

# Caractérisation non linéaire de composants optiques d'une chaîne laser de forte puissance



**Stéphane Santran**

## Co-tutelle :

- Centre de Physique Moléculaire Optique et Hertzienne (CPMOH), Talence  
Laurent Sarger (Professeur)

- Centre d'Etude Scientifique et Technique d'Aquitaine (CEA/CESTA), Le Barp  
Claude Rouyer (Ingénieur de Recherche CEA)

## Collaborations :

- Institut de Chimie et de la Matière Condensée de Bordeaux (ICMCB), Talence
- Laboratoire de Sciences des Procédés Céramiques et de Traitements de Surface de Limoges.
- Laboratoire de Physico-Chimie de la Matière Condensée de Montpellier.
- CREOL, University of Central Florida.

# Caractérisation des propriétés non linéaires des matériaux ?

$n_d = 1.95250$      $v_d = 20.36$      $n_F - n_C = 0.046774$   
 $n_e = 1.96349$      $v_e = 20.21$      $n_F - n_C = 0.047684$

**SF 59 – 953 204**

←  $n_2$  (SF59) 800nm =  $4,5 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2/\text{W}$

Indices de réfraction		
	$\lambda$ [nm]	
$n_{2325.4}$	2325.4	
$n_{1970.1}$	1970.1	
$n_{1529.6}$	1529.6	
$n_{1060.0}$	1060.0	1.90784
$n_t$	1014.0	1.90975
$n_s$	852.1	1.91865
$n_i$	706.5	1.93221
$n_C$	656.3	1.93928
$n_{C'}$	643.8	1.94132
$n_{832.8}$	632.8	1.94325
$n_D$	589.3	1.95210
$n_D$	587.6	1.95250
$n_e$	546.1	1.96349
$n_F$	486.1	1.98605
$n_F$	480.0	1.98900
$n_g$	435.8	2.01559
$n_h$	404.7	2.04279
$n_l$	365.0	

Constantes de la formule de dispersion	
$A_0$	3.6049456
$A_1$	$-1.7579501 \cdot 10^{-2}$
$A_2$	$5.4777275 \cdot 10^{-2}$
$A_3$	$8.0837909 \cdot 10^{-3}$
$A_4$	$-7.6975589 \cdot 10^{-4}$
$A_5$	$7.9262505 \cdot 10^{-5}$

Ecart des dispersions part. rel. $\Delta P$ par rapport à la «droite normale»	
$\Delta P_{C,t}$	-0.0103
$\Delta P_{C,s}$	-0.0093
$\Delta P_{F,e}$	0.0047
$\Delta P_{g,F}$	0.0219
$\Delta P_g$	

Dispersion partielle relative	
$P_{s,t}$	0.1903
$P_{C,s}$	0.4410
$P_{d,C}$	0.2826
$P_{d,d}$	0.2351
$P_{g,F}$	0.6314
$P_{t,h}$	
$P_{s,t}$	0.1866
$P_{C,s}$	0.4753
$P_{d,C'}$	0.2344
$P_{e,d}$	0.2306
$P_{g,F}$	0.5575
$P_{t,h}$	

Autres propriétés	
$\alpha_{-30/+70^\circ\text{C}}$ [ $10^{-6}/\text{K}$ ]	9.4
$\alpha_{20/300^\circ\text{C}}$ [ $10^{-6}/\text{K}$ ]	10.3
$T_g$ [ $^\circ\text{C}$ ]	362
$T_{107.6}$ [ $^\circ\text{C}$ ]	
$c_p$ [ $\text{J/g} \cdot \text{K}$ ]	0.306
$\lambda$ [ $\text{W/m} \cdot \text{K}$ ]	0.506
$\rho$ [ $\text{g/cm}^3$ ]	6.26
$E$ [ $10^3 \text{ N/mm}^2$ ]	51
$\mu$	0.269
HK	250
B	3
CR	4 (1.8)
FR	5
SR	53 (2)
AR	3.4

Coefficients de température de la réfraction										
[ $^\circ\text{C}$ ]	$\Delta n / \Delta T_{\text{retrait}}$ [ $10^{-6}/\text{K}$ ]					$\Delta n / \Delta T_{\text{prolong}}$ [ $10^{-6}/\text{K}$ ]				
	1060.0	s	C'	e	g	1060.0	s	C'	e	g
-40/-20										
-20/0										
0/+20										
+20/+40										
+40/+60										
+60/+80										

Transmission intrinsèque $\tau_i$		
$\lambda$ [nm]	$\tau_i$ (5 mm)	$\tau_i$ (25 mm)
2325.4	0.950	0.76
1970.1	0.986	0.93
1529.6	0.998	0.990
1060.0	0.997	0.985
700	0.994	0.972
660	0.994	0.972
620	0.995	0.974
580	0.995	0.974
546.1	0.992	0.960
500	0.977	0.89
460	0.94	0.73
435.8	0.89	0.57
420	0.82	0.38
404.7	0.67	0.14
400	0.60	0.08
390	0.44	0.02
380	0.21	
370	0.03	
365.0		
350		
334.1		
320		
310		
300		
290		
280		

Remarques	

- Utilisation de plus en plus courante de lasers impulsions délivrant de fortes puissances crêtes.

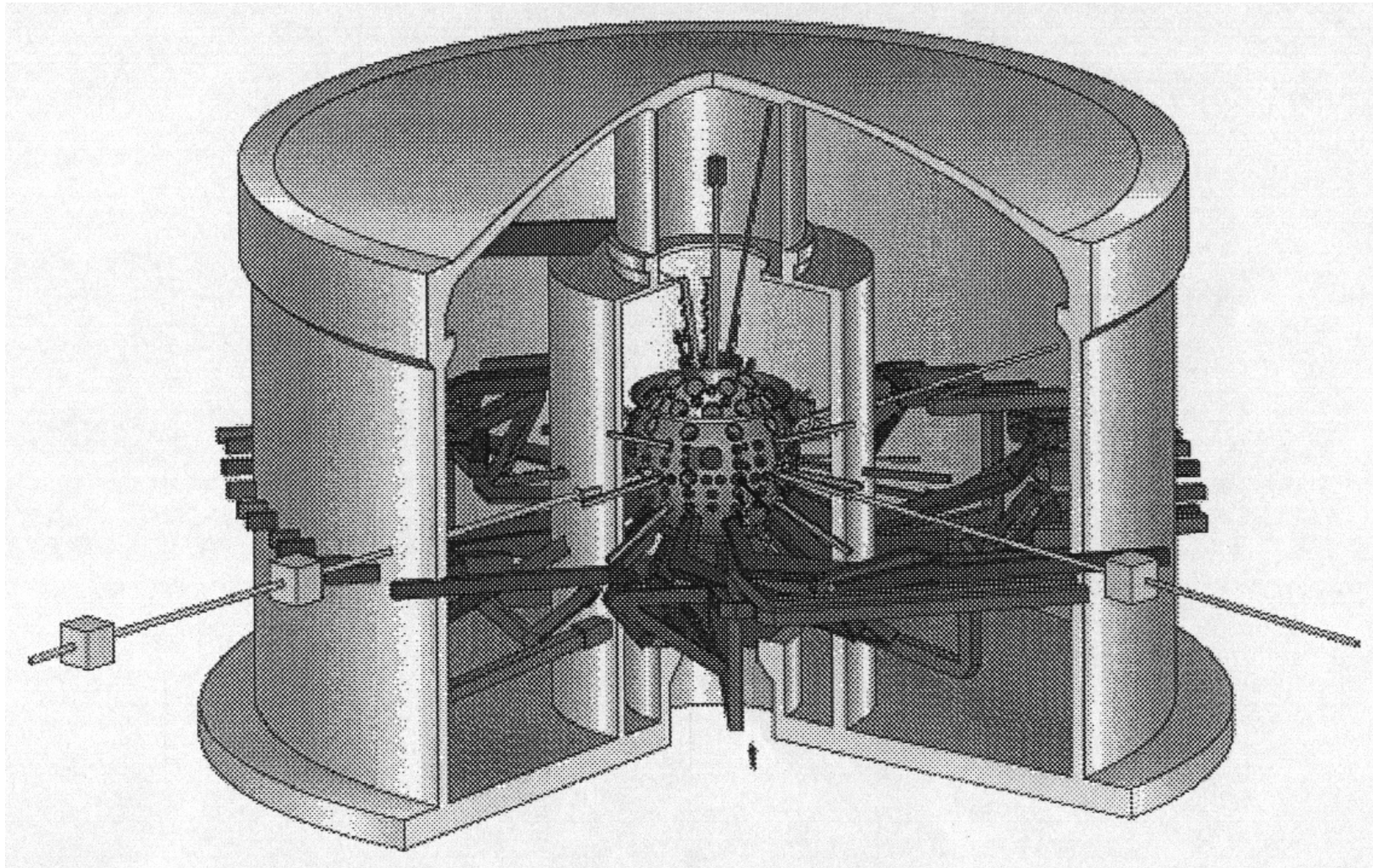
- Il devient nécessaire de compléter les tables des caractéristiques des matériaux par l'indice non linéaire.

- Contrôle de la propagation des faisceaux.

- Eviter l'endommagement des optiques.

# Caractérisation des propriétés non linéaires des matériaux ? (« Chasse au $n_2$ »)

## Bâtiment de la chambre du Laser Méga Joule (LMJ)



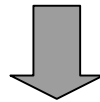
# Caractérisation des propriétés non linéaires des matériaux ?

(« Chasse au  $n_2$  »)

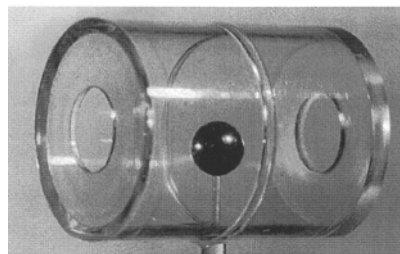
**Matériaux des composants optiques d'une chaîne laser de forte puissance :**

- **Silice fondue**
- **Verre phosphate dopé au Néodyme**
- **Cristaux de KDP**

**Variation de 10% sur l'indice non linéaire de silice fondue**



**Variation de 10% sur l'énergie déposée sur la cible.**



- **Choix de la silice fondue pour le LMJ (meilleur compromis prix, qualité optique)**
- **Alimentation du code de calculs MIRO (propagation de l'impulsion lumineuse dans la chaîne)**
- **Contrôle qualité des différents composants de la chaîne.**

# Caractérisation des propriétés non linéaires des matériaux ? (Utilisation du $n_2$ )

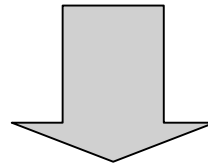
- **Optoélectronique (composants électroniques ultra rapides)**

Commutation tout optique

Capteurs en optique intégré

- **Oscillateurs lasers : caractérisation des optiques (milieu amplificateur)**

Nécessité de développer une instrumentation capable  
de mesurer l'indice non linéaire d'un matériau de  
manière précise et absolue.



Métrologie de la non linéarité  
Précision  
Sensibilité

# Plan

## **I - Comment mesurer l'indice non linéaire d'un matériau ?**

- 1. L'interaction laser matière.**
- 2. Régimes de propagation.**
- 3. Effet de la susceptibilité non linéaire sur les observables d'une impulsion lumineuse.**
- 4. Introduction de l'expérience pompe sonde colinéaire.**

## **II - L'expérience pompe sonde colinéaire.**

- 1. Schéma expérimental.**
- 2. Analyse théorique du signal, mesure différentielle en temps réel.**
- 3. Acquisition du signal et traitement du signal.**

## **III - Résultats expérimentaux.**

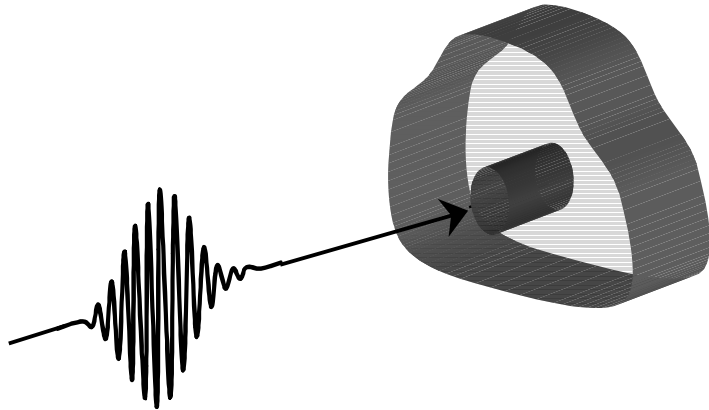
- 1. Etude de la susceptibilité non linéaire de la silice fondue.**
- 2. Mesures de verres composés de niobium et de titane. Dépendance de la non linéarité en fonction de la structure du verre.**
- 3. Mesures de verres composés de tellure. Dépendance de la non linéarité en fonction de la configuration électronique des ions introduits.**
- 4. Mesures de chalcogénures.**

I

Comment mesurer l'indice non  
linéaire d'un matériau ?



# L'interaction laser matière



$$\mathbf{P}_{\text{linéaire}}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \int_{\mathbf{R}^3} \int_{-\infty}^{+\infty} R^{(1)}(\mathbf{r}_1, t_1) \mathbf{E}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_1, t - t_1) dt_1 d\mathbf{r}_1$$

$$\mathbf{P}_{\text{NL}}^3(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \iint R^{(3)}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3, t_1, t_2, t_3) \mathbf{E}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_1, t - t_1) \mathbf{E}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_2, t - t_2) \mathbf{E}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_3, t - t_3) d^3\mathbf{r} d^3t$$

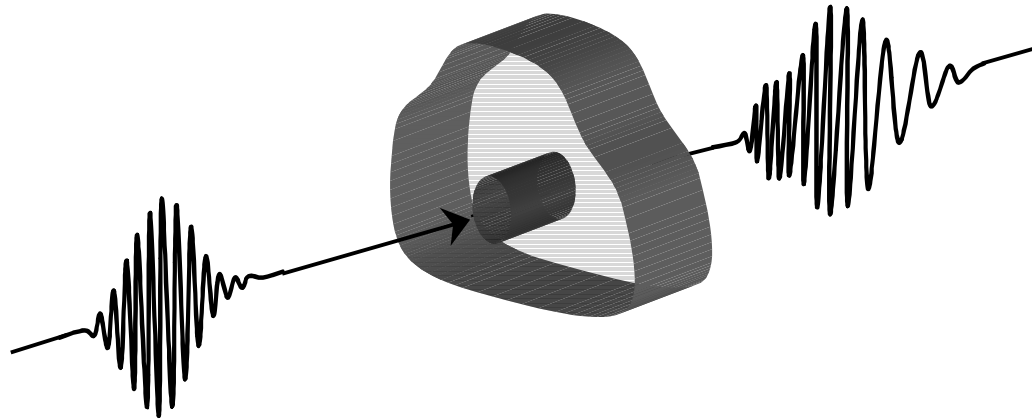
- Approximation de la localité spatiale
- Uniquement processus électroniques  $\rightarrow$  réponse instantanée

$$\mathbf{P}_{\text{NL}}^3(\mathbf{r}, t) = \sigma \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$$

