



**HAL**  
open science

# Dynamique spatiale de la lumière et saturation de l'effet Kerr

Valentin Besse

► **To cite this version:**

Valentin Besse. Dynamique spatiale de la lumière et saturation de l'effet Kerr. Physique mathématique [math-ph]. Université d'Angers, 2014. Français. NNT : 2014ANGE0030 . tel-01635642

**HAL Id: tel-01635642**

**<https://theses.hal.science/tel-01635642>**

Submitted on 15 Nov 2017

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# Thèse de Doctorat

Valentin BESSE

*Mémoire présenté en vue de l'obtention du  
grade de Docteur de l'Université d'Angers  
sous le label de L'Université Nantes Angers Le Mans*

École doctorale : 3MPL

Discipline : 30 - Milieux dilués et optique

Unité de recherche : LPhIA UPRES EA 4464

Soutenue le 12/12/2014

## Dynamique spatiale de la lumière et saturation de l'effet Kerr

Rapporteurs : **Mathieu CHAUVET**, Professeur, Université de Franche-Comté  
**Abdelmajid TAKI**, Professeur, Université de Lille 1

Examineur : **Luc BERGÉ**, Directeur de recherche CEA, CEA

Directeurs de Thèse : **Georges BOUDEBS**, Professeur, Université d'Angers  
**Hervé LEBLOND**, Professeur, Université d'Angers



2014-2015

Thèse pour obtenir le grade de  
Docteur en physique

# DYNAMIQUE SPATIALE DE LA LUMIÈRE ET SATURATION DE L'EFFET KERR

Valentin BESSE

Georges BOUDEBS  
Hervé LEBLOND

Sous la direction de M.  
Professeur à l'Université d'Angers  
Professeur à l'Université d'Angers

Membres du jury

Mathieu CHAUVET  
Abdelmajid TAKI  
Luc BERGÉ

Professeur à l'Université de Franche-Comté  
Professeur à l'Université de Lille 1  
Directeur de recherche au CEA

Rapporteur  
Rapporteur  
Examineur



Soutenu publiquement le :  
12 décembre 2014








"There is no harm in doubt and skepticism, for it is through these that new discoveries  
are made."

Richard FEYNMAN



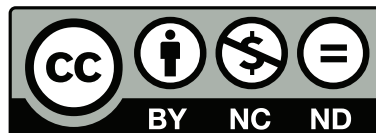
L'auteur du présent document vous autorise à le partager, reproduire, distribuer et communiquer selon les conditions suivantes :



- Vous devez le citer en l'attribuant de la manière indiquée par l'auteur (mais pas d'une manière qui suggérerait qu'il approuve votre utilisation de l'œuvre). 
- Vous n'avez pas le droit d'utiliser ce document à des fins commerciales. 
- Vous n'avez pas le droit de le modifier, de le transformer ou de l'adapter. 

Consulter la licence creative commons complète en français :

<http://creativecommons.org/licences/by-nc-nd/2.0/fr/>







# Résumé

Nous présentons une étude de la dynamique de la lumière et des mesures des caractéristiques non-linéaires optiques dans le disulfure de carbone.

Dans la première partie, nous calculons dans le cadre d'un modèle classique des expressions des susceptibilités non-linéaires jusqu'au cinquième ordre, en tenant compte des corrections de champ local. Nous formulons différentes hypothèses que nous confirmons ou infirmons par la mesure des indices d'absorption et de réfraction non-linéaires. Celles-ci sont obtenues en combinant deux méthodes de caractérisation des non-linéarités au sein d'un système 4f d'imagerie. L'analyse des données expérimentales utilise une méthode nouvellement développée, qui consiste à inverser numériquement, par la méthode de Newton, les solutions analytiques des équations différentielles qui décrivent l'évolution du faisceau.

Dans la deuxième partie, nous observons la filamentation d'un faisceau laser à la longueur d'onde de 532 nm et en régime picoseconde. Puis nous procédons à la mesure de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre  $n_{2,\text{eff}}$  en fonction de l'intensité incidente. Par un ajustement de la courbe de saturation de l'effet Kerr, nous développons un nouveau modèle. La résolution numérique de celui-ci reproduit la filamentation observée.

La dernière partie est consacrée à l'étude de la dynamique des solitons dissipatifs au sein de milieux à gains et pertes non-linéaires. La résolution numérique de l'équation complexe de Ginzburg-Landau cubique-quintique est réalisée suivant différentes configurations : soliton fondamental, dipôle, quadrupôle, vortex carré et rhombique.



# Abstract

We present a study of light dynamics and measurements of the nonlinear optical characteristics of carbon disulphide.

In the first part, we calculate using the classical model, the nonlinear susceptibilities up to the fifth order taking into account local field corrections. We express different assumptions that we confirm or refute by measuring the nonlinear absorption coefficient and the nonlinear refractive index. The measurements are performed by means of two nonlinear characterization methods combined with an imaging 4f system. We analyse the experimental data using a newly developed method which numerically inverts the analytical solutions of the differential equations which describe the evolution of the beam, using Newton's method.

In the second part, we observe light filamentation at wavelength 532 nm, in the picoseconds regime. Then we measure the effective third order nonlinear refractive index  $n_{2,\text{eff}}$  versus the incident intensity. By fitting the curve of the Kerr effect saturation, we develop a new model. Numerically solving this model, allows us to reproduce the experimentally observed filamentation.

The last part is dedicated to the study of dissipative solitons dynamics. The complex Ginzburg-Landau equation with cubic-quintic nonlinearities is numerically solved in various configurations : soliton fundamental dipôle, quadrupole, vortex and square rhombic.



# Remerciements

De nombreuses personnes ont contribué, de près ou de loin, à l'aboutissement de cette thèse.

Je tiens tout d'abord à remercier mes directeurs de thèse Georges BOUDEBS et Hervé LEBLOND pour m'avoir permis de vivre cette aventure. Vous avez su faire preuve de beaucoup de patience et de pédagogie pour m'instruire. Grâce à toi, Georges, je ne suis plus perdu devant une expérience. Tu m'as appris qu'il faut avoir un esprit critique, qu'il ne faut jamais se précipiter et qu'il faut toujours vérifier toutes les possibilités. Hervé, tu as élargi mon champ de connaissances sur la physique en générale. Il y a tellement de concepts que je n'arrivais pas à saisir mais que tu as tout de même su me faire comprendre. Malgré vos responsabilités vous m'avez toujours accorder du temps. Par votre implication vous avez dépassé le cadre du guide pour atteindre celui de véritables amis et soutiens. Vous avez contribué à faire de moi un meilleur physicien et une meilleure personne. Pour toutes ces choses et bien plus encore merci.

Merci à M. Christophe CASSAGNE, ingénieur d'études, et à M. Alain MAHOT, technicien de laboratoire, pour leurs aides. Grâce à vous j'ai toujours pu faire des mesures dans les meilleures conditions possibles.

Merci à M. Abdelmajid TAKI, professeur de l'*Université de Lille 1*, M. Mathieu CHAUVET, professeur de l'*Université de Franche-Comté*, et M. Luc BERGÉ, directeur de recherche au *Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives (CEA)*, pour avoir accepté d'être membres de mon jury de thèse.

Les trois années que j'ai passées au sein du *Laboratoire de Photonique d'Angers (LφA)* ont été très agréables. Merci à M. François SANCHEZ, directeur du LφA, ainsi qu'à tous les membres du laboratoire pour leurs accueils et leurs bonnes humeurs. Merci aussi aux membres de l'équipe MINOS du laboratoire *MOLTECH-Anjou* pour les discussions et les

moments passés ensemble.

Merci à M. Jean-Luc GODET-LARTIGAUD, maître de conférence de l'*Université d'Angers* et à M. Mathieu CHAUVET, professeur de l'*Université de Franche-Comté*, pour avoir accepté d'être membres de mon Comité de Suivi de Thèse.

Merci à M. Cid B. DE ARAÛJO, professeur du *Departamento de Física de l'Universidade Federal de Pernambuco de Recife*, Mme Virginie NAZABAL, chargée de recherche du *Centre national de la recherche scientifique (CNRS)*, M. Boris A. MALOMED, professeur du *Department of Physical Electronics de la Faculty of Engineering de Tel Aviv* et M. Dumitru MIHALACHE, professeur du *Department of Theoretical Physics du The National Institute for Physics and Nuclear Engineering Horia Hulubei* et membre de l'*Académie des sciences de Roumanie* pour les différentes collaborations scientifiques. J'ai pu beaucoup apprendre de chacun d'entre vous. Merci d'avoir toujours pris le temps de répondre à mes questions et de m'avoir fait confiance.

Merci à mes "grands" Alioune et Julien, ainsi qu'à Tania, Aria, Sunny, Shahla, Xavier, George et tous mes amis doctorants pour ces moments passés ensemble. Les pauses cafés du midi ont été salvatrices. Vous avez su insuffler de la joie et de l'amusement durant ces trois années, merci.

Merci à M. Thierry RICHTIN pour m'avoir prêté *Une brève histoire du temps* de Stephen HAWKING un beau jour de juillet 2002. Tu as ouvert la porte des mystères de la physique. Désolé d'avoir abîmé ton livre et de ne jamais te l'avoir rendu.

Merci à M. DELILLE pour m'avoir prêté mes premiers livres scientifiques et pour avoir pris le temps de m'expliquer autant de choses. Vous m'avez transmis votre passion. Merci.

Merci à tous mes amis.

Merci à mes parents, Roland et Nathalie. Vous m'avez toujours encouragé à étudier et vous m'avez toujours soutenu. Sans vous je n'aurai jamais réussi à aller aussi loin. Merci à toi maman pour t'émerveiller à chacun de mes articles. Merci à toi papa pour faire semblant de comprendre ce que je raconte. Merci pour votre amour.

Merci à mes sœurs, Clara et Emma, pour votre joie, votre gentillesse et votre soutien.

Merci à ma belle-famille pour son soutien.

Enfin je souhaite remercier la personne avec qui je partage ma vie : Ambre. Merci pour avoir toujours été là. Merci pour m'avoir soutenu sans faille, même quand mon défaitisme

prenait le pas. Merci pour ta patience et ta force face aux épreuves qui ont parsemé cette thèse (promis, je n'en referai pas avant au moins dix ans). Merci d'avoir fait que ma vie ne se résume pas que à la thèse. Merci pour bien vouloir continuer nos aventures. Merci pour l'amour que tu me donnes et qui chaque jour me rempli de force.





# Table des matières

Liste des symboles	xv
Liste des abréviations	xvii
Introduction générale	1
<b>1 Optique non-linéaire</b>	<b>7</b>
1.1 Introduction . . . . .	7
1.2 Le faisceau laser . . . . .	8
1.3 Les équations d'onde . . . . .	12
1.4 Effet Kerr optique . . . . .	16
1.5 Solitons et filamentation . . . . .	18
1.6 Absorption non-linéaire . . . . .	22
1.7 Conclusion . . . . .	25
<b>2 Techniques de caractérisation des matériaux</b>	<b>27</b>
2.1 Introduction . . . . .	27
2.2 La méthode Z-scan . . . . .	27
2.2.1 Milieu sans absorption non-linéaire ( $\beta = 0$ ) . . . . .	31
2.2.2 Réfraction non-linéaire en présence d'absorption ( $\beta \neq 0$ ) . . . . .	33
2.3 Système imageur 4f . . . . .	35
2.4 D4 $\sigma$ . . . . .	38
2.5 Methode de Newton . . . . .	40
2.5.1 Mesure de l'absorption non-linéaire . . . . .	40
2.5.2 Mesure d'indices de réfraction non-linéaire . . . . .	42
2.6 Applications . . . . .	43

2.6.1	Verres $\text{GeO}_2 - \text{Bi}_2\text{O}_3 - \text{PbO} - \text{TiO}_2$ . . . . .	44
2.6.2	Verres $\text{Pb}_2\text{P}_2\text{O}_7 - \text{MoO}_3$ . . . . .	45
2.6.3	Verres $(\text{GeSe}_2)_{100-x} (\text{Sb}_2\text{Se}_3)_x$ . . . . .	46
2.6.4	Verre $\text{As}_2\text{Se}_3$ . . . . .	46
2.7	Conclusion . . . . .	46
<b>3</b>	<b>Caractéristiques du disulfure de carbone</b>	<b>49</b>
3.1	Introduction . . . . .	49
3.2	Susceptibilités et oscillateur anharmonique . . . . .	52
3.2.1	Modèle de l'oscillateur anharmonique . . . . .	53
3.2.2	Résonance de la troisième harmonique . . . . .	62
3.2.3	Correction du champ local . . . . .	65
	Champ local de Lorentz . . . . .	66
	Polarisation, polarisabilité et hyperpolarisabilités . . . . .	69
	Cas linéaire : . . . . .	69
	Cas cubique : . . . . .	70
	Cas quintique : . . . . .	71
3.2.4	Calcul de la polarisation en fonction de la fréquence . . . . .	73
	Calcul de la composante linéaire de la polarisation . . . . .	73
	Calcul de la composante cubique de la polarisation . . . . .	74
	Calcul de la composante quintique de la polarisation . . . . .	76
3.2.5	Cas particulier de la troisième harmonique résonnante . . . . .	80
3.3	Absorption à trois photons . . . . .	84
3.3.1	Méthode expérimentales . . . . .	84
3.3.2	Traitement numérique des données expérimentales : open aperture Z-scan . . . . .	86
3.3.3	Cas spécifique du disulfure de carbone . . . . .	91
3.3.4	Mesures à 532 nm . . . . .	92
3.3.5	Mesures à 1064 nm . . . . .	94
3.4	Indices de réfraction non-linéaire cubique et quintique . . . . .	96
3.4.1	Traitement numérique des données expérimentales : méthode $D4\sigma$ . . . . .	97

3.4.2	Mesure à 532 nm . . . . .	101
3.4.3	Mesure à 1064 nm . . . . .	103
3.4.4	Discussion sur les mesures des indices de réfraction non-linéaires . .	105
3.5	Conclusion . . . . .	107
<b>4</b>	<b>Filamentation dans le disulfure de carbone</b>	<b>111</b>
4.1	Introduction . . . . .	111
4.2	Observation de la filamentation . . . . .	113
4.3	Mesure de l'indice de réfraction cubique effectif . . . . .	117
4.3.1	Méthodes expérimentales . . . . .	117
4.3.2	Traitement numérique des données . . . . .	119
4.3.3	Résultats des mesures de $n_{2,eff}$ . . . . .	123
	Mesures à $\lambda = 532$ nm . . . . .	123
	Mesures à $\lambda = 1064$ nm . . . . .	125
4.4	Vers un nouveau modèle . . . . .	126
4.4.1	Ajustement des courbes expérimentales . . . . .	128
4.4.2	Équation de Schrödinger non-linéaire . . . . .	130
4.5	Résolution numérique . . . . .	133
4.5.1	Normalisation . . . . .	133
4.5.2	Méthode des différences finies . . . . .	135
4.5.3	Méthode de Runge-Kutta d'ordre 4 . . . . .	140
4.5.4	Résultats de la résolution numérique . . . . .	142
4.6	Contrôle de la filamentation . . . . .	148
4.6.1	Montage expérimental . . . . .	148
4.6.2	Résolution numérique . . . . .	150
4.6.3	Résultats expérimentaux . . . . .	155
4.7	Conclusion . . . . .	157
<b>5</b>	<b>Dynamique des solitons dissipatifs et des solitons vortex</b>	<b>159</b>
5.1	Introduction . . . . .	159
5.2	Équation complexe de Ginzburg-Landau cubique-quintique . . . . .	163
5.2.1	Présentation de l'équation . . . . .	165

5.2.2	Vecteur d'onde transverse . . . . .	167
5.2.3	Approximation analytique du seuil de mobilité . . . . .	169
5.3	Solitons fondamentaux . . . . .	171
5.3.1	Formation de la flèche de soliton . . . . .	171
5.3.2	Influence de $k_0$ . . . . .	178
5.3.3	Dynamique du soliton fondamental suivant l'inclinaison de sa vitesse initiale . . . . .	183
5.3.4	Collisions entre solitons . . . . .	187
5.4	Dipôles . . . . .	191
5.4.1	Création de configuration à plusieurs dipôles . . . . .	191
5.4.2	Dynamique induite par l'action du vecteur d'onde transverse sur le dipôle . . . . .	196
5.4.3	Différent scénarios de collisions entre les dipôles . . . . .	197
5.5	Quadrupôles . . . . .	200
5.6	Solitons vortex . . . . .	206
5.6.1	Génération de configuration chaotique par inclinaison de vortex rhombiques . . . . .	206
5.6.2	Vortex carrés . . . . .	209
5.7	Conclusion . . . . .	215
	<b>Conclusion générale</b>	<b>219</b>
	<b>A Solution <math>z(I)</math> de l'équation (2.30)</b>	<b>223</b>
	<b>B Solution <math>\Delta\varphi(I)</math> de l'équation (2.31)</b>	<b>225</b>
	<b>C Mesures des non-linéarités cubiques et quintique du disulfure de carbone</b>	<b>227</b>
	<b>D Publications personnelles</b>	<b>231</b>
	D.1 Articles dans des journaux à comité de lecture . . . . .	231
	D.2 Conférences internationales . . . . .	232
	<b>Table des figures</b>	<b>235</b>

# TABLE DES MATIÈRES

<b>Liste des tableaux</b>	<b>247</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>249</b>



# Liste des symboles

$i$	—	$\sqrt{-1}$
$r$	—	$r = \sqrt{x^2 + y^2}$
$\vec{r}$	—	$r = (x, y, z)$
$R$	—	$R = \sqrt{X^2 + Y^2}$
$\vec{R}$	—	$R = (X, Y, Z)$
$\alpha$	—	Absorption linéaire
$\beta$	—	Absorption à deux photons
$\gamma$	—	Absorption à trois photons
$\vec{P}$	—	Densité de polarisation
$P$	—	Amplitude du champ de polarisation
$\vec{E}$ $E$	—	Amplitude du champ électrique
$x, y, z$	—	Coordonnées cartésiennes
$z_R$	—	Distance de Rayleigh : $z_R = \pi w_0^2 / \lambda$
$f$	—	Distance focale
$L$	—	Épaisseur de l'échantillon
$\omega$	—	Fréquence spatiale de l'onde
$n_0$	—	Indice de réfraction linéaire
$n_2$	—	Indice de réfraction du troisième ordre
$n_4$	—	Indice de réfraction du cinquième ordre
$I$	—	Intensité : $I = 2c\epsilon_0 n_0  E ^2$
$I_{eff}$	—	Intensité effective
$I_0$	—	Intensité pic
$\lambda$	—	Longueur d'onde
$m$	—	Masse



## LISTE DES SYMBOLES

$k$	—	Nombre d'onde : $k = 2\pi/\lambda$
$\Delta$	—	Opérateur Laplacien, $\Delta = \nabla^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}$
$\varepsilon_0$	—	Permittivité du vide : $8.854187 \times 10^{-12} \text{ Fm}^{-1}$
$w$	—	Rayon du faisceau
$w_0$	—	Rayon du faisceau dans le plan focal
$\chi^{(1)}$	—	Susceptibilité linéaire
$\chi^{(3)}$	—	Susceptibilité non-linéaire du troisième ordre
$\chi^{(5)}$	—	Susceptibilité non-linéaire du cinquième ordre
$t$	—	Temps
$\mathbf{k}$	—	Vecteur d'onde
$c$	—	Vitesse de la lumière dans le vide : $c = 299792458 \text{ ms}^{-1}$

# Liste des abréviations

BWRV	—	variation relative du rayon du faisceau
CGL-CQ	—	équation cubique-quintique complexe de Ginzburg-Landau
CQ	—	cubique-quintique
EDP	—	équation aux dérivées partielles
NLS	—	équation de Schrödinger non-linéaire
PN	—	Peierls-Nabarro
SLM	—	modulateur spatial de lumière
SNL	—	Schrödinger non-linéaire
SVEA	—	approximation de l'enveloppe lentement variable



# Introduction générale

C'est en 1960 que l'optique connaît un bouleversement majeur avec l'invention du laser par T. MAIMAN [1]. Cette source cohérente permet l'étude des interactions entre la lumière intense et la matière. Les chercheurs observent pour la première fois en optique des effets non-linéaires. L'optique non-linéaire naquit avec la découverte de la génération de seconde harmonique par P. FRANKEN et al. en 1961 [2]. De très nombreux phénomènes non-linéaires furent ensuite découverts comme par exemple la génération de troisième harmonique, l'amplification paramétrique optique, la diffusion Raman, l'effet Kerr optique, l'absorption multi-photoniques. Ces phénomènes ont permis le développement de nombreuses applications dans différents domaines. Ainsi l'absorption non-linéaire a conduit à la réalisation de limiteur optique [3], tandis que l'effet Kerr optique est utilisé pour la conception de commutateur tout-optique ultra-rapide [4–6]. De même l'effet Kerr optique permet de compenser la diffraction ou la dispersion d'une impulsion laser lors de sa propagation donnant naissance à des solitons spatiaux [7–11] ou temporels [12–14] voir même à des solitons spatio-temporels si la diffraction et la dispersion sont compensées en même temps [15]. Les effets non-linéaires en optiques ont permis un bond en avant dans les dispositifs tout-optiques ou électro-optiques très présents dans les télécommunications (internet) ou le stockage optique de l'information. Ces effets peuvent être décrits par les variations de l'absorption et de la réfraction du milieu en fonction de l'intensité lumineuse. Ces variations sont quantifiées par les coefficients d'absorption non-linéaire et les indices de réfraction non-linéaires. Cependant, une trop forte absorption non-linéaire dans les fibres optiques peut réduire la puissance transmise par ces dernières lors de la propagation de solitons temporels ce qui nuit à la transmission d'information dans les fibres optiques. De même, pour la conception de commutateur optique il est nécessaire d'avoir une forte réfraction non-linéaire et une faible absorption non-linéaire. A l'inverse il

est nécessaire d'avoir une forte absorption non-linéaire si l'on souhaite développer des limiteurs optiques. Il est toutefois possible de vouloir limiter le flux optique à une longueur d'onde spécifique et non pas à toutes. Dès lors, il devient nécessaire de savoir mesurer précisément les caractéristiques non-linéaires.

De nombreuses méthodes de mesures ont été développées afin de quantifier les caractéristiques non-linéaires du troisième ordre, c'est-à-dire le coefficient d'absorption à deux photons ( $\beta$ ) et l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre ( $n_2$ ). Ils existent notamment des méthodes d'interférométries non-linéaires [16,17], d'ellipsométrie [18,19], de mélanges d'ondes [20,21] ou utilisant la distorsion du faisceau [22,23]. Introduite par M. SHEIK-BAHAE et al. en 1989, la méthode Z-scan utilise la distorsion de l'onde pour mesurer l'indice de réfraction non-linéaire et le coefficient d'absorption non-linéaire [22,23]. Cette méthode fait aujourd'hui partie des méthodes les plus utilisées pour la caractérisation non-linéaire. Celle-ci est particulièrement efficace pour détecter de petites variations de la réfraction non-linéaire ou de l'absorption non-linéaire. Elle est de plus très simple à mettre en place et sa popularité au sein de la communauté scientifique a conduit au développement de nombreuses améliorations [24–32]. En combinant un système imageur 4f et la méthode de mesure Z-scan, G. BOUDEBS et K. FEDUS ont optimisé la méthode de mesure Z-scan [33–36]. Ils ont par ailleurs introduit une méthode de mesure absolue de la réfraction non-linéaire et de l'absorption non-linéaire qui ne nécessite plus de calibrer l'intensité incidente par rapport à une valeur de la réfraction non-linéaire connue, comme par exemple celle du disulfure de carbone ( $\text{CS}_2$ ) [37].

Récemment, E. FALCÃO-FILHO et al. ont observé un soliton spatial à deux dimensions dans le disulfure de carbone à une longueur d'onde de 918 nm [11]. La stabilité de cette structure a été expliquée grâce à une saturation de l'effet Kerr due à l'équilibre entre la susceptibilité non-linéaires du troisième ordre et celle du cinquième ordre. C'est-à-dire un équilibre entre l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre ( $n_2$ ) et celui du cinquième ordre ( $n_4$ ). H. LEBLOND a déterminé la valeur de  $n_4$  en obtenant une concordance entre le schéma numérique et les résultats expérimentaux [11]. Nos travaux s'inscrivent dans la continuité de ceux d'E. FALCÃO-FILHO et al. puisque nous avons étudié la propagation de la lumière à travers une cuve de disulfure de carbone à une longueur d'onde de 532 nm en régime picoseconde. Nous avons observé expérimentalement la filamentation du

faisceau lors de cette propagation. Le processus de filamentation intervient lorsque le faisceau converge suffisamment pour collapser et se diviser en plusieurs faisceaux. Ce phénomène observé expérimentalement par N. F. PILIPTESKII et al. en 1965 [38], a été expliqué grâce à de nombreux mécanismes [15, 39–45]. La filamentation est d’ailleurs utilisée pour réaliser des guides d’onde en modifiant l’indice de réfraction en endommageant volontairement le milieu [46–53]. Afin de décrire analytiquement la filamentation du faisceau dans le disulfure de carbone, nous avons besoin de connaître précisément les caractéristiques non-linéaires de ce dernier. Cependant il n’y avait pas de données sur les non-linéarités du cinquième ordre, c’est-à-dire le coefficient d’absorption à trois photons ( $\gamma$ ) et l’indice de réfraction non-linéaire du cinquième ordre ( $n_4$ ), du disulfure de carbone à 532 nm en régime picoseconde. Une première étape de ce travail a donc consisté à estimer ces valeurs.

La première partie de la thèse présente la caractérisation du disulfure de carbone. la méthode Z-scan telle qu’elle est présentée par M. SHEIK-BAHAË et al. ne permet de mesurer que les non-linéarités du troisième ordre [22, 23]. Il existe toutefois des résolutions des équations différentielles gouvernant l’évolution de l’intensité et de la phase dans un milieu présentant des non-linéarités du troisième et du cinquième ordres mais toujours avec différentes approximations : indice de réfraction non-linéaire du cinquième ordre absent [54, 55] ou absence de l’absorption à trois photons [56]. En plus de n’être pas définies dans un cas général, ces solutions sont parfois difficiles à appliquer. Nous avons donc développé un ensemble de solutions dans le cas général, c’est-à-dire présence d’indice de réfraction non-linéaire du troisième et du cinquième ordres ainsi que présence des coefficients d’absorption à deux et trois photons. Nous avons utilisé ces solutions afin de caractériser le disulfure de carbone à 532 nm et à 1064 nm. Nous avons ainsi mesuré des indices de réfraction non-linéaire du cinquième ordre positifs et des coefficients d’absorption à trois photons très importants. Dans le même temps nous avons développé une approche analytique de la caractérisation du disulfure de carbone en utilisant différentes hypothèses. Cette approche a permis de comprendre pourquoi il existe une inversion du signe de l’indice de réfraction non-linéaire du cinquième ordre en fonction de la longueur d’onde. Cependant les modèles expliquant la filamentation de la lumière grâce à la saturation de l’effet Kerr impliquent que  $n_2$  soit de signe opposé à  $n_4$ . Or nos mesures indiquent le contraire. Il est envisageable que l’ajout des termes d’ordres supérieurs de la réfraction

non-linéaire fasse apparaître une saturation de l'effet Kerr, mais il devient très difficile de les mesurer sans endommager les matériaux. Il a été nécessaire d'adopter une nouvelle approche.

Dans la deuxième partie de la thèse, nous avons développé un nouveau modèle permettant d'expliquer la filamentation de la lumière à 532 nm et à 1064 nm dans le disulfure de carbone. Nous avons donc procédé à la mesure de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre grâce à la méthode de mesure  $D4\sigma$ , que nous avons récemment introduite, en fonction de l'intensité incidente. Nous avons établi une courbe de la saturation de l'effet Kerr en fonction de l'intensité incidente dont nous en avons déduit un modèle analytique. Nous avons résolu numériquement ce modèle et nous l'avons confronté aux résultats expérimentaux. Il nous a ainsi été possible d'étudier le contrôle de la filamentation du faisceau en modifiant la phase de ce dernier. Le contrôle de la filamentation correspond toutefois à une ouverture de nos travaux.

La dernière partie de la thèse présente une étude de la dynamique des solitons dissipatifs et des solitons vortex. La révolution des télécommunications, induite par l'émergence des systèmes tout-optiques, est à relativiser puisque dans les faits le signal optique est encore converti dans d'autres formats (signal électrique). Les propriétés intrinsèques des solitons spatiaux les rendent exploitables pour la réalisation de systèmes tout-optiques dynamiques de traitement parallèle de l'information comme par exemple pour le routage optique. Bien que de nombreux travaux ont été effectués dans ce sens, on citera par exemple la thèse de V. CODA [57], la recherche sur les solitons spatiaux est restée fondamentale. Les contraintes liés à la réalisation de milieu ou de montages expérimentaux, qui répondent aux critères physiques de la propagation des solitons spatiaux, restent très complexes. Bien qu'initialement prévu il n'a pas été possible de réaliser les expériences sur la dynamique des solitons dissipatifs et des solitons vortex. Cette étude est théorique. Nous avons utilisé le modèle de l'équation complexe de Ginzburg-Landau cubique-quintique pour étudier la dynamique des solitons dissipatifs. Ce modèle, proposé en 1984 par V. I. PETVIASHVILI et A. M. SERGEEV, décrit différentes structures localisées [58]. Cette équation ou des variantes de celle-ci ont été utilisés dans de nombreuses situations afin d'écrire et d'étudier les solutions localisées en particuliers les solitons dissipatifs [59–89]. Nous nous sommes intéressés à la dynamique de formation, de mobilité et de collisions de

différentes structures tels que le soliton fondamental, le dipôle, le quadrupôle, le soliton vortex rhombique et le soliton vortex carré. La dynamique de ces structures a été étudiée en présence d'une modulation transversale périodique de l'indice. Cette modulation a été proposée par H. LEBLOND en 2009 afin de stabiliser les solitons dissipatifs [90].

