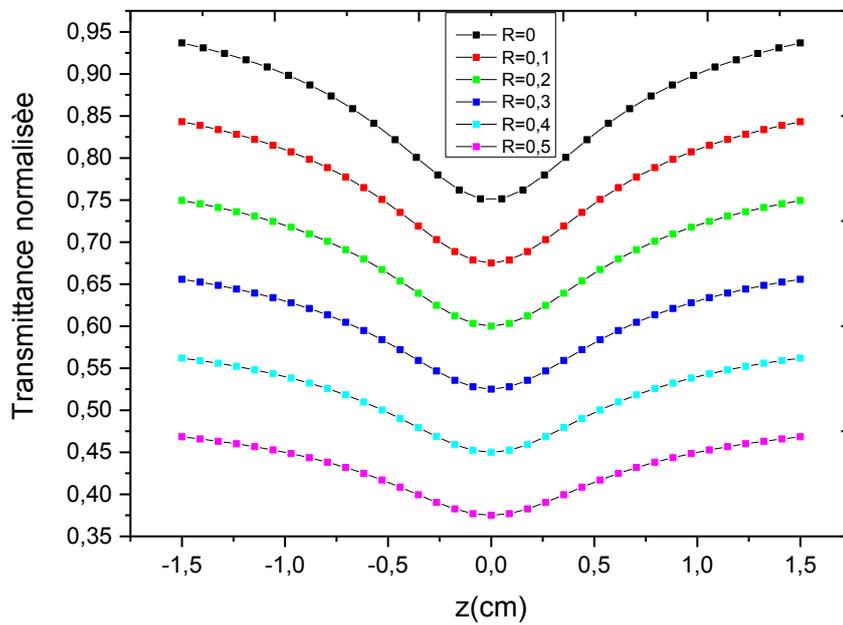


Figure 3.14 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs du coefficient de réflexion de Fresnel.

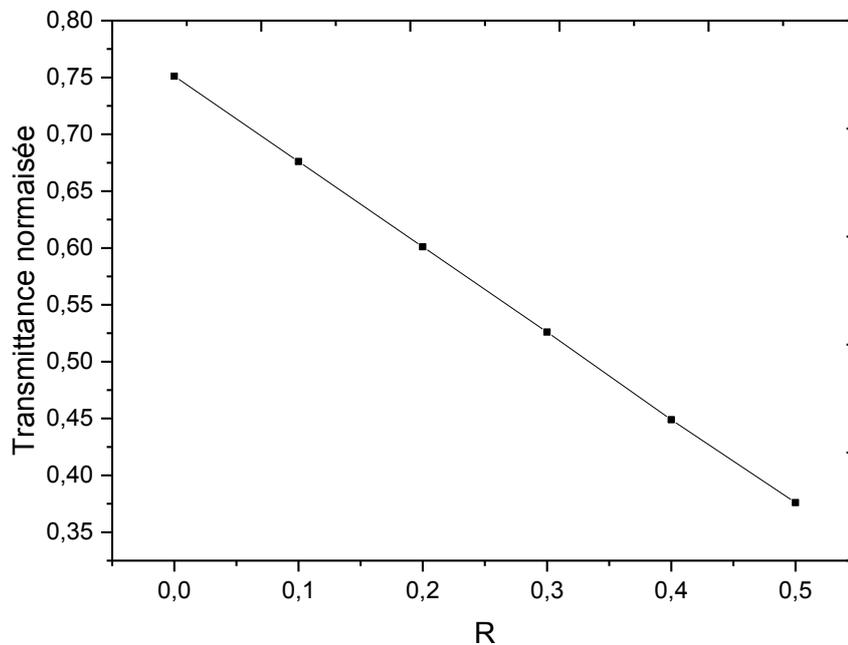


Figure 3.15 : Variation du minimum de la transmittance normalisée en fonction du coefficient de réflexion de Fresnel.