Ondes planes  $n = n_0 + n_2 I$

En fréquence :  $\chi^{(3)}(\omega)$

## L'interaction laser matière



$$n = n_0 + n_2 I$$

**Equation de propagation de l'amplitude complexe du champ :**

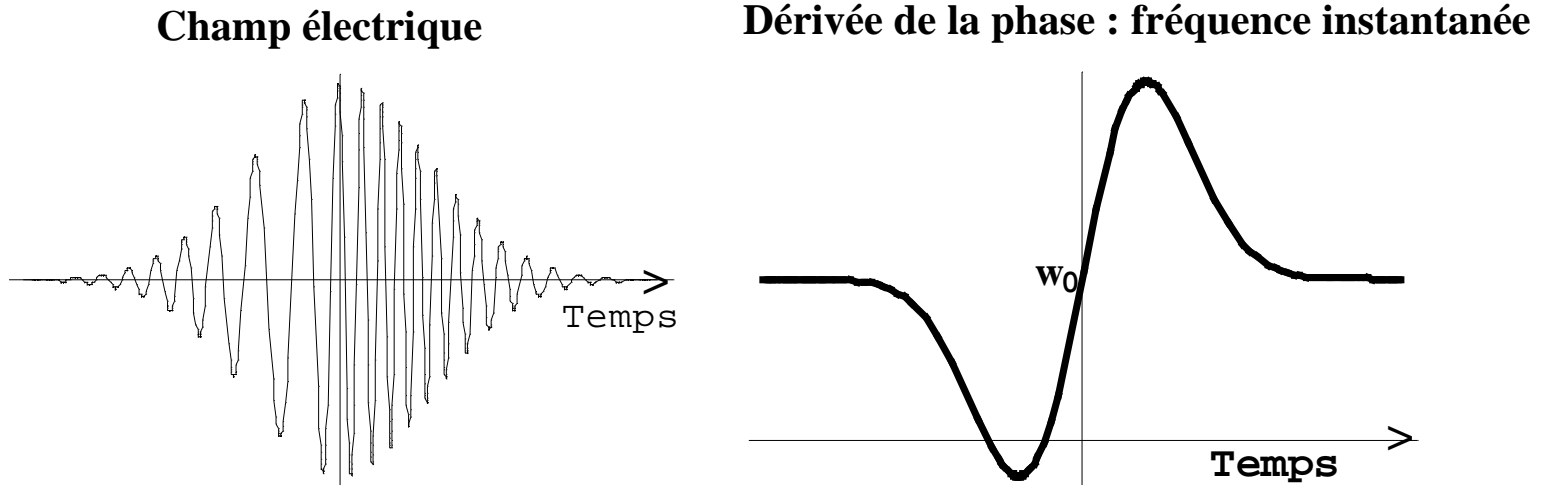
$$\Delta_{\perp} A(r,t) - 2ik(\omega_0) \left( \frac{\partial A(r,t)}{\partial z} + \left( \frac{dk}{d\omega} \right)_{\omega_0} \frac{\partial A(r,t)}{\partial t} \right) - \left( k(\omega_0) \left( \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right)_{\omega_0} + \left( \frac{dk}{d\omega} \right)_{\omega_0}^2 \right) \frac{\partial^2 A(r,t)}{\partial t^2} = \mu_0 \left( 2i\omega_0 \frac{\partial p_{nl}(r,t)}{\partial t} - \omega_0^2 p_{nl}(r,t) \right)$$

$$\Rightarrow \Delta_{\perp} A(r,t') - 2ik(\omega_0) \frac{\partial A(r,t')}{\partial z} = -\mu_0 \omega_0^2 p_{nl}(r,t')$$

**Equation sans solution analytique → nécessité de se placer dans des conditions où les effets non linéaires sont faibles : régime de perturbation.**

# Conditions de propagation pour de faibles effets (SPM)

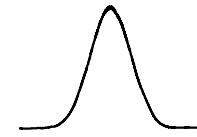
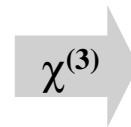
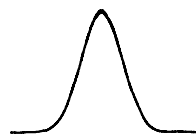
**Automodulation de phase :**



**Glissement des fréquences dans l'impulsion.**

**Condition de propagation :**

**Le spectre de l'impulsion  $I(\omega)$ .**

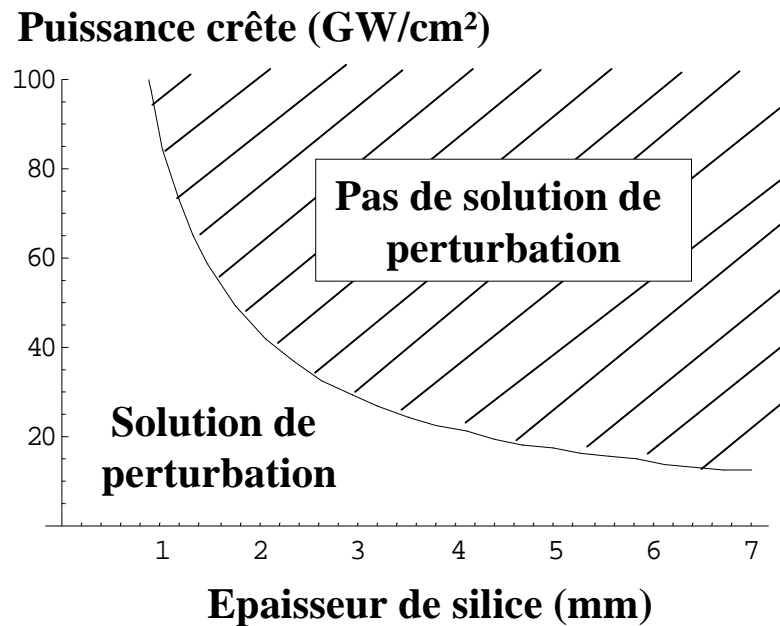


**Spectre inchangé**

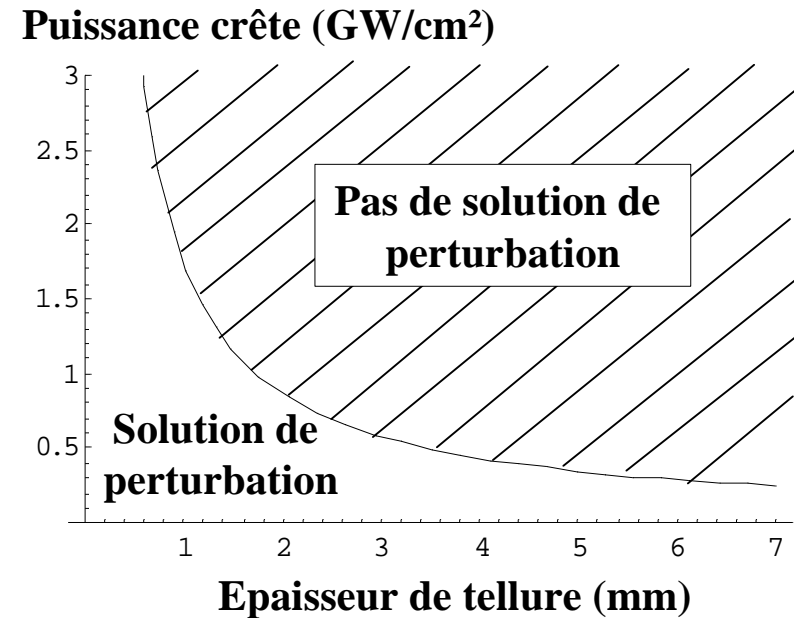
## Conditions de propagation pour de faibles effets (SPM)

- Borne supérieure de la puissance crête :

Courbes correspondant à un déphasage non linéaire de 1 rad  
(longueur d'automodulation de phase)



$$W_0 = 30\mu\text{m}$$



- Borne inférieure de la puissance crête : rapport signal sur bruit.

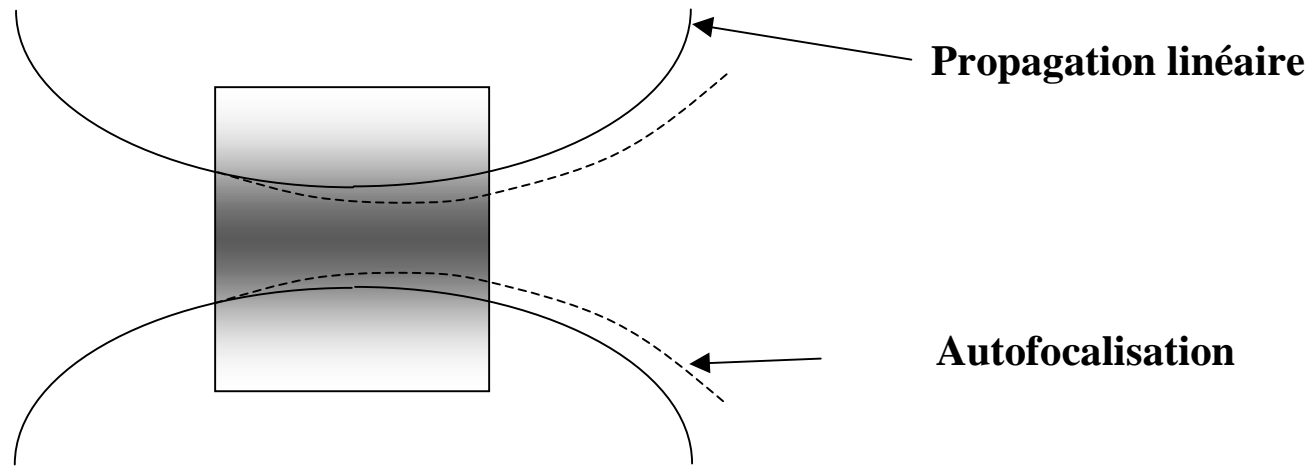
Echantillon de silice de 5mm :

$$0,5 \text{ GW/cm}^2 < P_c < 18 \text{ GW/cm}^2$$

Echantillon de tellure de 1mm :

$$0,1 \text{ GW/cm}^2 < P_c < 1,7 \text{ GW/cm}^2$$

# Conditions de propagation pour de faibles effets (Autofocalisation)



Echantillon de silice de 5mm :  
 $P_c < 18 \text{ GW/cm}^2$

Echantillon de tellure de 1 mm :  
 $P_c < 1,7 \text{ GW/cm}^2$

Variation de la taille du col du faisceau  
inférieure à 3 - 4% (pour  $w_0 = 30 \mu\text{m}$ )

- Milieu fin
- Puissance crête limitée

# Conditions d'expérience

## Caractéristiques du faisceau laser :

- Largeur temporelle : 150 fs
  - Puissance moyenne : 500 mW
  - Taux de répétition : 80 MHz
  - Col de faisceau : 30  $\mu\text{m}$
  - Puissance crête : 34,5 kW
  - Puissance crête focalisée : 2,5 GW/cm<sup>2</sup>
  - Energie par impulsion : 5 nJ
- 
- Longueurs d'ondes : 400nm - 450nm; 700nm - 950nm; 1,25 $\mu\text{m}$  - 1,55 $\mu\text{m}$

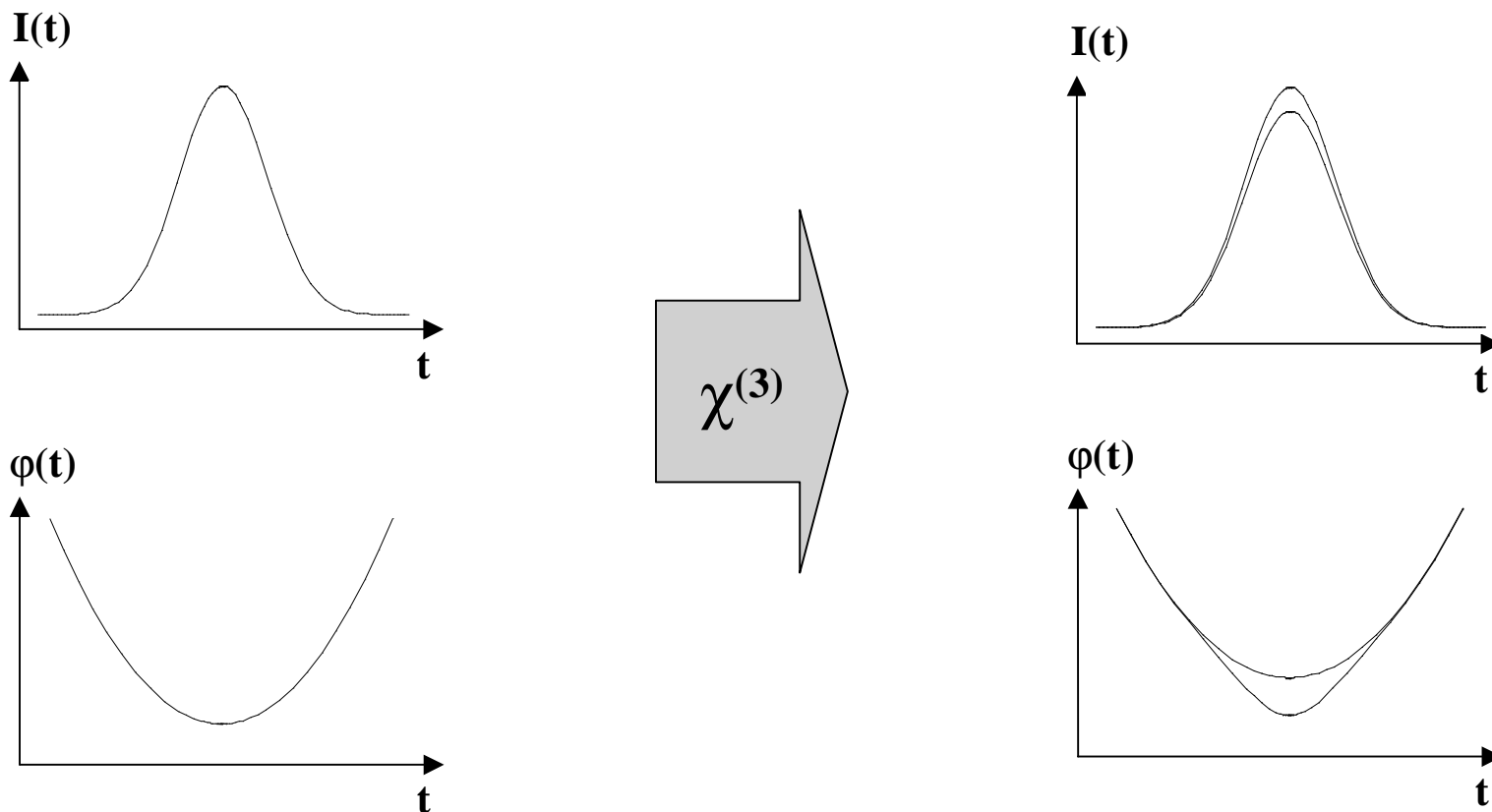
## Caractéristiques de l'échantillon :

- Non absorbant à la longueur d'onde du laser
- Polissage qualité optique
- Epaisseur permettant de rester dans les conditions d'un milieu fin :
  - ~ 5 mm pour les échantillons faiblement non linéaires
  - ~ 1 mm pour les échantillons fortement non linéaires.
- Aucune dépolarisation

# Effet de la susceptibilité non linéaire sur les observables temporelles d'une impulsion lumineuse.

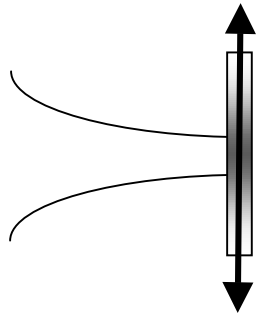
- Observation du processus non linéaire en temps : expérience de caractérisation d'une impulsion.