### **Chapitre 1 : Optique non-linéaire**

Le premier chapitre est consacré à la présentation des notions nécessaires à la compréhension des travaux de la thèse. Le but recherché est que la thèse soit abordable pour tout type de profil allant de l'étudiant du second cycle universitaire jusqu'au chercheur. Gageons que pour ce dernier, les notions abordés dans ce chapitre pourront être jugées triviales. On passera en revue les concepts simples liés aux interactions lumière-matière de l'optique non-linéaire. On développera les équations de Maxwell ainsi que les coefficients de susceptibilité non-linéaire. On s'attardera sur les indices de réfraction non-linéaire ( $n_2$  et  $n_4$ ) et les coefficients de l'absorption non-linéaire ( $\beta$  et  $\gamma$ ).

### **Chapitre 2 : Techniques de caractérisation des matériaux**

Le second chapitre sera consacré à la description des différentes techniques de caractérisation des matériaux utilisées et développées pour les besoins de la thèses. On s'attardera sur la méthode Z-scan, la méthode  $D4\sigma$  ainsi que le système imageur 4f. On présentera en détail comment obtenir les mesures des indices de réfraction non-linéaire et des coefficients d'absorption non-linéaires du troisième et du cinquième ordre. Pour illustrer ce travail, on terminera par une application en présentant différentes mesures effectuées dans des verres à base de métaux lourds  $\text{GeO}_2\text{-Bi}_2\text{O}_3\text{-PbO - TiO}_2$ , ainsi que dans des verres en chalcogénures  $(\text{GeSe}_2)_{100-x}(\text{Sb}_2\text{Se}_3)_x$ .

### **Chapitre 3 : Caractéristiques du disulfure de carbone**

Dans le troisième chapitre, nous présenterons une approche analytique de la caractérisation du disulfure de carbone. Nous établirons, à partir d'un modèle simple et de différentes hypothèses, plusieurs relations pour les hyperpolarisabilités cubiques et quintiques ainsi que les indices de réfraction non-linéaire et les coefficients d'absorption non-linéaire cubiques et quintiques. Nous mettrons en œuvre une méthode de mesure nouvellement développée afin de mesurer ces coefficients. Nous confronterons nos mesures à notre approche



analytique.

#### **Chapitre 4 : Filamentation dans le disulfure de carbone**

L'avant dernier chapitre s'attardera sur une mise en évidence expérimentale de la filamentation d'un faisceau laser intense de longueur d'onde 532 nm dans le disulfure de carbone. Nous présenterons les mesures des caractéristiques optiques non-linéaires de ce milieu. Ces mesures seront utilisées pour développer un nouveau modèle qui nous permettra de décrire numériquement la filamentation. Puis nous présenterons une résolution numérique du modèle et nous confronterons nos résultats à l'expérience. Enfin, nous présenterons une brève étude du contrôle de la filamentation par le contrôle de la phase du faisceau incident. Cette dernière approche est une ouverture de la thèse pour de futurs travaux.

#### **Chapitre 5 : Dynamique des solitons dissipatifs et des solitons vortex**

Le dernier chapitre est consacré à l'étude de la dynamique des solitons dissipatifs et des solitons vortex dans le cadre du modèle de l'équation complexe de Ginzburg-Landau cubique-quintique. Nous présenterons tout d'abord le modèle utilisé, ainsi qu'une approche analytique du problème. Puis nous passerons en revue les résultats de nos résolutions numériques décrivant les dynamiques de formation, de mobilité et de collisions de différentes structures : le soliton fondamental, le dipôle, le quadrupôle, le soliton vortex rhombique et le soliton vortex carré. Historiquement cette étude s'inscrivait comme un travail préliminaire à l'expérimentation. Les contraintes liées à l'expérimentation en physique et celles liées au temps, nécessairement limité, de la thèse n'ont pas permis de réaliser les expériences. Ce chapitre est donc purement théorique. Cependant, la confrontation de ces résultats numériques à l'expérience pourra faire le sujet de travaux ultérieurs.

# Chapitre 1

## Optique non-linéaire

### 1.1 Introduction

L'invention du premier laser (acronyme de l'anglais "*light amplification by stimulated emission of radiation*") en 1960 par T. MAIMAN [1] à permis l'étude des interactions entre la lumière intense et la matière. Ces études allaient permettre de développer de nombreuses applications dans différents domaines. Bientôt les chercheurs ont compris qu'il n'était plus possible de considérer les paramètres optiques des matériaux comme constants, mais comme fonction de l'intensité lumineuse. C'est la découverte de la génération de second harmonique par P. FRANKEN et al. en 1961 [2] qui fit entrer l'optique dans le monde des non-linéarités.

Lors des interactions entre la lumière et la matière, l'une des grandeurs essentielles est la polarisation du milieu. Celle-ci peut être décrite soit du point de vue classique, c'est-à-dire grâce aux équations de Maxwell, soit du point de vue de l'électrodynamique quantique. Le point de vue classique, ou en fait semi-classique, consiste à traiter le barycentre du nuage électronique comme une particule classique. Il ne devient nécessaire de quantifier le champ que si les photons arrivent un par un et doivent être considérés individuellement, comme par exemple dans le cas des paires de photons intriqués ou dans le domaine des télécommunications quantiques. L'électrodynamique quantique concilie l'électromagnétisme avec la mécanique quantique [91]. Bien que la manuscrit s'ouvre sur une citation de R. FEYNMAN, prix Nobel de physique (avec S. TOMONAGA et J. SCHWINGER) en 1965 pour sa contribution à la théorie de l'électrodynamique quantique,

nous utiliserons uniquement une approche classique.

Ce chapitre est consacré à la présentation des notions simples mais néanmoins nécessaires à la compréhension des travaux d'optique non-linéaire menés au cours de cette thèse. Tout d'abord nous définirons le faisceau laser ainsi que ses caractéristiques. Puis nous ferons un historique de l'équation d'onde suivi d'une présentation des équations de Maxwell. À partir de ces équations nous introduirons le concept de susceptibilité électrique. On présentera alors l'effet Kerr optique ainsi que la relation entre l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre,  $n_2$ , et la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre,  $\chi^{(3)}$ . Nous expliquerons le principe de l'auto-focalisation et son impact sur la stabilité des solitons de l'équation de Schrödinger non-linéaire à deux dimensions. On présentera ensuite le phénomène de filamentation du faisceau. Puis on introduira la saturation de l'effet Kerr et l'indice de réfraction non-linéaire du cinquième ordre  $n_4$ . Enfin nous présenterons les coefficients d'absorption non-linéaire du troisième et du cinquième ordre.

## 1.2 Le faisceau laser

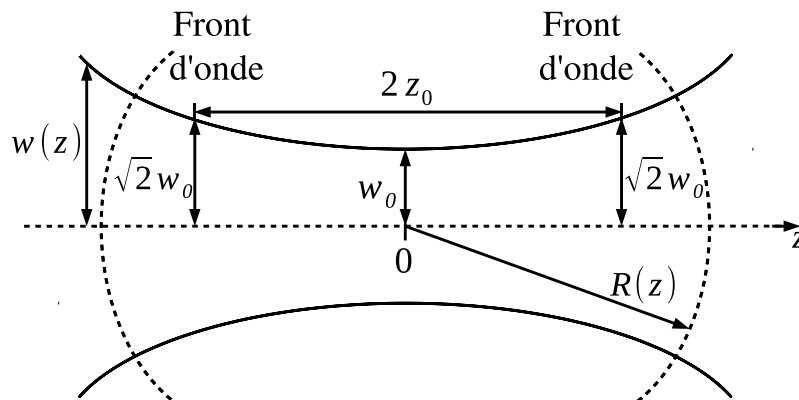


FIGURE 1.1 – Profil de propagation du faisceau Gaussien.

La lumière est une onde électromagnétique qui peut être décrite par son champ électrique. Son champ magnétique peut être déterminé à partir du champ électrique grâce aux équations de Maxwell, présentées plus loin. Les expériences d'optique non-linéaire utilisent des faisceaux lasers qui sont quasi-monochromatiques et cohérents. On note généralement  $z$  la direction de propagation. On se place dans le cadre de l'approximation paraxiale, c'est-à-dire que l'angle d'incidence entre le faisceau et la direction de propagation est très faible. On notera que l'ensemble des conditions menant à l'approximation de Gauss

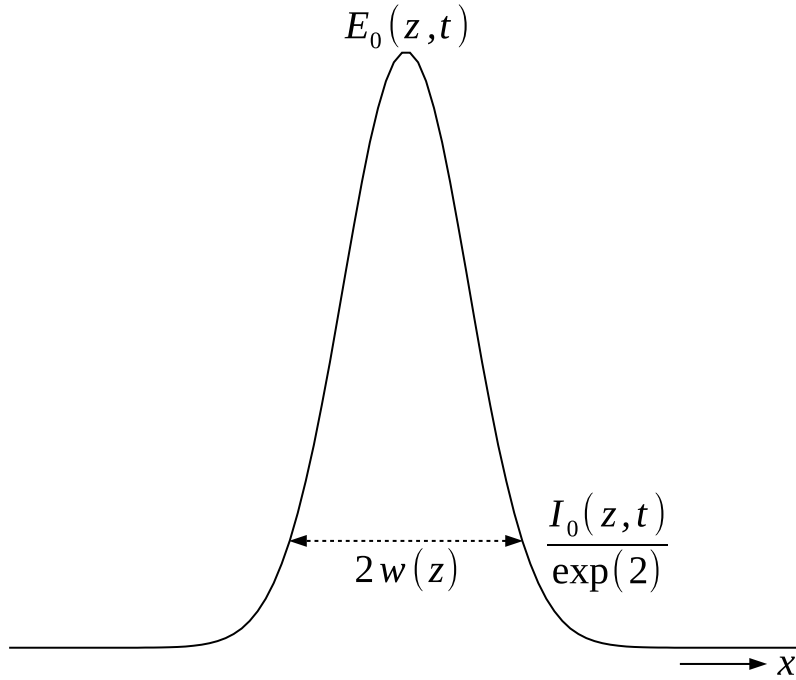


FIGURE 1.2 – Coupe transversale du faisceau Gaussien.

est appelé conditions de Gauss. L'expression générale de ce champ électrique est [92]

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{e}E(\vec{r}, t) \exp[i(kz - \omega t)] + c.c. \quad (1.1)$$

où  $k = 2\pi/\lambda$  est le vecteur d'onde dans le vide ( $\lambda$  est la longueur d'onde),  $\omega$  est la fréquence circulaire,  $E(\vec{r}, t)$  est l'amplitude de l'onde,  $\vec{r} = (x, y, z)$  est le vecteur position dans l'espace Cartésien,  $t$  est la variable de temps,  $\vec{e}$  est le vecteur unitaire enfin *c.c.* indique le complexe conjugué. L'amplitude de l'onde peut varier suivant le temps et l'espace, cependant l'approximation paraxiale suppose qu'elle varie lentement par rapport aux variations rapides (dans l'espace et le temps) de l'onde oscillante. De plus, l'amplitude peut être complexe, c'est-à-dire que la phase peut varier lentement elle aussi, en plus de sa variation contenue dans l'exposant de l'expression (1.1). Le vecteur unitaire  $\vec{e}$  indique la polarisation de l'onde, c'est-à-dire la direction du vecteur champ électrique.

Le vecteur  $\vec{e}$  réel décrit une polarisation linéaire, mais un vecteur  $\vec{e}$  complexe permet de décrire une polarisation circulaire ou elliptique. Dans un grand nombre de situations en optique linéaire et non-linéaire, et plus particulièrement dans celles décrites dans les chapitres 3, 4 et 5 de cette thèse, on considère les ondes comme planes, c'est-à-dire que l'on considère une onde dont la phase et l'amplitude sont constantes dans un plan transversal à la direction de propagation. C'est évidemment une approximation, tout faisceau réel a

une extension transversale finie.

Au 17<sup>ième</sup> siècle, de nombreux chercheurs tels que J. D’ALEMBERT, L. EULER, D. BERNOULLI, P.S. LAPLACE ou J.L. LAGRANGE ont étudié le problème de la corde vibrante. C’est à cette époque que l’on voit apparaître les balbutiements de la théorie des équations aux dérivées partielles (EDP). C’est en 1747, que J. D’ALEMBERT formule pour la première fois l’équation aux dérivées partielles à 1D, qui porte son nom. [93]

$$\frac{\partial^2 \varphi}{\partial x^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \phi}{\partial t^2} = 0, \quad (1.2)$$

A 3+1D l’équation des ondes s’écrit :

$$\Delta \varphi - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial t^2} = 0, \quad (1.3)$$

où  $\varphi$  est une quantité scalaire dépendante de la position et du temps et  $\Delta$  est l’opérateur Laplacien. L’équation d’onde, suivant les approximations faites, peut décrire différents phénomènes de propagation dans divers domaines de la physique, tels que la mécanique quantique, les déformations élastiques ou même la relativité générale. Ainsi, l’équation de d’Alembert apparaît comme l’approximation du premier ordre de nombreux phénomènes ondulatoires. C’est historiquement la première équation d’onde. Ce n’est qu’en 1759 que L. EULER propose une version tri-dimensionnelle de l’équation [94]. Cette dernière est conservative dans l’espace-temps : c’est-à-dire que toute variation dans le temps est compensée dans l’espace, et réciproquement. Elle néglige aussi toute diffusion ou anisotropie.

Les modes de fonctionnement des lasers font que le profil d’un faisceau est typiquement Gaussien. Dans ce cas la Gaussienne circulaire permet de décrire le profil du faisceau dans le plan transverse. À  $z = 0$ , l’expression du champ électrique (1.1) est

$$\vec{E}(r, 0, t) = \vec{e} E_0(0, t) \exp \left[ -\frac{r^2}{w^2(0)} - i\omega t \right] + c.c. \quad (1.4)$$

où  $r = \sqrt{(x^2 + y^2)}$  désigne la distance à l’axe dans le plan transverse,  $E_0(0, t) = |E(0, 0, t)|$  est l’amplitude du champ au centre du faisceau et  $w(0)$  est le rayon minimal du faisceau, c’est-à-dire lorsque le faisceau est focalisé. L’équation d’onde (1.3) peut être résolue de façon approchée, pour la donnée initiale gaussienne (1.4) et d’après l’approximation pa-

radiale. Le faisceau évolue suivant

$$\vec{E}(r, z, t) = \vec{e}E_0(z, t) \frac{w_0}{w(z)} \exp \left[ -\frac{r^2}{w^2(z)} - \frac{ikr^2}{2R(z)} + i \tan^{-1} \left( \frac{z}{z_R} \right) \right] \exp [i(kz - \omega t)] + c.c. \quad (1.5)$$

où  $R(z)$  est le rayon de courbure du front d'onde et  $w(z)$  est le rayon du faisceau à  $z$ .

Dans le cadre de la définition D4 $\sigma$ <sup>1</sup>, le rayon du faisceau suivant l'axe des  $x$  est

$$w_x(z) = 2 \sqrt{\frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) (x - \bar{x}(z))^2 dx dy}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) dx dy}}, \quad (1.6)$$

et le rayon du faisceau suivant l'axe des  $y$  est

$$w_y(z) = 2 \sqrt{\frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) (y - \bar{y}(z))^2 dx dy}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) dx dy}}, \quad (1.7)$$

et dans le cas d'une ellipticité faible, on se ramène à un modèle circulaire en définissant

$$w(z) = \frac{w_x(z) + w_y(z)}{2}. \quad (1.8)$$

Dans ces formules,  $\bar{x}(z)$  et  $\bar{y}(z)$  sont les coordonnées du centre du faisceau ;

$$\bar{x}(z) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) x dx dy}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) dx dy}, \quad (1.9)$$

$$\bar{y}(z) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) y dx dy}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) dx dy}. \quad (1.10)$$

Le rayon du faisceau est donc ainsi défini comme 2 fois l'écart type  $\sigma$  de la distribution marginale du champ en intensité. Cette définition du rayon permet d'étendre, pour des faisceaux Gaussiens à des faisceaux réels qui s'en approchent plus ou moins, les résultats obtenus. Cette définition coïncide avec le rayon à  $1/\exp(2)$  dans le cas d'un faisceau Gaussien.

La distance de Rayleigh  $z_R$  est la distance entre le plan focal ( $z = 0$ ), où le rayon  $w_0$  du faisceau est minimal, et le plan où l'aire du faisceau a doublé ( $w(z) = \sqrt{2}w_0$ ). Cette

---

1. Cela correspond à la définition ISO 11146-2 :2005

distance est

$$z_R = k \frac{w_0^2}{2}. \quad (1.11)$$

On parlera de *champ proche* pour  $|z| < z_R$  et de *champ lointain* pour  $|z| > z_R$ . Le rayon de courbure est

$$R(z) = \left[ 1 + \left( \frac{z_R}{z} \right)^2 \right]. \quad (1.12)$$

En pratique lorsque l'on est en champ proche, le rayon de courbure est considéré comme infini. C'est-à-dire que l'approximation de l'onde plane est valable dans ce domaine.

On notera que l'intensité du champ électrique est

$$I(r, z) = 2cn\epsilon_0 |E(r, z)|^2. \quad (1.13)$$

$I_0 = (0, 0)$  correspond à l'intensité au centre du faisceau lorsque celui-ci est focalisé,  $c$  est la vitesse de la lumière dans le vide,  $n$  est l'indice linéaire du milieu à la longueur d'onde considérée et  $\epsilon_0$  est la permittivité du vide.

Ces notions sont illustrées sur les figures 1.1 et 1.2.

### 1.3 Les équations d'onde

En 1864, J. C. MAXWELL réalise une synthèse des diverses lois empiriques sur l'électricité et le magnétisme découvertes par ses prédécesseurs [95]. Il présente alors un système de vingt équations à vingt inconnues décrivant comment le champ magnétique et le champ électrique sont générés, interagissent et sont modifiés par la matière. Bien que J. C. MAXWELL ait réduit en 1873 son système à huit équations [96], la forme moderne d'un système de quatre équations vient des travaux d'O. HEAVISIDE. Les équations de Maxwell dans les milieux continus sont

$$\nabla \cdot \vec{D} = \rho, \quad (1.14)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0, \quad (1.15)$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, \quad (1.16)$$

$$\nabla \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{J}, \quad (1.17)$$

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H} + \vec{M} \quad (1.18)$$

et

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}, \quad (1.19)$$

$\vec{D}$  désigne le déplacement électrique,  $\vec{B}$  désigne le champ B,  $\vec{H}$  désigne le champ H,  $\vec{E}$  désigne le champ électrique,  $\vec{J}$  désigne la densité de courant libre,  $\vec{M}$  est l'aimantation du matériau,  $\vec{P}$  désigne la polarisation,  $\mu_0$  désigne la perméabilité magnétique du vide et  $\rho$  désigne la densité volumique de charge libre du milieu. Ces équations décrivent l'évolution d'un champ électromagnétique au sein d'un milieu en fonction de l'espace et du temps. On notera que la vitesse de la lumière est définie en fonction de la perméabilité magnétique du vide et de la permittivité du vide

$$c = \frac{1}{\sqrt{\mu_0 \epsilon_0}}. \quad (1.20)$$

Avant de développer plus en avant la théorie mathématique, replaçons dans son contexte la situation physique. On cherche à décrire la propagation d'une onde électromagnétique, la lumière, au sein d'un milieu non-linéaire. On a alors une onde électromagnétique issue d'une source laser intense qui illumine un milieu composé de  $N$  atomes. Chaque atome illuminé par l'onde voit son nuage électronique déformé par le champ électrique de cette onde. Cela induit une séparation des charges qui est à l'origine des moments dipolaires. Or le moment dipolaire par unité de volume n'est rien d'autre que la polarisation. Nous l'avons dit précédemment la polarisation est la grandeur clef de l'optique non-linéaire.

Reprenons les équations (1.14), (1.15), (1.16), (1.17), (1.18) et (1.19). On considère un milieu diélectrique sans charge libre,  $\rho = 0$ , avec une densité de courant libre nulle,  $\vec{J} = 0$ , et non-magnétique,  $\vec{M} = 0$ .

Si on calcule le rotationnel de l'équation de Maxwell (1.16) puis que l'on échange l'ordre entre les dérivées spatiales et temporelle dans le second membre, on peut alors, grâce aux relations (1.17), (1.18), (1.19) et aux hypothèses, de remplacer  $\nabla \times \vec{B}$  par  $\mu_0 \left( \partial \vec{D} / \partial t \right)$ . On obtient alors

$$\nabla \left( \nabla \cdot \vec{E} \right) - \Delta \vec{E} + \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} = 0. \quad (1.21)$$



En exprimant la relation (1.19) dans l'équation (1.21) on obtient

$$\nabla \left( \nabla \cdot \vec{E} \right) - \Delta \vec{E} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = -\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2}, \quad (1.22)$$

où  $\vec{P}$  est la densité de polarisation. L'équation (1.22) est la forme la plus générale de l'équation d'onde dans un diélectrique.

D'après l'équation de Maxwell (1.14), la divergence de  $\vec{D}$  est nulle. Dans le cadre de l'optique linéaire et en considérant un milieu diélectrique isotrope,  $\vec{P} \propto \vec{E}$  donc  $\vec{D} \propto \vec{E}$  et donc  $\nabla \cdot \vec{E} = 0$ . Le terme  $\nabla \left( \nabla \cdot \vec{E} \right)$  de l'équation (1.21) est donc nul. La situation est plus complexe en optique non-linéaire puisqu'un milieu isotrope du point de vue de l'optique linéaire, peut en toute rigueur présenter une anisotropie induite par les effets non-linéaires. La conséquence est que  $\nabla \cdot \vec{E} \neq 0$ . Cependant dans la plupart des cas il est possible de négliger ces effets. On peut alors négliger le terme  $\nabla \left( \nabla \cdot \vec{E} \right)$  de l'équation (1.21). Mathématiquement cela s'explique en utilisant l'approximation des enveloppes lentement variable. On néglige le terme  $\left| \nabla \left( \nabla \cdot \vec{E} \right) \right|$  devant le terme  $\left| \nabla^2 \vec{E} \right|$ . Cette approximation implique que la longueur d'onde soit très petite devant les dimensions caractéristiques du faisceau lumineux. Pour une impulsion laser, il faut que la longueur d'onde soit très petite devant la longueur de l'impulsion. Nos travaux ont été fait en utilisant des impulsions à  $\lambda = 532 \text{ nm}$  et  $\lambda = 1064 \text{ nm}$  de durée, respectives, 12 ps et 17 ps. Les trains d'impulsions ont donc des longueurs approximatives de 3.6 mm et 5.1 mm, quatre ordre de grandeur plus grand que  $\lambda$ . On est donc bien dans le cadre de cette approximation. L'équation 1.22 devient

$$\nabla^2 \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2}. \quad (1.23)$$

L'équation (1.23) est l'équation d'onde que nous allons utiliser pour nos travaux. De nombreux modèles décrivant la propagation de la lumière au travers de milieux non-linéaires dérivent de cette équation.

Supposons que le milieu considéré soit exposé à un faisceau lumineux suffisamment faible pour ne pas exciter les non-linéarités. On définit alors la susceptibilité linéaire dans le domaine fréquentiel en fonction du champ électrique

$$\vec{P}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \vec{E}(\omega), \quad (1.24)$$

où  $\chi^{(1)}$  est la susceptibilité linéaire. Dans sa forme générale, la susceptibilité (linéaire ou non-linéaire) est un tenseur. Par contre elle devient un scalaire lorsque l'on considère un milieu isotrope.  $\chi^{(1)}$  est alors un nombre complexe décrivant la propagation de l'onde dans le milieu. Sa partie réelle rend compte des variations de l'indice de réfraction tandis que sa partie imaginaire décrit l'absorption dans le milieu. En appliquant la définition de  $\chi^{(1)}$  (1.24) à l'équation (1.23) dans le cas d'une onde mono-chromatique, on montre que

$$\chi^{(1)} = n^2 - 1, \quad (1.25)$$

où  $n$  est l'indice de réfraction du milieu.

Considérons maintenant un faisceau laser suffisamment intense pour faire apparaître des effets non-linéaires, mais très inférieur à l'intensité du champ atomique ( $\approx 10^3$  TW/cm<sup>2</sup>). On peut alors développer la polarisation  $\vec{P}$  en puissances du champ électrique. On écrit

$$\vec{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E} + \epsilon_0 \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \epsilon_0 \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots, \quad (1.26)$$

où  $\chi^{(2)}$  et  $\chi^{(3)}$  sont les susceptibilités non-linéaires de second et de troisième ordre. Les termes de susceptibilités dépendent de la fréquence de l'onde. On notera qu'il est important que la série converge, le relation (1.26) doit vérifier la condition  $\chi^{(1)} \gg \chi^{(2)} \vec{E}^2 \gg \chi^{(3)} \vec{E}^3 \gg \dots$ , ce qui suppose que  $\vec{E}$  soit petit devant le champ atomique ( $\approx 10^{11}$  Vm).

On définit alors la polarisation linéaire

$$\vec{P}_L = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}, \quad (1.27)$$

et la polarisation non-linéaire

$$\vec{P}_{NL} = \epsilon_0 \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \epsilon_0 \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots. \quad (1.28)$$

Les termes de susceptibilités non-linéaires décrivent les effets non-linéaires, qui peuvent être résonnants (par exemple l'absorption multi-photoniques), quand la fréquence de l'onde lumineuse est proche d'une bande d'absorption du milieu, ou non résonnants (par exemple l'effet Kerr optique) [97]. Ces effets peuvent rendre compte d'une transition d'un

atome ou d'une molécule d'un état propre à un autre (effets résonnants) ou rendre compte d'une perturbation dans la distribution ou dans le déplacement des charges électriques du milieu (effets non résonnants). Parmi les phénomènes non-linéaires décrits par  $\chi^{(2)}$  on trouve

- génération de seconde harmonique,
- effet Pockels,
- amplification paramétrique optique.

De même, parmi les phénomènes non-linéaires décrits par  $\chi^{(3)}$  on trouve

- génération de troisième harmonique,
- effet Kerr optique,
- auto focalisation.

Par avance, ces listes ne sont pas exhaustives et ne servent qu'à illustrer nos propos. Le lecteur souhaitant en apprendre plus, trouvera de nombreux articles et livres dédiés au sujet notamment [92, 97, 98].

Nous allons aborder plus en détail l'effet Kerr optique.

## 1.4 Effet Kerr optique

Considérons un milieu centrosymétrique, c'est-à-dire invariant par symétrie centrale ( $\vec{X} \rightarrow -\vec{X}$ ). C'est en partie le cas de milieux isotropes comme les gazs, les liquides ou les verres. Mais c'est aussi le cas de nombreux cristaux. Cette symétrie implique que  $\chi^{(2)}$  soit nulle. La polarisation non-linéaire (1.26) devient alors

$$\vec{P}_{NL} \approx \epsilon_0 \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E}. \quad (1.29)$$

où l'on suppose que l'intensité est modérée de façon à ce que les termes de susceptibilités non-linéaire d'ordre supérieur sont très petits et donc négligeable. Considérons une onde

quasi-monochromatique de pulsation  $\omega_0$ , la polarisation non-linéaire s'écrit

$$\vec{P}_{NL}(\omega) = \epsilon_0 \sum_{\omega=\omega_1+\omega_2+\omega_3} \chi^{(3)}(\omega, \omega_1, \omega_2, \omega_3) \vec{E}(\omega_1) \vec{E}(\omega_2) \vec{E}(\omega_3), \quad (1.30)$$

avec  $\omega_1, \omega_2, \omega_3 = \pm\omega_0$ . On se limite aux milieux optiquement isotropes, donc  $\chi$  est un scalaire. En tenant compte des différentes combinaisons et permutations possibles, la polarisation non-linéaire à la fréquence  $\omega_0$  est

$$\vec{P}_{NL}(\omega_0) = \epsilon_0 3\chi^{(3)}(\omega_0, \omega_0, \omega_0, -\omega_0) \vec{E}(\omega_0) \vec{E}(\omega_0) \vec{E}^*(\omega_0) = \epsilon_0 3\chi^{(3)} \vec{E} \left| \vec{E} \right|^2, \quad (1.31)$$

où  $\vec{E}^*$  est le complexe conjugué de  $\vec{E}$ . En utilisant les relations pour la polarisation linéaire (1.27) et la polarisation non-linéaire (1.31), la relation (1.19) devient

$$\vec{D} = \epsilon_0 \left( 1 + \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)} \left| \vec{E} \right|^2 \right) \vec{E} = \epsilon_0 n^2 \vec{E}, \quad (1.32)$$

où on a posé

$$n = \sqrt{1 + \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)} \left| \vec{E} \right|^2}. \quad (1.33)$$

Par analogie avec la définition de l'indice de réfraction linéaire :

$$n_0 = \sqrt{1 + \chi^{(1)}}. \quad (1.34)$$

L'indice de réfraction  $n$  se réduit à l'indice de réfraction linéaire  $n_0$  pour des intensités lumineuses faibles. En réécrivant l'expression de  $n$  (1.33) grâce à celle de  $n_0$  (1.34), en exprimant l'intensité grâce à la relation (1.13) et en utilisant un développement limité (au voisinage de 0 à l'ordre 1 de la fonction  $\sqrt{1+x}$ ), on obtient

$$n = n_0 + n_2 I, \quad (1.35)$$

où

$$n_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{4n_0^2 c \epsilon_0}. \quad (1.36)$$

L'indice de réfraction (1.35) varie en fonction de l'intensité. Cet effet est appelé effet Kerr optique et  $n_2$  (1.36) est l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre.