3.9. Effet de la forme de l'enveloppe temporelle du pulse laser

Pour étudier l'influence de la forme de l'enveloppe temporelle du pulse laser sur l'absorption non linéaire à deux photons, nous avons utilisées pour les différents paramètres, les valeurs numériques suivantes :

$$L = 0.2 \text{ cm} ; I_0 = 100 \text{ Gw.cm}^{-2} ; \beta = 35.3 \cdot 10^{-12} \text{ cm.w}^{-1} ; \alpha_0 = 0 ; L_{eff} = L$$

$$z_{0x} = z_{0y} = 0 ; W_{0x} = W_0 = 20 \mu\text{m} ; W_{0y} = 2W_{0x} = 2W_0$$

$$z_{R_x} = z_R = 0.5 \text{ cm} ; z_{R_y} = 4z_{R_x} = 4z_R ; R = 0$$

Pour les besoins de la simulation, nous avons choisi cinq enveloppes temporelles parmi celles données dans le tableau 2.2. Le tableau 3.1 donne les expressions mathématiques $h(t)$ de ces enveloppes ainsi que les quantités $\int_{-\infty}^{+\infty} h(t)dt$ et $\int_{-\infty}^{+\infty} [h(t)]^2 dt$ [27].

Tableau 3.1 : Les expressions mathématiques $h(t)$ de quelques enveloppes temporelles du pulse laser ainsi que les quantités $\int_{-\infty}^{+\infty} h(t)dt$ et $\int_{-\infty}^{+\infty} [h(t)]^2 dt$ [27].

Type d'impulsion	Forme mathématique $h(t)$	$\int_{-\infty}^{+\infty} h(t)dt$	$\int_{-\infty}^{+\infty} [h(t)]^2 dt$
Gaussienne	$\exp(-t^2)$	$\sqrt{\pi}$	$\sqrt{\frac{\pi}{2}}$
Super-Gaussien	$\exp(-t^4)$	$\frac{\pi\sqrt{2}}{2\Gamma(\frac{3}{4})}$	$\frac{2^{\frac{1}{4}}\pi}{2\Gamma(\frac{3}{4})}$
Sécante hyperbolique	$\frac{2}{\exp(-t) + \exp(t)}$	π	2
Lorentzienne I	$\frac{1}{1+t^2}$	π	$\frac{\pi}{2}$
Sinus cardinal	$\frac{\sin(t)}{t}$	π	π

Sous ces conditions, l'expression de la transmittance normalisée se présente sous la forme suivante :

$$T(z) = 1 - \frac{\beta F_2}{\left[\left(1 + \left(\frac{z}{0.5}\right)^1\right) \left(1 + \left(\frac{z}{2}\right)^2\right) \right]^{\frac{1}{2}}} \quad (3.12)$$

Où F_2 est un paramètre constant, qui dépend de $h(t)$, défini par la relation (2.58). La figure 3.16 donne la représentation graphique des enveloppes temporelles du pulse laser, données dans le tableau 3.1.

La figure 3.17 représente les courbes de transmittance normalisée obtenues en utilisant la relation (3.12) pour les enveloppes temporelles du pulse laser données dans le tableau 3.1. Le tableau 3.2 représente les valeurs minimales de la transmittance normalisée pour les enveloppes temporelles du pulse laser données dans le tableau 3.1.

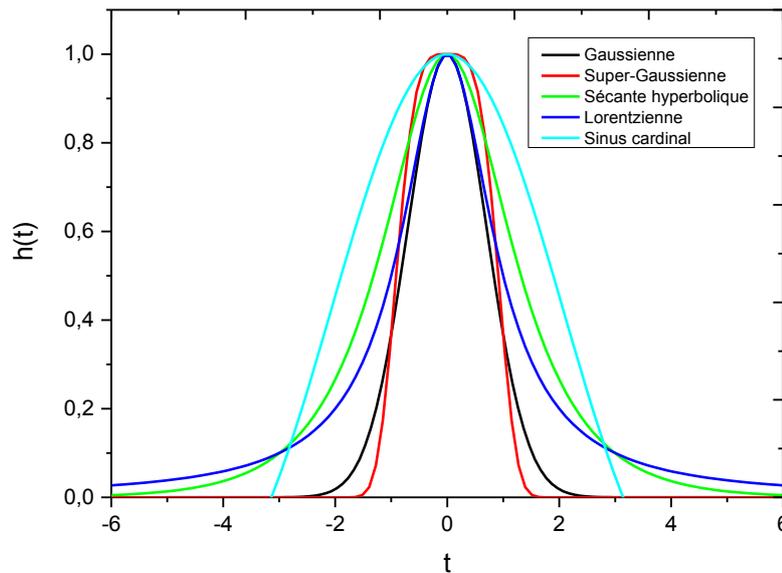


Figure 3.16 : Les représentations graphiques des enveloppes temporelles données dans le tableau 3.1.