Intégration sur l'espace



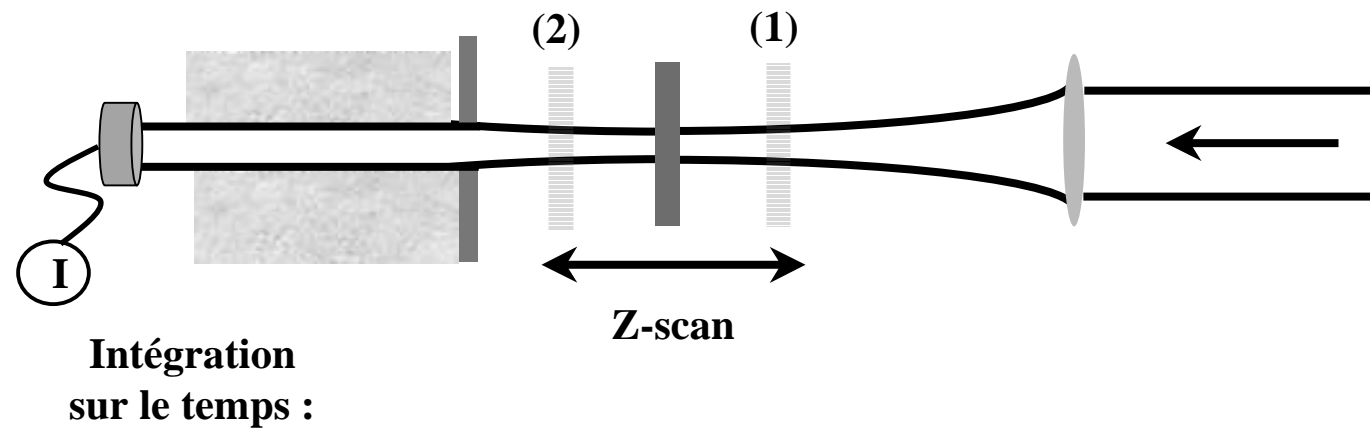
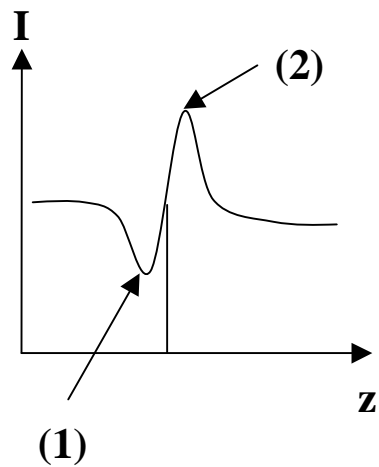
# Effet de la susceptibilité non linéaire sur les observables spatiales d'une impulsion lumineuse.

- **Observation spatiale du processus non linéaire (expérience Z-scan) :**



Création d'une lentille Kerr sur lequel le faisceau va se diffracter

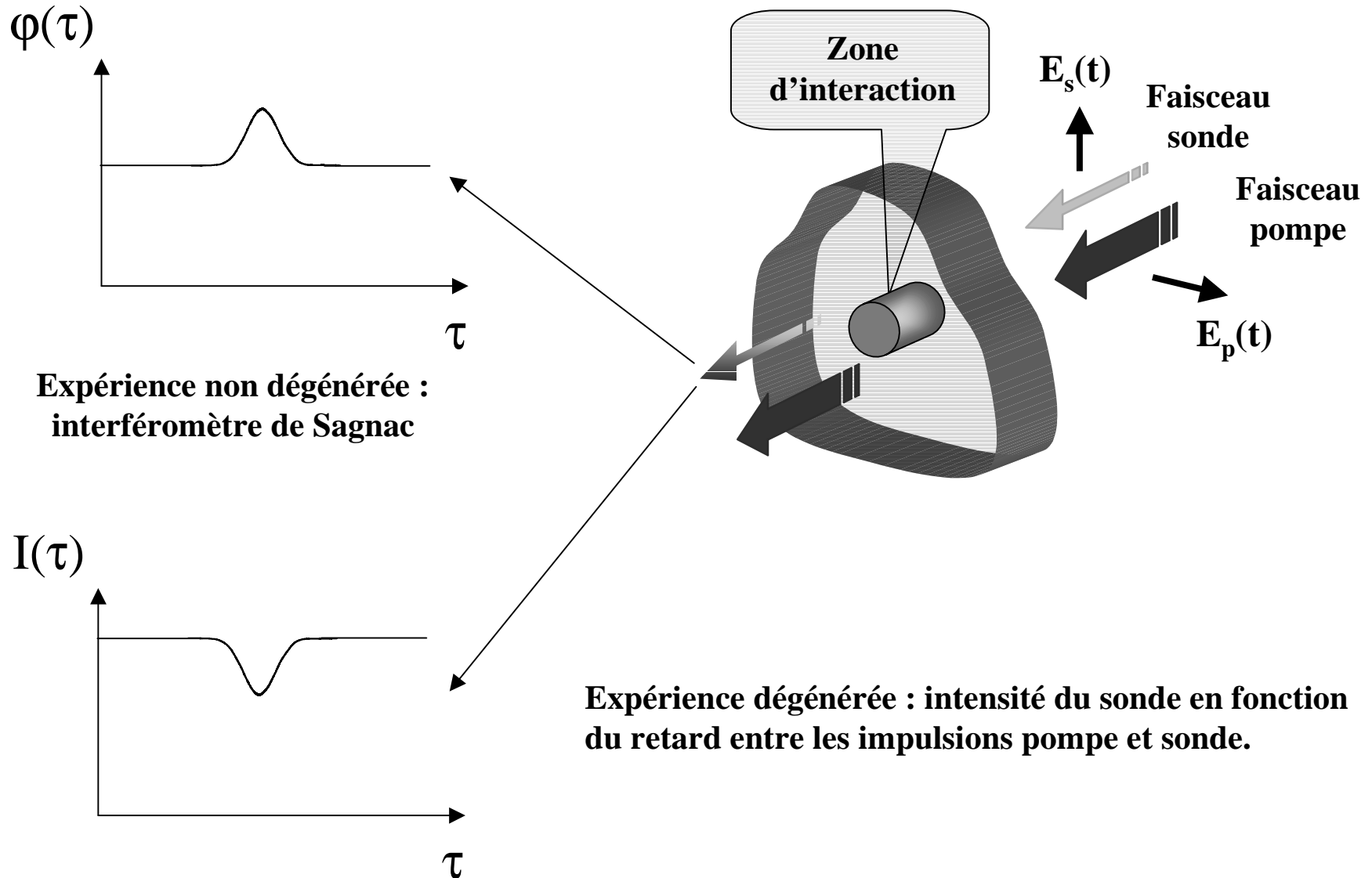
Modification du rayon de courbure du champ → modification de la phase spatiale du champ.



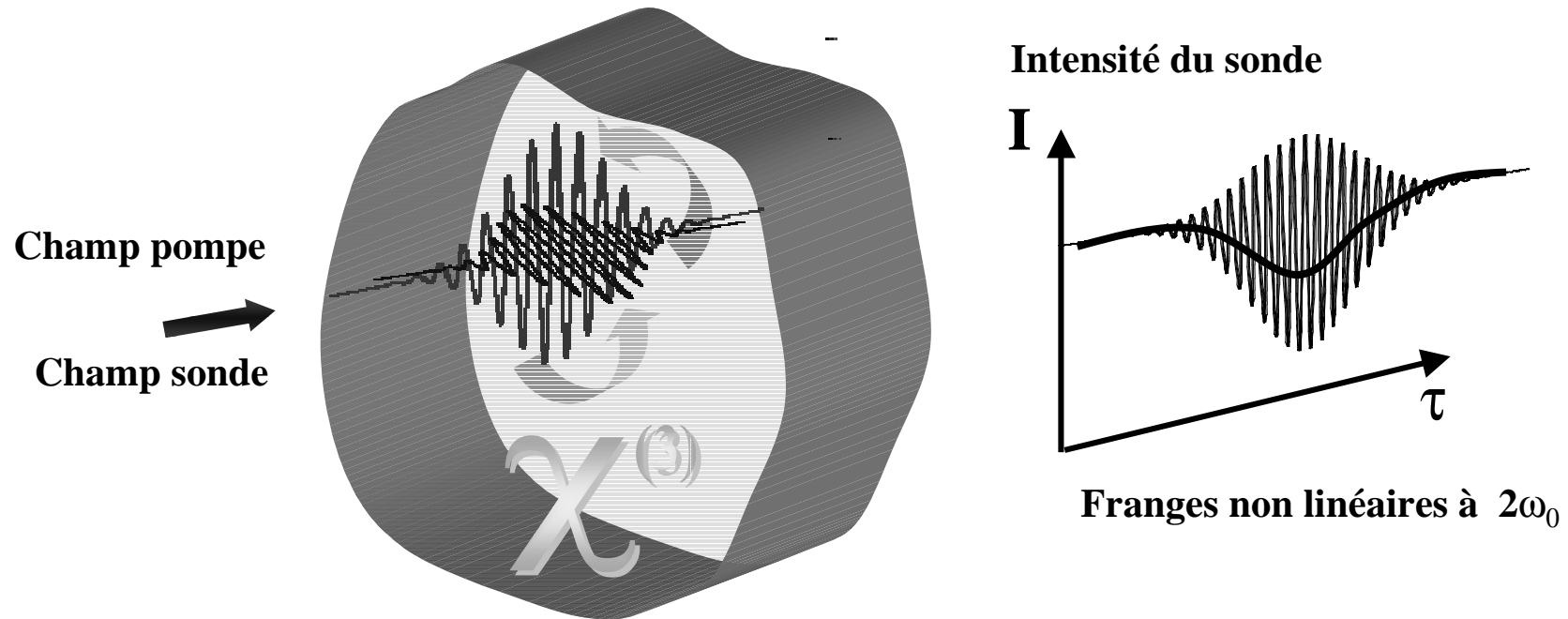




# Technique pompe sonde colinéaire



# Variation de l'intensité du sonde en fonction du retard pompe sonde : franges non linéaires

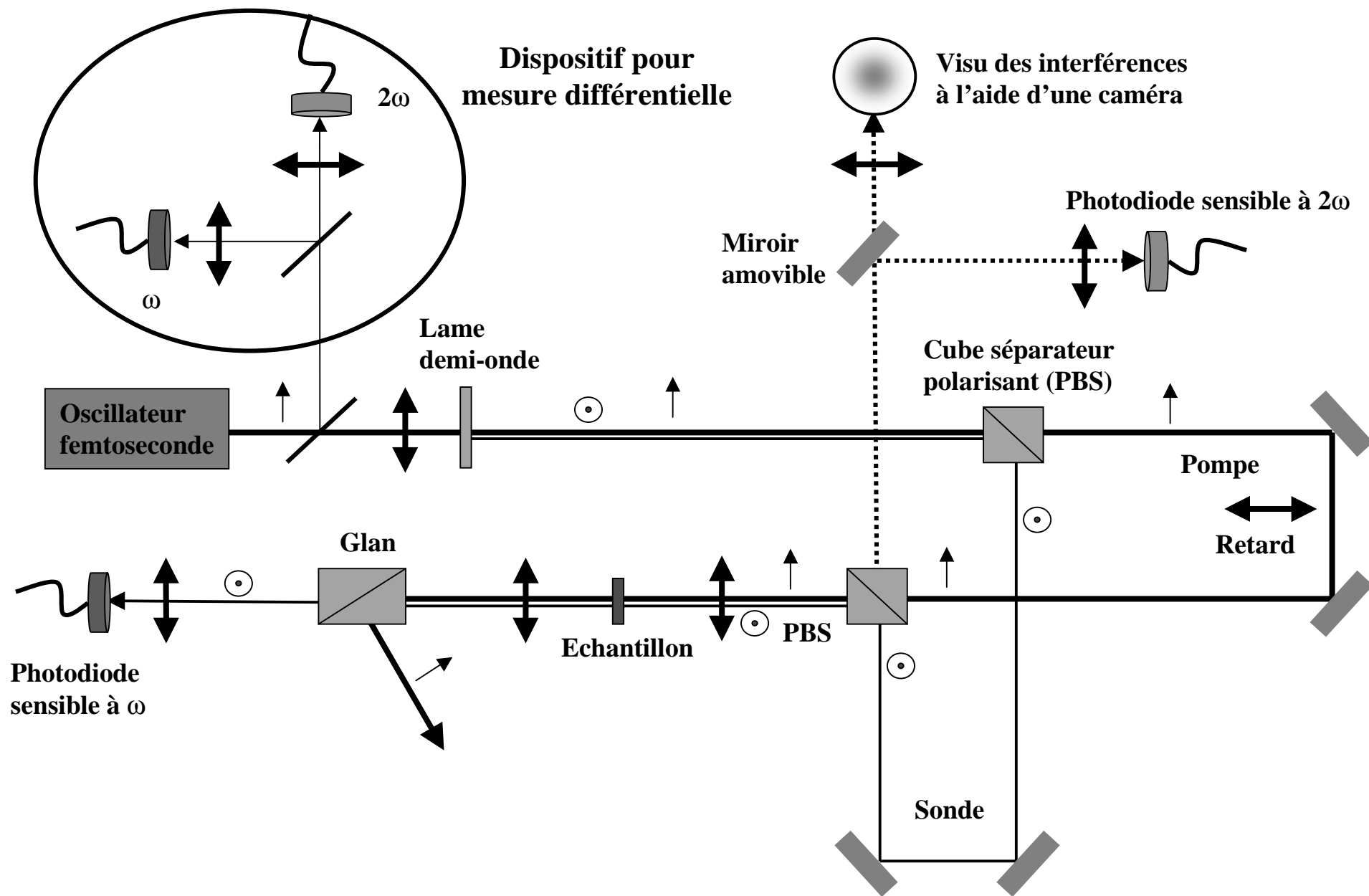


- Couplage pompe sonde :
- Variation moyenne de l'intensité du sonde : absorption non linéaire
  - Variations rapides de l'intensité du sonde, interférences non linéaires : réfraction non linéaire

## II

# Expérience pompe sonde colinéaire

# Schéma expérimental



## Analyse théorique du signal

$$\Delta_{\perp} A_s(r,t) - 2ik(\omega_0) \frac{\partial A_s(r,t)}{\partial z} = -\frac{3k_0^2}{4} \chi^{(3)} \left[ 2A_s(r,t) |A_p(r,t)|^2 + \bar{A}_s(r,t) A_p^2(r,t) e^{-2i\omega_0\tau} \right]$$

$$\chi^{(3)} = (\alpha - i\beta)$$

**Résolution par perturbation :**

**Photodiode signal (un photon)**

**Au premier ordre :**



$$S_0 = f(I_p(r,t), \lambda, n_0, e) \left| 2\beta + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \sin(2\omega_0\tau - \phi) \right|$$

$$I_p(r,t) \left\{ \begin{array}{l} \mathbf{P_m} : \text{Puissance moyenne} \\ \mathbf{T} : \text{taux de répétition} \\ \mathbf{w_0} : \text{taille du col du faisceau} \\ \mathbf{\tau_0} : \text{largeur temporelle} \end{array} \right.$$

$\lambda$  : longueur d'onde

$e$  : épaisseur de l'échantillon

$n_0$  : indice linéaire de l'échantillon

$\tau$  : retard optique

# Etude sur les non linéarités des photodiodes deux photons (utilisées pour l'autocorrélation)

Photodiode deux photons (GaAsP)



$S_2$

Photodiode un photon (Si)



$S_1$

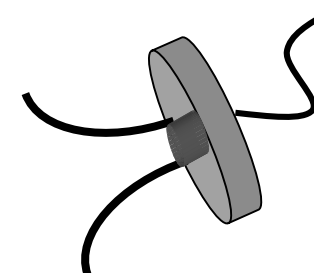
$$a = \Im(\chi_{xxxx}^{(3)})$$

$$b = \Im(\chi_{xyxy}^{(3)})$$

$\theta$  : angle de la polarisation d'entrée du faisceau / axes du cristal

Constante de calibration

$$\frac{S_2}{S_1} = S_{phds} = \kappa f(I(r,t), \lambda, n_0, e) [a + 3b + (a - 3b)\cos(4\theta)]$$