Si un faisceau laser intense ayant un front d'onde plan traverse un milieu et excite les non-linéarités de ce milieu, alors ce dernier (par effet Kerr) induit une courbure du front d'onde (voir la figure 1.3). La propagation du faisceau se fait ensuite dans la direction

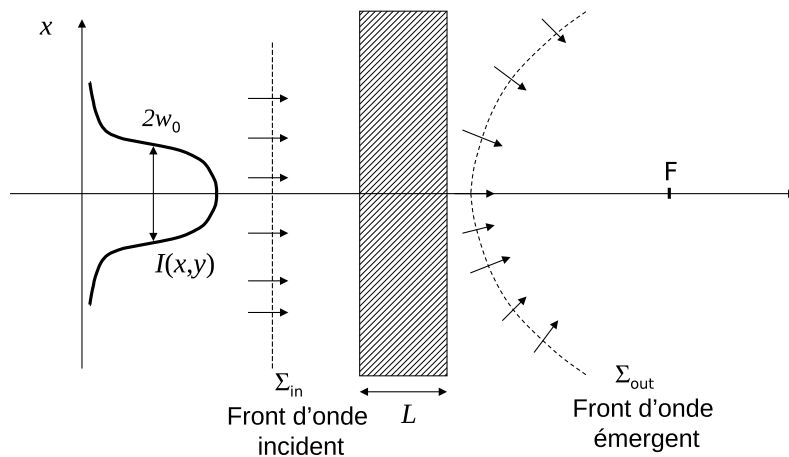


FIGURE 1.3 – Illustration de la courbure du front d'onde induite par effet Kerr lors de la propagation d'une onde d'intensité  $I(x, y)$  et de largeur  $2w_0$  au travers d'un milieu d'épaisseur  $L$ . Le point F correspond au point où l'onde se focalise (centre du front d'onde).

perpendiculaire au front d'onde, ce qui induit de l'auto-focalisation. Nous allons voir que ce phénomène d'auto-focalisation est responsable de la génération d'une onde particulière, le soliton.

## 1.5 Solitons et filamentation

Considérons l'enveloppe  $\mathcal{E} = E \exp[i(kz - \omega t)]$ , où le champ électrique  $E$  (1.1) se propageant dans le temps ( $t$ ) et l'espace ( $z$ ) dans un milieu centrosymétrique uni-dimensionnel ( $x$ ). Dans cette situation le faisceau peut se diffracter seulement selon la dimension  $x$ . En partant de l'équation d'onde (1.23) à deux dimensions spatiales et une dimension de temps ( $x, z, t$ ), on obtient

$$\frac{\partial^2 E}{\partial x^2} + \left[ -k^2 E + 2ik \frac{\partial E}{\partial z} + \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} \right] + \frac{\omega^2}{c^2} (1 + \chi^{(1)}) E = -\frac{\omega^2 P_{NL}}{c^2 \epsilon_0}, \quad (1.37)$$

où  $\partial^2 \mathcal{E} / \partial z^2 = (-k^2 E + 2ik \partial E / \partial z + \partial^2 E / \partial z^2) \exp[i(kz - \omega t)]$ . La relation de dispersion linéaire est  $k^2 = \omega^2 (1 + \chi^{(1)}) / c^2$ . L'approximation des enveloppes lentement variables permet de négliger  $\partial^2 E / \partial z^2$  devant  $2ik \partial E / \partial z$ . D'après l'expression (1.31) de la polarisa-

tion non-linéaire , on peut réécrire l'équation (1.37) comme

$$2ik \frac{\partial E}{\partial z} + \frac{\partial^2 E}{\partial x^2} + \frac{\omega^2}{c^2} 3\chi^{(3)} |E|^2 E = 0. \quad (1.38)$$

L'équation (1.38) est l'équation de Schrödinger non-linéaire (NLS).

Cherchons une solution stationnaire de l'équation (1.38). On pose  $X = \sqrt{2k}x$  et  $u = (\omega/c) \sqrt{3\chi^{(3)}/k} E$  (cela suppose que  $\chi^{(3)} > 0$ ). L'équation (1.38) devient

$$i \frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial^2 u}{\partial X^2} + \frac{1}{2} |u|^2 u = 0. \quad (1.39)$$

Puisque l'on cherche une solution stationnaire on pose  $u = u(X) \exp(ip^2 z)$ . L'équation (1.39) peut être résolue, la solution est

$$u = \frac{2p^4 \exp(ip^2 z)}{\cosh(pX)}. \quad (1.40)$$

La fonction (1.40) décrit la propagation sans déformation d'une onde dans un milieu auto-focalisant : c'est le soliton spatial. Ainsi l'auto-focalisation compense la diffraction et permet au faisceau de se propager sans se déformer. Un phénomène analogue a lieu dans le temps, par exemple le long d'une fibre optique [13]. L'auto-modulation de phase et la dispersion se compensent et permettent aux solitons temporels d'être stables. On ne s'intéressera ici qu'aux solitons spatiaux. On abordera l'historique des solitons dans le chapitre (5), le présent chapitre se limitera à quelques notions de mathématiques et de physiques qu'impliquent les solitons spatiaux. On précisera tout de même que la première observation de soliton fut celle de J. S. RUSSEL [99] en 1834. Il a observé la propagation d'une vague dans un canal formée par le passage d'un bateau sur plusieurs kilomètres. C'était un soliton hydrodynamique de plus on a dans ce cas une oscillation unique et non pas une impulsion contenant un grand nombre d'oscillation comme dans le cas du soliton de l'équation SNL dans lequel c'est l'enveloppe de l'onde qui est localisée. On parlera d'onde solitaire dans le cas des solitons sans enveloppe et de soliton d'enveloppe dans l'autre cas qui inclut l'optique non-linéaire, sauf dans le régime à quelques cycles. La première mise en évidence expérimental du confinement du faisceau et de la propagation d'un soliton dans un milieu Kerr a été réalisée par A. BARTHELEMY et al. en 1985 [9,100].

La particularité des solitons est de se propager dans un milieu sans se déformer et de conserver leurs caractéristiques dans les interactions. C'est un comportement de quasi-particule. Si on considère l'équation NLS à deux dimensions, qui s'écrit

$$2ik \frac{\partial E}{\partial z} + \left( \frac{\partial^2 E}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E}{\partial y^2} \right) + \frac{\omega^2}{c^2} 3\chi^{(3)} |E|^2 E = 0. \quad (1.41)$$

On ne trouve plus de solution localisée stable. En effet, l'auto-focalisation du faisceau implique que l'intensité pic augmente or à (2+1)D l'amplitude pic augmente plus vite que à (1+1)D, l'énergie arrive de toutes les directions. La diffraction n'est plus suffisante pour compenser l'auto-focalisation, le faisceau collapse. L'intensité tend vers l'infini pour une distance de propagation finie. En pratique le faisceau atteint une puissance critique et finit par se briser en de nombreux filaments. Ce phénomène se nomme la filamentation du faisceau [38,41–43,101]. En effet, lorsque l'intensité augmente, les termes de susceptibilités non-linéaires que l'on avait négligés auparavant cessent d'être négligeable. De nombreux phénomènes peuvent être responsable de la filamentation du faisceau : diffusions stimulées, modification du milieu (permanente ou non), effets non-locaux...

Afin qu'un faisceau laser filamente, celui-ci doit atteindre une puissance critique  $P_{[CR]}$ . Dans le cas d'un faisceau gaussien, la puissance critique est définie comme [102] :

$$P_{[CR]} = \frac{3.77\lambda^2}{8\pi n_0 n_2}. \quad (1.42)$$

Un de ces effets empêche le collapse. Il suffit pour cela que l'indice de réfraction  $n(I)$  arrête de croître. On peut considérer une non-linéarité "saturante"

$$n(I) = a + \frac{b}{1 + \frac{I}{I_s}}, \quad (1.43)$$

où  $I_s$  est une intensité de saturation. En effectuant un développement limité de l'expression (1.43), on obtient

$$n(I) = a + \frac{b}{1 + \frac{I}{I_s}} + \dots = a + b - b\frac{I}{I_s} + b\left(\frac{I}{I_s}\right)^2 + \dots = n_0 + n_2 I + n_4 I^2 + \dots, \quad (1.44)$$

où  $n_4$  est l'indice de réfraction non-linéaire du cinquième ordre. De cette hypothèse,  $n_2$  et

$n_4$  sont de signes contraires. Ainsi pour  $n_2 > 0$  on a  $n_4 < 0$ , l'équation NLS (1.41) après normalisation devient

$$ik \frac{\partial u}{\partial z} + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial^2 u}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial Y^2} \right) + k\gamma (|u|^2 - |u|^4) u = 0. \quad (1.45)$$

L'équation (1.45) est l'équation de Schrödinger non-linéaire cubique-quintique sous sa forme standard. V. SKARKA et al. ont montré que cette équation admet des solutions stationnaires stables [15]. Il est possible de tenir compte de la dispersion en ajoutant le terme  $-(\beta_2/2)(\partial^2 u/\partial t^2)$ . Il y a aussi des solutions stables appelées solitons spatiaux-temporels ou "balles de lumière" [15, 103].

Considérons maintenant un milieu actif, c'est-à-dire présentant du gain. Pour tenir compte d'une telle situation, on utilise l'équation de Ginzburg-Landau complexe cubique. On présente ici le modèle pour un laser à fibre (cas temporel), puisqu'à ce jour nous n'avons pas connaissance d'une présentation de ce modèle dans le cas spatial autrement que normalisé. L'équation de Ginzburg-Landau complexe cubique dans le cas d'un laser à fibre s'écrit

$$i \frac{\partial f}{\partial \zeta} = ig \left( \frac{\beta_2}{2} + i\rho \right) \frac{\partial^2 f}{\partial t^2} + (\mathcal{D} + i\mathcal{D}_i) |f|^2 f, \quad (1.46)$$

$\mathcal{D}_i$  est le gain effectif (ou absorption) non-linéaire,  $g$  est le gain net, c'est-à-dire le bilan entre le gain et les pertes linéaires, et  $\rho$  est lié à la largeur spectrale du gain. Des solutions stables localisés existent grâce à un équilibre entre les effets conservatifs et les effets dissipatifs tels que la diffraction et l'auto-focalisation linéaire et non-linéaire ainsi que les pertes et gains non-linéaire. En 1996 N. AKHMEDIEV et al. ont trouvé des solutions analytiques à l'équation (1.46) dans le cas de la dispersion anormale [104]. Puis l'année suivante J. M. SOTO-CRESPO et al. ont trouvé des solutions analytiques pour la dispersion normale [105]. Les solutions de l'équation (1.46) sont des solitons dissipatifs.

Enfin, il est possible de considérer des solutions localisées de l'équation (1.45) ou de l'équation (1.46) ayant un moment cinétique. Ce sont les solitons vortex. On définit le spin du vortex (ou vorticité) comme étant le nombre  $S$  de fois que la phase du vortex varie de  $2\pi$  en tour autour. Les vortex sont instables à l'exception pour des vortex "noirs" l'équation NLS (1.45). Les vortex "noirs" correspondent à des trous dans un fond continu s'étendant à l'infini.



Plus récemment l'ajout d'un potentiel périodique a permis d'avoir des vortex stables dans l'équation complexe de Ginzburg-Landau [90].

## 1.6 Absorption non-linéaire

Lorsque nous avons défini les susceptibilités linéaire (1.24) et non-linéaire (1.26), nous avons expliqué que la partie imaginaire de ces grandeurs correspond à l'absorption dans le milieu. L'absorption non-linéaire regroupe en réalité différents phénomènes résonnants et non-résonnants qui impliquent une diminution de la transmission du milieu, en fonction de l'intensité. Considérons ici les phénomènes résonnants. Parmi ces phénomènes on distinguera l'absorption d'un photon par un état excité (incluant l'absorption saturable et l'absorption des porteurs libres) et l'absorption multi-photonique (incluant l'absorption à deux photons et l'absorption à trois photons) [92, 98].

Considérons les phénomènes d'absorption à deux photons et d'absorption à trois photons. Pour un milieu excité par un faisceau laser intense, la probabilité qu'un atome (ou molécule) excité absorbe plus d'un photon pour revenir à son état fondamental est d'autant plus importante que le faisceau lumineux est intense. La théorie de l'absorption à deux photons a été formulée en 1931 par M. GÖPPERT-MAYER [106] et le phénomène a été observé expérimentalement pour la première fois en 1961 par W. KAISER [107]. Dans un milieu illuminé par un laser à la fréquence  $\nu$ , deux photons de cette source sont absorbés afin de fournir l'énergie  $h2\nu = \Delta E$  de la transition. La fréquence  $2\nu$  correspond à une des résonances du spectre d'absorption. On notera qu'il est aussi possible que le milieu absorbe deux photons de fréquences distinctes cohérentes dont la somme est égale à  $2\nu$ . Cette autre cas ne sera pas abordé dans nos travaux. L'absorption à trois photons implique que trois photons soient absorbés afin de fournir l'énergie correspondante à la transition.

Soit  $N_1$  la densité d'atomes dans l'état fondamental. La probabilité d'absorption d'un photon est proportionnelle à la densité de photons. Si  $\phi$ , le flux de photon par unité de surface,

$$\left(\frac{dN_1}{dt}\right)_{abs} = -W_{12}N_1, \quad (1.47)$$

où

$$W_{12} = \sigma_{12}\phi \quad (1.48)$$

et  $\sigma_{12}$  est la section efficace d'absorption. De même la probabilité d'absorption de deux photons est proportionnelle à la présence simultanée de deux photons, donc à  $\phi^2$

$$\left(\frac{dN_1}{dt}\right)_{2\gamma} = -K\phi^2 N_1. \quad (1.49)$$

La probabilité d'absorption de trois photons est proportionnelle à la présence simultanée de trois photons, donc à  $\phi^3$

$$\left(\frac{dN_1}{dt}\right)_{3\gamma} = -R\phi^3 N_1. \quad (1.50)$$

Évidemment,  $W_{12}$ ,  $K$  et  $R$  dépendent de l'existence d'une résonance pour la fréquence considérée. L'état excité n'est pas le même pour les trois effets pour une même onde monochromatique. On calcule l'évolution du flux  $\phi$  de la surface  $S$  lors de la propagation suivant  $z$

$$S(\phi + d\phi) = (-\sigma_{12}\phi N_1 - K\phi^2 N_1 - R\phi^3 N_1) S dz. \quad (1.51)$$

On obtient alors

$$\frac{d\phi}{dz} = -\sigma_{12}\phi N_1 - K\phi^2 N_1 - R\phi^3 N_1. \quad (1.52)$$

Or l'intensité  $I$  est  $I = h\nu\phi$ , où  $\nu$  est la fréquence de la radiation. L'équation (1.52) s'écrit

$$\frac{dI}{dz} = -\sigma_{12}N_1 I - \frac{KN_1}{h\nu} I^2 - \frac{RN_1}{(h\nu)^2} I^3, \quad (1.53)$$

où  $\sigma_{12}N_1$  décrit l'absorption linéaire,  $\frac{KN_1}{h\nu}$  décrit l'absorption à deux photons et  $\frac{RN_1}{(h\nu)^2}$  décrit l'absorption à trois photons. Ces phénomènes sont résonnants et quantiques.

Pour exprimer le point de vue macroscopique, reprenons l'équation NLS (1.41) où l'on considère la partie imaginaire de la susceptibilité linéaire et les susceptibilités non-linéaires du troisième et du cinquième ordres. Ces susceptibilités non-linéaires sont des scalaires complexes. On écrit

$$2ik\frac{\partial E}{\partial z} + \Delta_{\perp}E + \frac{\omega^2}{c^2} \left[ i\chi_I^{(1)} + 3\chi^{(3)} |E|^2 + 10\chi^{(5)} |E|^4 \right] E = 0, \quad (1.54)$$

où  $\Delta_{\perp} = (\partial^2/\partial x^2) + (\partial^2/\partial y^2)$  et  $\chi_I^{(1)}$  est la partie imaginaire de  $\chi^{(1)}$ . L'équation (1.54) est formellement identique à l'équation de Ginzburg-Landau complexe cubique-quintique à cela près qu'il n'y a pas de gain dans l'équation. On néglige la diffraction et on multiplie l'équation (1.54) par  $E^*$ , puis on ajoute le complexe conjuguée afin de faire apparaître  $E^* (\partial E/\partial z) + E (\partial E^*/\partial z) = \partial (EE^*)/\partial z$ . On multiplie tout par  $2c\epsilon_0 n_0$ . D'après la définition de l'intensité,  $I = 2c\epsilon_0 n_0 |E|^2$ , la partie imaginaire de l'équation est

$$\frac{\partial I}{\partial z} = -\alpha I - \beta I^2 - \gamma I^3, \quad (1.55)$$

où  $\alpha = 2\pi\chi_I^{(1)}/\lambda n_0$  est le coefficient de l'absorption linéaire,  $\beta = 3\pi\chi_I^{(3)}/n_0^2\epsilon_0 c\lambda$  est le coefficient de l'absorption non-linéaire du troisième ordre et  $\gamma = 10\pi\chi_I^{(5)}/n_0^3\epsilon_0^2 c^2\lambda$  est le coefficient de l'absorption non-linéaire du cinquième ordre.

Si l'on compare l'équation (1.53) et l'équation (1.55), on peut voir que  $\alpha \equiv \sigma_{12}N_1$ ,  $\beta \equiv KN_1/h\nu$  et  $\gamma \equiv RN_1/(h\nu)^2$ . On peut alors conclure que l'absorption non-linéaire du troisième ordre correspond à l'absorption à deux photons et l'absorption non-linéaire du cinquième ordre correspond à l'absorption à trois photons. Cependant ce n'est pas juste. Nous mesurons les grandeurs macroscopiques que sont  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$ . Même si ces grandeurs sont du même ordre que les grandeurs microscopiques qui correspondent aux absorptions multi-photoniques, il existe d'autres phénomènes microscopiques pouvant être responsables de l'absorption (ou variation de la transmission). Par exemple il existe des absorptions non-résonnantes ou bien des diffusions stimulées immédiatement réabsorbées. Ces phénomènes donnent la même dépendance,  $dI/dz = f(I)$ , que pour l'absorption multi-photonique. Dans les faits, il est impossible de connaître exactement l'origine microscopique de la grandeur macroscopique que l'on mesure. Et même si il y a bien une absorption multi-photonique, rien ne permet de dire qu'elle est significative devant d'autres phénomènes microscopiques. Ainsi c'est par un abus de langage que l'on considérera que si l'absorption que l'on mesure à une dépendance en  $I^2$  ou en  $I^3$ , celle-ci correspondra à une absorption à deux photons ou à trois photons. On notera tout de même que si on se trouve en dehors de toute résonance, l'absorption macroscopique que l'on mesure ne peut correspondre à l'absorption multi-photonique.

La mesure de la transmission, c'est-à-dire la variation du rapport entre l'intensité

incidente et l'intensité à la sortie du milieu, en fonction de la distance de propagation  $z$  permet de mesurer l'absorption. Ainsi en comparant la transmission expérimental à la transmission théorique (voir l'équation (1.55)) il est possible de déterminer les coefficients des absorptions non-linéaires  $\beta$  et  $\gamma$ . Il est cependant nécessaire de savoir si l'on mesure de l'absorption non-linéaire du troisième ordre ou du cinquième ordre. Pour cela il suffit de résoudre l'équation (1.55 en fixant  $\beta = 0$  ou  $\gamma = 0$ . Les solutions de l'équation (1.55) seront présentées dans le chapitre 2. La mesure de la transmission expérimentale doit être suffisamment précise.

On notera qu'il est possible qu'un milieu présente à la fois de l'absorption non-linéaire du troisième et du cinquième ordre. Même s'il est possible de mesurer uniquement l'absorption non-linéaire du troisième ordre avec une intensité suffisamment faible pour ne pas exciter le cinquième ordre, il est impossible de résoudre analytiquement l'équation (1.55) avec tous les coefficients non nuls. Nous présenterons dans le chapitre 3 une méthode pour résoudre ce problème.

Comme nous l'avons expliqué précédemment, nous qualifierons par abus de langage les absorptions non-linéaires du troisième ordre mesurées d'absorptions à deux photons. De même pour les absorptions non-linéaires du cinquième ordre qui seront appelées absorption à trois photons.

## 1.7 Conclusion

Grâce à l'ensemble de ces notions, le lecteur peut dorénavant comprendre l'ensemble des travaux entrepris dans cette thèse. Nous allons maintenant présenter les différentes méthodes de mesures utilisées dans nos travaux. Ces présentations seront suivies d'applications directes de ces méthodes.



# Chapitre 2

## Techniques de caractérisation des matériaux

### 2.1 Introduction

Dans ce chapitre nous allons présenter les méthodes de mesures que nous avons utilisées pour nos travaux. Ces méthodes permettent la caractérisation des indices de réfraction non-linéaire du troisième ordre ( $n_2$ ) et du cinquième ordre ( $n_4$ ) ainsi que les coefficients d'absorption à deux photons ( $\beta$ ) et à trois photons ( $\gamma$ ). Pour ce faire, les méthodes de mesures exploitent différents phénomènes en optique. Ici, nous utiliserons exclusivement des techniques utilisant la distorsion de l'onde. Nous présenterons tout d'abord la méthode Z-scan ensuite la méthode  $D4\sigma$  associée au système imageur  $4f$ . Pour chacune de ces techniques nous présenterons leur principe physique et la manière dont nous les utiliserons. On notera que l'optimisation de la sensibilité et du rapport signal-sur-bruit fut le sujet d'une précédente thèse [36]. Puis, nous introduirons la méthode de Newton et comment nous l'avons utilisée pour la caractérisation non-linéaire. Enfin nous illustrerons ces méthodes avec différentes applications.

### 2.2 La méthode Z-scan

Technique introduite par M. SHEIK-BAHAE et al. en 1989 [22, 23], la méthode Z-scan utilise la distorsion de l'onde pour mesurer les indices de réfraction non-linéaires

et les coefficients d'absorption non-linéaires. Cette méthode fait aujourd'hui partie des méthodes les plus utilisées pour la caractérisation non-linéaire.

À l'origine, le montage expérimental décrit par M. SHEIK-BAHAE et al. (voir la figure 2.1), est composé d'une lame séparatrice (BS) sur laquelle arrive un faisceau Gaussien se propageant selon l'axe des  $z$ . La moitié de l'énergie du faisceau est réfléchiée sur un

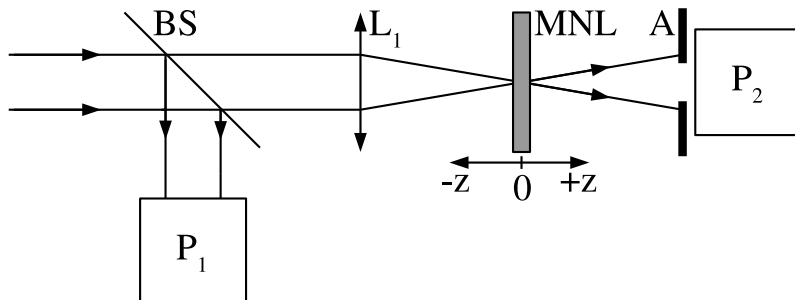


FIGURE 2.1 – Montage expérimental original pour ma méthode du Z-scan. BS désigne la lame séparatrice,  $L_1$  correspond à la lentille convergente,  $P_1$  et  $P_2$  indiquent les photodétecteurs, MNL représente le milieu non-linéaire et A désigne l'ouverture finie..

photodétecteur qui intègre le signal spatialement et temporellement. L'autre moitié du faisceau est focalisée par une lentille ( $L_1$ ). Un second photodétecteur est placé dans le champ de diffraction lointain. On déplace l'échantillon (MNL) dont on veut mesurer les caractéristiques non-linéaires suivant la direction de propagation  $z$ , dans la région focale de la lentille. A chacune des positions de l'échantillon on mesure l'énergie transmise ( $E_2/E_1$ ). L'adjonction ou non d'un diaphragme (A) permet de mesurer soit l'indice de réfraction non-linéaire, soit le coefficient d'absorption. La zone de balayage du scan dépend des paramètres expérimentaux (rayon du faisceau, distance focale de la lentille et longueur d'onde du faisceau) ainsi que de l'épaisseur de l'échantillon,  $L$ .

Le phénomène physique à l'origine de cette méthode est la variation de l'indice induite par la forte intensité du faisceau incident (voir le paragraphe 1.4). En effet, le faisceau à l'entrée, le plus souvent Gaussien, voit son amplitude et sa phase modifiées en fonction de l'indice de réfraction et de l'absorption du milieu dues à l'intensité du faisceau en ce point.

Supposons un milieu présentant une réfraction non-linéaire du troisième ordre. Pour un indice de réfraction non-linéaire positive ( $n_2 > 0$ ), le faisceau aura un retard de phase plus important là où l'intensité est la plus forte, c'est-à-dire en son centre. Pour un indice

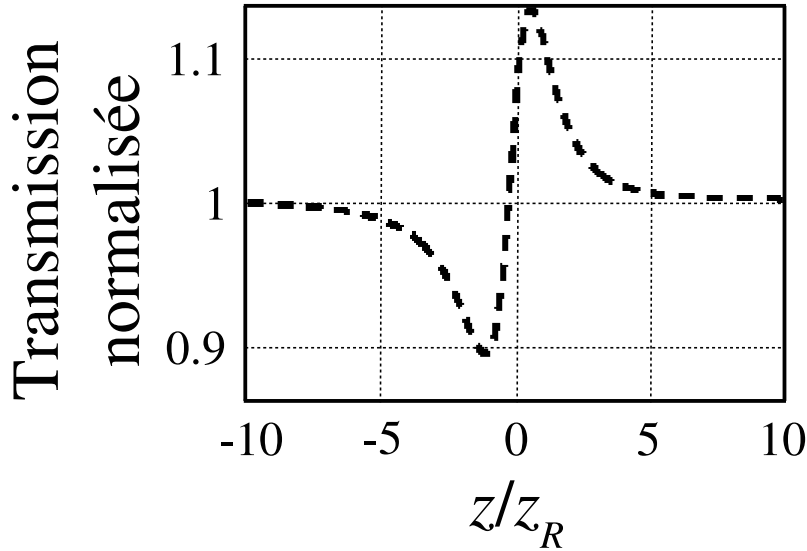


FIGURE 2.2 – Courbe de transmission mesurée par la méthode Z-scan pour un milieu présentant une indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre  $n_2$  positif.

de réfraction non-linéaire ( $n_2 < 0$ ) c'est la situation opposée, le retard de phase sera plus important sur les ailes du faisceau Gaussien. Cette non-linéarité induit un effet de lentille convergente ( $n_2 > 0$ ) ou divergente ( $n_2 < 0$ ). Le milieu non-linéaire peut donc être vu comme une lentille. Par conséquent, la focalisation ou la défocalisation du faisceau par le milieu non-linéaire lorsque celui-ci se déplace le long de l'axe de propagation  $z$  se traduit par une variation de la transmission dans le champ lointain de l'ouverture (A). La courbe de Z-scan pour un  $n_2$  positif est présentée sur la figure 2.2. Lorsque le milieu se trouve avant la focale de la lentille, dans cette zone l'intensité est très faible et les effets de la réfraction non-linéaire sont négligeable. La transmission diminue à mesure que le milieu non-linéaire s'approche de la focale de la lentille. On observe une vallée (ou un creux) dans la courbe de la transmission. Lorsque le milieu dépasse la focale, la transmission augmente à cause de l'effet convergent induit par l'effet Kerr. On observe un pic dans la transmission. Enfin, lorsque le milieu non-linéaire est de nouveau très loin du plan focal, la transmission retourne à une valeur identique à celle mesurée lorsque l'échantillon était au début. La courbe de transmission est caractérisée par la présence d'un minimum et d'un maximum. On notera que l'on normalise la transmission par rapport à la valeur mesurée lorsque le milieu non-linéaire est loin de la focale de la lentille, c'est-à-dire lorsque l'intensité est très faible et donc les effets de la réfraction non-linéaire négligeable. Si l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre,  $n_2$ , avait été négatif alors la courbe de transmission mesurée présenterait d'abord le maximum puis le minimum de transmission. La forme de la courbe



de transmission indique sans ambiguïté le signe de  $n_2$ .

Afin d'obtenir une mesure de l'indice de réfraction non-linéaire à partir de cette courbe, il est nécessaire de faire plusieurs suppositions. Tout d'abord, la propagation du faisceau dans le milieu non-linéaire est décrite d'après l'approximation de l'enveloppe lentement variable [92, 98] ainsi que l'approximation de l'échantillon mince. L'approximation de l'enveloppe lentement variable implique que la phase et l'amplitude de l'enveloppe varient peu dans le temps par rapport à la période et varient peu dans l'espace par rapport à la longueur d'onde. L'approximation de l'échantillon mince considère que l'échantillon est mince devant la longueur de Rayleigh ( $z_R$ ). On peut alors négliger la variation spatiale de l'amplitude et de la phase induite par la propagation du faisceau et par les non-linéarités à l'intérieur de l'échantillon.. Supposons un faisceau incident décrit par un champ électrique Gaussien polarisé linéairement (1.5), en négligeant alors les termes décrivant la variation de phase en régime linéaire

$$E(r, z, t) = E_0(z, t) \frac{w_0}{w(z)} \exp \left[ -\frac{r^2}{w^2(z)} - \frac{ikr^2}{2R(z)} \right]. \quad (2.1)$$

Les différents paramètres de l'équation ont été définis dans le paragraphe 1.2.

Si on applique ces conditions à l'équation NLS tenant compte de l'absorption non-linéaire ainsi ( $\alpha(I)$ ) que de la variation de l'indice de réfraction en fonction de l'intensité ( $\Delta n(I)$ ), il est possible de décrire analytiquement la propagation de la phase  $\Delta\phi$  et de l'intensité  $I$  du champ électrique (2.1) au sein d'un milieu non-linéaire. Cette description analytique peut être séparée en deux équations, l'une décrivant la propagation de la phase du faisceau

$$\frac{d\Delta\phi}{dz'} = -k\Delta n(I), \quad (2.2)$$

la seconde décrivant la propagation de l'amplitude du faisceau

$$\frac{dI}{dz'} = -\alpha(I)I, \quad (2.3)$$

où  $z'$  est la distance de propagation à l'intérieur du milieu. On notera que si l'on considère un milieu présentant des non-linéarités du troisième ordre alors  $\Delta n(I) = n_2 I$  et  $\alpha(I) = \alpha + \beta I$ .

Il est nécessaire de distinguer deux cas pour la résolution des équations (2.2) et (2.3). Considérons tout d'abord un milieu non-linéaire décrivant des non-linéarités du troisième ordre mais dans lequel l'absorption non-linéaire est nulle ( $\beta = 0$ ).