Tableau 3.2 : Valeurs minimales de la transmittance normalisée pour différentes enveloppes temporelles du pulse laser.

$h(t)$	Lorentzienne	Sécante hyperbolique	Gaussienne	Super - Gaussienne	Sinus cardinal
$T_{min}^{(2)}$	0.825	0.776	0.752	0.705	0.649

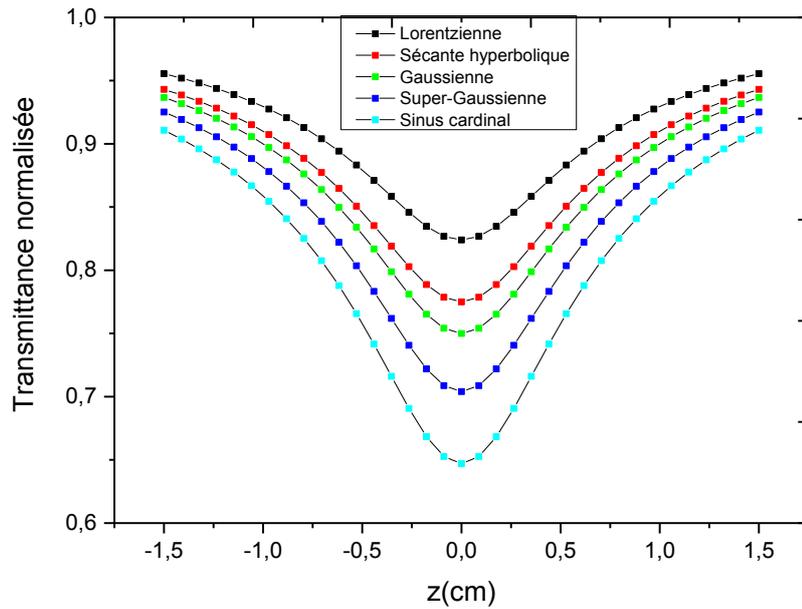


Figure 3.17 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes enveloppes temporelles du pulse laser.

On remarque que la transmittance normalisée de l'échantillon dépend du profil temporel du pulse laser auquel il soumit. En effet, les résultats obtenus montrent clairement que l'absorption non linéaire de l'échantillon est optimale pour une pulse laser de forme sinus cardinal, et minimal pour un pulse laser de forme temporelle lorentzienne. L'efficacité du processus d'absorption non linéaire dépend de l'énergie contenu dans le pulse laser, et par conséquent de la forme temporelle de ce pulse. Rappelons que cette énergie est liée à la largeur à mi-hauteur de la forme du pulse. Nous remarquons également que la forme gaussienne occupe une position intermédiaire, ce qui explique son utilisation courante dans une large gamme d'expériences d'optique non linéaire. En effet pour une longueur d'onde donnée, l'énergie que la pulse gaussienne véhicule est suffisante pour engendrer des effets non linéaires, sans autant causer la dégradation de l'échantillon.

Conclusion générale

Le but de ce travail était la modélisation et la simulation de l'absorption non linéaire d'ordre deux ou à deux photons. Notre travail a eu un double objectif : d'une part, construire un modèle théorique pour l'absorption non linéaire avec un faisceau gaussien incident de profil spatial elliptique et d'autre part, l'étude de l'influence des paramètres du faisceau gaussien incident et des propriétés de l'échantillon sur l'absorption non linéaire à deux photons. Le modèle théorique élaborée est associé la technique Z-scan en configuration ouverte (Open Z-scan). Pour tenir des inconvénients de la technique Z-scan, en l'occurrence les déformations du faisceau incident dues aux problèmes de désalignement et les instabilités des sources laser, nous avons utilisé dans la modalisation un faisceau gaussien de profil spatial elliptique.