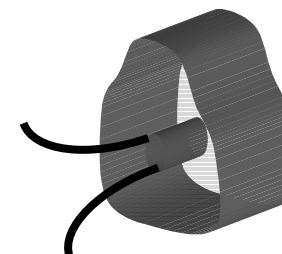
Fluctuations des caractéristiques du laser prises en compte de manière identique dans les deux signaux

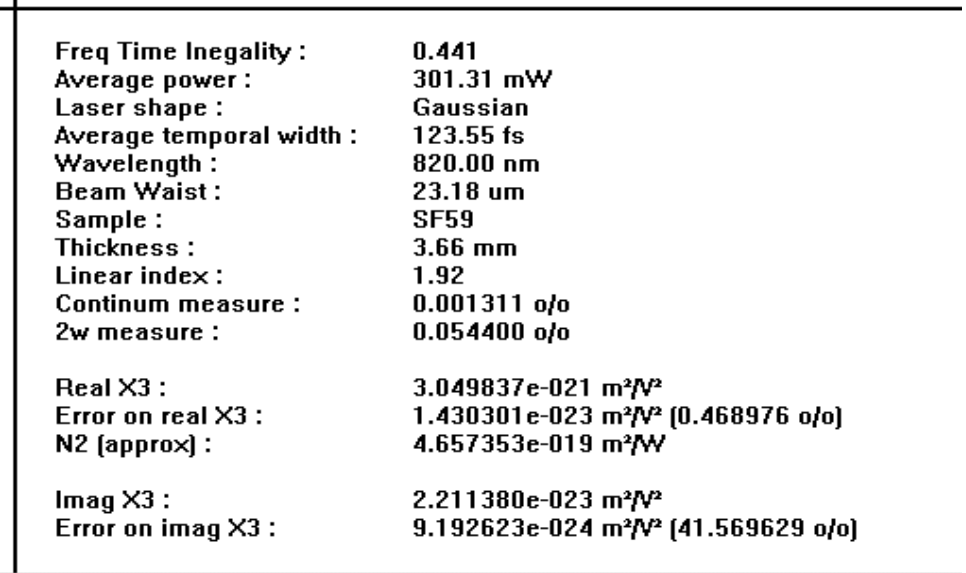
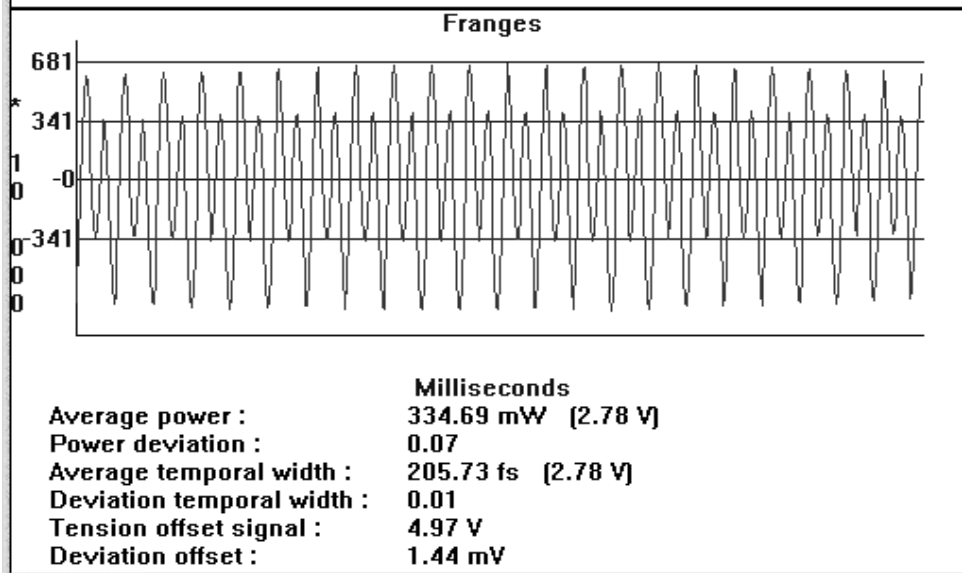
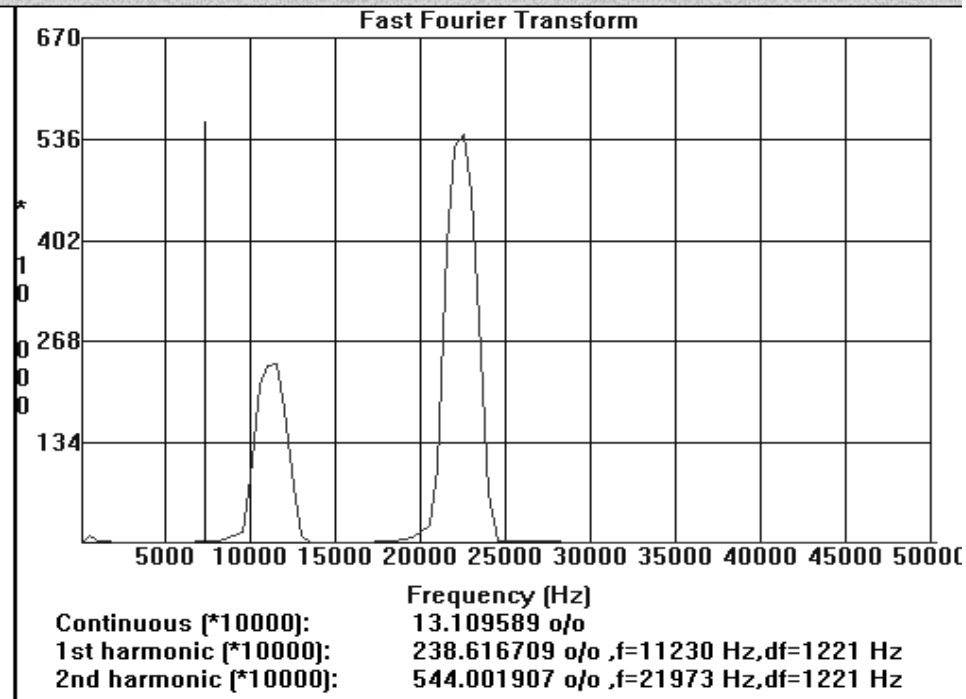
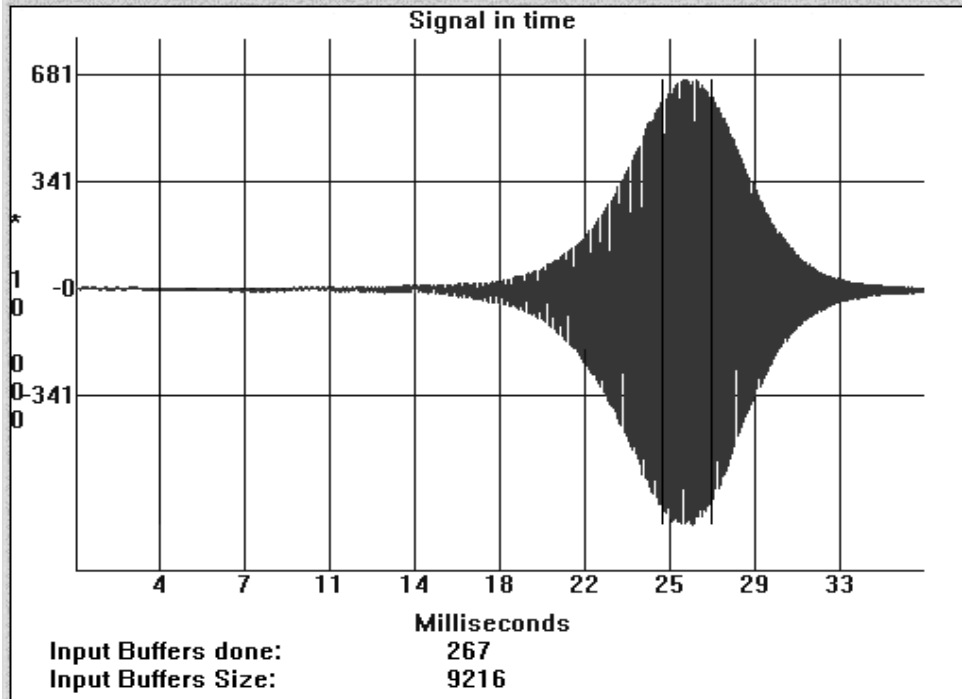


Mesures différentielles

Signal de mesure (échantillon fin) :

$$S_0 = f(I_p(r,t), \lambda, n_0, e) [2\beta + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \sin(2\omega_0\tau - \phi)]$$