### 2.2.1 Milieu sans absorption non-linéaire ( $\beta = 0$ )

Si il n'y a pas d'absorption non-linéaire à deux photons ( $\beta = 0$ ), alors la résolution des équations (2.2) et (2.3) permet de décrire le champ électrique après sa propagation au sein du milieu d'épaisseur  $L$  est

$$E_L(r, z, t) = E(r, z, t) \exp\left(-\frac{\alpha L}{2}\right) \exp[i \Delta\phi(r, z, t)], \quad (2.4)$$

où

$$\Delta\phi(r, z, t) = \frac{\Delta\phi_0(t)}{1 + \frac{z^2}{z_R^2}} \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega^2(z)}\right), \quad (2.5)$$

et  $\Delta\phi_0(t)$  est le déphasage au centre du faisceau à la focale ( $z = 0$  et  $r = 0$ ). Celui-ci est défini par

$$\Delta\phi_0(t) = kn_2 I_0(t) L_{eff}, \quad (2.6)$$

où  $L_{eff} = (1 - \exp(-\alpha L))/\alpha$  est la longueur effective tenant compte de l'absorption linéaire  $\alpha$  et  $I_0(t)$  est l'intensité au centre du faisceau et à la focale ( $z = 0$  et  $r = 0$ ).

Puisque l'amplitude et la phase du faisceau à la sortie du milieu sont connues, la distribution du champ électrique dans le champ lointain, c'est-à-dire là où se trouve l'ouverture (A) est obtenue grâce au principe de Huygens-Fresnel [108]. M. SHEIK-BAHAE et al. ont employé la méthode de décomposition Gaussienne pour exprimer le champ lointain [23, 109, 110]. Par conséquent, ils ont décomposé le faisceau à la sortie du milieu non-linéaire grâce au développement en série de  $\exp[i \Delta\phi(r, z, t)]$  et de plusieurs composantes Gaussiennes. Ils ont calculé la propagation dans l'espace libre de ces Gaussiennes jusqu'à l'ouverture (A). Ils ont alors ajouté les différentes composantes afin de reconstruire le faisceau Gaussien et d'obtenir le champ à la sortie  $E_s(r, z, t)$  [23]. Enfin, la transmission normalisée est calculée en intégrant spatialement et temporellement le faisceau :

$$T(z) = \frac{\int_0^{r_a} \int_{-\infty}^{\infty} |E_s(r, z, t, \Delta\phi_0)|^2 r dr dt}{S \int_0^{r_a} \int_{-\infty}^{\infty} |E_s(r, z, t, 0)|^2 r dr dt}, \quad (2.7)$$

où  $|E_s(r, z, t, 0)|$  est le module de l'amplitude au niveau de l'ouverture lorsque l'échantillon se trouve à  $z$ , en régime linéaire,  $r_a$  est le rayon de l'ouverture circulaire et  $S$  est la transmission linéaire de l'ouverture définie par

$$S = 1 - \exp\left(-\frac{2r_a^2}{w_a^2}\right), \quad (2.8)$$

où  $w_a$  est la rayon du faisceau dans le plan de l'ouverture en régime linéaire ( $\Delta\phi_0 = 0$ ).

La courbe de transmission théorique peut être ajustée numériquement en tenant compte de la courbe expérimentale afin d'obtenir la valeur de  $n_2$ . Cependant, il est plus simple d'utiliser une solution analytique de la transmission normalisée qui est obtenue avec une très petite ouverture ( $S \approx 0$ ) dans le champ lointain et pour des non-linéarités faibles ( $\Delta\phi_0 \ll 1$ ) [23]

$$T(z, S \approx 0) = 1 + \frac{4\Delta\phi_0 \frac{z}{z_r}}{\left(\frac{z}{z_r} + 9\right) \left(\frac{z}{z_r} - 1\right)}. \quad (2.9)$$

M. SHEIK-BAHAË et al. ont montré que la différence entre le pic (maximum) et le vallée (minimum) de la courbe de transmission  $\Delta T_{pv}$  est un paramètre expérimental permettant de caractériser l'indice de réfraction non-linéaire. Il a été trouvé numériquement d'après la relation (2.9), que pour  $|\Delta\phi_0| < \pi$  on a la relation pour  $\Delta T_{pv}$

$$\Delta T_{pv} = 0.406 (1 - S)^{0.25} |\Delta\phi_0|. \quad (2.10)$$

La relation (2.10) a une précision de 3%. Cette relation permet d'obtenir facilement l'indice  $n_2$  (contenu dans  $\Delta\phi_0$  (2.6)) à partir de la courbe expérimentale.

La sensibilité de la méthode est définie comme le rapport entre le plus petit changement de transmission et le déphasage non-linéaire induit  $\Delta\phi_0$ . D'après la relation (2.10) et pour une très petite ouverture ( $S \approx 0$ ), la sensibilité de la méthode est de 0.406. Si le montage expérimental est capable de relever une variation de la transmission de  $\Delta T_{pv} 1 \approx \%$  pour une très petite ouverture  $S \approx 0$ , alors le déphase non-linéaire correspondant est alors d'environ 25 mrad. Cela correspond à une variation du chemin optique de  $\Delta nL = \lambda/250$ .

On notera qu'il est important, pour la qualité des mesures d'avoir des échantillons avec la meilleure qualité optique possible. Les inhomogénéités et les imperfections de la

surface de l'échantillon induisent des variations de la transmission indépendantes des non-linéarités du milieu. Ainsi, plus le signal est faible, plus la qualité optique doit être bonne. Il est toutefois possible de réduire l'impact des inhomogénéités du milieu sur la variation de la transmission en réalisant un Z-scan en régime linéaire et en le soustrayant à un Z-scan en régime non-linéaire. Il est nécessaire de normaliser chacun des Z-scans avant de les soustraire.

Enfin, on notera qu'afin d'assurer une relation linéaire entre  $\Delta T_{pv}$  et  $|\Delta\phi_0|$  il est nécessaire de tenir compte d'un facteur de moyenne temporelle dû à la non-linéarité induite par la durée des impulsions qui n'est pas prise en compte dans la relation (2.10). Ainsi pour une impulsion de forme Gaussienne on a  $\langle\Delta\phi_0\rangle = \sqrt{2}|\Delta\phi_0|$ .

### 2.2.2 Réfraction non-linéaire en présence d'absorption ( $\beta \neq 0$ )

Lorsque l'on a un milieu présentant des non-linéarités du troisième ordre,  $n_2 \neq 0$  et  $\beta \neq 0$ , alors les solutions des équations (2.2) et (2.3) sont

$$\Delta\phi(r, z, t) = \frac{kn_2}{\beta} \ln[1 + q(r, z, t)], \quad (2.11)$$

et

$$I_L(r, z, t) = \frac{I(r, z, t) \exp(-\alpha L)}{1 + q(r, z, t)}, \quad (2.12)$$

où  $q(r, z, t) = \beta L_{eff} I(r, z, t)$ . L'action simultanée de la réfraction non-linéaire et de l'absorption non-linéaire vont modifier la forme de la courbe de transmission obtenue. Ainsi l'absorption à deux photons ( $\beta > 0$ ) va augmenter la profondeur de la vallée et réduire le pic de transmission. La figure 2.3 montre la courbe de transmission dans une telle situation. Bien qu'il soit possible de calculer numériquement la transmission normalisée dans le champ lointain par la méthode de décomposition en Gaussienne et en tenant compte des solutions (2.11) et (2.12), M. SHEIK-BAHAË et al. ont proposé une procédure plus simple permettant de mesurer l'absorption et la réfraction non-linéaire séparément [23].

Tout d'abord il faut procéder à un Z-scan en retirant l'ouverture circulaire du montage ( $S = 1$ ). On appelle la mesure Z-scan avec un montage expérimental open-aperture Z-scan. Dans cette situation la transmission est insensible aux variations de phases du front

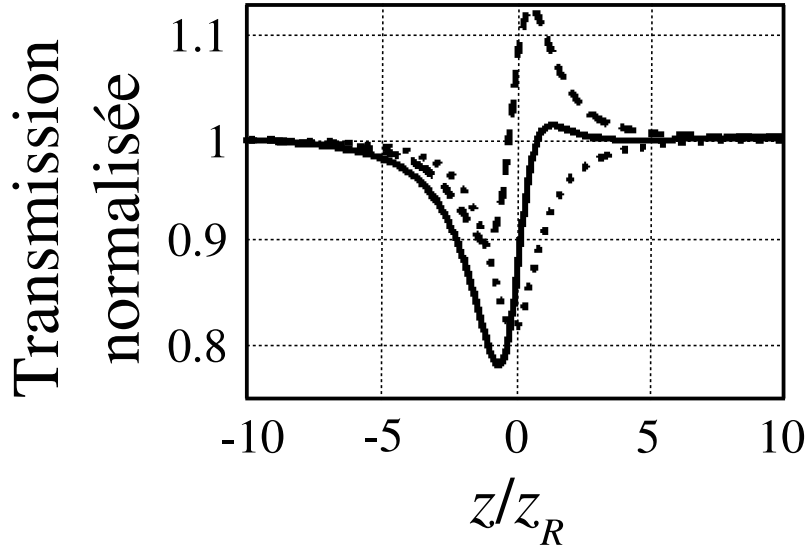


FIGURE 2.3 – Courbes de transmission obtenue par la méthode Z-scan en présence d’absorption à deux photons. La courbe en trait plein correspond à la mesure de closed-aperture Z-scan et la courbe en pointillée représente la mesure par open-aperture Z-scan. La courbe en tiret est la division de la courbe en trait plein par celle en pointillé.

d’onde. Les variations de la transmission sont uniquement dues à l’absorption non-linéaire. En intégrant spatialement et temporellement l’intensité à la sortie du milieu (2.12) sans considérer la propagation en espace libre, on obtient la transmission normalisée

$$T(z, S = 1) = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[q_0]^m}{\left(1 + \frac{z^2}{z_R^2}\right)^m (m+1)^{3/2}}, \quad (2.13)$$

où  $q_0 = \beta L_{eff} I_0$  pour  $q_0 < 1$ . La relation (2.13) est valable si l’on suppose que le profil temporel de l’impulsion est Gaussien. On peut ainsi déterminer le coefficient de l’absorption à deux photons grâce à la méthode de l’open-aperture Z-scan.

On procède ensuite à une mesure avec l’ouverture circulaire ( $S < 1$ ). Par contraste avec la mesure sans ouverture, la mesure avec ouverture est appelée closed-aperture Z-scan. Il est possible de mesurer l’indice de réfraction non-linéaire à partir des courbes de ces deux Z-scans sans avoir recours à la propagation numérique du faisceau si  $q_0 < 1$  et si  $\beta/2kn_2 < 1$ . La première condition peut facilement être obtenue en ajustant l’intensité du faisceau incident. La seconde condition est une propriété intrinsèque du milieu qui implique que la partie imaginaire de la susceptibilité non-linéaire doit être inférieure à la partie réelle. Si ces deux conditions sont réunies, il est possible d’estimer l’indice de réfraction non-linéaire  $n_2$  à partir de la différence de transmission pic et vallée ( $\Delta T_{pv}$ )

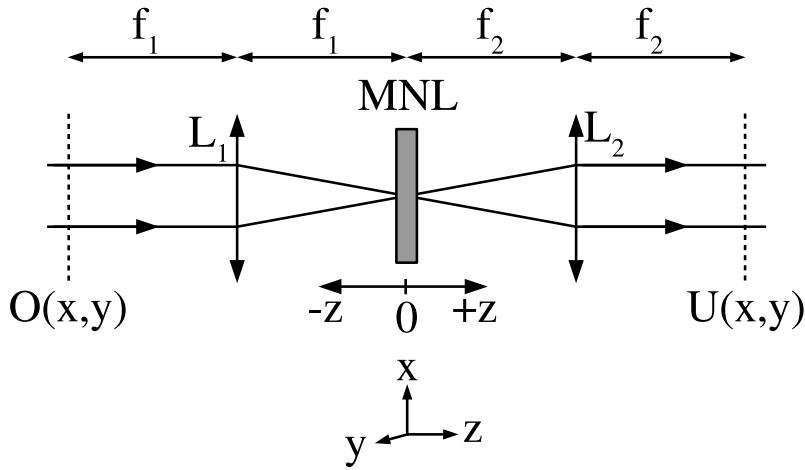


FIGURE 2.4 – Schéma du système imageur 4f.  $L_1$  et  $L_2$  correspondent aux lentilles de distance focale  $f_1$  et  $f_2$ . MNL désigne le milieu non-linéaire placé à  $z = 0$ .  $O(x, y)$  est un objet situé dans le plan focal objet de la lentille  $L_1$  et  $U(x, y)$  est l'amplitude du champ dans le plan focal image de  $L_2$ .

obtenue en divisant la courbe du closed-aperture Z-scan par celle du open-aperture Z-scan. Par cette opération, le  $\Delta T_{pv}$  obtenu est proche de celui qu'on obtiendrait par un pur effet réfractif à 10% approximativement. La courbe qui en résulte est illustrée sur la figure 2.3. On mesure alors le  $n_2$  en appliquant la formule (2.10) au  $\Delta T_{pv}$  obtenu.

## 2.3 Système imageur 4f

En 1996, G. BOUDEBS et al. [33, 34] ont présenté une méthode de caractérisation des non-linéarités basée sur l'utilisation de filtre spatial à l'intérieur d'un système imageur. Il a été démontré qu'il était possible de caractériser les non-linéarités en analysant le profil d'intensité de l'image après la propagation au sein d'un milieu non-linéaire, le milieu agissant comme un filtre non-linéaire, placé dans le plan de Fourier d'un système imageur 4f. La comparaison entre les données expérimentales et celles numériques permet de mesurer les non-linéarités. Plus récemment ce système imageur a été utilisé avec la méthode Z-scan afin d'en améliorer la sensibilité [36, 111].

Le système imageur 4f est un système imageur cohérent connu depuis longtemps [108]. La figure 2.4 correspond à un schéma de montage typique du système imageur 4f au sein du montage Z-scan. On suppose que le champ électrique défini dans le plan objet est Gaussien

$$E(x, y) = E_0 \exp \left[ -\frac{(x^2 + y^2)}{w_e^2} \right], \quad (2.14)$$

où  $w_e$  est la largeur du faisceau à l'entrée du montage. On notera que l'on néglige les termes temporels du faisceau puisque l'on s'intéresse à l'intensité obtenue à la sortie du montage. Le spectre spatial de Fourier du champ électrique est défini comme

$$S(u, v) = \mathcal{F}[E(x, y)] = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} E(x, y) \exp[-i2\pi(ux + vy)] dx dy, \quad (2.15)$$

où  $\mathcal{F}$  indique l'opérateur transformée de Fourier,  $u$  et  $v$  sont les fréquences spatiales normalisées. On propage le spectre  $S(u, v)$  sur une distance finie  $z'$  en appliquant la fonction de transfert de la propagation de l'onde [108]

$$H(u, v) = \exp\left[\frac{i2\pi z' \sqrt{1 - (\lambda u)^2 - (\lambda v)^2}}{\lambda}\right]. \quad (2.16)$$

On applique la transformée de Fourier inverse afin de retrouver le champ en amplitude  $E(x, y, z') = \mathcal{F}^{-1}[S(u, v) H(u, v)]$ . Afin de calculer le champ à la sortie de la lentille  $L_1$  de focale  $f_1$ , il est nécessaire d'appliquer la transformation de phase  $t_L(x, y)$  liée à l'épaisseur de la lentille

$$t_L(x, y) = \exp\left[\frac{i\pi(x^2 + y^2)}{\lambda f_1}\right]. \quad (2.17)$$

La première propagation se fait sur une distance  $z' = f_1$ . On propage ensuite le faisceau jusqu'au milieu non-linéaire qui se trouve à la position  $z$ , pour cela on applique la fonction (2.16) avec  $z' = f + z$ .

Considérons un milieu non-linéaire d'épaisseur  $L$  présentant de l'absorption linéaire  $\alpha$ , de l'absorption à deux photons  $\beta$  et de la réfraction non-linéaire du troisième ordre  $n_2$ . La transmission du milieu est [112]

$$T(u, v, z) = \{\exp(-\alpha L) [1 + q(u, v, z)]\}^{-1/2} \exp\left[i\Delta\phi_{NL}^{eff}(u, v, z)\right], \quad (2.18)$$

où  $q(u, v, z) = \beta L_{eff} I(u, v, z)$ ,  $L_{eff} = (1 - \exp(-\alpha L)) / \alpha$  et  $I(u, v, z) \propto |S(u, v, z)|^2$  est l'intensité du laser à l'intérieur du milieu. Le déphasage non-linéaire est

$$\Delta\phi_{NL}^{eff}(u, v, z) = 2\pi n_2 L_{eff} I_{eff}(u, v, z), \quad (2.19)$$

où l'intensité effective est

$$I_{eff}(u, v, z) = I(u, v, z) \frac{\log [1 + q(u, v, z)]}{q(u, v, z)}. \quad (2.20)$$

On définit le déphasage non-linéaire à la focale ( $z = 0$ ) et sur l'axe de propagation ( $u = 0, v = 0$ )

$$\varphi_{NL0}^{eff} = \Delta\phi_{NL}^{eff}(0, 0, 0). \quad (2.21)$$

De même on définit l'absorption non-linéaire

$$q_0 = \beta L_{eff} I_0, \quad (2.22)$$

où  $I_0$  est l'intensité à la focale et sur l'axe de propagation. Afin de respecter les limites de la méthode Z-scan, on se place toujours dans le cas où  $\varphi_{NL0}^{eff} < 1$  et  $q_0 < 1$ . Le spectre spatial de Fourier du faisceau après le milieu (considéré comme mince) est  $S_L(u, v, z) = S(u, v, z) T(u, v)$ .

Il est alors simple d'obtenir l'amplitude du faisceau  $U(x, y)$  dans le plan image en appliquant plusieurs fonctions de propagation pour les distances finies  $z' = z + f_2$  et  $z' = f_2$  et en tenant compte de la transformation de phase induite par la lentille  $L_2$ . On peut ensuite appliquer à cette image différentes opérations telles que l'intégration spatiale sur la totalité du faisceau et/ou sur une partie après filtrage par une ouverture circulaire. Ces opérations numériques sont nécessaires pour remonter à l'open-aperture ou à la closed-aperture pour faire la mesure.

Le système imageur 4f permet donc de calculer numériquement la propagation du faisceau du plan objet de la lentille  $L_1$  jusqu'au plan image  $L_2$ . L'optimisation de ce système a permis d'avoir le meilleur rapport signal-sur-bruit tout en maximisant la sensibilité. Il a été possible d'améliorer la sensibilité de la méthode jusqu'à atteindre  $\lambda/1000$  avec le laser et la caméra disponibles au laboratoire dans le cas d'échantillons ayant une bonne qualité optique [36, 111].



## 2.4 D4 $\sigma$

Récemment, nous avons présenté une nouvelle technique permettant de se passer de la division de transmissions normalisées pour la mesure de l'indice de réfraction non-linéaire. Cette nouvelle méthode a été nommée D4 $\sigma$ . Au lieu de mesurer la variation de la transmission, cette méthode consiste à mesurer la variation du rayon du faisceau en fonction de l'intensité pic [113]. On utilise la définition ISO standard<sup>1</sup> du rayon du faisceau. Le rayon du faisceau est définie comme étant égal à deux fois l'écart relatif  $\sigma$  de la distribution en intensité  $I(x, y)$ . Cette distribution est obtenue expérimentalement grâce à une caméra à la place du photodétecteur P<sub>2</sub> (voir la figure 2.1). On obtient alors pour le rayon suivant l'axe des  $x$

$$w_x(z) = 2 \sqrt{\frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) (x - \bar{x}(z))^2 dx dy}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) dx dy}}, \quad (2.23)$$

et le rayon du faisceau suivant l'axe des  $y$  est

$$w_y(z) = 2 \sqrt{\frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) (y - \bar{y}(z))^2 dx dy}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) dx dy}}, \quad (2.24)$$

et dans le cas d'une ellipticité faible, on se ramène à un modèle circulaire en définissant

$$w(z) = \frac{w_x(z) + w_y(z)}{2}. \quad (2.25)$$

Dans ces formules,  $\bar{x}(z)$  et  $\bar{y}(z)$  sont les coordonnées du centre de gravité du faisceau (équivalent au calcul du moment d'ordre 1 du profil de l'intensité)

$$\bar{x}(z) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) x dx dy}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) dx dy}, \quad (2.26)$$

$$\bar{y}(z) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) y dx dy}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y, z) dx dy}. \quad (2.27)$$

Comme nous l'avons précisé dans le paragraphe 1.2, pour un faisceau Gaussien la méthode D4 $\sigma$  donne le même résultat que la méthode  $1/e^2$ . On notera que la méthode D4 $\sigma$  a un

---

1. Cela correspond à la définition ISO 11146-2 :2005

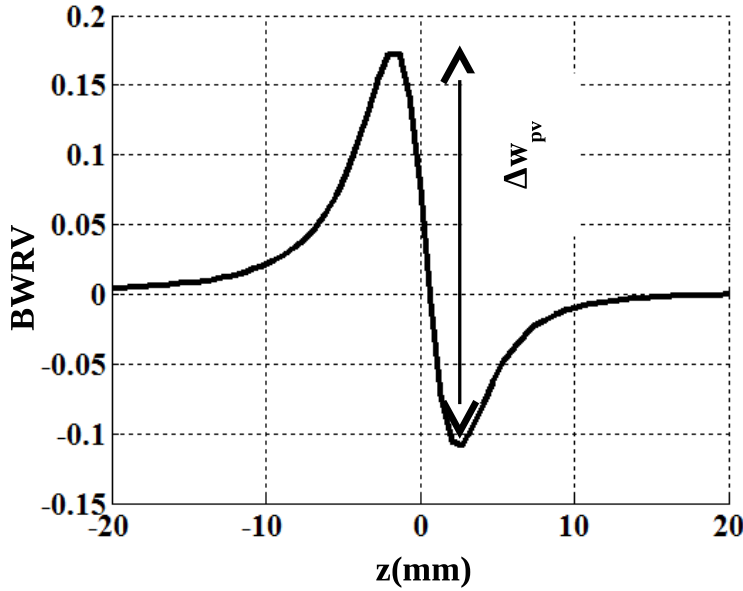


FIGURE 2.5 – Courbe de variation relative du rayon du faisceau (BWRV) en fonction de la position  $z$  de l'échantillon avec les paramètres  $\varphi_{NLO}^{eff} = 0.8$  et  $q_0 = 0.58$ .  $\Delta w_{pv}$  correspond à la variation entre le maximum (pic) et le minimum (vallée) de la courbe.

meilleur rapport signal sur bruit puisque l'on intègre sur l'ensemble des pixels de la caméra contrairement à la méthode  $1/e^2$  ou du rayon à mi-hauteur où la mesure est faite à partir d'un nombre réduit de pixels.

On procède à deux scans suivant l'axe de propagation  $z$  pour la mesure du rayon du faisceau à chaque position, l'un en régime linéaire ( $w_L(z)$ ) et l'autre en régime non-linéaire  $w_{NL}(z)$ . On établit alors la variation relative du rayon du faisceau (BWRV : Beam Waist Relative Variation) d'après la formule

$$\Delta w = \frac{w_{NL} - w_L}{w_L}. \quad (2.28)$$

La figure 2.5 montre une courbe de BWRV obtenue avec la formule (2.28) après propagation selon les relations du paragraphe 2.3. Il a été déterminé numériquement que la variation entre le pic (maximum) et la vallée (minimum) de la courbe,  $\Delta w_{pv}$  est fonction du déphasage effectif à la focale  $\varphi_{NLO}^{eff}$ . On a la formule

$$\Delta w_{pv} = 0.34 \times \varphi_{NLO}^{eff}. \quad (2.29)$$

On notera que cette relation reste valide même pour un milieu avec une absorption non-linéaire relativement forte. La figure 2.6, plus loin, illustre cela avec  $q_0 = 0.58$ .

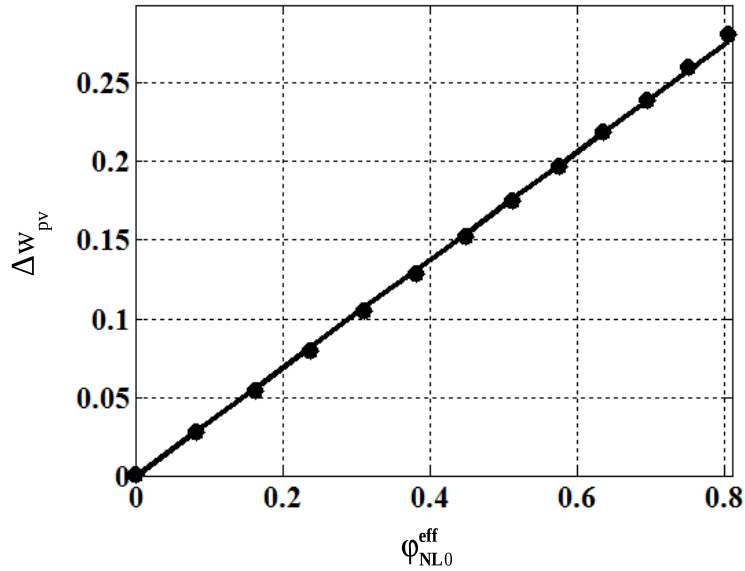


FIGURE 2.6 – Courbe de  $\Delta w_{pv}$  obtenue numériquement en fonction du déphasage effectif à la focale  $\varphi_{NL0}^{eff}$  pour  $q_0 = 0.58$ .

## 2.5 Methode de Newton

On reprend les équations (2.2) et (2.3) mais on considère un milieu qui présente des non-linéarités du troisième et du cinquième ordre. L'équation (2.3) est

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I - \beta I^2 - \gamma I^3, \quad (2.30)$$

où  $\alpha$  est l'absorption linéaire,  $\beta$  est l'absorption à deux photons et  $\gamma$  est l'absorption à trois photons. L'équation (2.2) est

$$\frac{d\varphi}{dz} = -k (n_2 I + n_4 I^2), \quad (2.31)$$

où  $n_2$  est l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre et  $n_4$  est l'indice de réfraction non-linéaire du cinquième ordre.

Intéressons nous à la résolution de l'équation (2.30).

### 2.5.1 Mesure de l'absorption non-linéaire

On considère un milieu d'épaisseur  $L$ . Les conditions aux limites sont  $I(z = 0) = I_0$  et  $I(z = L) = I_L$ . Enfin on considère que le milieu présente de l'absorption linéaire ( $\alpha \neq 0$ ), de l'absorption à deux photons ( $\beta \neq 0$ ) et de l'absorption à trois photons ( $\gamma \neq 0$ ). On

décompose l'équation (2.30) en éléments simples

$$dz = - \left[ \frac{1}{\gamma X_+ X_- I} + \frac{1}{\gamma X_- (X_- - X_+) (I - X_-)} - \frac{1}{\gamma X_+ (X_- - X_+) (I - X_+)} \right] dI, \quad (2.32)$$

où  $X_{\pm} = (\pm \sqrt{\beta^2 - 4\alpha\gamma} - \beta) / 2\gamma$  et  $\beta^2 > 4\alpha\gamma$ . On intègre l'équation (2.32) de  $z = 0$  à  $L$ , on obtient

$$L = - \left[ \frac{\ln \left( \frac{I_L}{I_0} \right)}{\gamma X_+ X_- I} + \frac{\ln \left( \frac{I_L - X_-}{I_0 - X_-} \right)}{\gamma X_- (X_- - X_+)} - \frac{\ln \left( \frac{I_L - X_+}{I_0 - X_+} \right)}{\gamma X_+ (X_- - X_+)} \right]. \quad (2.33)$$

On remarque qu'il est impossible d'exprimer analytiquement l'intensité à la sortie du milieu ( $I_L$ ) en fonction de l'épaisseur du milieu ( $L$ ). On utilise alors une méthode d'inversion numérique : la méthode de Newton.

La méthode de Newton est une méthode itérative basée sur l'approximation d'une fonction en utilisant le développement en série de Taylor du premier ordre. On développe alors la fonction (2.33) pour obtenir  $z(I_{L,1}) = z(I_{L,0}) + z'(I_{L,0})(I_{L,1} - I_{L,0})$  où  $I_{L,0}$  est l'intensité à la distance  $L$  et pour l'itération 0,  $I_{L,1}$  est l'intensité à la distance  $L$  et pour l'itération 1, et  $z'$  est la dérivée première suivant l'intensité  $I$ . On étend la relation de récurrence à

$$z(I_{L,n+1}) = z(I_{L,n}) + z'(I_{L,n})(I_{L,n+1} - I_{L,n}), \quad (2.34)$$

Puisque  $\lim_{n \rightarrow \infty} z(I_{L,n}) = L$ , il est possible d'obtenir l'intensité à partir de la relation (2.34)

$$I_{L,n+1} = I_{L,n} - \frac{z(I_{L,n}) - L}{z'(I_{L,n})}. \quad (2.35)$$

Il est donc possible de résoudre la propagation de l'intensité dans un milieu avec de l'absorption non-linéaire du troisième et du cinquième ordres en utilisant la fonction (2.35). Cette fonction peut être utilisée conjointement avec l'optique de Fourier pour décrire la propagation du faisceau de l'entrée du montage au capteur. La correspondance entre les données expérimentales et celles numériques conduit à la mesure des coefficients d'absorption.

La méthode de Newton est une méthode simple à utiliser numériquement et elle ne nécessite qu'une valeur de départ ( $I_{L,0}$ ) relativement proche de la véritable solution afin de

ne pas avoir des solutions non-physiques. On peut par exemple prendre, pour un milieu de faible épaisseur  $L$ , une valeur  $I_{L,0}$  solution de  $I_{L,0} = I_0 - (\alpha I_0 + \beta I_0^2 + \gamma I_0^3) L$ . La fonction  $z'(I)$  est très simple à calculer grâce à la fonction (2.32).  $z'(I)$  ne peut jamais être nulle. En effet,  $z'(I) = 0$  correspond à une absorption infinie ce qui n'est pas physique.

On notera que les résolutions de l'équation (2.30) pour tous les autres cas possibles ( $\beta^2 < 4\alpha\gamma$  ou certains coefficients d'absorption nuls) sont présentées dans l'annexe A.

Nous allons maintenant résoudre l'équation (2.31).