Le modèle théorique proposé comporte trois étapes complémentaires, où il est question de déterminer successivement les expressions de l'intensité optique transmise, de la puissance optique transmise et enfin de la transmittance optique transmise. Les variations de cette dernière grandeur en fonction du déplacement de l'échantillon caractérise et décrit complètement l'absorption non linéaire à deux photons de l'échantillon. Cependant, les calculs exacts donnent une expression de la transmittance normalisée inadéquats pour d'éventuels simulations ou réajustements. Par conséquent, nous avons simplifié l'expression de cette transmittance en faisant appel à une approximation physique dite approximation des faibles nonlinéarités. On a obtenu ainsi une expression analytique simple et pratique pour les simulations. L'expression trouve à celle d'un faisceau gaussien de profil spatial quelconque (astigmatique) et valable pour un profil temporel quelconque du pulse laser. Les cas particuliers et pratiques des faisceaux gaussiens elliptique et circulaire peuvent être facilement déduits.

Pour étudier l'effet des paramètres du faisceau gaussien incident et des propriétés de l'échantillon de l'absorption non linéaire à deux photons, nous avons réalisé des simulations. Ces dernières consistent à représenter les courbes de transmittance normalisé en fonction du déplacement de l'échantillon. Dans cette procédure, on fait varier la valeur d'un paramètre et on fixe les valeurs des autres paramètres. Cette études à mis en lumière plusieurs résultats intéressants :

- L'astigmatisme du faisceau a pour effet de créer une inhomogénéité ou non uniformité de l'intensité optique dans le plan qui contient l'axe optique. En augmentant les valeurs de z_{0x} ou z_{0y} , les courbes de transmittance obtenues se décalent et l'intensité de part ou d'autre de l'axe optique diminue, ce qui explique l'asymétrie observée dans les courbes de

Conclusion générale et perspectives

transmittance. Cependant, cette diminution entraîne une coupure lorsque l'intensité d'une part ou d'autre de l'axe optique devient faible ou nulle.

- L'ellipticité du faisceau gaussien a pour effet de créer une inhomogénéité ou non uniformité de l'intensité optique dans le plan perpendiculaire à l'axe optique, ce qui se traduit à son par une différence dans l'absorption non linéaire suivant les deux directions X et Y .
- L'absorption linéaire renforce et augmente l'absorption non linéaire, étant donné qu'elle ne constitue qu'un mécanisme supplémentaire d'absorption.
- L'augmentation du coefficient d'absorption non linéaire, de l'intensité incidente au centre du faisceau et de l'épaisseur de l'échantillon entraînent également l'augmentation de l'absorption non linéaire, à cause de l'accroissement du nombre d'entités absorbantes (atomes ou molécules) et de photons absorbés.
- L'augmentation des paramètres de Rayleigh a pour effet d'accroître la distance sur laquelle l'absorption non linéaire est maximale. Ce fait se traduit dans les courbes obtenues par un étalement de ce maximum.
- L'augmentation du coefficient de réflexion sur la surface d'entrée de l'échantillon a pour effet de diminuer sa transmittance et d'augmenter son absorption non linéaire. à cause de la diminution de l'intensité lumineuse qui traverse l'échantillon.
- L'efficacité du processus d'absorption non linéaire dépend de l'énergie contenu dans le pulse laser et par conséquent de sa forme temporelle. L'absorption non linéaire est optimale pour une pulse laser de forme sinus cardinal, minimal pour un pulse laser de forme temporelle lorentzienne et modérée pour un pulse laser de forme temporelle gaussienne.

Ces résultats laissent entrevoir plusieurs perspectives :

- L'étude de la compétition et la corrélation entre les effets de deux ou plusieurs paramètres sur l'absorption non linéaire ;
- La réalisation de cartographie de la variation de l'intensité optique dans les plans contenant et perpendiculaire à l'axe optique ;
- La mise en place d'un dispositif expérimental Z-scan pour valiser le modèle élaboré et les résultats obtenues ;
- Généralisation du modèle élaboré pour un processus d'absorption non linéaire d'ordre quelconque $n > 2$.