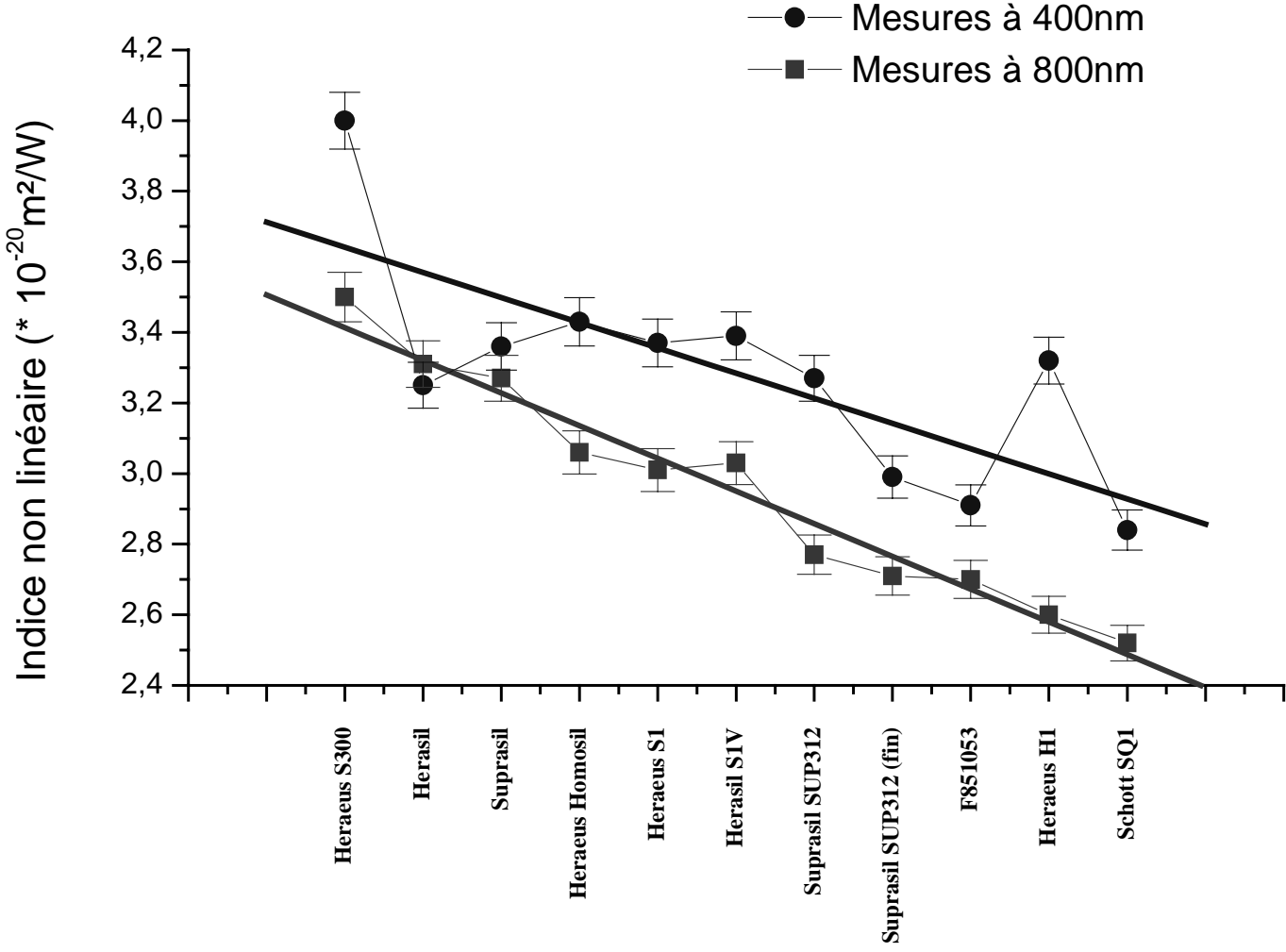


# III

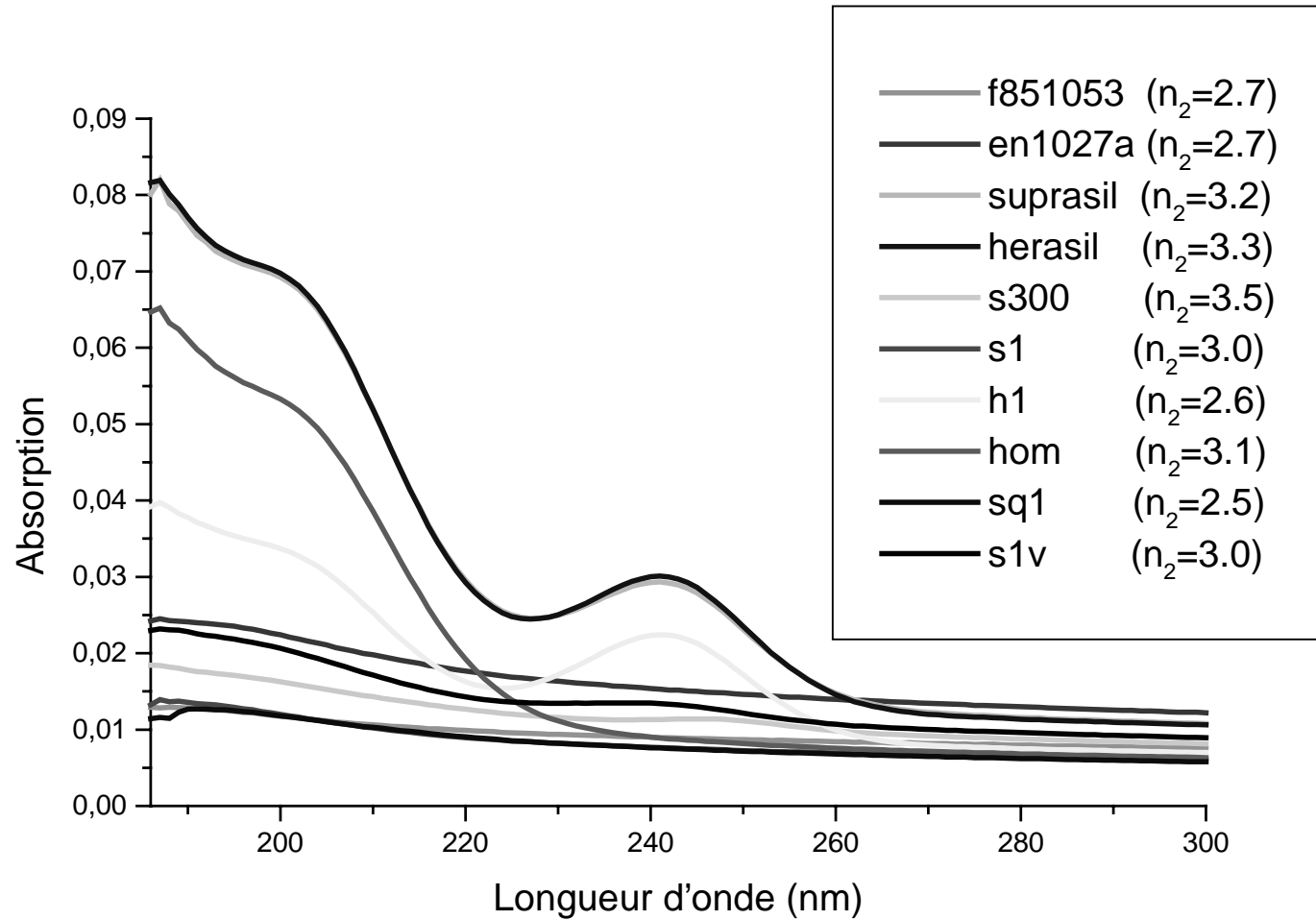
## Résultats expérimentaux

# Etude de la silice fondue

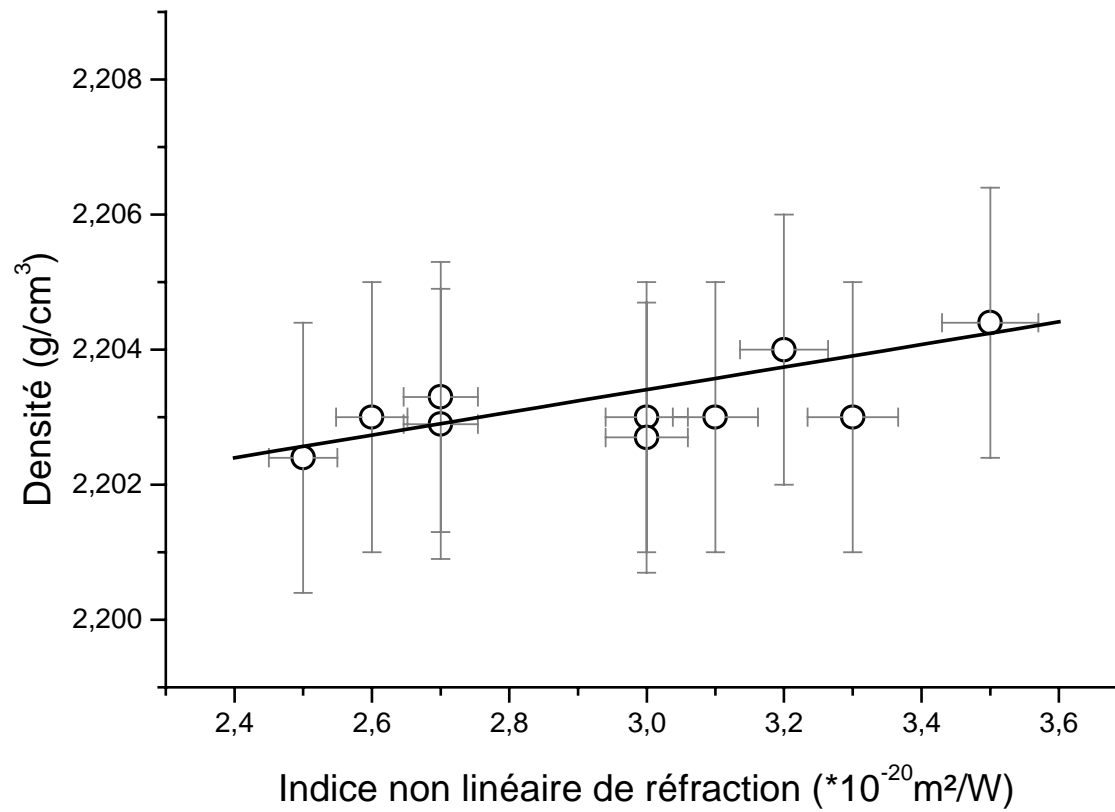
# Mesures de l'indice non linéaire d'échantillons de silice fondue à 800 nm et 400 nm.



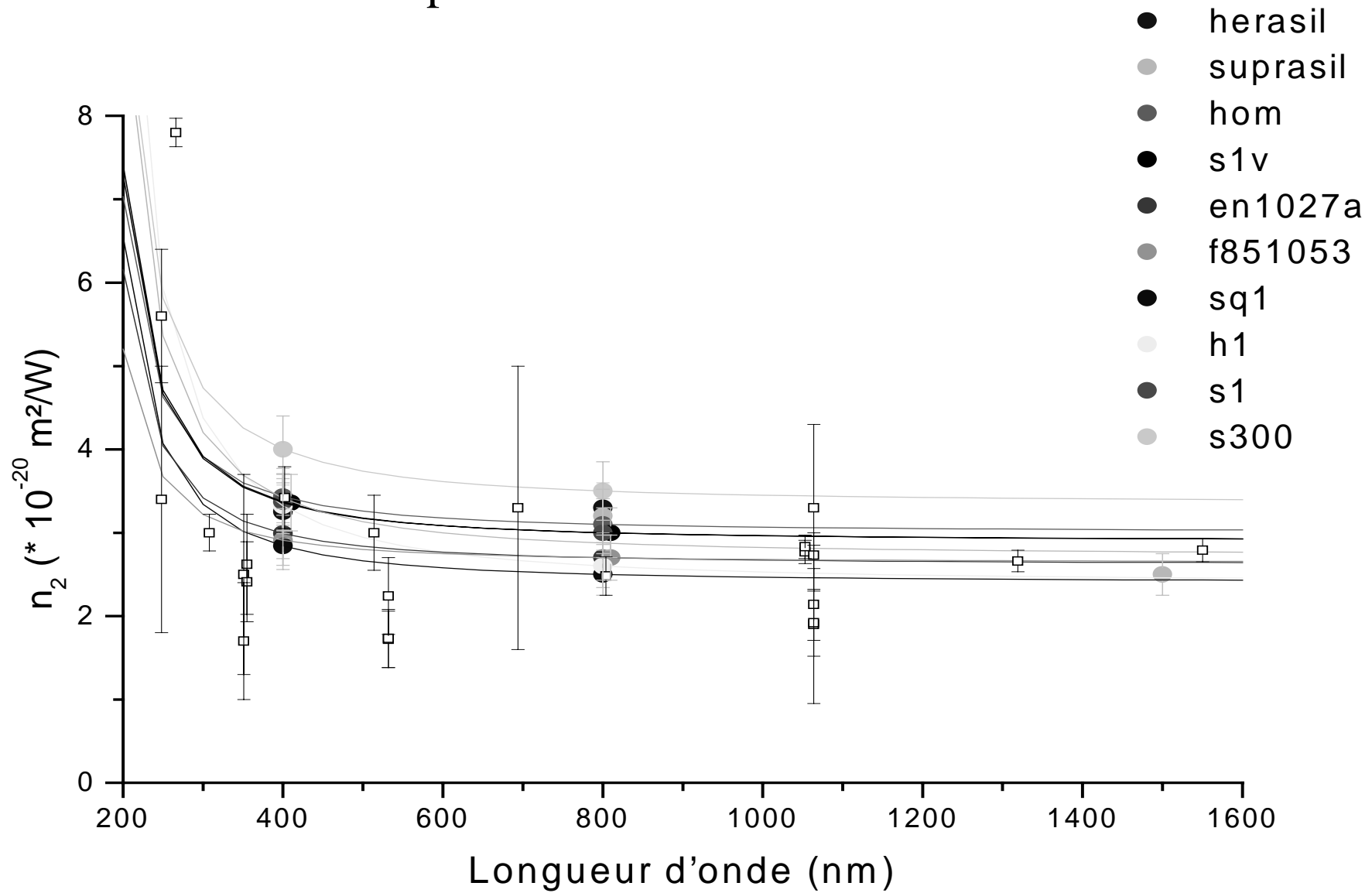
# Spectres d'absorption des échantillons de silice fondue dans le proche UV



# Indice non linéaire de la silice fondue en fonction de la densité du verre.

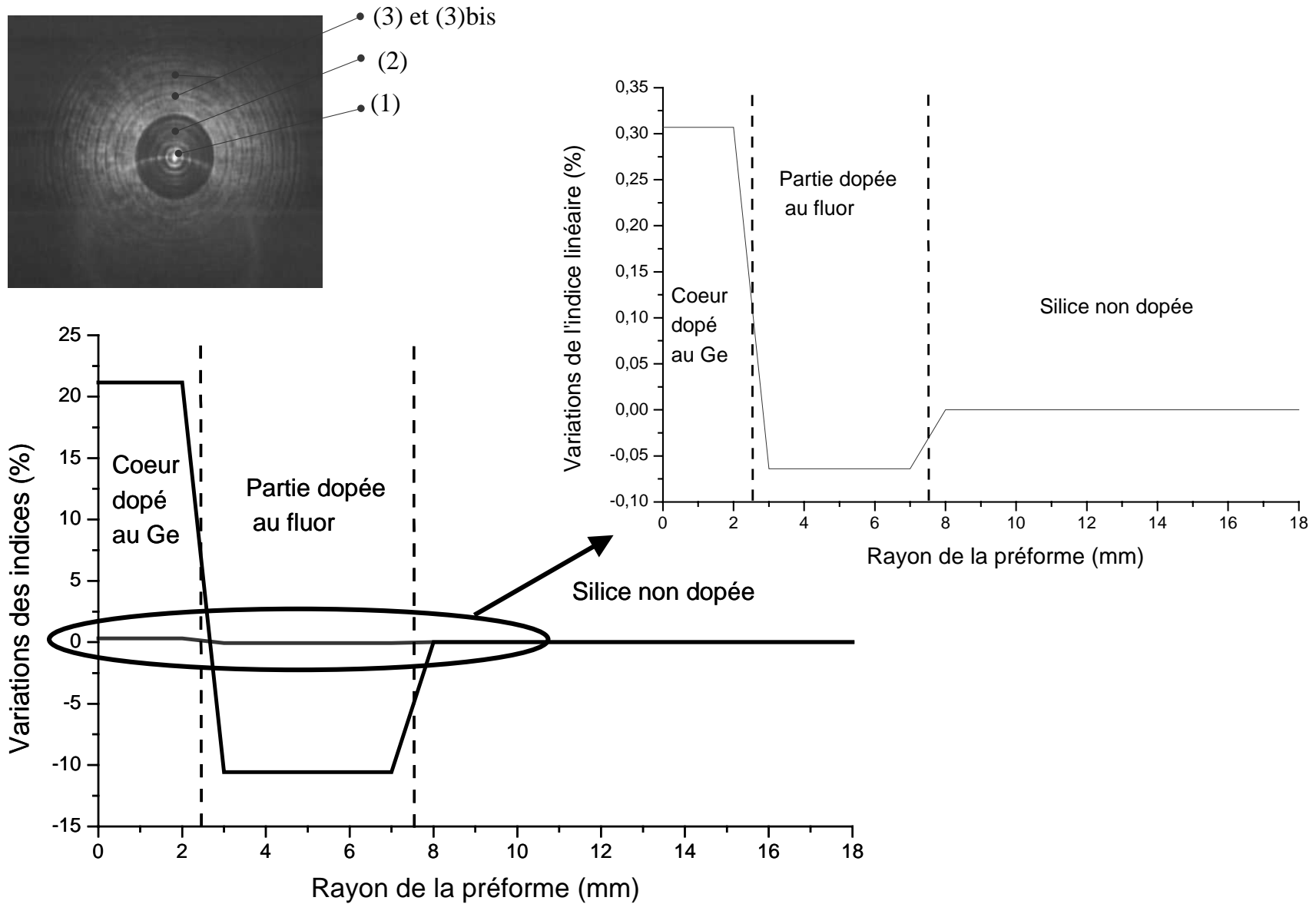


# Dispersion de l'indice non linéaire



Ajustement avec un modèle perturbatif : cf. R. Adair et *al.* Opt. Mat. **1**, 185-194 (1992)

# Mesure de l'indice non linéaire dans une préforme de fibre optique.



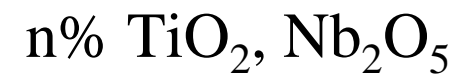
# Matériaux fortement non linéaires

## Différents types de matériaux :

- **Ordonnés**
- **Amorphes**
- **Organiques (forte non linéarité, résistance au flux ?)**
- **Inorganiques (non linéarité modeste, haute résistance au flux)**
- **Verres composés de nanoparticules métalliques (forte non linéarité, résistance au flux)**



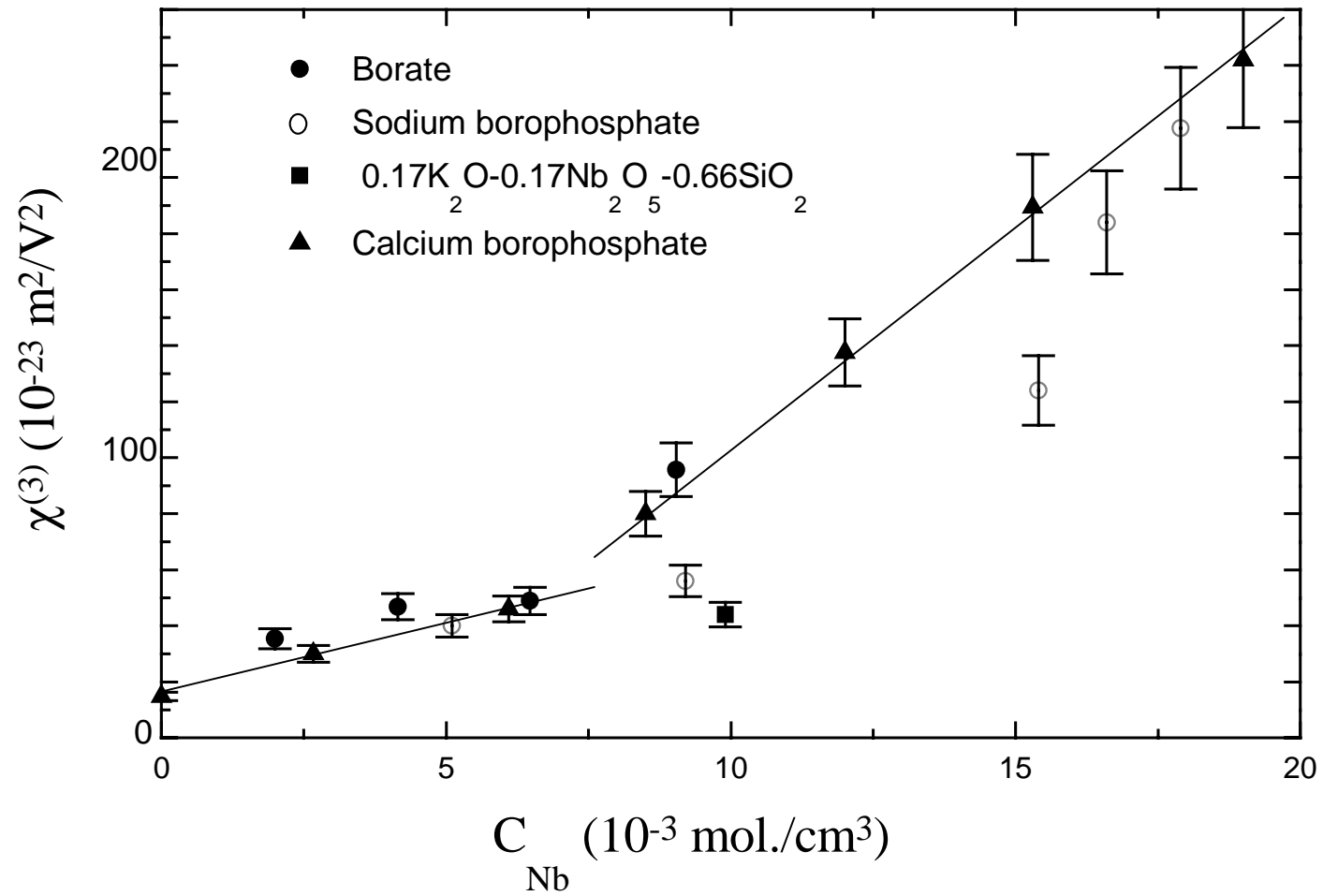
Etude des verres :