## 2.5.2 Mesure d'indices de réfraction non-linéaire

On remarque dans l'équation (2.31) que l'intensité est présente dans le second membre. Or l'intensité dépend de la position du milieu non-linéaire et il est impossible d'obtenir une fonction analytique  $I(z)$ . Il est nécessaire d'exprimer  $dz$  en fonction de  $dI$  d'après l'équation (2.30)

$$dz = -\frac{dI}{\alpha I + \beta I^2 + \gamma I^3}, \quad (2.36)$$

Ainsi en substituant l'équation 2.36 dans l'équation 2.31 on obtient :

$$\frac{d\varphi}{dI} = -\frac{k(n_2 I + n_4 I^2)}{\alpha I + \beta I^2 + \gamma I^3} \quad (2.37)$$

On intègre l'équation (2.37) de  $I_0$  à  $I_L$ , après avoir décomposé la partie de droite en éléments simples,

$$\Delta\varphi = -\frac{k}{\gamma(X_+ - X_-)} \left[ (n_2 + n_4 X_-) \ln \left( \frac{I_L - X_-}{I_0 - X_-} \right) - (n_2 + n_4 X_+) \ln \left( \frac{I_L - X_+}{I_0 - X_+} \right) \right], \quad (2.38)$$

où  $\Delta\varphi = \varphi_L - \varphi_0$  est le déphasage non-linéaire induit par le milieu,  $X_{\pm} = \left( \pm \sqrt{\beta^2 - 4\alpha\gamma} - \beta \right) / 2\gamma$  et  $\beta^2 > 4\alpha\gamma$ . On obtient une solution analytique décrivant le déphasage non-linéaire  $\Delta\varphi$  en fonction de l'intensité à l'entrée ( $I_0$ ) et à la sortie du milieu ( $I_L$ ). En utilisant la formule (2.38) pour ajuster la courbe expérimentale de Z-scan ou de D4 $\sigma$ , on est capable de mesurer les indices de réfraction non-linéaire.

On notera que les résolutions de l'équation (2.31) pour tous les autres cas possibles ( $\beta^2 < 4\alpha\gamma$  ou certains coefficients d'absorption nuls) sont présentées dans l'annexe B.

Nous allons présenter quelques applications de ces méthodes de mesures.

## 2.6 Applications

Dans ce paragraphe nous allons présenter les mesures des indices de réfraction non-linéaires et des coefficients d'absorption non-linéaires. Ces résultats servent à illustrer nos méthodes.

Pour toutes nos mesures des caractéristiques non-linéaires on utilise un laser Nd :YAG délivrant des impulsions à  $\lambda = 1064 \text{ nm}$  avec une durée de 17 ps. On utilisera aussi la seconde harmonique du laser, c'est-à-dire des impulsions à  $\lambda = 532 \text{ nm}$  avec une durée de 12 ps. Le taux de répétition du laser est de 10 Hz. Le montage expérimental utilisée pour nos mesures Z-scan et  $D4\sigma$  correspond à celui présenté sur la figure 2.7. Le montage Z-scan

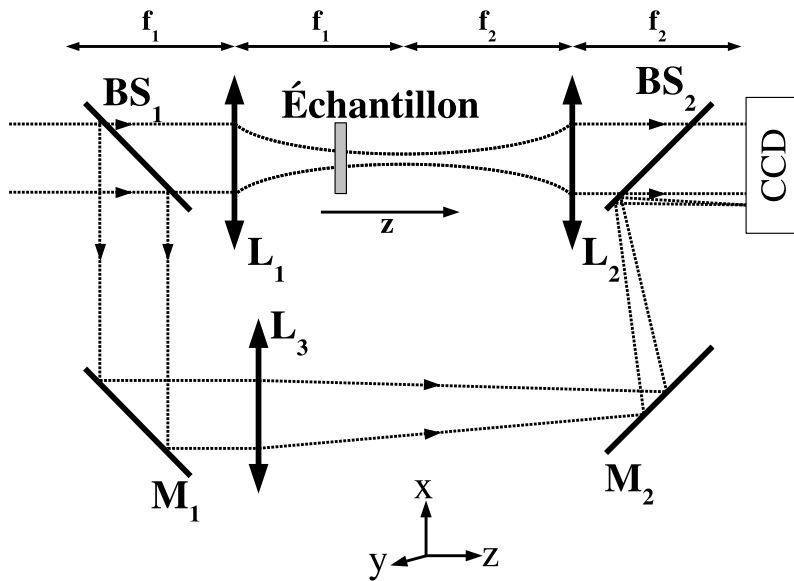


FIGURE 2.7 – Schéma du système 4f utilisé pour les mesures Z-scan et  $D4\sigma$ . L'échantillon est scanné suivant l'axe des  $z$  autour du plan focal de la lentille  $L_1$ .  $L_2$  désigne une lentille,  $BS_1$  et  $BS_2$  désignent les lames séparatrices,  $M_1$  et  $M_2$  désignent les miroirs.

est intégré dans un système imageur 4f composé de deux lentilles convergentes ( $L_1$  et  $L_2$ ) avec la même distances focales (20 cm). L'image à la sortie du montage est acquise par une caméra refroidie à  $-30^\circ \text{ C}$ . Le capteur de la caméra est un dispositif à transfert de charge (CCD) de  $(1000 \times 1018)$  pixels. Chacun des pixels mesure  $(12 \times 12) \mu\text{m}^2$ . L'utilisation d'une caméra permet de remplacer l'ouverture circulaire physique, pour les mesures de closed-aperture Z-scan, par un filtre numérique circulaire. Ainsi il est possible à partir des mêmes données expérimentales d'obtenir la courbes de la mesure d'open-aperture Z-scan, celle de la mesure de closed-aperture Z-scan et celle de la mesure de  $D4\sigma$ . Pour la première courbe il suffit d'intégrer numériquement sur l'ensemble du capteur après avoir ôté la zone

définissant la référence.. On ajoutera le filtre numérique circulaire pour la courbe de la mesure de closed-aperture Z-scan. La courbe de la mesure de  $D4\sigma$  est obtenue en calculant numériquement le rayon du faisceau avec les formules (2.23), (2.24) et (2.25). On notera que la transmission linéaire du filtre est de  $S = 0.73$ . Cette valeur a été déterminée afin d’optimiser la sensibilité et le rapport signal-sur-bruit [36, 111, 114].

Enfin, l’intensité incidente du faisceau est ajustée par un système composé d’un polariseur et d’une lame demi-onde placé avant le montage expérimental. Pour illustrer l’utilité de cette technique nous allons relater des mesures faites sur différents types de verres qui peuvent être fibrables et présentant donc un intérêt pour les télécommunications.

### 2.6.1 Verres $\text{GeO}_2 - \text{Bi}_2\text{O}_3 - \text{PbO} - \text{TiO}_2$

Nous avons mesurés l’absorption à deux photons et la réfraction non-linéaire du troisième ordre pour différents verres  $\text{GeO}_2 - \text{Bi}_2\text{O}_3 - \text{PbO} - \text{TiO}_2$  à 1064 nm et 532 nm avec les méthodes d’open-aperture Z-scan et de closed-aperture Z-scan. On notera que l’intensité incidente a été calibrée d’après la valeur de l’indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre ( $n_2$ ) du disulfure de carbone donnée dans la référence [23]. Ainsi l’intensité incidente à l’entrée de l’échantillon était de  $7.0 \text{ GW/cm}^2$  à 1064 nm et de  $0.9 \text{ GW/cm}^2$  à 532 nm. Les échantillons avaient différentes concentrations en oxydes. La composition des échantillons étaient  $(100 - x) [0.45\text{GeO}_2 - 0.33\text{Bi}_2\text{O}_3 - 0.22\text{PbO}] - x[\text{TiO}_2]$  avec  $x = 0, 5, 10$  et  $20$  en mol%. Les résultats des mesures sont présentées dans le tableau 2.1.

Composition en $\text{TiO}_2$ en mol%	1064 nm		532 nm	
	$n_2$ ( $10^{-14}\text{cm}^2/\text{W}$ )	$\beta$ (cm/GW)	$n_2$ ( $10^{-14}\text{cm}^2/\text{W}$ )	$\beta$ (cm/GW)
5	$0.70 \pm 0.14$	$< 0.01$	$1.9 \pm 0.5$	$4.4 \pm 0.4$
10	$0.70 \pm 0.15$	$< 0.01$	$1.4 \pm 0.4$	$4.4 \pm 0.4$
15	$0.64 \pm 0.12$	$< 0.01$	$1.3 \pm 0.3$	$4.3 \pm 0.5$
20	$0.80 \pm 0.16$	$< 0.01$	$1.6 \pm 0.5$	$4.3 \pm 0.5$

TABLE 2.1 – Indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre et coefficient de l’absorption à deux photons mesurés pour les verres  $\text{GeO}_2 - \text{Bi}_2\text{O}_3 - \text{PbO} - \text{TiO}_2$  suivant la concentration en  $\text{TiO}_2$  [115].

On notera que par cohérence avec d’autres mesures faites avec le même type de verres à base de métaux lourds, les indices de réfractons mesurés à 1064 nm sont environs trente fois supérieurs à ceux du silicium [116] et environ dix fois supérieurs à ceux du  $\text{TeO}_2 -$

$\text{GeO}_2 - \text{K}_2\text{O} - \text{Bi}_2\text{O}_3$  [117] mesurés dans les mêmes conditions. De même les coefficients de l'absorption à deux photons mesurés à 532 nm sont comparables avec les valeurs mesurés dans les semi-conducteurs [118, 119]. Les verres  $\text{TeO}_2 - \text{GeO}_2 - \text{K}_2\text{O} - \text{Bi}_2\text{O}_3$  semblent être des bons candidats pour la limitation optique dans le domaine du visible ainsi que pour la commutation tout-optique dans le proche infrarouge.

### 2.6.2 Verres $\text{Pb}_2\text{P}_2\text{O}_7 - \text{MoO}_3$

Nous avons caractérisé le coefficient de l'absorption à deux photons et l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre pour des verres de  $\text{Pb}_2\text{P}_2\text{O}_7 - \text{MoO}_3$  à 1064 nm et 532 nm avec les méthodes d'open-aperture Z-scan et de closed-aperture Z-scan. Comme pour les mesures des non-linéarités optiques des verres  $\text{GeO}_2 - \text{Bi}_2\text{O}_3 - \text{PbO} - \text{TiO}_2$ , l'intensité incidente a été calibrée d'après la valeur de l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre ( $n_2$ ) du disulfure de carbone donnée dans la référence [23]. L'intensité à l'entrée de l'échantillon était de  $7.4 \text{ GW/cm}^2$  à 1064 nm et de  $3 \text{ GW/cm}^2$  à 532 nm. Les échantillons présentaient différentes concentrations en molybdène (Mo). La composition des verres étaient  $(100 - x)[\text{Pb}_2\text{P}_2\text{O}_7] - x[\text{MoO}_3]$  où  $x = 10, 20, 30, 40$  et  $50$  en mol%. Les résultats des mesures sont présentées dans le tableau 2.2 [120].

Composition en $\text{MoO}_3$ en mol%	1064 nm		532 nm	
	$n_2$ ( $10^{-18} \text{ cm}^2/\text{W}$ )	$\beta$ (cm/GW)	$n_2$ ( $10^{-18} \text{ cm}^2/\text{W}$ )	$\beta$ (cm/GW)
10	$0.23 \pm 0.03$	$< 0.01$	$0.36 \pm 0.07$	$0.25 \pm 0.06$
20	$0.23 \pm 0.05$	$< 0.02$	$0.36 \pm 0.08$	$0.20 \pm 0.06$
30	$0.25 \pm 0.04$	$< 0.01$	$0.5 \pm 0.20$	$0.25 \pm 0.07$
40	$0.27 \pm 0.04$	$< 0.01$	-	-
50	$0.30 \pm 0.06$	$< 0.02$	-	-

TABLE 2.2 – Indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre et coefficient de l'absorption à deux photons mesurés pour les verres  $\text{Pb}_2\text{P}_2\text{O}_7 - \text{MoO}_3$  [120].

On notera que la variation de la concentration en  $\text{MoO}_3$  n'induit pas une variation de l'indice de réfraction non-linéaire à 1064 nm. De même, l'absorption à deux photons ne varie quasiment pas en fonction de la concentration en  $\text{MoO}_3$ .



### 2.6.3 Verres $(\text{GeSe}_2)_{100-x}(\text{Sb}_2\text{Se}_3)_x$

Nous avons mesurés le coefficient de l'absorption à deux photons et l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre pour des verres de  $(\text{GeSe}_2)_{100-x}(\text{Sb}_2\text{Se}_3)_x$  à 1064 nm en utilisant les méthodes d'open-aperture Z-scan et de closed-aperture Z-scan. C'est la concentration en antimoine (Sb) qui varie entre les échantillons. Ainsi leurs composition est  $(\text{GeSe}_2)_{100-x}(\text{Sb}_2\text{Se}_3)_x$  avec  $x = 5, 10, 20, 30, 40, 50$  et  $60$  en mol%. Nous avons résumé les résultats de nos mesures dans le tableau 2.3 [121].

Composition en $\text{SbO}_3$ en mol%	1064 nm	
	$n_2$ ( $10^{-18}\text{m}^2/\text{W}$ )	$\beta$ (cm/GW)
5	$7.0 \pm 1.2$	$1.9 \pm 0.5$
10	$8.9 \pm 2.7$	$< 0.7$
20	$9.1 \pm 1.85$	$2.3 \pm 0.5$
30	$14.1 \pm 2.9$	$10.5 \pm 1.4$
40	$14.8 \pm 2.9$	$12.4 \pm 1.8$
50	$17.7 \pm 5.9$	$21.4 \pm 4.1$
60	$21.2 \pm 4.6$	$21.5 \pm 2.3$

TABLE 2.3 – Indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre et coefficient de l'absorption à deux photons mesurés pour les verres  $(\text{GeSe}_2)_{100-x}(\text{Sb}_2\text{Se}_3)_x$  [121].

### 2.6.4 Verre $\text{As}_2\text{Se}_3$

Nous avons caractérisé les non-linéarités du verre de  $\text{As}_2\text{Se}_3$  à 1064 nm en utilisant les méthodes d'open-aperture Z-scan et de closed-aperture Z-scan et de  $D4\sigma$ . L'intensité incidente a été calibrée d'après la valeur de l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre ( $n_2$ ) du disulfure de carbone donnée dans la référence [23]. La figure 2.8 présente les différentes courbes expérimentales obtenues. On mesure, grâce à la méthode d'open-aperture Z-scan, un coefficient d'absorption à deux photons de  $\beta = 22 \pm 3$  cm/GW. L'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre mesuré est  $n_2 = (23 \pm 4) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$  [122]. La valeur obtenue est quasiment identique pour les deux méthodes.

## 2.7 Conclusion

Nous avons présenté les différentes méthodes de mesures que nous avons utilisées dans nos travaux. Ces méthodes nous permettent de caractériser les non-linéarités optiques

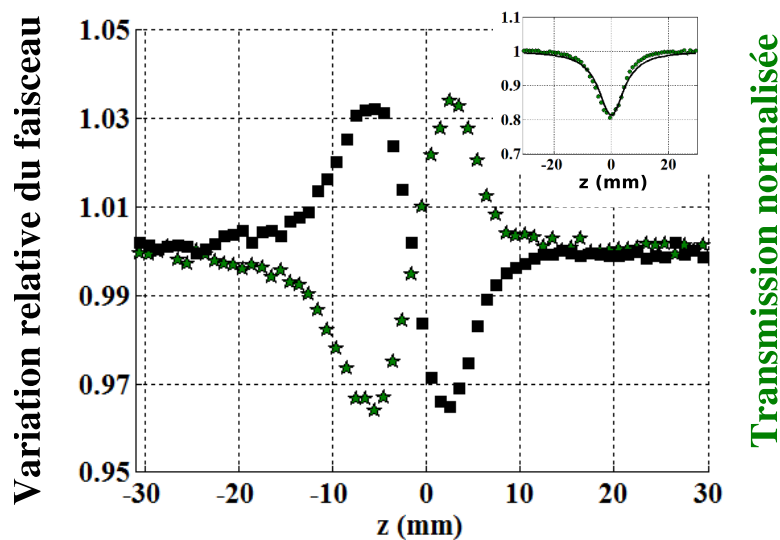


FIGURE 2.8 – Courbes expérimentales obtenues pour la caractérisation du  $\text{As}_2\text{Se}_3$  à 1064 nm. La courbe de carrés noire correspond à la variation relative du rayon du faisceau (méthode  $D4\sigma$ ). La courbe en étoiles vertes correspond à la transmission normalisée obtenue par la méthode de closed-aperture Z-scan. L’encadré en haut à droite montre la courbe de transmission normalisée obtenue par la méthode d’open-aperture Z-scan.

d’un milieu jusqu’au cinquième ordre. Nous avons présenté succinctement des résultats obtenus grâce à ces méthodes de mesures pour différents verres. Les applications sur les mesures des coefficients du cinquième ordre seront présentés dans le chapitre 3.

Le chapitre suivant est consacré à l’étude des caractéristiques du disulfure de carbone.



# Chapitre 3

## Caractéristiques du disulfure de carbone

### 3.1 Introduction

Le disulfure de carbone,  $\text{CS}_2$ , est un solvant qui possède des caractéristiques optiques intéressantes. Les non-linéarités ont été depuis longtemps quantifiées par diverses techniques : interférométrie [123] ou commutation optique [124]. Historiquement, il fut utilisé pour démontrer les avantages de la méthode de mesure Z-scan lorsqu'on mesure une réfraction non-linéaire de troisième ordre [23]. En effet, le disulfure de carbone est un composé hautement non-linéaire (du point de vue de l'optique). Les non-linéarités ont des origines diverses : électroniques (déformation du nuage électronique), thermiques (mouvement des molécules), vibrationnelles... Par exemple, Dale MCMORROW a mesuré les caractéristiques non-linéaires de différents milieux, notamment le fluorobenzène et le iodobenzène, en observant la réponse impulsionnelle pour le mouvement moléculaire [125]. Depuis de nombreuses équipes ont cherché à mesurer les non-linéarités du  $\text{CS}_2$  à différentes longueurs d'ondes, à différents régimes temporels, à différents taux de répétitions, à différentes intensités et grâce à différentes techniques [11, 37, 123–143]. Le lecteur retrouvera les caractéristiques optiques mesurées du  $\text{CS}_2$  par ces équipes de recherche dans l'annexe C. Un élément intéressant est l'inversion du signe de l'indice de réfraction non-linéaire quintique  $n_4$ . Il est positif pour les longueurs d'ondes de 532 nm et 1064 nm [143]. Alors qu'il est négatif pour 800 nm [141] et 920 nm [11]. Par ailleurs d'autres caractéristiques

telles que le spectre d'absorption ont été mesurées [11]. On voit sur la figure 3.1 deux

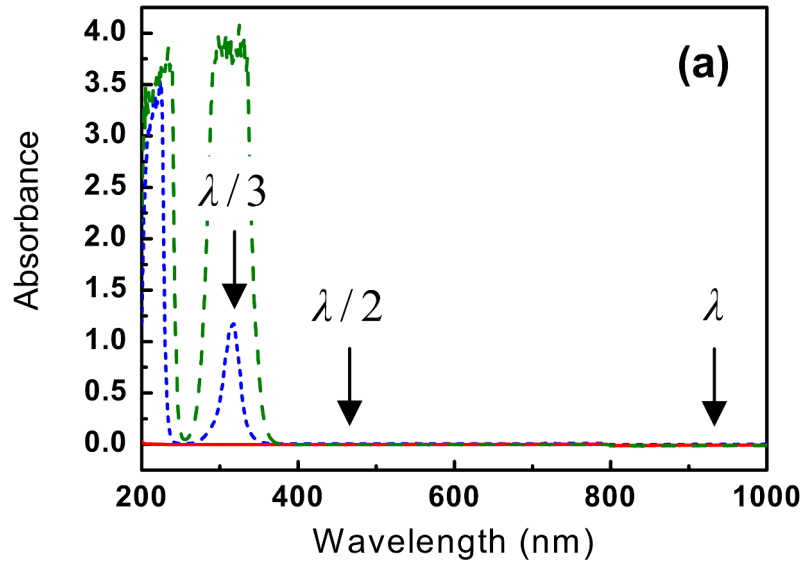


FIGURE 3.1 – Spectre d'absorption, de l'éthanol pur (ligne rouge continue), de 50  $\mu\text{l}$  de  $\text{CS}_2$  dans 2 ml d'éthanol (ligne verte en tirets) et de 5  $\mu\text{l}$  de  $\text{CS}_2$  dans 2 ml d'éthanol (ligne bleue en pointillés). Les liquides sont contenus dans une cuve de 1 cm. Le graphique provient de l'article de E.L. FALCÃO-FILHO [11].

bandes d'absorption distinctes. La première est centrée sur  $\lambda = 317$  nm et la seconde est centrée sur  $\lambda = 200$  nm. De plus il a été nécessaire de diluer fortement le  $\text{CS}_2$  pour ne pas saturer le spectroscopie. L'éthanol a servi de solvant. Il est possible que, utilisé comme solvant du disulfure de carbone, l'éthanol peut interagir avec le disulfure de carbone. Il est dès lors possible que l'éthanol influe sur le spectre d'absorption du disulfure de carbone. Le spectre d'absorption de l'éthanol est visible sur la figure 3.1, il correspond à la courbe rouge. On voit que l'intensité des pics d'absorption a une intensité bien inférieure à l'intensité des pics d'absorption du disulfure de carbone. Par conséquent la variation sur le spectre d'absorption du disulfure de carbone induite par l'éthanol est négligeable.

Dans le cadre de cette thèse nous avons utilisé un laser impulsionnel monochromatique à  $\lambda = 532$  nm et  $\lambda = 1064$  nm dans le régime picoseconde, respectivement, 12 ps et 17 ps. Il est reconnu que pour de telles impulsions, le disulfure de carbone ne présente ni absorption linéaire  $\alpha$  ni absorption à deux photons  $\beta$ . Cela est cohérent avec le spectre (voir figure 3.1), puisque pour  $\lambda = 532$  nm et  $\lambda/2 = 266$ , nm on ne trouve aucune bande d'absorption. De même pour  $\lambda = 1064$  nm et  $\lambda/2 = 532$  nm. Il n'en est pas de même pour l'absorption à trois photons, c'est-à-dire à  $532/3 \approx 177$  nm ou  $1064/3 \approx 317$  nm, la troisième harmonique est proche de la résonance. Les caractéristiques non-linéaire du cin-

quième ordre, absorption à trois photons ( $\gamma$ ) et indice de réfraction non-linéaire quintique ( $n_4$ ) ne sont plus négligeables.

On notera par ailleurs qu'il serait plus juste de parler d'absorption non-linéaire du troisième ordre  $\beta$  et d'absorption non-linéaire du cinquième ordre  $\gamma$  et non pas, respectivement, d'absorption à deux photons et à trois photons. En effet ces absorptions peuvent être liées à différents phénomènes. Par exemple l'absorption de l'état excité, due à l'absorption de porteur de charge libre et aux électrons piégés, peut être traitée comme un phénomène quintique [144]. Les absorptions à deux ou à trois photons sont des phénomènes quantiques. Il est nécessaire de considérer les quanta d'énergies propres à chaque photon absorbé par le nuage électronique. Nous traiterons le phénomène du point de vue classique, cela est possible puisque le phénomène devient important à partir du moment où la somme de la fréquence des deux ou trois photons correspond à une fréquence proche de celle de la bande d'absorption. On nommera  $\beta$  l'absorption à deux photons et  $\gamma$  l'absorption à trois photons par abus de langage et on les traitera du point de vue de la physique classique.

Ce chapitre sera consacré à l'étude de ces caractéristiques non-linéaires. Tout d'abord nous utiliserons le modèle classique de l'oscillateur anharmonique afin de représenter la déformation du nuage électronique sous l'influence d'une onde électromagnétique. De ce modèle et en tenant compte du fait que la troisième harmonique est résonnante, nous calculerons une expression analytique de la partie réelle et de la partie imaginaire de l'hyperpolarisabilité du cinquième ordre. Nous calculerons ensuite les corrections dues au champ local et nous établirons l'expression analytique de la susceptibilité non-linéaire quintique. De cette expression nous pourrions établir plusieurs prédictions théoriques que nous nous appliquerons à vérifier. Puis nous mesurerons expérimentalement les absorptions et les indices de réfraction non-linéaires à 532 nm et 1064 nm. Nous présenterons alors de nouvelles méthodes de mesures. Enfin nous discuterons de ces valeurs expérimentales avant de conclure ce chapitre.

## 3.2 Susceptibilités et oscillateur anharmonique

La théorie macroscopique standard exprime les caractéristiques optiques non-linéaires à l'aide des susceptibilités non-linéaires  $\chi^{(p)}$ . Ces indices sont des quantités complexes. L'indice de réfraction du troisième ordre ( $n_2$ ) est proportionnel à la partie réelle de  $\chi^{(3)}$ , tout comme le coefficient d'absorption à deux photons ( $\beta$ ) est proportionnel à la partie imaginaire de  $\chi^{(3)}$ . L'indice de réfraction du cinquième ordre ( $n_4$ ) est, quand à lui, proportionnel à la partie réelle de  $\chi^{(5)}$  mais aussi au carré de  $\chi^{(3)}$ . Cependant le coefficient d'absorption à trois photons ( $\gamma$ ) est proportionnel à la partie imaginaire de  $\chi^{(5)}$ . Pour une description plus détaillée, le lecteur pourra se reporter au chapitre 1.

La susceptibilité optique est liée à la densité de polarisation  $\vec{P}$ , une quantité macroscopique. La densité de polarisation, ou polarisation, décrit la réponse du milieu à l'excitation causée par un champ électrique mais aussi à l'impact qu'aura le milieu sur le champ. Cette quantité est définie, pour un milieu diélectrique, comme la moyenne des moments dipolaires par unité de volume :

$$\vec{P} = \frac{\sum_i \vec{d}_i}{\Delta V}, \quad (3.1)$$

où  $\vec{d}_i = q_i \vec{x}_i$  est le moment dipolaire de la charge  $q_i$  contenue dans le volume élémentaire  $\Delta V$ . Elle est exprimée en C/m<sup>2</sup>. Le moment dipolaire est une quantité microscopique. Il est possible d'exprimer la polarisation comme un produit de convolution entre les termes de susceptibilités et le champ optique  $\vec{E}$  [98] :

$$\vec{P} = \epsilon_0 \left[ \chi^{(1)} * \vec{E} + \chi^{(2)} * \vec{E}\vec{E} + \chi^{(3)} * \vec{E}\vec{E}\vec{E} + \dots \right]. \quad (3.2)$$

Les produits de l'équation (3.2) sont des convolutions tandis que les susceptibilités sont des tenseurs. Cette relation tensorielle suppose que la réponse est non-instantanée et locale. Ici, nous ne tiendrons pas compte de la nature tensorielle et considérons que l'onde optique incidente est monochromatique. Ainsi le champ optique  $\vec{E}$  peut être considéré comme une somme finie de composantes de Fourier. Chaque composante est multipliée par une seule valeur de la susceptibilités  $\chi^{(p)}$  par conséquent la réponse est instantanée. Le temps de réponse du disulfure de carbone est inférieur à la durée temporelle de l'impulsion : 1.6 ps

[145] contre 12 ps à 532 nm ou 17 ps à 1064 nm. Dans le cas d'une réponse non-instantanée, l'équation (3.2) sous-entend au second membre des intégrations sur les instants antérieurs à l'instant  $t$  d'observation de la polarisation  $\vec{P}(t)$ . La polarisation a été très largement étudiée par différents chercheurs comme LORENTZ [146], MAXWELL GARNETT [147] ou BRUGEMANN [148].

Physiquement lorsqu'une molécule est soumise à un champ optique intense, son nuage électronique est déformé de telle façon que le barycentre des charges négatives ne soit plus confondu avec celui des charges positives. La polarisation est induite par le déplacement du barycentre. Ainsi il est possible de représenter le déplacement du barycentre dans un potentiel en utilisant le modèle de l'atome de Lorentz en physique classique ou celui de l'atome à plusieurs niveaux en physique quantique. Il est alors possible de déterminer les expressions des susceptibilités non-linéaires. Et par conséquent d'en déduire les expressions des indices optiques non-linéaires. De telles formules analytiques existent pour le second et le troisième ordre [98, 149, 150]. Plus récemment, des relations entre les susceptibilités cubiques (quintiques) et les caractéristiques optiques cubiques (quintiques) ont été calculées [11]. Les auteurs ont exprimé l'indice de réfraction  $n$  en fonction du champ électrique  $E$  et de la susceptibilité  $\chi$ . Ils ont ainsi pu identifier les expressions de  $n_4$  et  $\gamma$  en fonction des susceptibilités non-linéaires.

Nous allons utiliser le modèle de l'oscillateur anharmonique classique. De ce modèle nous déterminerons des relations pour les hyperpolarisabilités.

### 3.2.1 Modèle de l'oscillateur anharmonique

Le modèle de l'oscillateur anharmonique permet de décrire, du point de vue de la physique classique, différents effets non-linéaires [98]. Il décrit l'action d'une force rétablissant la position d'équilibre sur la position d'une particule.

Considérons un milieu non-linéaire soumis à l'action d'une onde électromagnétique monochromatique intense. Sous l'action du champ électrique  $\vec{E}(\vec{r}, \vec{t})$  de l'onde, le nuage électronique se déforme. Le barycentre du nuage électronique change tandis que la position du barycentre des protons du noyau est considérée immobile. Cela induit la formation de dipôles électriques. Considérons le barycentre du nuage électronique comme une charge ponctuelle classique de masse  $m$  et de charge  $e$ , soumise à :



- la force de Coulomb du champ électrique,
- le potentiel dû à la molécule, à l'atome, au cristal.