Bibliographies

- [1] R. L. Sutherland, Handbook of Nonlinear Optics, 2nd edn. CRC Press, New York, 2003.
- [2] Y. R. Shen, the Principles of Nonlinear Optics, Wiley, New York, 1984.
- [3] R. W. Boyd, Nonlinear Optics, Academic Press, New York, 1992.
- [4] M. Goepfert-Mayer, Ann. Phys. 9: 273 (1931).
- [5] T. H. Maiman, Nature, 187 : 493 (1960).
- [6] M. Rumi and J. W. Perry, Two-photon absorption: An overview of measurements and principles, Adv. Opt. Photonics 2: 451–518 (2010).
- [7] D. Rativa, R. E. de Araujo and A. S. L. Gomes, One photon nonresonant high-order nonlinear optical properties of silver nanoparticles in aqueous solution, Opt. Express 16 : 19244–19252 (2008).
- [8] E. L. Falcão-Filho, C. B. de Araújo and J. J. Rodrigues, High-order nonlinearities of aqueous colloids containing silver nanoparticles, J. Opt. Soc. Am. B 24 : 2948 (2007).
- [9] E. L. Falcão-Filho, R. Barbosa-Silva, R. G. Sobral-Filho, A. M. Brito-Silva, A. Galembeck and C. B. de Araújo, High-order nonlinearity of silica-gold nanoshells in chloroform at 1560 nm, Opt. Express 18 : 21366 (2010).
- [10] K. S. Bindra, H. T. Bookey, A. K. Kar, B. S. Wherrett, Nonlinear optical properties of chalcogenide glasses: Observation of multiphoton absorption, Appl. Phys. Lett. 79: 1939 (2001).
- [11] Dawei Kang, Rui Li, Shuo Cao and Mengtao Sun, Nonlinear optical microscopies: physical principle and applications, Applied Spectroscopy Reviews, 56 (1) : 52 (2021).
- [12] T.-C. Lin, Y.-H. Lee, B.-R. Huang, M.-Y. Tsai and J.-Y. Lin, Functionalized tetrafluorenylethylene-type chromophores: Synthesis, two-photon absorption and effective optical power-limiting properties in the visible-to-near IR region, Dyes Pigments 134: 325 (2016).
- [13] T.-C. Lin, J.-Y. Lin, B.-K. Tsai, N.-Y. Liang and W. Chien, Synthesis and multi-photon absorption properties of symmetric bisarylacetylene chromophores using functionalized isomeric pyrazinoindenocarbazole units as the rigid aryl substituents, Dyes Pigments 132 : 347 (2016).
- [14] G. Peramaiyan and R. M. Kumar, Nonlinear optical and laser damage threshold studies of an ammonium p-toluenesulfonate crystal, Appl. Phys. A 119: 707 (2015).

Références Bibliographiques

- [15] R. Thirumurugan and K. Anitha, Structural, optical, thermal, dielectric, laser damage threshold and Z-scan studies on fumarate salt of creatinine: A promising third-order nonlinear optical material, *Mater. Lett.* 206: 30 (2017).
- [16] J. Xu, D. Kang, Y. Zeng, S. Zhuo, X. Zhu, L. Jiang, J. Chen and J. Lin, Multiphoton microscopy for label-free identification of intramural metastasis in human esophageal squamous cell carcinoma, *Biomed. Opt. Express* 8: 3360 (2017).
- [17] H. Zhang, N. Alifufa, T. Jiang, Z. Zhu, Y. Wang, J. Hua and J. Qian, Biocompatible aggregation-induced emission nanoparticles with red emission for in vivo three-photon brain vascular imaging, *J. Mater. Chem. B* 5: 2757 (2017).
- [18] Frank Schlawin, Konstantin E. Dorfman and Shaul Mukamel, Entangled Two-Photon Absorption Spectroscopy, *Acc. Chem. Res.* 2018, 51 (9) : 2207 (2018).
- [19] Ferhat Kessi and Hamadouche Naima, Analytical model for a single multiphoton absorption process, *Journal of Nonlinear Optical Physics & Materials*, 28 (1): 1950004 (2019).
- [20] Ferhat Kessi and Naima Hamadouche, Z-scan theoretical model for simultaneous n- and $n+1$ -photon absorption, *Journal of Nonlinear Optical Physics & Materials*, 28 (3): 1950022.
- [21] Abdelillah Taouri, Études de l'absorption à deux photons dans des matériaux organiques à l'aide de la technique dite de la lentille thermique, thèse de doctorat, Université d'Angers, Angers, France, 2010.
- [22] M. Sheik-Bahae, A.A. Said and E.W. Van Stryland. High-sensitivity, single-beam n_2 measurements, *Opt. Lett.* 14: 955 (1989).
- [23] M. Sheik-Bahae, A.A. Said, T.H. Wei, D.J. Hagan and E.W.V. Stryland. Sensitive measurement of n_2 using a single beam, *Proc. SPIE*, 1438: 126 (1989).
- [24] M. Sheik-Bahae, A.A. Said, T.H. Wei and D.J. Hagan, E.W.V. Stryland. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam, *IEEE J. Quantum Electron* 26: 760 (1990).
- [25] P. B. Chapple, J. Staromlynska, J. A. Hermann, T. J. McKay and R. G. McDuff, Single-Beam Z-Scan: Measurement Techniques and Analysis, *Journal of Nonlinear Optical Physics & Materials*, 6 (3) : 251 (1997).
- [26] Julien Hillairet, Applications du formalisme des faisceaux gaussiens à la modélisation de l'interaction d'une onde électromagnétique avec un objet 3D complexe, thèse de doctorat, UNIVERSIT'É TOULOUSE III - PAUL SABATIER (France), 2008.