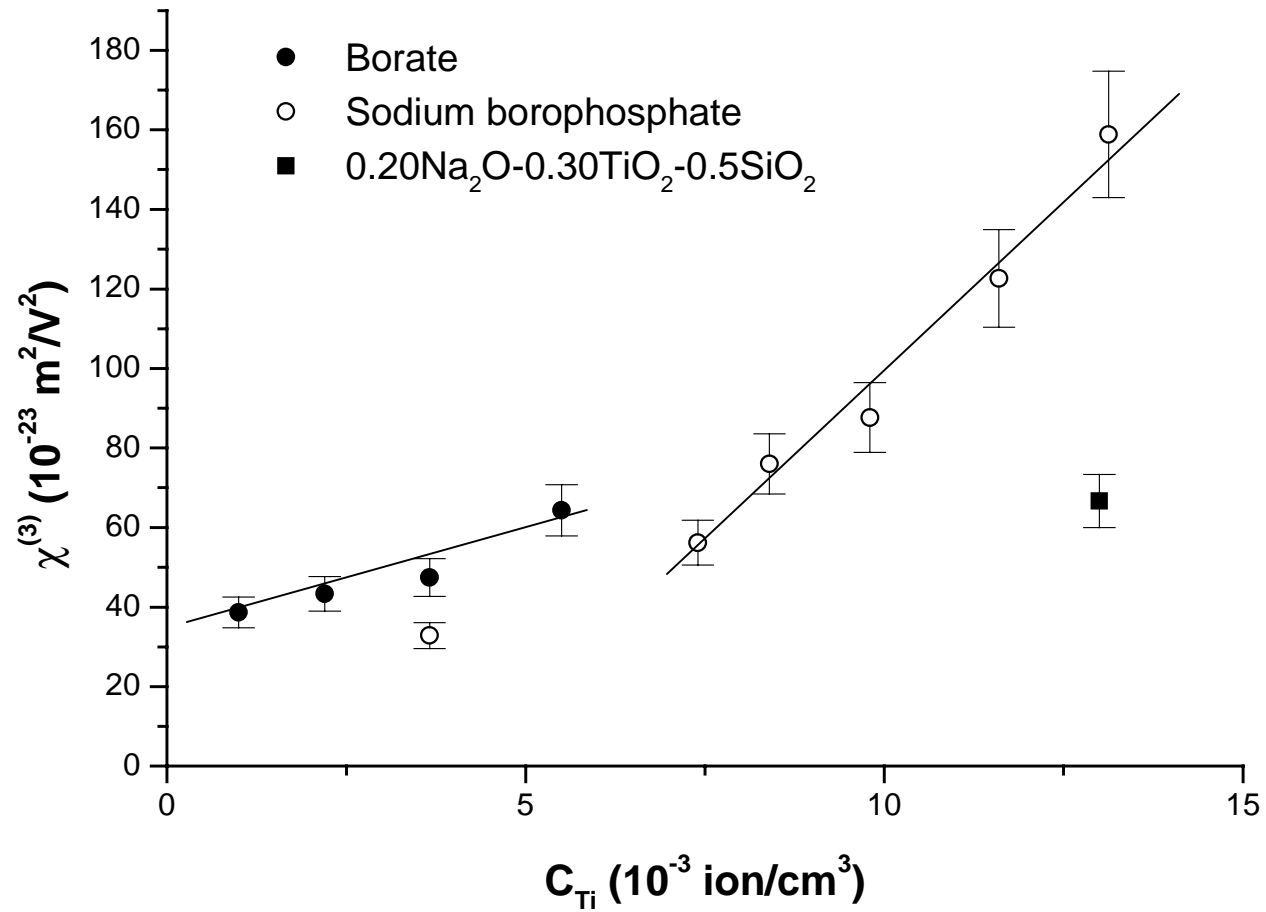
ICMCB (Bordeaux)

Relation  $\chi^{(3)}$  - structure

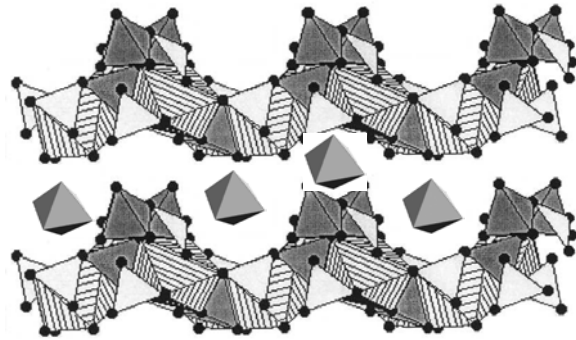
# Evolution du $\chi^{(3)}$ dans les verres LMBO en fonction de la concentration de niobium



# Evolution du $\chi^{(3)}$ dans les verres LMBO en fonction de la concentration de titane



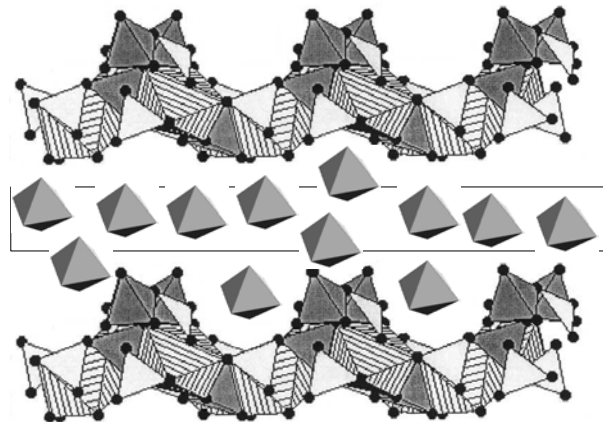
# Lien entre la non linéarité et la structure du verre



Couches de LMBO

 Site octaédrique  $\text{TiO}_6$

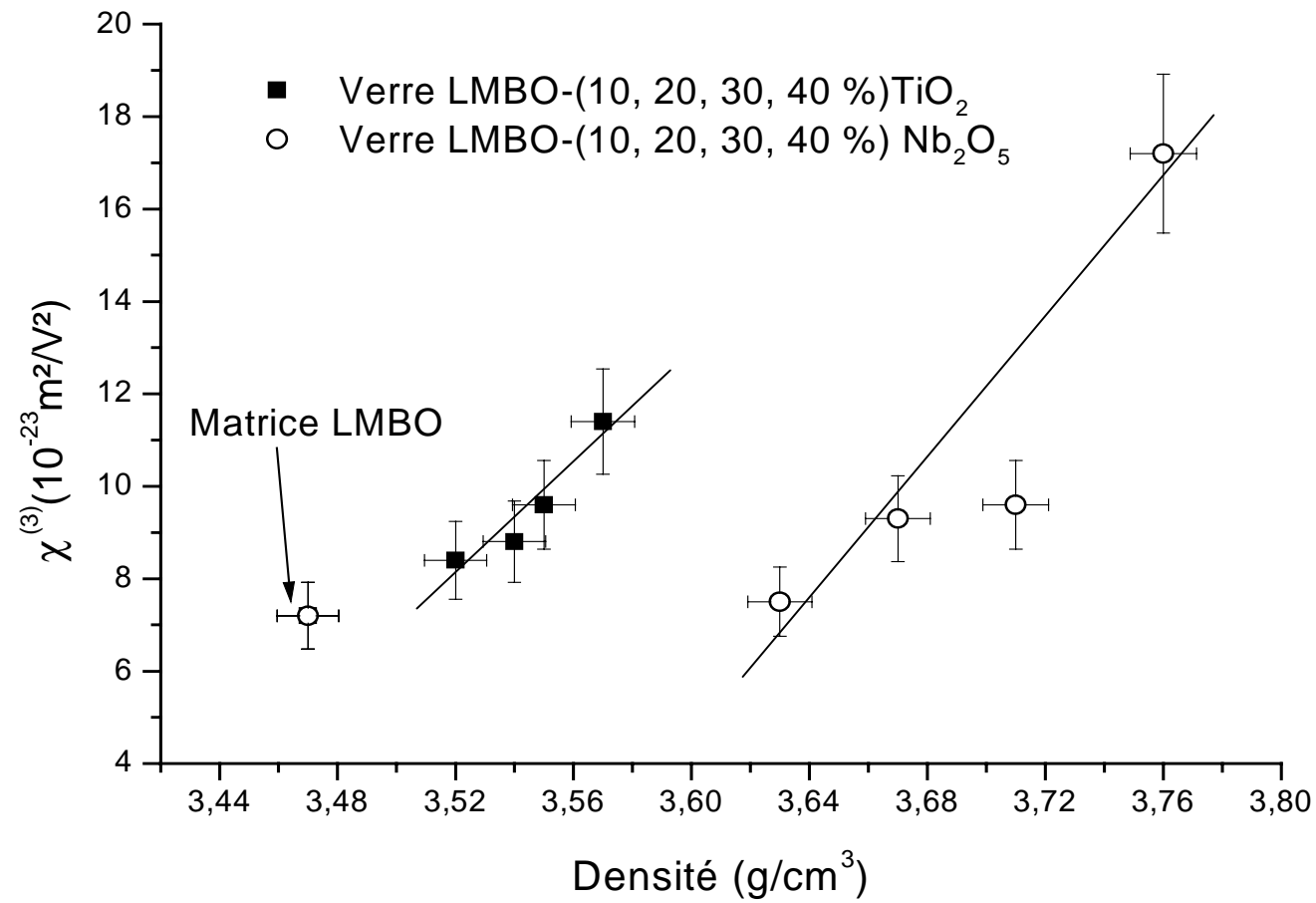
Ajout d'ions titane : accroissement de la non linéarité



Au delà de  $7.10^{-3}$  ion/cm<sup>3</sup> :

- écartement des couches de LMBO
- changement de structure du verre
- accroissement de la non linéarité plus importante, rupture de pente.

# Evolution du $\chi^{(3)}$ dans les verres LMBO en fonction de la densité

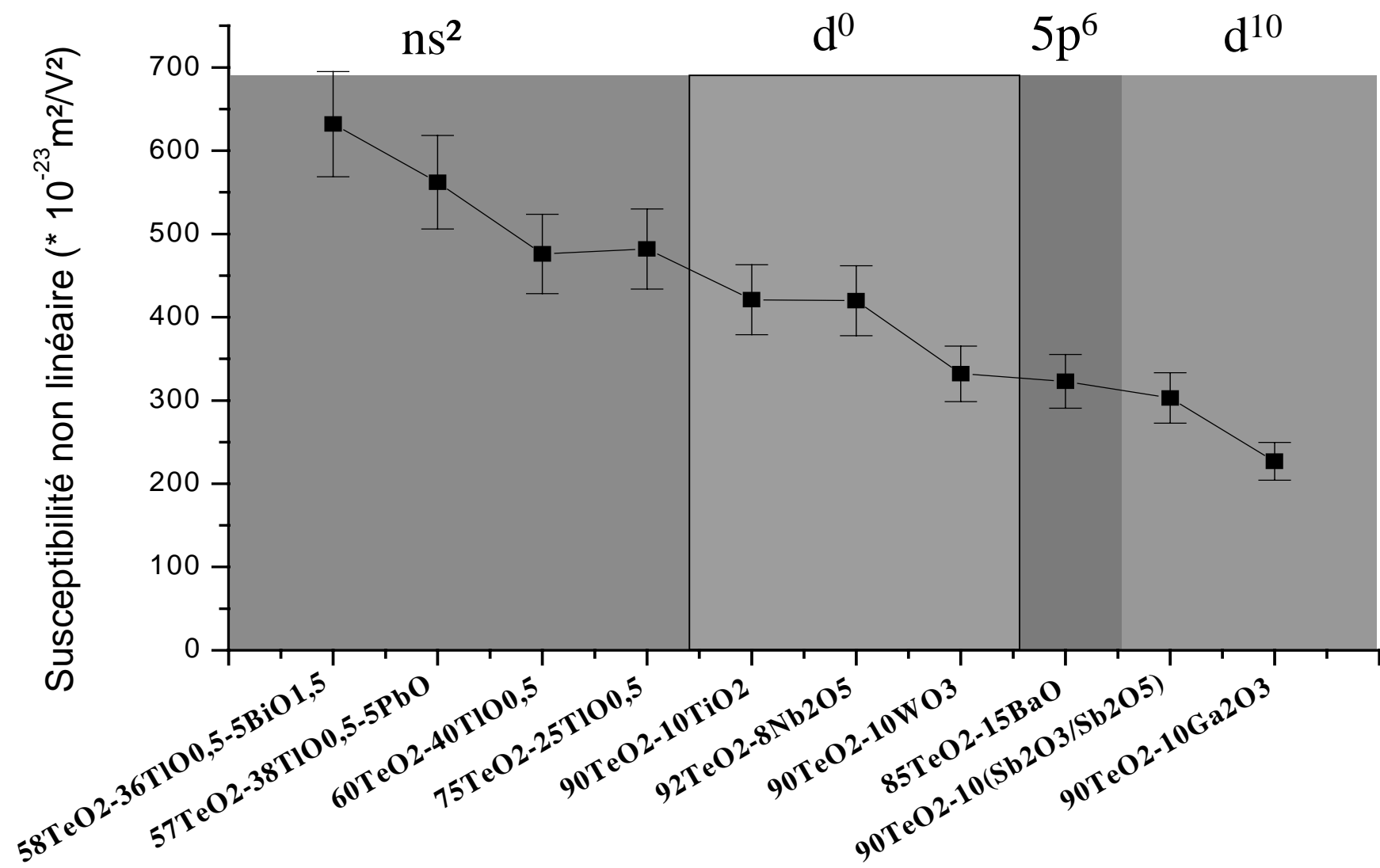


Etude des verres de tellure

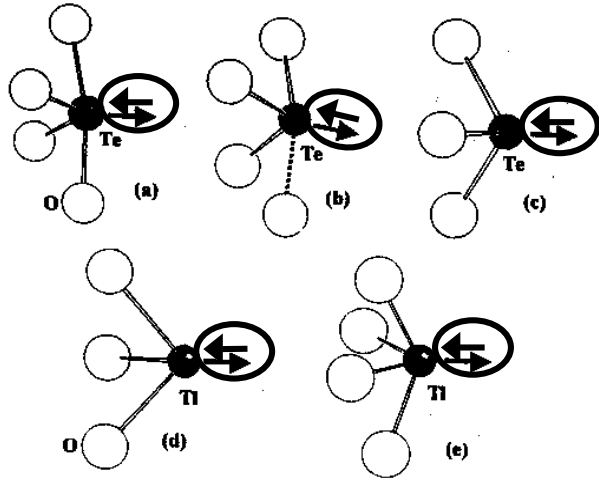
ICMCB (Bordeaux), SPCTS (Limoges), LPMC (Montpellier)