On désignera par  $x$ , la position de la charge ponctuelle suivant un axe parallèle à la direction de polarisation de l'onde électromagnétique et donc perpendiculaire à la direction de propagation. Du point de vue macroscopique, cette variation se traduit par une polarisation du milieu en fonction du champ électrique, reprenons l'équation (3.1). Puisque l'on considère qu'il n'y a qu'un seul type de charge ponctuelle négative assimilable à un électron (de charge  $-e$  et de position  $x$ ), ce qui impose que nous n'ayons qu'un seul type de molécule. Le moment dipolaire de chaque charge ponctuelle microscopique est identique et s'écrit alors :

$$\vec{d} = -e\vec{x}. \quad (3.3)$$

Puisque la position  $x$  est suivant un seul axe, parallèle à la direction de polarisation, on simplifiera ces grandeurs en ne considérant que leurs natures scalaires. En ne considérant pas les corrections du champ moyen, on peut réécrire la densité de polarisation :

$$\vec{P} = N\vec{p}, \quad (3.4)$$

$N$  est la densité moléculaire<sup>1</sup> et  $\vec{p} = -e\vec{x}$  est le moment dipolaire.

Définissons un potentiel atomique  $U$  en fonction de la position de la charge ponctuelle  $x$ .  $U$  est un polynôme de  $x$ . La position  $x$  évolue dans ce potentiel de manière à retourner vers l'état d'équilibre. Le milieu que l'on considère est le disulfure de carbone. C'est un composé centrosymétrique (avec une symétrie centrale). Cela implique que le potentiel atomique est pair, tous les coefficients devant les puissances impaires de  $x$  sont nuls. Le terme proportionnelle à  $x^2$  décrit un potentiel conservatif associé à une force centripète. Elle décrit l'orbite circulaire de la charge. Ainsi le coefficient proportionnel au terme en  $x^2$  est  $m\omega_0/2$  où  $\omega_0$  est la fréquence propre de l'oscillateur. Enfin les coefficients relatifs aux termes du quatrième et sixième ordre sont notés, relativement, comme  $mC/4$  et  $mQ/6$ .

---

1. Dans le cas où l'on considère un milieu mono-atomique, un gaz par exemple, on a une densité d'atomes. Le modèle reste identique, seul la terminologie change.

L'expression du potentiel atomique est :

$$U(x) = m\omega_0^2 \frac{x^2}{2} + mC \frac{x^4}{4} + mQ \frac{x^6}{6}. \quad (3.5)$$

Soit la force  $F(x)$  de rappel exercée sur la charge ponctuelle en  $x$ . Cette force dérive du potentiel  $\vec{F}(x) = -\vec{\nabla}U(x)$ . La force est alors définie comme étant :

$$F(x) = -m\omega_0^2 x - mCx^3 - mQx^5. \quad (3.6)$$

Dans le cas idéal, le système est conservatif c'est-à-dire que l'énergie totale est conservée. Or si on a une particule chargée qui subit une accélération alors elle rayonne. C'est-à-dire qu'une partie de l'énergie est dissipée. On modélise cela par une force de freinage  $-m\Gamma dx/dt$ . Enfin on considère un terme de couplage entre la charge  $e$  et le champ électrique  $\mathcal{E}$  :  $-e\mathcal{E}$ . Si on applique la deuxième loi de Newton, on obtient l'équation différentielle gouvernant le mouvement de la charge ponctuelle :

$$\frac{d^2x}{dt^2} + \Gamma \frac{dx}{dt} + \omega_0^2 x + Cx^3 + Qx^5 = -\frac{e}{m}\varepsilon. \quad (3.7)$$

On décrit l'onde électromagnétique comme une onde plane monochromatique, on l'a définie dans le formalisme complexe :

$$\mathcal{E} = E \exp(-i\omega t) + E^* \exp(i\omega t), \quad (3.8)$$

où  $t$  est la variable temporelle,  $\omega$  la pulsation,  $E$  est l'amplitude du champ électrique et  $*$  désigne le complexe conjugué.

On notera que si  $C = Q = 0$ , alors l'équation (3.7) correspond au modèle de l'atome de Lorentz. Celui-ci donne une bonne description des propriétés optiques linéaires des gaz atomiques ou des solides non-métalliques.

Pour résoudre l'équation (3.7) et déterminer la position  $x$  de la charge ponctuelle, on utilise une approche perturbative. On développe la position de l'électron :

$$x = x^{(1)} + x^{(3)} + x^{(5)} + \dots, \quad (3.9)$$

où  $x^{(p)}$  est la position de l'électron à l'ordre de perturbation  $p$ . On suppose alors que le nuage électronique est peu déformé. Il est possible de résoudre l'équation de la position  $x$  (3.7) ordre par ordre.

On calcule la position pour l'ordre 1. En ne conservant que les termes proportionnels à  $x^{(1)}$ , l'équation (3.7) devient :

$$\frac{d^2x^{(1)}}{dt^2} + \Gamma \frac{dx^{(1)}}{dt} + \omega_0^2 x^{(1)} = -\frac{e}{m} [E \exp(-i\omega t) + E^* \exp(i\omega t)]. \quad (3.10)$$

C'est une équation différentielle linéaire. Elle correspond à un oscillateur harmonique amorti avec un terme source.

La solution de l'équation (3.10) est alors :

$$x^{(1)} = X^{(1)}(\omega) \exp(-i\omega t) + cc, \quad (3.11)$$

$cc$  représente le complexe conjugué et  $X^{(1)}(\omega)$  est l'amplitude. L'amplitude a pour expression :

$$X^{(1)}(\omega) = \frac{-eE}{mD(\omega)}. \quad (3.12)$$

Au dénominateur,  $D(\omega)$  est une fonction complexe de la fréquence angulaire définie par :

$$D(\omega) = \omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega. \quad (3.13)$$

La fonction (3.13) exprime la résonance à la fréquence angulaire  $\omega = \omega_0$ .

En exprimant la fonction (3.11), on obtient :

$$P_L = -Ne [X^{(1)}(\omega) \exp(-i\omega t) + cc]. \quad (3.14)$$

Dans le cas de l'approximation linéaire, il est possible d'exprimer la densité de polarisation en fonction de la polarisabilité  $a$  :

$$P_L = \varepsilon_0 Na(\omega) \exp(-i\omega t) + cc, \quad (3.15)$$

où  $\varepsilon_0$  est la permittivité diélectrique dans le vide.  $a$  est le coefficient de polarisabilité, il

mesure la tendance linéaire qu'a la molécule concernée à se déformer.

En comparant les expressions (3.14) et (3.15), on peut trouver une relation entre l'amplitude  $X^{(1)}(\omega)$  et la polarisabilité  $a(\omega)$  :

$$X^{(1)}(\omega) = Ga(\omega)E. \quad (3.16)$$

où  $G$  est un coefficient

$$G = -\frac{\varepsilon_0}{e}. \quad (3.17)$$

La polarisabilité est alors définie par :

$$a(\omega) = \frac{A}{D(\omega)}, \quad (3.18)$$

où  $A = e^2/\varepsilon_0 m$ .

Procédons de même pour le troisième ordre. De la même façon que précédemment, on remplace  $x$  par son développement perturbatif (3.9) dans l'équation (3.7). En ne conservant que les termes cubiques, on obtient l'équation :

$$\frac{d^2x^{(3)}}{dt^2} + \Gamma \frac{dx^{(3)}}{dt} + \omega_0^2 x^{(3)} = -C(x^{(1)})^3. \quad (3.19)$$

Le développement de  $(x^{(1)})^3$  ne contient que des termes proportionnels à  $\exp(-i\omega t)$ ,  $\exp(-3i\omega t)$  et leurs complexes conjugués. Par conséquent  $x^{(3)}$  est de la forme :

$$x^{(3)} = X^{(3)}(\omega) \exp(-i\omega t) + X^{(3)}(3\omega) \exp(-3i\omega t) + cc. \quad (3.20)$$

En injectant l'expression (3.20) dans l'équation (3.19), on obtient l'expression de l'amplitude de la troisième harmonique :

$$D(3\omega) X^{(3)}(3\omega) = -C(X^{(1)}(\omega))^3. \quad (3.21)$$

En reportant l'expression de  $X^{(1)}(\omega)$  (3.16) dans l'équation (3.21), on peut résoudre celle-ci, et on obtient :

$$X^{(3)}(3\omega) = -\frac{C(G(\omega)E)^3}{D(3\omega)}. \quad (3.22)$$

où  $D$  est donné pour la troisième harmonique  $3\omega$ .

On développe la polarisation non-linéaire du troisième ordre en fonction de l'hyperpolarisabilité du troisième ordre  $b$  :

$$P_{NL}^{(3)} = \varepsilon_0 N [b(3\omega) E^3 \exp(-3i\omega t) + 3b(\omega) E^2 E^* \exp(-i\omega t) + cc], \quad (3.23)$$

où l'on a posé  $b(3\omega) = b(3\omega; \omega, \omega, \omega)$  et  $b(\omega) = b(\omega; \omega, \omega, -\omega)$ . On notera qu'il existe différentes combinaisons des coefficients  $\omega$  qui correspondent à  $b(\omega)$ .  $b$  mesure la tendance non-linéaire cubique qu'a la molécule concernée à se déformer. Cependant il est physiquement impossible de distinguer  $b(\omega; \omega, \omega, -\omega)$  de  $b(\omega; \omega, -\omega, \omega)$  ou de  $b(\omega; -\omega, \omega, \omega)$ . Par conséquent ces termes d'hyperpolarisabilités sont identiques et on considère alors  $3b(\omega)$ . Ce facteur combinatoire peut être déterminé grâce au triangle de PASCAL (voir figure 3.2). Pour rappel, chaque coefficient d'une ligne est obtenu en additionnant les deux coef-

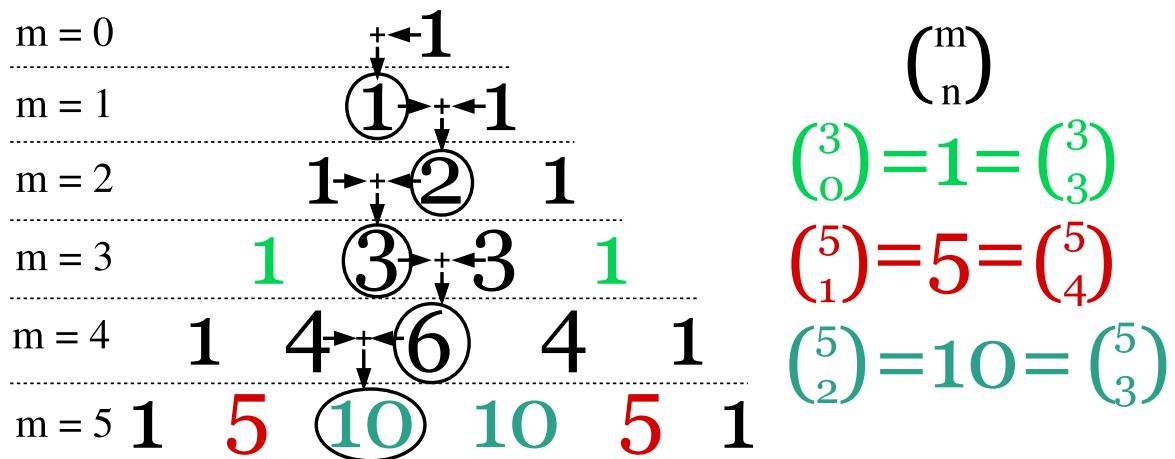


FIGURE 3.2 – Les 6 premières lignes du triangle de PASCAL. On a illustré l'algorithme pour calculer les coefficients. En vert, rouge ou bleu correspondent les coefficients dans le triangle de Pascal et leur écriture mathématique. L'illustration a été publiée par Drini sur Wikimedia.org avec la licence Copyleft à l'adresse : <http://commons.wikimedia.org/wiki/File:PascalSimetria.svg>.

coefficients de l'étage supérieur de la pyramide. Cet algorithme est illustré dans la figure 3.2. La notation mathématique du facteur combinatoire est  $C_n^m$ , où  $m$  indique l'ordre de la susceptibilité considéré et  $n$  est le nombre de faisceau incident à la fréquence  $\omega$  ou  $-\omega$ . Il est important de noter que  $n \leq m$ . Sur le triangle  $m$  correspond à la hauteur de la ligne (haut vers bas) où la ligne du haut est  $m = 0$ , et  $n$  correspond à la place du coefficient (gauche vers la droite) où le coefficient le plus à gauche est  $n = 0$ . Par conséquent le

facteur combinatoire pour l'hyperpolarisabilité de l'ordre 3 où l'on a 2 faisceaux incidents à la fréquence  $\omega$  correspond au coefficient de la quatrième ligne ( $m = 3$ ) et troisième colonne ( $n = 2$ ). c'est-à-dire 3.

En reprenant l'expression de l'ordre cubique de la position de l'électron  $x^{(3)}$  ainsi que celle de la polarisation  $P_{NL}^{(3)} = -Nex^{(3)}$  et en l'identifiant avec l'équation (3.23), on définit l'expression de l'amplitude du troisième ordre à la fréquence incidente :

$$X^{(3)}(\omega) = 3G\chi^{(3)}(\omega) E^2 E^*, \quad (3.24)$$

et à la troisième harmonique :

$$X^{(3)}(3\omega) = G\chi^{(3)}(3\omega) E^3. \quad (3.25)$$

En utilisant les équations (3.16) et (3.25) dans l'équation (3.21), on trouve le terme de la génération de troisième harmonique de l'hyperpolarisabilité du troisième ordre  $b$  :

$$b(3\omega) = R(a(\omega))^3 a(3\omega), \quad (3.26)$$

dans lequel :

$$R = \frac{-CG^2}{A} = \frac{-Cm\varepsilon_0^3}{e^4}. \quad (3.27)$$

Pour trouver le terme correspondant à l'effet Kerr, on procède de la même manière. L'équation est :

$$D(\omega) X^{(3)}(\omega) = -3C (X^{(1)}(\omega))^2 X^{(1)*}(\omega). \quad (3.28)$$

En utilisant (3.24) on obtient l'hyperpolarisabilité du troisième ordre :

$$b(\omega) = R(a(\omega))^3 a^*(\omega). \quad (3.29)$$

La prochaine étape est la résolution de l'équation (3.7) pour le terme perturbatif quintique.

L'équation satisfaisant la correction quintique de la position de l'électron  $x^{(5)}$  est :

$$\frac{d^2 x^{(5)}}{dt^2} + \Gamma \frac{dx^{(5)}}{dt} + \omega_0^2 x^{(5)} = -Q (x^{(1)})^5 - 3C (x^{(1)})^2 x^{(3)}. \quad (3.30)$$

D'après le second membre de l'équation (3.30),  $x^{(5)}$  peut être exprimé sous la forme :

$$x^{(5)} = X^{(5)}(5\omega) \exp(-5i\omega t) + X^{(5)}(3\omega) \exp(-3i\omega t) + X^{(5)}(\omega) \exp(-i\omega t) + cc. \quad (3.31)$$

La correction quintique doit donc tenir compte d'un terme de génération de la cinquième harmonique ( $5\omega$ ), d'un terme de génération de la troisième harmonique ( $3\omega$ ) et un terme d'effet Kerr ( $\omega$ ).

En utilisant la définition de  $D$  (3.13) sur le membre de gauche de l'équation (3.30), en développant le membre de droite de cette même équation et en séparant les différentes composantes de Fourier suivant la fréquence considérée, on peut écrire pour la cinquième harmonique,

$$D(5\omega) X^{(5)}(5\omega) = -Q (X^{(1)}(\omega))^5 - C (X^{(1)}(\omega))^2 X^{(3)}(3\omega), \quad (3.32)$$

puis le terme quintique de la génération de la troisième harmonique,

$$D(3\omega) X^{(5)}(3\omega) = -5Q (X^{(1)}(\omega))^4 X^{(1)*}(\omega) - 3C \left[ (X^{(1)}(\omega))^2 X^{(3)}(\omega) + 2X^{(1)}(\omega) X^{(1)*}(\omega) X^{(3)}(3\omega) \right], \quad (3.33)$$

et enfin le terme relatif à l'effet Kerr

$$D(\omega) X^{(5)}(\omega) = -10Q (X^{(1)}(\omega))^3 (X^{(1)*}(\omega))^2 - 3C \left[ (X^{(1)}(\omega))^2 X^{(3)*}(\omega) + 2X^{(1)}(\omega) X^{(1)*}(\omega) X^{(3)}(\omega) + (X^{(1)*}(\omega))^2 X^{(3)}(3\omega) \right], \quad (3.34)$$

Comme pour la polarisation cubique, la polarisation non-linéaire du cinquième ordre

peut être développée en utilisant l'hyperpolarisabilité quintique  $c$  :

$$P_{NL}^{(5)} = \varepsilon_0 N (c(5\omega) E^5 \exp(-5i\omega t) + 5c(3\omega) E^4 E^* \exp(-3i\omega t) + 10c(\omega) E^3 E^{*2} \exp(-i\omega t) + cc). \quad (3.35)$$

où l'on a posé  $c(5\omega) = c(5\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, \omega)$ ,  $c(3\omega) = c(3\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, -\omega)$  et  $c(\omega) = c(\omega; \omega, \omega, \omega, -\omega, -\omega)$ .  $c$  mesure la tendance non-linéaire quintique qu'a la molécule concernée à se déformer. Il est impossible de discerner les combinaisons.

La relation entre la position de la charge ponctuelle  $x$  et l'hyperpolarisabilité quintique est obtenue en utilisant les équations (3.31) et (3.35), on a

$$X^{(5)}(5\omega) = Gc(5\omega)E^5, \quad (3.36)$$

$$X^{(5)}(3\omega) = 5Gc(3\omega)E^4E^*, \quad (3.37)$$

$$X^{(5)}(\omega) = 10Gc(\omega)E^3E^{*2}, \quad (3.38)$$

$G$  à pour expression (3.17).

En utilisant ces formules, on arrive à déterminer les expressions des hyperpolarisabilités du cinquième ordre

$$c(\omega) = T(a(\omega))^4 (a^*(\omega))^2 + \frac{3}{10}R [3(a(\omega))^3 a^*(\omega) + 6(a(\omega))^2 a^*(\omega)b(\omega) + a(\omega)(a^*(\omega))^2 b(3\omega)], \quad (3.39)$$

$$c(3\omega) = T(a(\omega))^4 a^*(\omega)a(3\omega) + \frac{3}{5}R [3(a(\omega))^2 b(\omega)a(3\omega) + 2a(\omega)a^*(\omega)b(3\omega)a(3\omega)], \quad (3.40)$$

$$c(5\omega) = T(a(\omega))^5 a(5\omega) - 3R(a(\omega))^2 b(3\omega)a(5\omega), \quad (3.41)$$

$R$  correspond à l'expression (3.27) tandis que

$$T = \frac{-\delta G^4}{A} = \frac{-Qm\varepsilon_0^5}{e^6}. \quad (3.42)$$

On a substitué les facteurs de résonance  $1/D(p\omega)$  par la polarisabilité  $a(p\omega)$  (3.18)



dans les expressions de l'hyperpolarisabilité quintique  $c$  à la fréquence  $\omega$  (3.39),  $3\omega$  (3.40) et  $5\omega$  (3.41). Cependant, le coefficient exprimant la force non-linéaire du troisième ordre  $C$  est présent dans les expressions des hyperpolarisabilités quintiques (3.39), (3.40) et (3.41) puisque  $R = -Ce_0^3 m/e^4$ . Cela pose problème car  $C$  est un paramètre ajustable relatif aux non-linéarités du troisième ordre. Toutefois il est possible de le remplacer en utilisant les expressions des hyperpolarisabilité cubiques à  $3\omega$  (3.26) et  $\omega$  (3.29). On obtient

$$c(\omega) = T (a(\omega))^4 (a^*(\omega))^2 + \frac{3}{10} \left[ 3 \frac{b(\omega)b^*(\omega)}{a^*(\omega)} + 6 \frac{(b(\omega))^2}{a(\omega)} + \frac{b^*(\omega)b(3\omega)}{a^*(\omega)} \right]. \quad (3.43)$$

$$c(3\omega) = T (a(\omega))^4 a^*(\omega)a(3\omega) + \frac{3}{5} \left[ 3 \frac{b(3\omega)b(\omega)}{a(\omega)} + 2 \frac{(b(3\omega))^2 a^*(\omega)}{(a(\omega))^2} \right], \quad (3.44)$$

$$c(5\omega) = T (a(\omega))^5 a(5\omega) + 3 \frac{b(\omega)b(3\omega)a(5\omega)}{a(\omega)a^*(\omega)}, \quad (3.45)$$

Maintenant que nous avons établi une théorie pour les susceptibilités linéaire, cubique et quintique d'un composé centrosymétrique illuminé par une impulsion laser picoseconde, intéressons nous au cas plus particulier de la résonance de la troisième harmonique.

### 3.2.2 Résonance de la troisième harmonique

Puisque dans cette partie ce sont les caractéristiques du disulfure de carbone qui sont considérés, il est important d'adapter notre théorie à la situation expérimentale. L'échantillon de disulfure de carbone est exposé à un rayonnement monochromatique en régime picoseconde. La longueur d'onde de celui-ci est soit  $\lambda = 532$  nm, soit  $\lambda = 1064$  nm. D'après la figure 3.1 issue de la référence [11], la troisième harmonique est résonnante pour ces deux longueurs d'ondes. En effet, la fréquence fondamentale de l'onde que ce soit à  $\lambda = 532$  nm ou à  $\lambda = 1064$  nm est loin de la résonance. Ce qui n'est pas le cas de la troisième harmonique,  $532/3 \simeq 177$  nm ou  $1064/3 \simeq 355$  nm.

Cette situation est relativement fréquente lors de mesures expérimentales. De nombreuses expériences sont faites dans le domaine de transparence, c'est-à-dire, dans le cas où la fréquence fondamentale de l'onde est très loin de la fréquence de résonance. Cependant, pour de nombreux matériaux, le domaine de transparence n'est pas suffisamment grand pour que la troisième harmonique soit incluse. Par conséquent, la troisième harmonique

peut être résonnante.

Par suite nous considérerons que  $a(3\omega)$  est résonant tandis que  $a(\omega)$  ne l'est pas. La conséquence directe est que l'absorption linéaire est alors négligeable,  $a(\omega)$  est alors purement réel. Par conséquent, l'expression de l'hyperpolarisabilité du troisième ordre (3.29) devient :

$$b(\omega) = R(a(\omega))^4. \quad (3.46)$$

$b(\omega)$  est alors aussi un réel pur. L'absorption non-linéaire du troisième ordre est nulle. On parlera ici, par abus de langage, absorption à deux photons. On notera qu'il est depuis longtemps reconnu que le disulfure de carbone ne présente pas d'absorption linéaire et d'absorption à deux photons lorsqu'il est soumis à un rayonnement de longueur d'onde de 532 nm [141, 143, 151]. Nos prédictions théoriques montrent qu'il doit en être de même pour 1064 nm. Ces observations seront vérifiées par la suite.

Dans la suite nous noterons  $a_r$  la partie réelle et  $a_i$  la partie imaginaire de la polarisabilité  $a$ . On utilisera la même notation pour désigner la partie réelle et la partie imaginaire des différentes hyperpolarisabilités. L'hyperpolarisabilité cubique de la troisième harmonique est

$$b_{r,i}(3\omega) = R(a(\omega))^3 a_{r,i}(3\omega). \quad (3.47)$$

Or  $a(\omega)$ , et donc  $b(\omega)$ , sont des réels purs, il est possible de réécrire l'expression de  $c(\omega)$  (3.43) et d'en séparer la partie réelle de la partie imaginaire :

$$c_r(\omega) = T(a(\omega))^6 + \frac{3}{10} \left[ 9 \frac{(b(\omega))^2}{a(\omega)} + \frac{b(\omega)b_r(3\omega)}{a(\omega)} \right], \quad (3.48)$$

$$c_i(\omega) = \frac{3}{10} \frac{b(\omega)b_i(3\omega)}{a(\omega)}. \quad (3.49)$$

On notera que si  $c_i(\omega)$  est non nulle, alors le phénomène d'absorption à trois photons (absorption non-linéaire du cinquième ordre) est présent. Ainsi d'après notre théorie si la fréquence fondamentale ( $\omega$ ) n'est pas résonnante tandis que la troisième harmonique ( $3\omega$ ) l'est, alors l'absorption non-linéaire cubique est nulle tandis que l'absorption quintique ne l'est pas.

Reprenons alors la formule de la partie réelle de l'hyperpolarisabilité quintique (3.48).

En négligeant les termes qui ne sont pas résonnant, on obtient alors

$$c_r(\omega) \simeq \frac{3}{10} \frac{b(\omega)b_r(3\omega)}{a(\omega)}. \quad (3.50)$$

Bien que nos mesures expérimentales donnent  $b_r(\omega)$  plutôt que  $b_r(3\omega)$ , il est intéressant de voir qu'en utilisant (3.46) et (3.47) on peut écrire

$$b_{r,i}(3\omega) = \frac{b(\omega)a_{r,i}(3\omega)}{a(\omega)}, \quad (3.51)$$

et en conséquence

$$c_{r,i}(\omega) = \frac{3}{10} \frac{(b(\omega))^2 a_{r,i}(3\omega)}{(a(\omega))^2}. \quad (3.52)$$

D'après les relations entre les termes de susceptibilités non-linéaires et les indices de réfraction non-linéaires du troisième  $n_2$  et du cinquième  $n_4$  ordre ainsi que le coefficient d'absorption non-linéaire du cinquième ordre  $\gamma$  établit dans l'article de E.L. FALCÃO-FILHO et al. [11] :

$$n_2 = \frac{3}{4} \frac{Nb(\omega)}{n_0^2 \varepsilon_0 c}, \quad (3.53)$$

$$n_4 = \frac{1}{(2n_0 \varepsilon_0 c)^2} \left( \frac{5Nc_r(\omega)}{n_0} - \frac{9(Nb(\omega))^2}{8n_0^3} \right), \quad (3.54)$$

$$\gamma = \frac{5\omega Nc_i(\omega)}{2n_0^3 \varepsilon_0^3 c^3}, \quad (3.55)$$

où  $n_0 = n_0(\omega)$  est l'indice linéaire, c'est-à-dire que  $n_0^2(\omega) = 1 + Na(\omega)$ . D'après les expressions de  $n_2$  (3.53), de  $n_4$  (3.54) et  $\gamma$  (3.55), on peut réécrire la formule (3.52) en fonction de l'indice de réfraction non-linéaire quintique  $n_4$  ainsi que le coefficient d'absorption à trois photons  $\gamma$  :

$$n_4 = \frac{4n_0 n_2^2 (n_0^2(3\omega) - 1)}{3(n_0^2 - 1)}, \quad (3.56)$$

et

$$\gamma = \frac{80\pi n_0 n_2^2 N a_i(3\omega)}{9\varepsilon_0 \lambda (n_0^2 - 1)^2}. \quad (3.57)$$

Ainsi, il est possible de calculer théoriquement  $n_4$  et  $\gamma$  à partir du moment où l'on connaît, respectivement, l'indice de réfraction linéaire à la troisième harmonique  $n_0(3\omega)$  ou la partie imaginaire de la polarisabilité à la troisième harmonique  $a_i(3\omega)$ . De même si l'on

détermine expérimentalement l'indice de réfraction non-linéaire quintique ou l'absorption à trois photons, il est possible de calculer, respectivement,  $n_0(3\omega)$  et  $a_i(3\omega)$ .

Un autre résultat important est à noter. Puisque  $n_4$  est proportionnel à  $a(3\omega)$ , alors il est inversement proportionnel à  $D(3\omega) = \omega_0^2 - 9\omega^2 - 3i\gamma\omega$ . Si on ignore la partie imaginaire,  $D(3\omega)$  change de signe suivant que  $\omega_0$  est supérieur ou inférieur à  $3\omega$ . Par conséquent, c'est le signe de  $n_4$  qui change suivant que l'on est d'un côté ou de l'autre de la résonance.

Enfin, la formule de l'indice de réfraction quintique (3.56) présente une résonance pour la troisième harmonique. Plus on se rapproche de cette résonance, plus la valeur de  $n_4$  sera importante. Dans le même temps, cette résonance est absente de la formule pour l'indice de réfraction non-linéaire  $n_2$  (3.53).

Nous reviendrons sur ces deux derniers points plus loin dans ce chapitre.

Jusqu'ici nous avons supposé que le champ électrique optique agissant sur l'ensemble des molécules est un champ électrique macroscopique tel qu'il est décrit dans les équations de Maxwell. Cependant, ici nous sommes en présence d'un milieu suffisamment concentré pour que sa constante diélectrique (ou permittivité relative) soit différente de l'unité, il faut tenir compte des corrections dues au champ électrique local.

### 3.2.3 Correction du champ local

Lorsque nous avons établi notre théorie, nous avons fait l'hypothèse que le champ électrique optique agissait sur chaque molécule du disulfure de carbone suivant les équations de Maxwell (1.14), (1.15), (1.16) et (1.17). Ainsi les formules pour les susceptibilités non-linéaires qui en découle ne tiennent compte que des effets de ce champ macroscopique moyen. Or, le champ réel subit par chaque molécule, indépendamment des autres, tient compte du champ local de Lorentz.

Il est connu que la permittivité relative du disulfure de carbone  $\varepsilon_R$  est différente de 1. Dès lors les effets du champ local sont suffisamment importants pour qu'ils deviennent nécessaires de les prendre en compte.

Dans cette partie nous établirons les formules pour les corrections des susceptibilités linéaires, cubiques et quintiques. Tout d'abord nous définirons ce qu'est le champ local de Lorentz, on exposera ensuite l'approximation qui permet d'établir l'équation de ce champ. Ensuite nous résoudrons cette dernière et nous déterminerons les expressions pour

la polarisabilité et les hyperpolarisabilités du troisième et cinquième ordre. Puis nous établirons les relations entre la polarisabilité, les hyperpolarisabilités et la polarisation pour différentes fréquences : fondamentale, troisième harmonique et cinquième harmonique. Pour conclure, on se concentrera sur le cas de la troisième harmonique résonnante.