Références Bibliographiques

- [27] Andrei D. Polyandin and Alexander V. Manzhurov, HANDBOOK OF MATHEMATICS FOR ENGINEERS AND SCIENTISTS, Taylor & Francis Group, LLC, 2007.
- [28] B. E. A. Saleh and M. C. Teich, Fundamentals of Photonics, 2nd edition, Wiley, 2007.
- [29] A. E. Siegman, Lasers, University Science Books, California, 1986.
- [30] G. Tsigaridas, M. Fakis, I. Polyzos, P. Persephonis and V. Giannetas, Z-scan analysis for high order nonlinearities through Gaussian decomposition, Optics Communications 225 : 253 (2003).
- [31] Simin Feng Herbert G. Winful, Physical Origin of the Gouy Phase Shift, Optics Letters, 26 (8) : 485 (2001).
- [32] Ferhat Kessi and Hamadouche Naima, Open Z-scan analytical model for multiphoton absorption, Journal of Optics, 49: 305 (2020).
- [33] D. Zwillinger: Handbook of Differential Equations, MA: Academic Press, Boston, 1997.
- [34] D. S. Corrêa, L. De Boni, L. Misoguti, I. Cohanoschi, F. E. Hernandez and C. R. Mendonça, Z-scan theoretical analysis for three-, four-, and five-photon absorption, Opt. Commun. 277: 440 (2007).
- [35] A. Dement'ev, A. Jovaiša, Pulse Shape Influence on the Accuracy of Z-scan Measurements, Nonlinear Analysis: Modelling and Control, 10 (2): 119 (2005).

Liste des figures

<i>figures</i>	<i>Page</i>
Figure 1.1 : Représentation schématique de la déformation du nuage électronique d'un atome soumis à un champ électrique oscillant, où \vec{r} représente le déplacement	3
Figure 1.2 : Schéma de l'absorption à deux photons : à gauche avec un seul faisceau et à droite avec deux faisceaux.	9
Figure 1.3 : Schéma de l'absorption à trois photons avec : (a) un seul faisceau ; (b) deux faisceaux ; (c) trois faisceaux.	12
Figure 1.4 : Principe de la fluorescence induite par l'absorption à deux photons	13
Figure 1.5 : Schéma descriptif de la méthode de transmission à un faisceau	14
Figure 1.6 : Principe de mesure de la transmission non linéaire	15
Figure 1.7 : Courbes de transmittance en fonction de l'énergie incidente	15
Figure 1.8 : Schéma du montage expérimental de la technique Z-scan	16
Figure 1.9 : Allure des courbes de transmission normalisée dans le cas d'une variation d'indice positive ou négative dans l'échantillon	17
Figure 1.10 : Allure de la courbe de transmission en configuration Z-scan ouverte	18
Figure 1.11 : Allure de la courbe de transmission en configuration z-scan intermédiaire.	18
Figure 1.12 : Illustration des paramètres d'un faisceau gaussien circulaire	19
Figure 2.1 : Illustration des paramètres d'un faisceau gaussien classique dans le plan (XOZ)	28
Figure 2.2 : Faisceau gaussien	28
Figure 2.3 : Faisceau gaussien elliptique	29
Figure 2.4 : Faisceau gaussien astigmatique	29
Figure 2.5 : Illustration du processus d'absorption non linéaire dans un matériau d'épaisseur L	32
Figure 3.1 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs du paramètre (z_{0y})	45
Figure 3.2 : Variation du minimum de la transmittance normalisée en fonction paramètre z_{0y}	46
Figure 3.3 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs paramètre (z_{0x})	46
Figure 3.4 : Variation du minimum de la transmittance normalisée en fonction paramètre (z_{0x}).	47