Relation  $\chi^{(3)}$  - configuration électronique

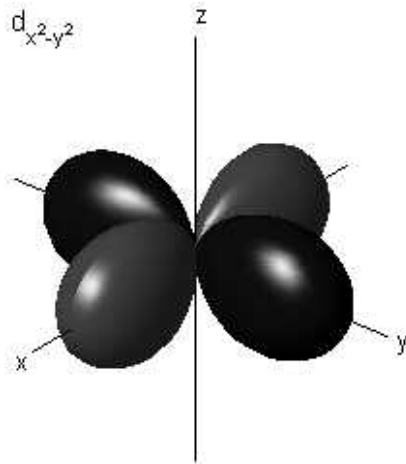
# Evolution du $\chi^{(3)}$ en fonction de la configuration électronique dans les verres de tellure



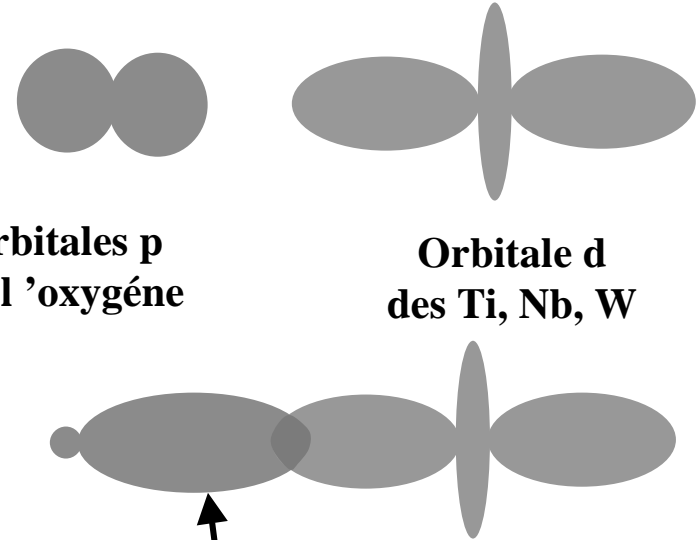
**Configuration électronique  $ns^2$**



**Paire électronique isolée fortement hyperpolarisable**



**Configuration électronique  $d^0$**



**Orbitales p de l'oxygène**

**Orbitale d des Ti, Nb, W**

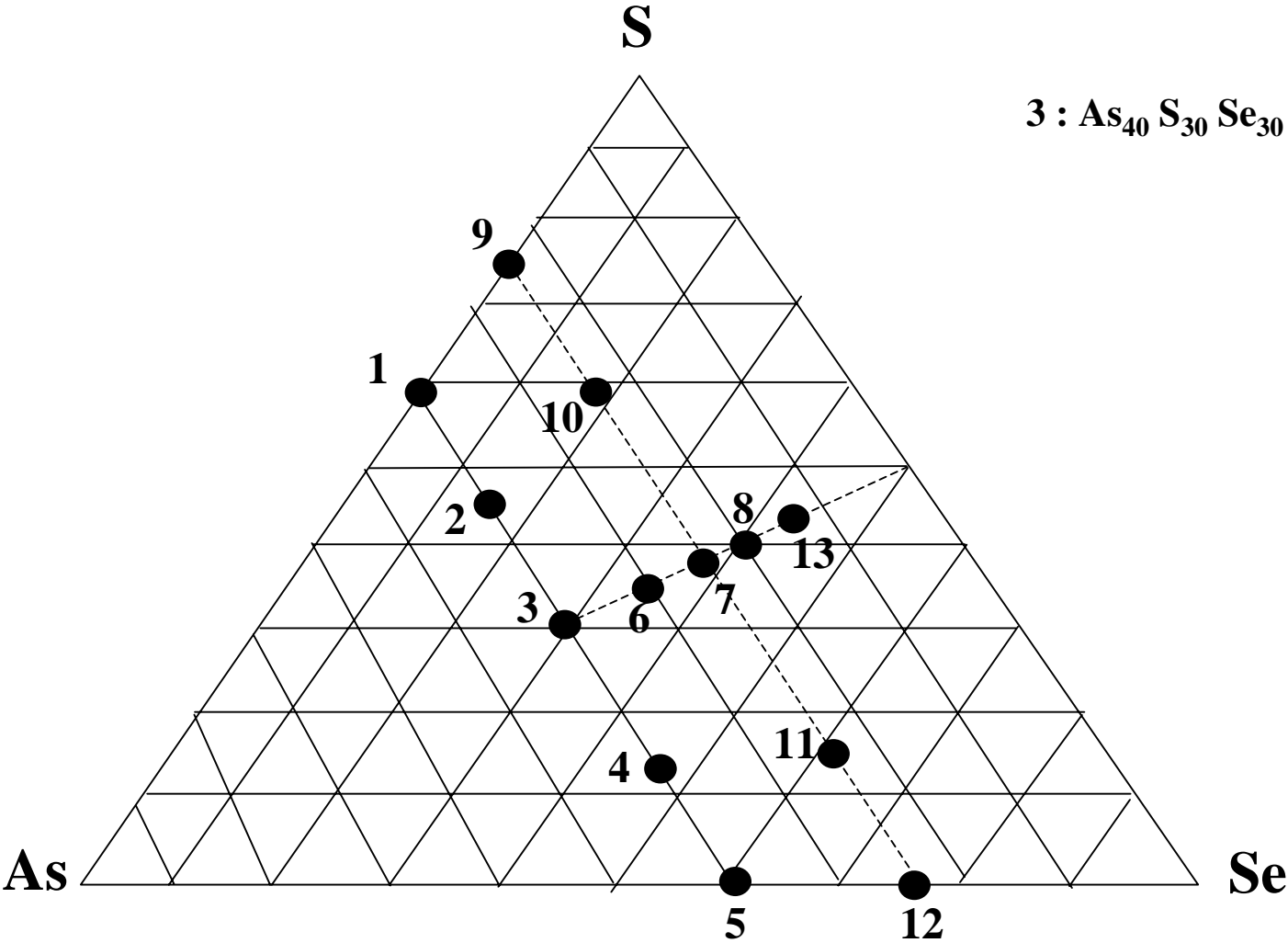
**Délocalisation des électrons de l'oxygène les rendant fortement hyperpolarisables**

**Configuration électronique  $d^{10}$**

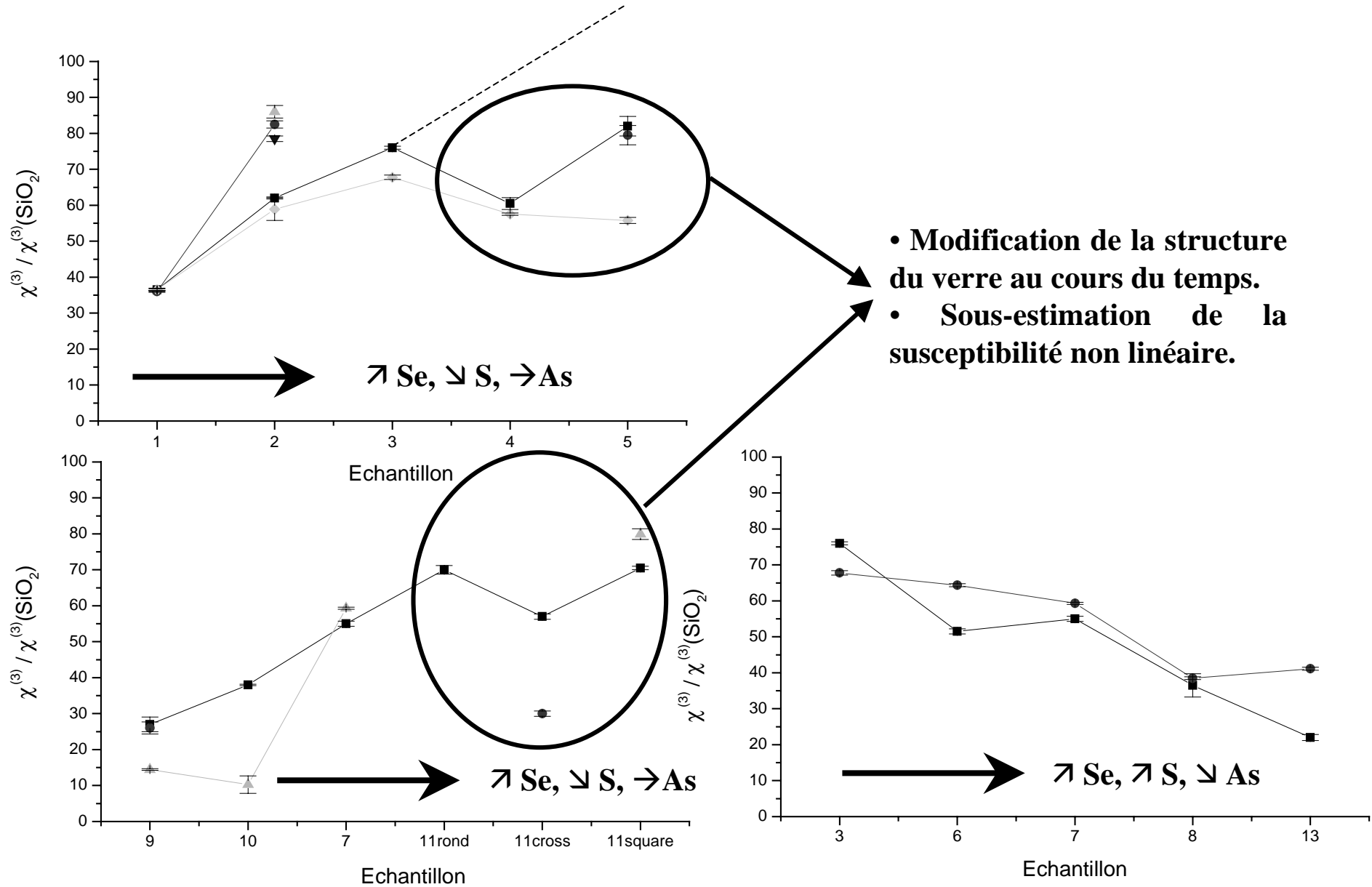
**Déformations des nuages électroniques**



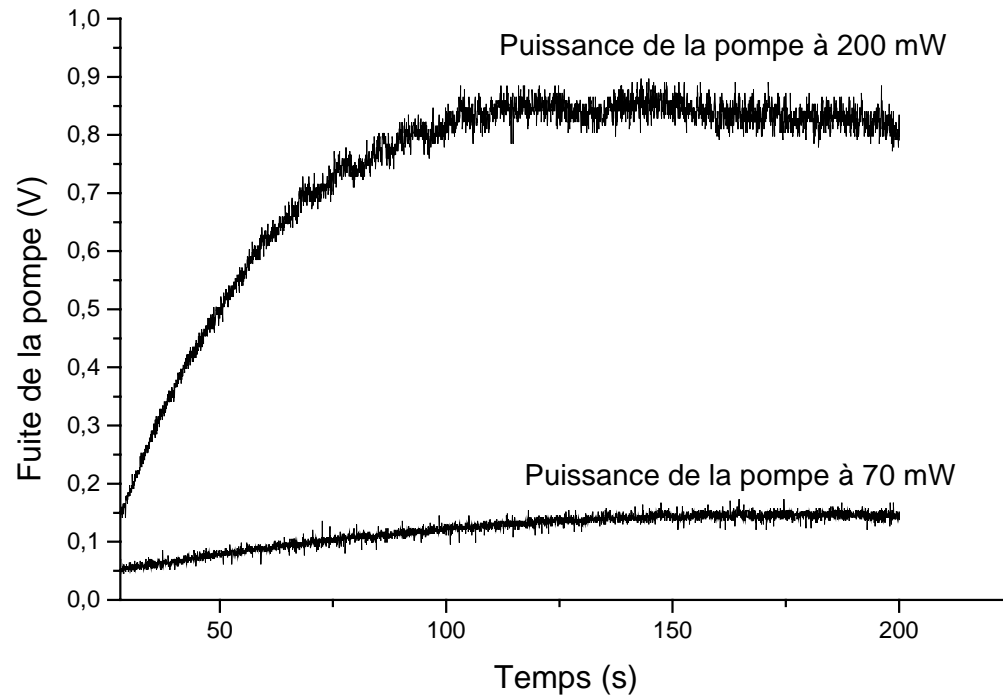
Etude de verres de chalcogénures  
Collaboration CREOL



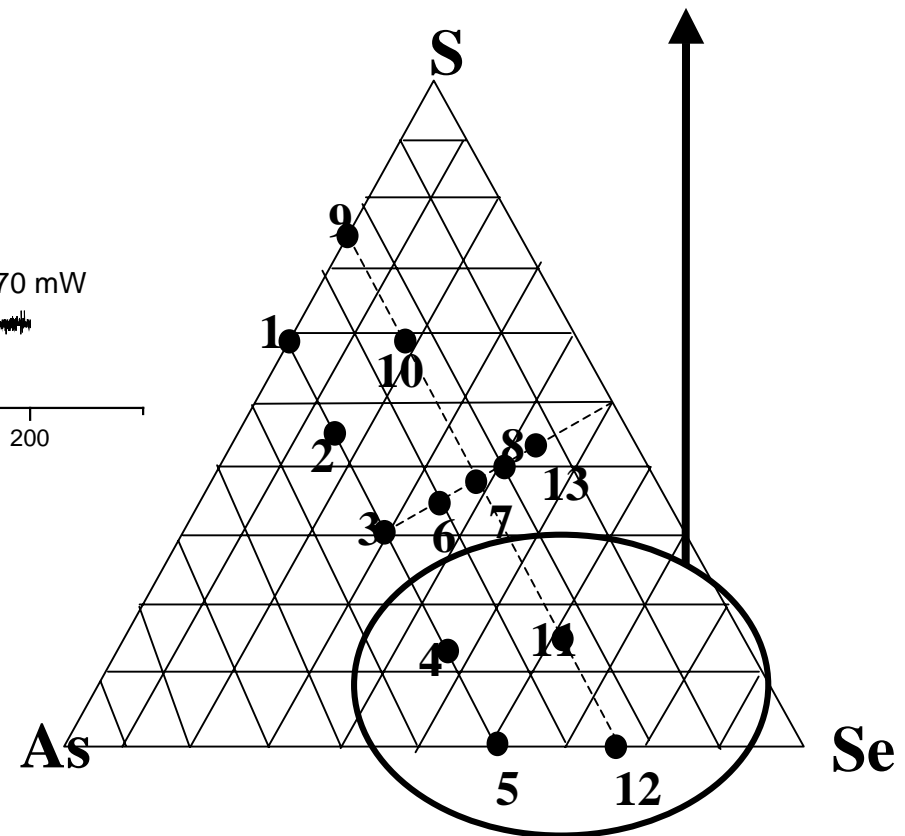
# Evolution du $\chi^{(3)}$ suivant les trois axes du diagramme ternaire.



# Changement de structure des verres au cours du temps.



**Ces échantillons changent de structure au cours de l'éclairement.**



# Conclusion

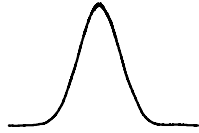
- **Mesure de l'indice non linéaire avec intégration en temps et en espace**  
→ permet de s'affranchir des problèmes spatiaux que l'on peut rencontrer en Z - scan.
- **Mesure différentielle en temps réel**  
→ permet de tenir compte des fluctuations de tous les paramètres du laser.
- **L'indice non linéaire de la silice fondue n'est pas une constante : variation de 30% entre les différents échantillons mesurés.**
- **Corrélations entre les structures géométriques et électroniques des verres composés d'ions lourds et leurs non linéarités.**

# Perspectives

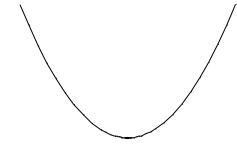
- **Transposer la technique pompe sonde colinéaire à la longueur d'onde du YAG et à ses harmoniques.**
- **Application de la technique pompe sonde colinéaire à des mesures en réflexion : étude des interfaces.**
- **Cartographie volumique de la non linéarité (objectif de microscope) : étude de verres composés de billes, non localité spatiale, champ d'écrantage, ...**
- **Poursuivre des mesures en configuration non dégénérée, interféromètre de Sagnac.**

# Le champ électrique impulsionnel

L'intensité  $I(t)$ .