### Champ local de Lorentz

Considérons un champ électrique macroscopique  $\vec{E}$  interagissant avec un milieu moléculaire d'une densité moléculaire égale à  $N$ .  $\vec{D}$  est le champ d'induction électrique, il est parfois appelé champ de déplacement électrique. Il exprime la tendance qu'a le nuage électronique à se déformer lorsqu'il est soumis à un champ électrique. On définit ce champ d'induction électrique comme

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}. \quad (3.58)$$

La densité de polarisation  $\vec{P}$  représente la densité des moments dipolaires électriques permanents (pré-existant à l'interaction avec le champ électrique macroscopique) et induit dans le milieu.

$$\nabla \cdot \vec{D} = \rho, \quad (3.59)$$

où  $\rho$  est la densité de charge électrique libre de notre milieu.

Il est alors possible de calculer le champ en faisant la moyenne du champ électrique microscopique sur tout l'espace. On supprime ainsi les variations brusques du champ électrique lorsque l'on est proche des électrons ou des noyaux atomiques. Le champ électrique macroscopique est alors défini suivant les contributions externes (terme source de l'équation (3.59)) mais aussi suivant les contributions de chaque molécule du milieu.

Cependant, chaque molécule de ce milieu interagit avec un champ électrique local  $\vec{E}_{loc}$ . Celui-ci correspond au champ électrique localement ressenti par une molécule et qui résulte de l'action de toutes les sources externes et de toutes les molécules du milieu à l'exception de celle considérée. On utilise la méthode de LORENTZ pour calculer le champ local ressenti par une molécule [152]. Cette méthode consiste à considérer une petite sphère centrée sur cette molécule (voir figure 3.3). La sphère a un rayon de grande taille de façon à ce qu'elle contienne une grande quantité de molécules. Soit  $E_1$  le champ électrique ressenti au centre de la sphère produit par les molécules qui sont incluses dans la sphère,

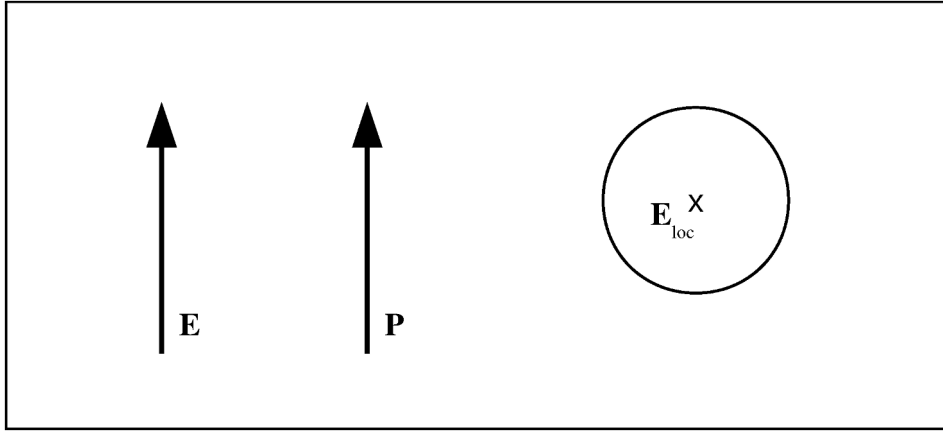


FIGURE 3.3 – Illustration de la méthode développée par LORENTZ pour calculer le champ local [152]. La figure provient du livre de BOYD : "Nonlinear Optics" [98].

à l'exception de la molécule au centre. Ce champ  $E_1$  tend à s'annuler si la sphère est assez grande. On peut justifier qu'il vaut exactement 0 sous certaines hypothèses (le milieu est un gaz). Le champ local est  $E_{loc} = E_1 + E_2$ , où  $E_1$  est le champ dû aux molécules à l'intérieur de la sphère,  $E_2$  est le champ dû aux molécules à l'extérieur de celle-ci. Or  $E_1 = 0$  par conséquent  $E_{loc} = E_2$ . Pour le calcul de  $E_2$ , la sphère étant suffisamment grande on peut traiter le milieu comme un milieu continu. Considérons le potentiel électrique du champ local  $\phi_{loc}$  et le potentiel électrique du champ macroscopique  $\phi$ . À l'extérieur de la sphère la polarisation est constante tandis qu'à l'intérieur de celle-ci la polarisation est nulle. Ainsi le potentiel électrique total aux limites doit être nul, on a alors

$$\phi_{loc} + \phi = 0 \quad (3.60)$$

Il est possible de calculer le potentiel établi sur les conditions aux limites par BORN et WOLF [153]

$$\phi = - \int \left( \vec{P} \cdot \nabla' \frac{1}{\vec{R}} + \frac{1}{cR^2} \vec{R} \cdot \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} \right) dV', \quad (3.61)$$

où le vecteur position est  $R = \sqrt{(x - x')^2 + (y - y')^2 + (z - z')^2}$  avec  $(x, y, z)$  la position du centre de la sphère et  $(x', y', z')$  la position du point sur lequel on intègre. On note  $V'$  le volume de la sphère.  $\nabla'$  est le gradient par rapport à  $(x', y', z')$  :

$$\nabla = \frac{\partial}{\partial x} \vec{e}_x + \frac{\partial}{\partial y} \vec{e}_y + \frac{\partial}{\partial z} \vec{e}_z, \quad (3.62)$$

où  $\vec{e}_x$ ,  $\vec{e}_y$  et  $\vec{e}_z$  sont les vecteurs orthonormés décrivant le repère cartésien.

Puisque la polarisation est constante, non-nulle à la surface et nulle dans la sphère, on réécrit l'équation (5.14) pour le potentiel local

$$\phi = -\phi_{loc} = -\vec{P} \cdot \int \nabla' \frac{1}{R} dV'. \quad (3.63)$$

On a  $\nabla'R = -\nabla R$ . On écrit alors

$$\phi = -\phi_{loc} = \vec{P} \cdot \int \nabla \frac{1}{R} dV' = -\vec{P} \cdot \nabla \phi_0, \quad (3.64)$$

où  $\phi_0 = -\int (dV'/R)$ , cela correspond au potentiel d'une sphère uniformément chargée avec une densité de charge de  $-1$ . Par conséquent, il satisfait l'équation de Poisson

$$\nabla^2 \phi_0 = \frac{1}{\epsilon_0}. \quad (3.65)$$

En considérant les composantes du potentiel, la symétrie du système et en appliquant (3.62) sur (3.64), on obtient

$$-\nabla \phi = \frac{1}{3\epsilon_0} \vec{P}. \quad (3.66)$$

Finalement, si on ajoute le champ macroscopique à l'équation (3.66), on a l'expression du champ local

$$\vec{E}_{loc} = \vec{E} + \frac{\vec{P}}{3\epsilon_0}. \quad (3.67)$$

Revenons maintenant à la densité de polarisation et plus particulièrement aux moments dipolaires électriques. Ceux-ci résultent de l'action de champ électrique sur les molécules. Cette interaction entraîne la déformation des molécules. Cette déformation, induit une différenciation entre le barycentre des charges positives (protons) et celui des charges négatives (électrons). C'est le moment dipolaire induit. Définissons alors le moment dipolaire induit en fonction du champ local  $\vec{E}_{loc}$ , de la polarisabilité  $a$  et des hyperpolarisabilités cubique  $b$  et quintique  $c$

$$\vec{p} = \epsilon_0 \left( a\vec{E}_{loc} + b\vec{E}_{loc}^3 + c\vec{E}_{loc}^5 \right), \quad (3.68)$$

Les coefficients de polarisabilité et d'hyperpolarisabilités cubique et quintique représentent la tendance qu'a la molécule concerné à se déformer.

On suppose que notre milieu, c'est-à-dire le disulfure de carbone liquide, est un milieu ne contenant qu'un seul type de moléculaire densément uniforme. On suppose aussi que les molécules considérés sont suffisamment petites par rapport au système entier. Enfin, on suppose que le système est maintenu à une température constante. Alors, la relation entre la polarisation et les moments dipolaires induits est

$$\vec{P} = N\vec{p}. \quad (3.69)$$

Dans la prochaine section, nous présenterons une résolution de l'équation (3.69) afin d'avoir une expression analytique de la polarisation en fonction de la polarisabilité et des hyperpolarisabilités.

### Polarisation, polarisabilité et hyperpolarisabilités

La résolution de l'équation (3.69), en tenant compte de la relation (3.3)

$$\vec{P} = N\varepsilon_0 \left( a\vec{E}_{loc} + b\vec{E}_{loc}^3 + c\vec{E}_{loc}^5 \right) \quad (3.70)$$

ne présente pas de difficultés. Cependant on traitera chacun des coefficients séparément. Ainsi on résoudra d'abord le cas linéaire ( $a \neq 0$  et  $b, c = 0$ ), puis le cas cubique ( $a, b \neq 0$  et  $c = 0$ ) et enfin le cas quintique ( $a, b, c \neq 0$ ).

**Cas linéaire :** Considérons la définition du champ local  $\vec{E}_{loc}$  (Eq. (3.67)) :

$$\vec{E}_{loc} = \vec{E} + \frac{\vec{P}}{3\varepsilon_0}. \quad (3.71)$$

Supposons que la polarisation ne contienne que le terme proportionnel à  $\vec{E}_{loc}$ .

$$\vec{P} = N\varepsilon_0 a\vec{E}_{loc}. \quad (3.72)$$



L'équation (3.72) est réécrite grâce à l'équation (3.67) :

$$\vec{P} = N\varepsilon_0 a \left( \vec{E} + \frac{\vec{P}}{3\varepsilon_0} \right). \quad (3.73)$$

On résout alors la polarisation en fonction de la polarisabilité :

$$\vec{P} = \frac{-3a\varepsilon_0 N}{aN - 3} \vec{E}. \quad (3.74)$$

**Cas cubique :** Intéressons nous maintenant au cas cubique. C'est-à-dire que l'on considère le "premier" ordre non-linéaire<sup>2</sup>. Cela revient à dire que la molécule est dans une situation "faiblement" non-linéaire. L'expression (3.70) est alors :

$$\vec{P} = N\varepsilon_0 \left( a\vec{E}_{loc} + b\vec{E}_{loc}^3 \right) + O \left( \vec{E}_{loc}^5 \right). \quad (3.75)$$

Il est possible de la réécrire grâce à l'équation (3.67) :

$$\vec{P} = N\varepsilon_0 \left[ a \left( \vec{E} + \frac{\vec{P}}{3\varepsilon_0} \right) + b \left( \vec{E} + \frac{\vec{P}}{3\varepsilon_0} \right)^3 \right] + O \left( \vec{E}^5 \right). \quad (3.76)$$

Si la polarisation est fonction du cube du champ local, il est aussi possible de l'exprimer en fonction du champ électrique macroscopique.

$$\vec{P} = C_1 \vec{E} + C_2 \vec{E}^3 + O \left( \vec{E}^5 \right). \quad (3.77)$$

Ici,  $C_1$  et  $C_2$  sont les coefficients, respectivement, linéaire et cubique. Ils sont fonctions de la polarisabilité et de l'hyperpolarisabilité. En comparant les expressions (3.77) et (3.74), il est évident que

$$C_1 = \frac{-3a\varepsilon_0 N}{aN - 3} \quad (3.78)$$

---

2. En réalité, le premier ordre non-linéaire devrait être l'ordre quadratique. Cependant dans un système centrosymétrique les ordres non-linéaire paires sont nulles.

En exprimant explicitement la polarisation en fonction du champ macroscopique dans l'équation (3.76) et on comparant avec la formule (3.75) il est possible d'écrire :

$$N\varepsilon_0 \left[ a \left( \vec{E} + \frac{C_1 \vec{E} + C_2 \vec{E}^3}{3\varepsilon_0} \right) + b \left( \vec{E} + \frac{C_1 \vec{E} + C_2 \vec{E}^3}{3\varepsilon_0} \right)^3 \right] = C_1 \vec{E} + C_2 \vec{E}^3. \quad (3.79)$$

L'expression (3.79) ne permet pas d'exprimer simplement le coefficient  $C_2$ . On procède à un développement limité de la formule (3.79) à l'ordre 3 et au voisinage de 0, on obtient alors

$$\frac{9\varepsilon_0^2 C_2 (Na - 3) + Nb (C_1 + 3\varepsilon_0)^3}{27\varepsilon_0^2} E^3 + \dots = 0. \quad (3.80)$$

L'expression (3.80) doit s'annuler terme à terme. Par conséquent les termes proportionnels à  $E^3$  doivent être nuls. Alors le coefficient  $C_2$  est égal à :

$$C_2 = \frac{81b\varepsilon_0 N}{(aN - 3)^4}. \quad (3.81)$$

On distingue alors un schéma dans les formules des coefficients relatifs à la polarisabilité et l'hyperpolarisabilité. Ceux-ci sont proportionnelle à  $1/(aN - 3)$ . C'est-à-dire, inversement proportionnel au produit de la polarisabilité  $a$  et de la densité numérique  $N$ . La polarisation peut donc s'écrire :

$$\vec{P} = \frac{-3a\varepsilon_0 N}{aN - 3} \vec{E} + \frac{81b\varepsilon_0 N}{(aN - 3)^4} \vec{E}^3. \quad (3.82)$$

**Cas quintique :** Lorsque l'on est confronté à un champ électrique suffisamment intense, il est important de tenir compte de l'hyperpolarisabilité d'ordre 5. La méthode est peu ou prou la même que dans le cas cubique. Les coefficients  $a$ ,  $b$  et  $c$  de l'expression (3.70) sont supposés non nuls :

$$\vec{P} = N\varepsilon_0 \left( a\vec{E}_{loc} + b\vec{E}_{loc}^3 + c\vec{E}_{loc}^5 \right) + O \left( \vec{E}_{loc}^7 \right). \quad (3.83)$$

Un terme proportionnel à  $\vec{E}^5$  est ajouté à la formule (3.82) :

$$\vec{P} = C_1 \vec{E} + C_2 \vec{E}^3 + C_3 \vec{E}^5 + O \left( \vec{E}^7 \right). \quad (3.84)$$

En important la formule du champ local (3.67) et la formule de la polarisation quintique (3.84) dans l'équation (3.83). On obtient alors l'expression suivante :

$$N\varepsilon_0 \left[ a \left( \vec{E} + \frac{C_1\vec{E} + C_2\vec{E}^3 + C_3\vec{E}^5}{3\varepsilon_0} \right) + b \left( \vec{E} + \frac{C_1\vec{E} + C_2\vec{E}^3 + C_3\vec{E}^5}{3\varepsilon_0} \right)^3 + c \left( \vec{E} + \frac{C_1\vec{E} + C_2\vec{E}^3 + C_3\vec{E}^5}{3\varepsilon_0} \right)^5 \right] + O(\vec{E}_{loc}^7) = C_1\vec{E} + C_2\vec{E}^3 + C_3\vec{E}^5 + O(\vec{E}^7) \quad (3.85)$$

On procède à un développement limité de la formule (3.85) à l'ordre 5 et au voisinage de 0. On peut en déduire une formule pour  $C_3$  :

$$C_3 = \frac{3^7 N^2 \varepsilon_0 b^2}{(aN - 3)^7} + \frac{3^6 N \varepsilon_0 c}{(aN - 3)^6} \quad (3.86)$$

Le schéma semble se confirmer car le coefficient est inversement proportionnel à  $(1 - aN/3)$ . L'expression pour la polarisation en fonction de la polarisabilité et des hyperpolarisabilité d'ordre 3 et 5 est :

$$\vec{P} = \frac{a\varepsilon_0 N}{1 - \frac{aN}{3}} \vec{E} + \frac{b\varepsilon_0 N}{\left(1 - \frac{aN}{3}\right)^4} \vec{E}^3 + \left[ \frac{N\varepsilon_0 c}{\left(1 - \frac{aN}{3}\right)^6} + \frac{N^2 \varepsilon_0 b^2}{\left(1 - \frac{aN}{3}\right)^7} \right] \vec{E}^5. \quad (3.87)$$

On remarque que dans la formule (3.86) que le coefficient  $C_3$  contient deux termes. Le premier est fonction de l'hyperpolarisabilité quintique  $c$ , ce qui n'est pas étonnant puisque  $C_3$  est le coefficient du terme quintique du champ électrique macroscopique, on peut le voir dans l'expression (3.84). Le second terme est en fait deux termes d'hyperpolarisabilités cubique  $b$  en cascade. Les non-linéarités cubiques ont une influence sur les non-linéarités quintiques.

En utilisant l'expression (3.87) nous pouvons exprimer les effets du champ local sur la polarisation. Ces polarisations sont les corrections dues au champ local dont il faut tenir compte. Cependant, il reste encore à déterminer l'expression de la polarisation à différentes fréquences et notamment celles correspondant aux cas étudiés dans le paragraphe précédent.

### 3.2.4 Calcul de la polarisation en fonction de la fréquence

D'après l'expression (3.87), il est possible de calculer la polarisation d'après la fréquence du champ incident, de la polarisabilité et des termes d'hyperpolarisabilités non-linéaire du troisième et cinquième ordre.

Dans cette partie nous allons déterminer l'expression de la polarisation en considérant une onde incidente avec une fréquence arbitraire  $\omega_0$ .<sup>3</sup> La formule pour la polarisation macroscopique (3.87) est valable avec un champ électrique  $E$  et une polarisation  $P$  dépendante du temps et suppose la polarisabilité  $a$  et les hyperpolarisabilités  $b$  et  $c$  indépendantes de la fréquence  $\omega$ . Si  $a$ ,  $b$  et  $c$  dépendent de  $\omega$ , les polarisations définies dans (3.83) et (3.84) sont des polarisations de convolutions. Par conséquent, la formule (3.87) se généralise.

$$P(\omega_0) = P^{(1)}(\omega_0) + P^{(3)}(\omega_0) + P^{(5)}(\omega_0). \quad (3.88)$$

Tout d'abord nous calculerons le terme linéaire de la polarisation, puis celui cubique et enfin le terme quintique pour une fréquence arbitraire. Pour chaque terme, nous calculerons les cas spécifiques d'une fréquence incidente relative à l'effet Kerr ( $\omega$ ), puis à la troisième harmonique  $3\omega$  et enfin à la cinquième harmonique  $5\omega$ . On exprimera alors les susceptibilités. On pourra alors calculer celles-ci en tenant compte des corrections du champ local.

#### Calcul de la composante linéaire de la polarisation

On peut alors calculer la polarisation linéaire pour différentes fréquences particulières. Considérons, tout d'abord une fréquence arbitraire  $\omega$ . D'après les équations (3.87) et (3.88), on peut écrire pour la polarisation linéaire

$$P^{(1)}(\omega) = \frac{N\varepsilon_0 a(\omega)}{A(\omega)} E(\omega), \quad (3.89)$$

avec  $A(\omega_0) = (1 - Na(\omega_0))/3$ .

Revenons à la formule (3.2). Si on ne considère que le cas linéaire en tenant compte des termes de la série de Fourier, comme pour l'équation (3.15), on a alors la relation pour

---

3. Ne pas confondre avec  $\omega_0$  la fréquence de résonance définie plus haut.

une fréquence arbitraire

$$P^{(1)} = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) E(\omega) \exp(-i\omega t) + cc, \quad (3.90)$$

où  $cc$  est le complexe conjugué.

Il est possible de calculer la susceptibilité linéaire avec les relations (3.89) et (3.90). La susceptibilité est alors, pour la fréquence  $\omega$

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{Na(\omega)}{A(\omega)}, \quad (3.91)$$

On notera que cette expression permet d'obtenir celle de la polarisabilité

$$a(\omega) = \frac{\chi^{(1)}(\omega)}{N \left( \frac{1+\chi^{(1)}(\omega)}{3} \right)}. \quad (3.92)$$

On retrouve ici les résultats de Boyd (voir [98]). On notera que l'on a défini une relation identique à (3.91), à la troisième harmonique ( $3\omega$ ) et à la cinquième harmonique ( $5\omega$ ). Il suffit juste de remplacer la fréquence

Procédons de même pour la composante cubique de la polarisation.

### Calcul de la composante cubique de la polarisation

Le terme cubique de la formules (3.87)

$$P^{(3)} = \frac{\varepsilon_0 N b}{\left(1 - \frac{Na}{3}\right)} \mathcal{E}^3. \quad (3.93)$$

On peut alors définir  $\mathcal{E}$  en explicitant le champ électrique  $E$ . Soit du point de vue du temps  $t$

$$b\mathcal{E}^3 = \int \int \int b(t_1, t_2, t_3) E(t_1) E(t_2) E(t_3) dt_1 dt_2 dt_3, \quad (3.94)$$

soit du point de vu de la fréquence spatiale  $\omega$

$$\mathcal{E} = \sum_{\omega_j} E(\omega_j) \exp(-i\omega_j t). \quad (3.95)$$

En utilisant l'expression (3.95) dans celle du terme cubique de la polarisation (3.93), on obtient

$$P^{(3)}(\omega_0) = \left\{ \begin{array}{l} \sum_{(\omega_1, \omega_2, \omega_3)} \\ (\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3) \end{array} \frac{N\varepsilon_0 b(\omega_0; \omega_1, \omega_2, \omega_3)}{\prod_{j=0}^3 A(\omega_j)} \prod_{j=1}^3 E(\omega_j) \exp(-i\omega_j t), \quad (3.96) \right.$$

où  $\omega_1, \omega_2$  et  $\omega_3$  sont des fréquences arbitraires et  $A(\omega) = (1 - Na(\omega)/3)$ .

La fréquence  $\omega$  est celle du laser monochromatique à laquelle est exposée le milieu. Ainsi le champ électrique macroscopique peut prendre deux valeurs  $E(\omega)$  et  $E^*(\omega)$ . On notera que  $E^*(\omega) = E(-\omega)$ .

La polarisation est, à la fréquence  $\omega$

$$P^{(3)}(\omega) = \frac{3N\varepsilon_0 b(\omega; \omega, \omega, -\omega)}{(A(\omega))^2 A(-\omega)} (E(\omega))^2 E^*(\omega), \quad (3.97)$$

et à la fréquence  $3\omega$

$$P^{(3)}(3\omega) = \frac{N\varepsilon_0 b(3\omega; \omega, \omega, \omega)}{(A(\omega))^3} (E(\omega))^3. \quad (3.98)$$

Il n'existe pas de terme cubique de la polarisation pour la cinquième harmonique. Pour cela il faudra un laser délivrant une autre fréquence, par exemple  $3\omega$ .

On calcule la correction dû aux champ local pour les hyperpolarisabilités du troisième ordre à la fréquence  $\omega$  et à la troisième harmonique  $3\omega$ . On a pour la fréquence  $\omega$

$$\chi^{(3)}(\omega) = \frac{Nb(\omega; \omega, \omega, -\omega)}{(A(\omega))^2 A(-\omega)} \quad (3.99)$$

et pour la troisième harmonique

$$\chi^{(3)}(3\omega) = \frac{Nb(3\omega; \omega, \omega, \omega)}{(A(\omega))^3}. \quad (3.100)$$

Il est nécessaire de prendre en compte la fonction  $A(\omega)$  ( $A(\omega)$ ) relative à la polarisabilité linéaire  $a(\omega)$  ( $a(-\omega)$ ). Ainsi on aura les valeurs des susceptibilités non-linéaires du troisième ordre qui tiennent compte des effets du champ local.

Intéressons nous maintenant à la polarisation non-linéaire du cinquième ordre.

### Calcul de la composante quintique de la polarisation

Les termes quintiques de la polarisation sont définis dans l'expression (3.87)

$$P^{(5)} = \left[ \frac{N\varepsilon_0 c}{\left(1 - \frac{aN}{3}\right)^6} + \frac{N^2\varepsilon_0 b^2}{\left(1 - \frac{aN}{3}\right)^7} \right] \mathcal{E}^5. \quad (3.101)$$

D'après la définition de  $\mathcal{E}$  (3.95), il est possible de réécrire l'expression (3.101)

$$P^{(5)} = P^{(5)}(\omega) \exp(-i\omega t) + P^{(5)}(3\omega) \exp(-3i\omega t) + P^{(5)}(5\omega) \exp(-5i\omega t) + cc. \quad (3.102)$$

La polarisation suivant la fréquence fondamentale est définie

$$P^{(5)}(\omega) = P_Q^{(5)}(\omega) + P_C^{(5)}(\omega), \quad (3.103)$$

où l'on a posé

$$P_Q^{(5)}(\omega) = \sum_{\left\{ \begin{array}{l} (\omega_1, \omega_2, \omega_3, \omega_4, \omega_5) \\ (\omega = \sum_{j=1}^5 \omega_j) \end{array} \right.} \frac{N\varepsilon_0 c(\omega; \omega_1, \omega_2, \omega_3, \omega_4, \omega_5)}{A(\omega) \prod_{j=1}^5 A(\omega_j)} \prod_{j=1}^5 E(\omega_j), \quad (3.104)$$

et

$$P_C^{(5)}(\omega) = \sum_{\left\{ \begin{array}{l} (\omega_1, \omega_2, \omega_3) \\ (\omega = \sum_{j=1}^3 \omega_j) \end{array} \right.} \frac{N^2\varepsilon_0 b(\omega; \omega_1, \omega_2, \omega_3)}{A(\omega) \prod_{j=1}^3 A(\omega_j)} \prod_{j=1}^2 E(\omega_j) + \sum_{\left\{ \begin{array}{l} (\omega_4, \omega_5, \omega_6) \\ (\omega_3 = \sum_{j=4}^6 \omega_j) \end{array} \right.} \frac{b(\omega_3; \omega_4, \omega_5, \omega_6)}{\prod_{j=3}^6 A(\omega_j)} \prod_{j=4}^6 E(\omega_j). \quad (3.105)$$

$\omega_1, \omega_2, \omega_3, \omega_4, \omega_5$  et  $\omega_6$  sont de fréquences arbitraires, obéissant aux conditions définies dans les sommes. En remplaçant  $\omega$  par la troisième harmonique  $3\omega$  ou à la cinquième harmonique  $5\omega$ , on peut obtenir les expressions pour la polarisation à ces fréquences.

On remarque que la composante quintique est composée de deux parties :

- $P_Q^{(5)}(\omega)$  est proportionnelle à l'hyperpolarisabilité du cinquième ordre  $c$ .
- $P_C^{(5)}(\omega)$  est proportionnelle à un produit de deux termes d'hyperpolarisabilités du

troisième ordre  $b$ . On parle de termes d'hyperpolarisabilités en cascade.

En calculant directement le paragraphe  $P_Q^{(5)}(\omega_0)$  grâce à la formule (3.104). L'autre partie,  $P_C^{(5)}(\omega_0)$ , possède deux sommes. De plus ces deux sommes sont liées. En effet l'une d'entre elle s'effectue sur  $\omega_4$ ,  $\omega_5$  et  $\omega_6$  et permet de définir  $\omega_3$

$$\omega_3 = \omega_4 + \omega_5 + \omega_6. \quad (3.106)$$

La fréquence  $\omega_3$  est aussi présente dans l'autre somme

$$\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3. \quad (3.107)$$

Il est possible de réécrire la somme (3.107) grâce à la somme (3.106). On remplace alors  $\omega_3$  par son expression explicite, on a

$$\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_4 + \omega_5 + \omega_6. \quad (3.108)$$

Si la fréquence  $\omega_3$  est aussi remplacé par son expression dans les termes d'hyperpolarisabilités d'ordre 3 de la formule (3.105). On la réécrit

$$P_C^{(5)}(\omega) = \sum_{\left\{ \begin{array}{l} (\omega_1, \omega_2, \omega_4, \omega_5, \omega_6) \\ (\omega = \omega_1 + \omega_2 + \omega_4 + \omega_5 + \omega_6) \end{array} \right.} \frac{N^2 \varepsilon_0 b(\omega; \omega_1, \omega_2, \omega_4 + \omega_5 + \omega_6)}{A(\omega) \prod_{j=1}^2 A(\omega_j)} \prod_{j=1}^2 E(\omega_j) \\ \frac{b(\omega_4 + \omega_5 + \omega_6; \omega_4, \omega_5, \omega_6)}{A(\omega_4 + \omega_5 + \omega_6) \prod_{j=4}^6 A(\omega_j)} \prod_{j=4}^6 E(\omega_j). \quad (3.109)$$

$\omega_3$  n'apparaît plus dans la formule (3.109). Afin d'avoir une expression plus simple, on décide de remplacer les indices 4, 5 et 6, respectivement, par 3, 4 et 5. La formule (3.109) s'écrit alors

$$P_C^{(5)}(\omega) = \sum_{\left\{ \begin{array}{l} (\omega_1, \omega_2, \omega_3, \omega_4, \omega_5) \\ (\omega = \sum_{j=1}^5 \omega_j) \end{array} \right.} \frac{N^2 \varepsilon_0 b(\omega_0; \omega_1, \omega_2, \omega_3 + \omega_4 + \omega_5) b(\omega_3 + \omega_4 + \omega_5, \omega_3, \omega_4, \omega_5)}{A(\omega_3 + \omega_4 + \omega_5) A(\omega) \prod_{j=1}^5 A(\omega_j)} \\ \prod_{j=1}^5 E(\omega_j). \quad (3.110)$$



Le terme quintique de la polarisation peut être calculer pour différentes fréquences en ajoutant le résultat du terme lié à l'hyperpolarisabilité quintique (3.104) et celui lié à la cascade des hyperpolarisabilités cubiques (3.110). Ce second terme nécessite de prendre en compte différentes possibilités pouvant faire intervenir la génération de la troisième harmonique.

Ainsi le terme quintique de la polarisation pour une fréquence  $\omega$ , c'est-à-dire le terme lié à l'effet Kerr, on a

$$\begin{aligned}
 P^{(5)}(\omega) = & \left[ \frac{10N\varepsilon_0 c(\omega; \omega, \omega, \omega, -\omega, -\omega)}{(A(\omega))^4 (A(-\omega))^2} \right. \\
 & + \frac{3N^2\varepsilon_0 b(\omega; \omega, \omega, -\omega) b(-\omega, \omega, -\omega, -\omega)}{(A(\omega))^4 (A(-\omega))^3} \\
 & + \frac{6N^2\varepsilon_0 b(\omega; \omega, -\omega, \omega) b(\omega, \omega, \omega, -\omega)}{(A(\omega))^5 (A(-\omega))^2} \\
 & \left. + \frac{N^2\varepsilon_0 b(\omega; -\omega, -\omega, 3\omega) b(3\omega, \omega, \omega, \omega)}{A(3\omega) (A(\omega))^4 (A(-\omega))^2} \right] \\
 & (E(\omega))^3 (E(-\omega))^2, \tag{3.111}
 \end{aligned}$$

où  $A(\omega) = 1 - Na(\omega)/3$ . On remarque qu'il y a trois choix d'hyperpolarisabilités en cascades pour  $P_C^{(5)}(\omega)$ .