Liste des figures et des tableaux

Figure 3.5 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs du coefficient d'absorption linéaire	49
Figure 3.6 : Variation du minimum de la transmittance normalisée en fonction du coefficient d'absorption linéaire.	49
Figure 3.7 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs du coefficient d'absorption non linéaire.	51
Figure 3.8 : Variation du minimum de la transmittance normalisée en fonction du coefficient d'absorption non linéaire	51
Figure 3.9 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs de l'intensité incidente.	53
Figure 3.10 : Variation du minimum de la transmittance normalisée en fonction de l'intensité incidente.	53
Figure 3.11 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs de l'épaisseur de l'échantillon.	55
Figure 3.12 : Variation du minimum de la transmittance normalisée en fonction de l'épaisseur de l'échantillon.	55
Figure 3.13 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs du paramètre z_{Ry} .	57
Figure 3.14 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes valeurs du coefficient de réflexion de Fresnel.	59
Figure 3.15 : Variation du minimum de la transmittance normalisée en fonction du coefficient de réflexion de Fresnel.	59
Figure 3.16 : Les représentations graphiques des enveloppes temporelles données dans le tableau 3.1.	61
Figure 3.17 : Courbes de transmittance normalisée obtenues pour différentes enveloppes temporelles du pulse laser.	62

Liste des tableaux

<i>Les tableaux</i>	<i>page</i>
Tableau 1.1 : Quelques effets et applications des processus linéaires, non linéaires quadratiques et cubiques	7
Tableau 2.1 : Valeurs typiques de l'intensité lumineuse, de la section efficace d'absorption et du coefficient d'absorption non linéaire pour des processus d'absorption non linéaires à 2, 3, 4 et 5 photons	37
Tableau 2.2 : Quelques formes mathématiques de l'enveloppe temporelle du pulse	41
Tableau 3.1 : Les expressions mathématiques $h(t)$ de quelques enveloppes temporelles du pulse laser ainsi que les quantités $\int_{-\infty}^{+\infty} h(t)dt$ et $\int_{-\infty}^{+\infty} [h(t)]^2 dt$	60
Tableau 3.2 : Valeurs minimales de la transmittance normalisée pour différentes enveloppes temporelles du pulse laser.	61

Résumé

Dans ce travail, un modèle théorique a été construit et des simulations ont été réalisées pour étudier l'absorption non linéaire à deux photons, en utilisant un faisceau gaussien elliptique. L'utilisation de ce type de faisceaux gaussiens permet de tenir compte des distorsions du faisceau dues à l'astigmatisme, introduit par les problèmes de désalignements. Nous avons ainsi obtenu une forme analytique de la transmittance normalisée adéquate à d'éventuels réajustements et simulations. Grâce à l'expression de cette transmittance, nous avons réalisé des simulations pour étudier l'effet des caractéristiques du faisceau gaussien elliptique incidents et des propriétés de l'échantillon sur l'absorption non linéaire à deux photons.

Mots clés : absorption à deux photons, faisceau gaussien elliptique, Z-scan, transmittance optique normalisée

Abstract

In this work, a theoretical model was developed and simulations were performed to study the two-photon absorption, using an elliptical Gaussian beam. The use of this type of Gaussian beams makes it possible to take into account the distortions of the beam due to astigmatism, introduced by the misalignments problems. We have thus obtained an analytical form of optical normalized transmittance suitable for possible fitting and simulations. Using the expression of this transmittance, we performed simulations to study the effect of the incident elliptical Gaussian beam characteristics and sample properties on two-photon absorption.

Keywords: two-photon absorption, elliptical Gaussian beam, Z-scan, normalized optical transmittance