La phase temporelle du champ  $\varphi(t)$ .



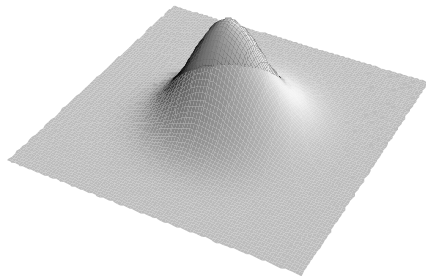
Le spectre de l'impulsion  $I(\omega)$ .



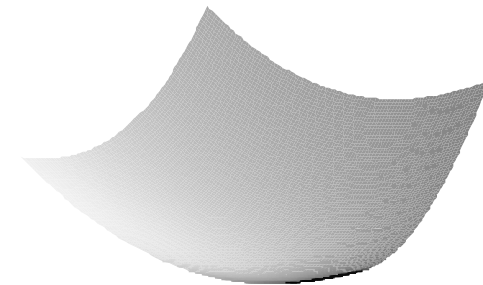
La phase spectrale du champ  $\varphi(\omega)$ .



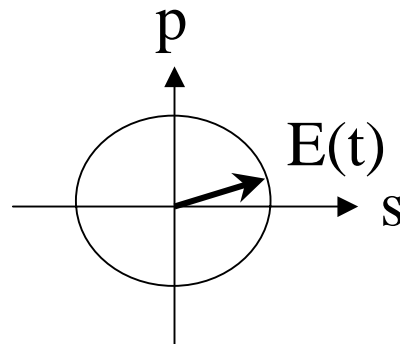
L'intensité spatiale du faisceau  $I(r)$ .



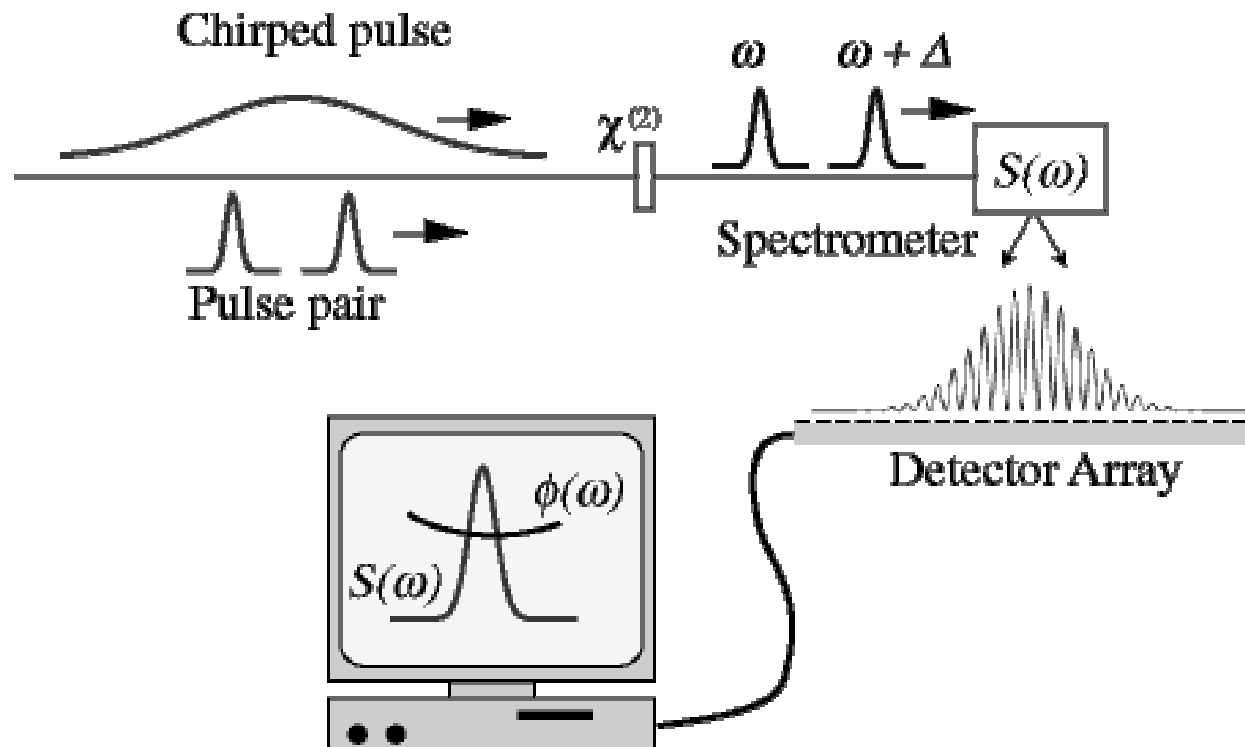
La phase spatiale  $\varphi(r)$ .



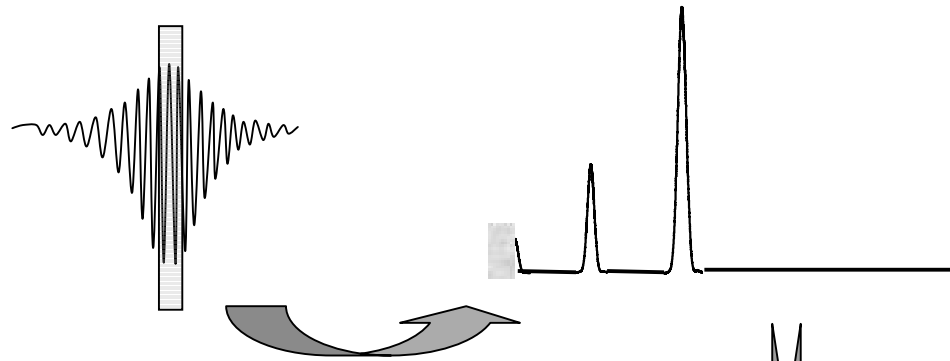
La polarisation du champ électrique.



# SPIDER



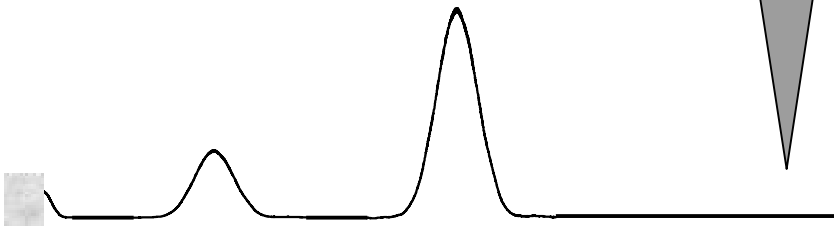
# Traitement du signal



**FFT 512 points**

**Filtrage numérique**

$$\sum_{k=-\mu}^{\mu} a_k \delta(f - k) , \quad a_k = a_{-k}$$

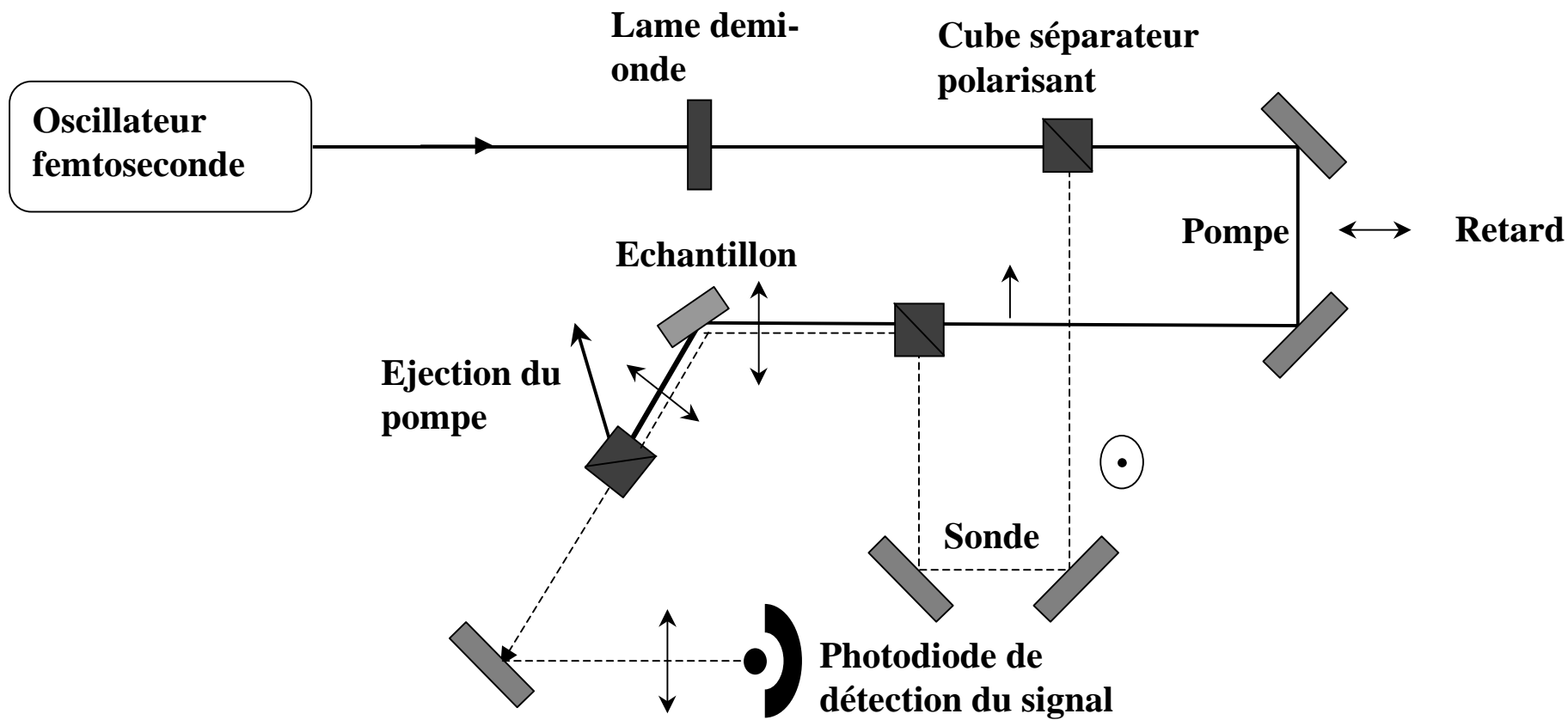


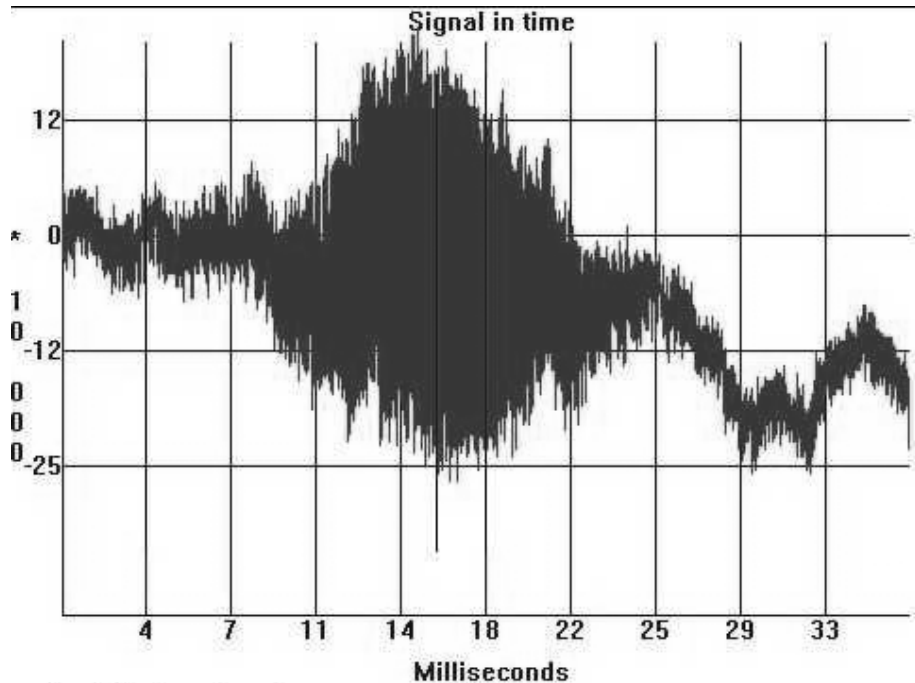
- TF sur la partie centrale du signal (seulement 512 points)
- Afin d'éviter des erreurs (dus à la TF discrète) sur l'amplitude des pics : utilisation de fenêtre de pondération à "toit plat".
- Ce filtre numérique est à réponse impulsionnelle courte (quelques points).

$$\mu = 4 , \quad a_1 = -0.934516 , \quad a_3 = -0.179644$$
$$a_0 = 1 , \quad a_2 = 0.597986 , \quad a_4 = 0.015458$$

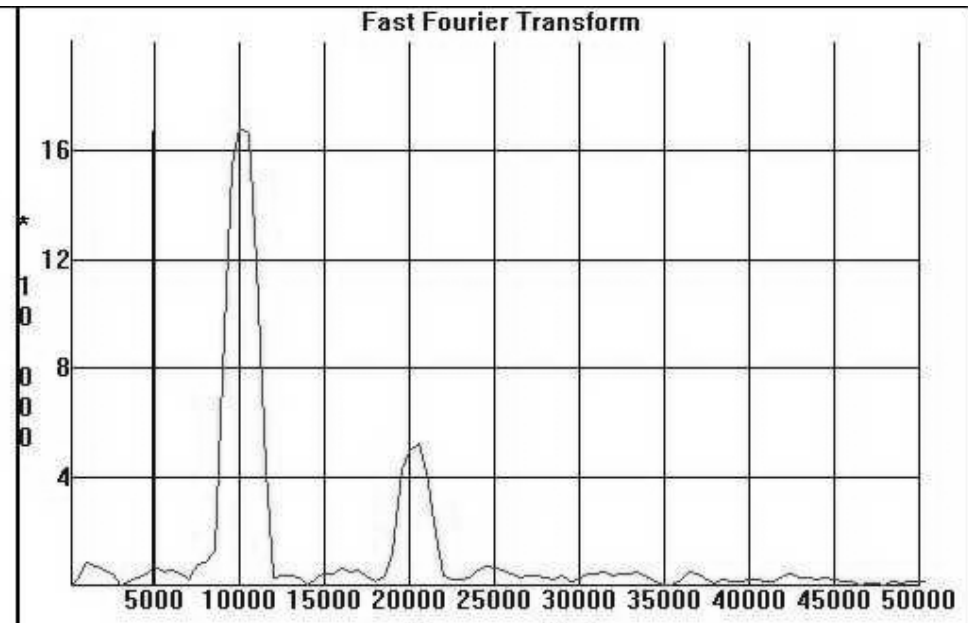


# Expérience pompe sonde colinéaire en réflexion





Input Buffers done: 232  
 Input Buffers Size: 9216



	Frequency (Hz)
Continuous (*10000):	2.186605 o/o
1st harmonic (*10000):	17.270535 o/o ,f=9766 Hz,df=1221 Hz
2nd harmonic (*10000):	5.417355 o/o ,f=20020 Hz,df=1221 Hz