Le premier choix est  $\omega_3 + \omega_4 + \omega_5 = -\omega$  et  $\omega_1 + \omega_2 - \omega = \omega$ . On aura donc 2 fréquences égales à  $-\omega$  parmi 3 fréquences ( $\omega_3, \omega_4$  et  $\omega_5$ ), d'après le triangle de Pascal le coefficient est égal à 3. Cependant, il n'y a qu'une seule combinaison valable telle que  $\omega_1 + \omega_2 - \omega = \omega$ , c'est-à-dire  $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ . Donc au total, on a 3 combinaisons possible pour ce cas.

La seconde est avec  $\omega_3 + \omega_4 + \omega_5 = \omega$  et  $\omega_1 + \omega_2 + \omega = \omega$ . Il existe 3 combinaisons de fréquences possibles pour  $\omega_3, \omega_4$  et  $\omega_5$ . Et il y a 2 combinaisons de fréquences possibles pour  $\omega_1$  et  $\omega_2$ . Soit un total de 6 combinaisons possibles.

Enfin la dernière est avec  $\omega_3 + \omega_4 + \omega_5 = 3\omega$  et  $\omega_1 + \omega_2 + 3\omega = \omega$ . Cette dernière possibilité fait intervenir la troisième harmonique  $3\omega$ . Il n'existe qu'une seule combinaison de fréquences possible que ce soit pour  $\omega_3, \omega_4$  et  $\omega_5$  ou  $\omega_1, \omega_2$ .

Si on ajoute le nombre de combinaisons possibles pour les trois choix possibles on arrive à un total de 10. C'est exactement le nombre de combinaisons possibles que pour le terme relatif à l'hyperpolarisabilité quintique  $P_Q^{(5)}(\omega)$ . Puisque dans ce cas on a 3 fréquences égales à  $\omega$  parmi 5 choix  $\omega_1, \omega_2, \omega_3, \omega_4$  et  $\omega_5$ . D'après le triangle de Pascal, le coefficient

est égal à 10.

Enfin on remarquera que sur l'apport des termes d'hyperpolarisabilités d'ordre 3 au terme quintique de la polarisation pour une fréquence  $\omega$ , 10 % proviennent d'un effet cascade lié à la fréquence  $3\omega$ , 30 % proviennent d'un effet cascade lié à la fréquence  $-\omega$  et 60 % proviennent d'un effet cascade lié à la fréquence  $\omega$ .

Maintenant on calcule le terme quintique de la polarisation pour la troisième harmonique

$$\begin{aligned}
 P^{(5)}(3\omega) = & \left[ \frac{5N\varepsilon_0 c(3\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, -\omega)}{(A(\omega))^5 A(-\omega)} \right. \\
 & + \frac{3N^2\varepsilon_0 b(3\omega; \omega, \omega, \omega) b(\omega, \omega, \omega, -\omega)}{(A(\omega))^5 A(-\omega) A(3\omega)} \\
 & \left. + \frac{2N^2\varepsilon_0 b(3\omega; \omega, -\omega, 3\omega) b(3\omega, \omega, \omega, \omega)}{(A(3\omega))^2 (A(\omega))^4 A(-\omega)} \right] \\
 & (E(\omega))^4 E(-\omega). \tag{3.112}
 \end{aligned}$$

Ici il n'y a que 5 choix possibles pour que les hyperpolarisabilités en cascade conduisent à la troisième harmonique.

Le premier choix est  $\omega_3 + \omega_4 + \omega_5 = \omega$  et  $\omega_1 + \omega_2 + \omega = 3\omega$ . On aura donc 2 fréquences égales à  $\omega$  parmi 3 fréquences ( $\omega_3, \omega_4$  et  $\omega_5$ ) soit 3 combinaisons possibles. Il n'y a qu'une seule combinaison valable telle que  $\omega_1 + \omega_2 + \omega = 3\omega$ . Donc au total il y a 3 combinaisons.

La seconde est avec  $\omega_3 + \omega_4 + \omega_5 = 3\omega$  et  $\omega_1 + \omega_2 + 3\omega = 3\omega$ . Il existe une combinaison de fréquences possibles pour  $\omega_3, \omega_4$  et  $\omega_5$  et 2 combinaisons de fréquences possibles pour  $\omega_1$  et  $\omega_2$ . Soit un total de 2 combinaisons possibles.

Il y aura donc 20 % du terme quintique de la polarisation à la troisième harmonique qui sera dû aux termes d'hyperpolarisabilités en cascade à la fréquence  $3\omega$  et 30 %.

Enfin, il reste à calculer le terme quintique de la polarisation pour la cinquième harmonique

$$\begin{aligned}
 P^{(5)}(5\omega) = & \left[ \frac{N\varepsilon_0 c(5\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, \omega)}{(A(\omega))^6} \right. \\
 & \left. + \frac{N^2\varepsilon_0 b(5\omega; \omega, \omega, 3\omega) b(3\omega, \omega, \omega, \omega)}{(A(\omega))^5 A(3\omega) A(5\omega)} \right] \\
 & (E(\omega))^5. \tag{3.113}
 \end{aligned}$$

Calculons maintenant les susceptibilités quintiques en comparant les équations (3.111), (3.112), (3.113) et (3.35). On a alors pour la fréquence  $\omega$

$$\begin{aligned} \chi^{(5)}(\omega) = & \frac{Nc(\omega; \omega, \omega, \omega, -\omega, -\omega)}{(A(\omega))^4 (A(-\omega))^2} \\ & + \frac{3N^2b(\omega; \omega, \omega, -\omega) b(-\omega, \omega, -\omega, -\omega)}{10(A(\omega))^4 (A(-\omega))^3} \\ & + \frac{6N^2b(\omega; \omega, -\omega, \omega) b(\omega, \omega, \omega, -\omega)}{10(A(\omega))^5 (A(-\omega))^2} \\ & + \frac{N^2b(\omega; -\omega, -\omega, 3\omega) b(3\omega, \omega, \omega, \omega)}{10A(3\omega) (A(\omega))^4 (A(-\omega))^2}, \end{aligned} \quad (3.114)$$

pour la fréquence  $3\omega$

$$\begin{aligned} \chi^{(5)}(3\omega) = & \frac{Nc(3\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, -\omega)}{(A(\omega))^5 A(-\omega)} \\ & + \frac{3N^2b(3\omega; \omega, \omega, \omega) b(\omega, \omega, \omega, -\omega)}{5(A(\omega))^5 A(-\omega) A(3\omega)} \\ & + \frac{2N^2b(3\omega; \omega, -\omega, 3\omega) b(3\omega, \omega, \omega, \omega)}{5(A(3\omega))^2 (A(\omega))^4 A(-\omega)} \end{aligned} \quad (3.115)$$

et enfin pour la fréquence  $5\omega$

$$\begin{aligned} \chi^{(5)}(5\omega) = & \frac{Nc(5\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, \omega)}{(A(\omega))^6} \\ & + \frac{N^2b(5\omega; \omega, \omega, 3\omega) b(3\omega, \omega, \omega, \omega)}{(A(\omega))^5 A(3\omega) A(5\omega)}. \end{aligned} \quad (3.116)$$

Les formules (3.114), (3.115) et (3.116) pour les susceptibilités quintiques tiennent compte des corrections du champ local. Ainsi on peut déterminer n'importe laquelle des susceptibilités linéaires et non-linéaires dès l'instant que l'on connaît le polarisabilité  $a$  et les termes d'hyperpolarisabilités cubique  $b$  et quintique  $c$ .

Dans le paragraphe suivante, nous reviendrons aux résultats établis dans le paragraphe 3.2.2 et nous tiendrons en compte les corrections du champ local que nous venons d'établir.

### 3.2.5 Cas particulier de la troisième harmonique résonnante

Dans le paragraphe 3.2.2, nous avons établi les hypothèses liés à nos conditions expérimentales. Ainsi on utilisé un laser monochromatique de régime picoseconde. La longueur

d'onde du faisceau est soit  $\lambda = 532 \text{ nm}$  soit  $\lambda = 1064 \text{ nm}$ . Dans ces conditions la troisième harmonique est résonnante (voir figure (3.1)) tandis que la fondamentale ne l'est pas. Par conséquent  $a_i(\omega)$  est nulle et le milieu ne présente pas d'absorption linéaire à cette fréquence.

Intéressons nous à la correction du terme quintique à la fréquence fondamentale (3.114). On néglige les termes en dehors de la résonance et on ne conserve que les termes résonnants, on obtient

$$\begin{aligned} \chi^{(5)}(\omega) &= \frac{Nc(\omega; \omega, \omega, \omega, -\omega, -\omega)}{(A(\omega))^4 (A(-\omega))^2} \\ &+ \frac{N^2 b(\omega; -\omega, -\omega, 3\omega) b(3\omega, \omega, \omega, \omega)}{10A(3\omega) (A(\omega))^4 (A(-\omega))^2}. \end{aligned} \quad (3.117)$$

Comme nous l'avons indiqué précédemment, l'absorption linéaire est nulle à la fréquence  $\omega$ . Par conséquent  $\chi^{(1)}(\omega)$  est réel. On se permettra de rappeler que la relation entre la polarisabilité et la susceptibilité linéaire, avec correction du champ local, est

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{Na(\omega)}{1 + \frac{Na(\omega)}{3}}. \quad (3.118)$$

La polarisabilité à la fréquence fondamentale est donc aussi réelle. On peut donc établir que  $a(\omega) = a(-\omega)$ . Le coefficient  $A(\omega) = 1 - Na(\omega)/3$  ne dépendant que de la polarisabilité, est donc lui aussi réel. En réécrivant dans l'expression (3.117) que  $A(\omega) = A(-\omega)$ , on a

$$\begin{aligned} \chi^{(5)}(\omega) &= \frac{Nc(\omega; \omega, \omega, \omega, -\omega, -\omega)}{(A(\omega))^6} \\ &+ \frac{N^2 b(\omega; -\omega, -\omega, 3\omega) b(3\omega, \omega, \omega, \omega)}{10A(3\omega) (A(\omega))^6}. \end{aligned} \quad (3.119)$$

Nous cherchons à savoir si la correction de la susceptibilité non-linéaire du cinquième ordre par le champ local par le terme d'hyperpolarisabilité quintique est plus importante que celle des termes d'hyperpolarisabilités cubiques en cascades. Comparons le rapport

entre ces deux termes. On note  $R$  le rapport

$$R = \frac{\frac{Nc(\omega; \omega, \omega, \omega, -\omega, -\omega)}{(A(\omega))^6}}{\frac{N^2b(\omega; -\omega, -\omega, 3\omega)b(3\omega, \omega, \omega, \omega)}{10A(3\omega)(A(\omega))^6}} = \frac{10A(3\omega)c(\omega; \omega, \omega, \omega, -\omega, -\omega)}{Nb(\omega; -\omega, -\omega, 3\omega)b(3\omega, \omega, \omega, \omega)}. \quad (3.120)$$

En utilisant l'expression de l'hyperpolarisabilité cubique (3.51) et l'expression de l'hyperpolarisabilité quintique (3.52) que nous avons établi dans le paragraphe 3.2.2, on peut écrire

$$\frac{c(\omega; \omega, \omega, \omega, -\omega, -\omega)}{b(\omega; -\omega, -\omega, 3\omega)b(3\omega, \omega, \omega, \omega)} = \frac{3}{10a(\omega)}. \quad (3.121)$$

En utilisant l'expression (3.121) dans l'expression (3.120), on obtient

$$R = \frac{3A(3\omega)}{Na(\omega)}. \quad (3.122)$$

En remplaçant  $A(3\omega)$  par son expression, on a

$$R = \frac{3 - Na(3\omega)}{Na(\omega)}. \quad (3.123)$$

Intéressons nous en premier au numérateur. Puisque  $a(\omega)$  est non résonnant, on peut utiliser la relation standard entre l'indice de réfraction  $n$  et la polarisabilité

$$n_0^2 = 1 + Na(\omega). \quad (3.124)$$

On notera que la relation (3.124) néglige la correction du champ local et n'est valable que pour la fréquence fondamentale. Par ailleurs les mesures de l'indice de réfraction se font toujours en dehors de la résonance. En réécrivant la relation (3.124), on obtient

$$Na(\omega) = \frac{n_0^2 - 1}{\frac{2}{3} + \frac{n_0^2}{3}}. \quad (3.125)$$

On peut tracer la courbe d'évolution de  $Na(\omega)$  en fonction de  $n_0$  (voir 3.4).

Supposons que le milieu soit très dilué, c'est-à-dire que  $N$  est très faible. De plus l'indice de réfraction sera  $n_0 \simeq 1$ . D'après la relation (3.125) et la figure 3.4,  $Na(\omega) \ll 1$ .

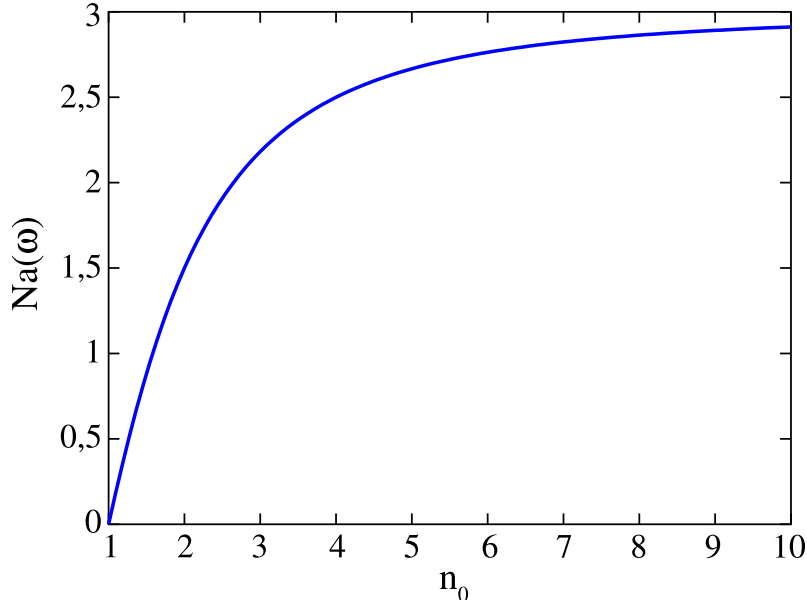


FIGURE 3.4 – Courbe d'évolution de  $Na(\omega)$  en fonction  $n_0$  suivant la relation (3.125).

En important ce résultat dans la relation (3.123), on établit que  $R \gg 1$ . On notera que ce résultat est valable tant que  $Na(3\omega) \neq 3$ . Ceci est assez peu probable.

Si on suppose maintenant que le milieu est dense, c'est-à-dire que  $N$  est grand. Un liquide suffisamment dense avec une bande de transmission comprise dans le visible a un indice de réfraction  $1.3 \leq n_0 \leq 2.5$ . D'après la relation (3.125) et la figure 3.4,  $0.6 \leq Na(\omega) \leq 1.9$ . Par conséquent  $Na(\omega)$  est de l'ordre de 1. Cependant  $a(3\omega)$  est résonant, et donc  $a(3\omega) \gg a(\omega)$ . On peut donc établir que  $Na(3\omega) \gg 1$ . En utilisant ces résultats dans la formule (3.123), on peut écrire

$$|R| = \left| \frac{Na(3\omega)}{\sim 1} \right| \gg 1. \quad (3.126)$$

On remarque que peu importe que le milieu soit dilué ou dense, le rapport entre le terme d'hyperpolarisabilité quintique et les termes d'hyperpolarisabilités cubiques en cascades est toujours très grand devant 1. Par conséquent, la correction apportée par les termes d'hyperpolarisabilités cubiques en cascades sur la susceptibilité non-linéaire du cinquième ordre est toujours inférieure à celle du terme d'hyperpolarisabilité quintique. Il n'est pas nécessaire de prendre en compte les termes d'hyperpolarisabilités cubiques.

Nous allons maintenant mettre à l'épreuve nos prédictions théoriques en procédant à la mesure de l'absorption à trois photons et l'indice de réfraction quintique du disulfure

de carbone. Nous présenterons tout d'abord les nouvelles méthodes de mesures que nous allons utiliser.

### 3.3 Absorption à trois photons

Dans cette partie nous mesurerons l'absorption à trois photons du disulfure de carbone à  $\lambda = 532$  nm et  $\lambda = 1064$  nm. Nous présenterons tout d'abord la méthode de mesure expérimentale utilisée ainsi que l'analyse numérique. Puis nous discuterons les résultats obtenues tout d'abord à  $\lambda = 532$  nm puis à  $\lambda = 1064$  nm.

#### 3.3.1 Méthode expérimentales

La source laser utilisée est un laser Nd :YAG délivrant une impulsion linéairement polarisée en régime picoseconde à  $\lambda = 532$  nm (12 ps) et  $\lambda = 1064$  nm (17 ps) avec un taux de répétition inférieur à 1 Hz. Ainsi on évite les effets thermiques qui influenceraient les mesures.

Les données expérimentales ont été obtenues par la méthode d'Open-aperture Z-scan [23]. Nous avons présenté cette méthode en détail dans le chapitre 2.2. Pour rappel, cette méthode consiste à faire se déplacer un échantillon suivant l'axe de propagation  $z$ . En amont de l'échantillon se trouve une lentille convergente, ainsi l'échantillon se déplace autour du plan focal de la lentille. L'ensemble du signal optique est récupéré sur un capteur, dans notre cas une caméra à dispositif de transfert de charge. On utilisera l'abréviation anglaise, plus courante, c'est-à-dire caméra CCD. Aucun filtre spatial n'est placé devant la caméra, contrairement au Closed-aperture Z-scan permettant de mesurer l'indice de réfraction non-linéaire. On commence le balayage loin du plan focal, ainsi les effets non-linéaires de l'échantillon sont négligeables. Plus on se rapproche du plan focal, plus l'intensité du faisceau à l'entrée des matériaux est importante. Ainsi les effets non-linéaires de l'échantillon sont intenses et modifient le front d'onde du faisceau. Enfin l'échantillon s'éloigne du plan focal et les effets non-linéaires sont de nouveau négligeables.

Pour mesurer l'absorption non-linéaire on intègre le flux lumineux sur l'ensemble du capteur. On peut alors faire correspondre une courbe théorique à la courbe expérimentale. La courbe théorique est obtenue grâce à une fonction tenant compte de l'absorption

linéaire et/ou de l'absorption non-linéaire cubique.

Cette méthode présente l'avantage d'être très sensible, il est même possible de détecter de faible réponse non-linéaire. La sensibilité du système original développé par M. SHEIK-BAHAË et al. est de  $\lambda/300$  [23].

Cependant nous utilisons une version modifiée puisque le montage comporte un système imageur  $4f$  (voir chapitre 2.3 et figure 3.5) au bout duquel se trouve une caméra CCD refroidie ( $-30^\circ\text{C}$ ). L'ajout de ce système améliore la sensibilité ainsi que le rapport signal-sur-bruit. Il est possible de mesurer les non-linéarités induisant une distorsion de phase de  $\lambda/1000$  [111]. Soit une résolution 3 fois supérieures à celle du Z-scan classique.

Un autre avantage du système imageur  $4f$  est que la propagation du faisceau peut être décrite analytiquement en utilisant l'optique de Fourier [108, 111]. On peut alors calculer numériquement la propagation d'un faisceau depuis le plan objet de la lentille  $L_1$  jusqu'au plan image du système. La procédure numérique est rapide du fait de l'utilisation des transformées de Fourier rapide. Les distances focales des lentilles  $L_1$  et  $L_2$  est de 20 cm.

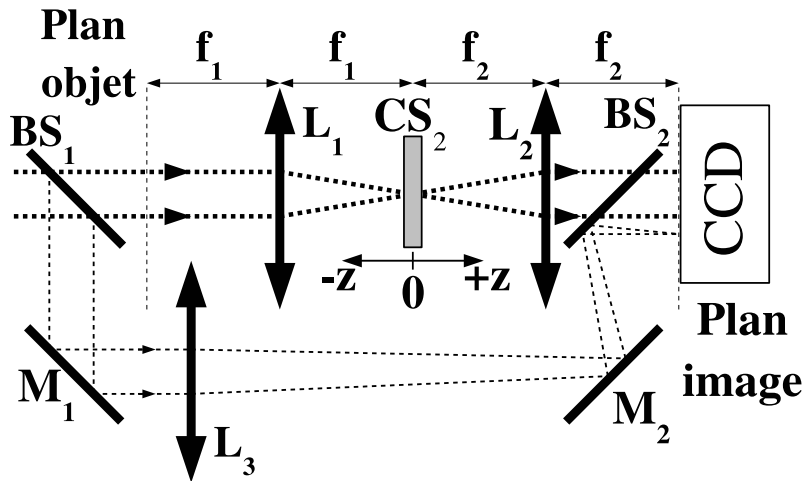


FIGURE 3.5 – Schéma de montage Z-scan utilisé pour faire les mesures des non-linéarités du troisième et du cinquième ordre de la cuve remplie de  $\text{CS}_2$ . Il est composé de :  $\text{BS}_1$  et  $\text{BS}_2$ , deux séparatrices ;  $\text{M}_1$  et  $\text{M}_2$ , deux miroirs ;  $L_1$  jusqu'à  $L_3$ , trois lentilles avec des distances focales de  $f_1$  à  $f_3$  ; et une caméra CCD pour caractériser le signal en sortie. L'application de filtre numérique permet de passer d'une méthode de mesure à l'autre : open-aperture Z-scan (OA), closed-aperture Z-scan (CA) ou  $D4\sigma$ -Z-scan ( $D4\sigma$ ).

On notera que dans la figure 3.5, le second bras est utilisé comme bras de référence. Ainsi on peut suivre les fluctuations du laser et les corriger lors du traitements de données. Ce système consiste en l'ajout d'une seconde lentille convergente en aval de la zone de balayage. Cependant, la seconde lentille est placée telle que le plan focal de cette dernière



coïncide avec la plan focal de la première lentille. Ainsi il est possible de caractériser un objet placé au plan objet de la première lentille si la caméra CCD est placée dans le plan image de la seconde lentille.

La caméra CCD est refroidie à  $-30^{\circ}\text{C}$  et la taille de la matrice est de  $1000 \times 1018$  pixels de taille  $12 \times 12\mu\text{m}^2$ . Les informations obtenues par cette dernière sont des images du faisceau en sortie dans le plan image. On a l'intensité lumineuse qui est définie pour chacun des pixels. De plus l'information est codée sur 12 bits, chaque pixel peut donc prendre une valeur de niveau de gris entre 0 et 4095.

Pour chaque mesure, deux balayages Z-scans sont nécessaires. Le premier est fait en régime linéaire pour caractériser l'état de surface d'un échantillon avec une qualité optique médiocre. Le second est fait en régime non-linéaire, il permet de mesurer les caractéristiques non-linéaires. On utilisera les données acquises durant le premier balayage pour corriger les effets de diffraction, diffusion et/ou les imperfections du milieu des effets non-linéaires. Pour faire varier l'intensité à l'entrée de la cuve  $I_0$  on utilise une lame demi-onde et un prisme de Glan.

Une image du bruit électronique de la caméra CCD est prise. Il suffit d'enregistrer une image sans qu'elle soit exposée à un quelconque rayonnement laser. On retranchera les valeurs de niveau de gris de ce bruit à chacune des images prises par la suite.

On notera que l'on contrôle l'énergie incidente des impulsions lasers à l'aide d'un joulemètre. Le joulemètre est calibrée et donne une valeur de l'énergie avec une précision de 10 %. C'est cette valeur qui nous donne l'intensité à l'entrée du montage en tenant compte de l'objet optique, de la focale de la lentille  $L_1$  et de la longueur d'onde considérée.

Une fois les données expérimentales obtenues, il reste à les traiter numériquement.

### **3.3.2 Traitement numérique des données expérimentales : open aperture Z-scan**

Savoir retirer la substance de résultats expérimentaux est une étape importante. Pour cela on fait appelle à l'outil informatique. Il est alors possible d'utiliser divers langage de programmation pour accomplir cette tâche. Nous avons fait le choix d'utiliser le langage de programmation MATLAB. Ce dernier est un langage de quatrième génération

c'est-à-dire avec une syntaxe simple. De plus il dispose de son propre environnement de développement. Il permet de manipuler facilement des matrices. Or nous allons traiter des images prises par une caméra, c'est-à-dire une matrice de valeurs correspondant au niveau de gris relevé par la caméra.

La première étape consiste à acquérir les données de la caméra sur l'ordinateur. Tout d'abord, nous considérons les données obtenues lors du balayage en régime non-linéaire. Le programme peut ensuite convertir les valeurs de niveau de gris en unité de l'intensité  $W/m^2$  dans le plan focal de la première lentille. Nous procédons à des mesures absolues pour lesquelles il n'est pas nécessaire de procéder à un calibrage de l'intensité en utilisant un matériau aux non-linéarités connues (par exemple le disulfure de carbone ou le quartz) [37]. On corrige ensuite les variations d'énergies du laser entre chaque tir grâce aux données du second bras (voir figure 3.5). On détermine le centre de gravité de chacune des images. Puis on moyenne la valeur de l'intensité sur une zone d'une dizaine de pixels de rayons afin de réduire les variations trop importantes. Cette étape est faite pour chacune des images. On a un nuage de point décrivant l'évolution de l'intensité  $I$  en sortie de cuve en fonction de la position de la cuve  $z$ . Nous avons choisi de définir la position de la cuve de la façon suivante :

- $z = 0$ , la cuve se trouve au plan focal.
- $z < 0$ , la cuve se trouve entre le plan focal et la lentille  $L_1$ , par usage on dira que la cuve se situe dans la position pré-focale.
- $z > 0$ , la cuve se trouve entre le plan focal et la lentille  $L_2$ , par usage on dira que la cuve se situe dans la position post-focale.

Lorsque que l'on divise chaque point du nuage par la valeur de l'énergie à l'entrée de la cuve déduite de la référence (lentille  $L_3$ ) on a alors la transmission  $T$  en fonction de la position de la cuve  $z$ . On améliore le nuage de point en utilisant les données du balayage en régime linéaire. On leur fait subir le même processus que celui décrit pour les données en régime non-linéaire. On retranche point par point les données de la transmission linéaire à ceux de la transmission non-linéaire. Ainsi les nouveaux points ne tiennent pas compte des effets linéaires liés à l'inhomogénéité du milieu. Enfin on normalise les points par rapport aux valeurs de la transmission non-linéaire lorsque la cuve est loin du plan

focal (indifféremment avant ou après le plan focal). La transmission sera donc égale à 1 lorsque  $z \gg 0$  où  $z \ll 0$ . Les points décrivent une courbe qui contient l'information que nous recherchons : la valeur de l'absorption non-linéaire. Nous devons donc ajuster les points expérimentaux grâce à une courbe théorique décrivant la transmission en fonction de la position de la cuve avec pour paramètres d'ajustements l'absorption linéaire  $\alpha$ , l'absorption à deux photons  $\beta$  et l'absorption à trois photons  $\gamma$ .

Puisque nous utilisons un système imageur 4f, il est très simple de calculer numériquement la propagation d'un objet défini au plan objet de la lentille  $L_1$ . En effet, l'ensemble des étapes peuvent être traitées en utilisant l'optique de Fourier [108]. Pour un objet donné, les étapes sont les suivantes

- du plan objet à la face d'entrée de la lentille  $L_1$ , on applique sur l'objet une fonction de transfert de propagation dans l'espace libre à distance finie. Celle-ci est la distance séparant le plan objet à la face d'entrée de la lentille  $L_1$ .
- de la face d'entrée à la face de sortie de la lentille  $L_1$ , considérée mince, on applique une transformation de la phase sur le champ diffracté due à l'épaisseur de la lentille définissant la focale de celle-ci
- de la face de sortie de la lentille  $L_1$  à la face d'entrée de la cuve, on applique sur le champ une fonction de transfert de propagation dans l'espace libre à distance finie. Celle-ci est la distance séparant la face de sortie de la lentille  $L_1$  à l'entrée de la cuve situé en  $z$ .
- de la face de sortie de la cuve à la face d'entrée de la lentille  $L_2$ , on applique sur le champ une fonction de transfert de propagation dans l'espace libre à distance finie. Celle-ci est la distance séparant la face de sortie de la cuve à la face d'entrée de la lentille  $L_2$ .
- de la face d'entrée à la face de sortie de la lentille  $L_2$ , considérée mince, on applique une transformation de phase.
- de la face de sortie de la lentille  $L_2$  au capteur de la caméra CCD, on applique sur le champ une fonction de transfert de propagation dans l'espace libre à distance finie.

Celle-ci est la distance séparant la face de sortie de la lentille  $L_2$  au capteur de la caméra CCD.

Toutes ces étapes sont décrites plus en détails dans le paragraphe 2.3. La seule étape que nous n'avons pas prise en compte est la propagation au sein de la cuve remplie de disulfure de carbone. Cette étape, cruciale, ne peut être traitée en utilisant l'optique de Fourier. Il est nécessaire de revenir à l'équation de propagation d'une onde suivant un axe optique au travers d'un milieu non-linéaire considérant les non-linéarités cubiques et quintiques. Bien que cela a été vu en détail dans le paragraphe 2.5.1, nous redonnerons le minimum nécessaire à la compréhension. Le lecteur souhaitant connaître en détail la théorie peut se reporter au paragraphe 2.5.1.

L'équation de propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu non-linéaire est obtenue à partir des équations de Maxwell. On considère un milieu présentant de l'absorption linéaire, de l'absorption à deux photons et de l'absorption à trois photons. Il est nécessaire de faire plusieurs approximations pour simplifier cette équation. Tout d'abord nous considérerons que notre impulsion lumineuse a une enveloppe lentement variable. C'est-à-dire que si l'enveloppe de l'impulsion varie très lentement, suivant la direction de propagation  $z$ , par rapport à la longueur d'onde de ce faisceau alors on peut négliger la dérivée seconde suivant la direction de propagation  $z$ , on néglige  $\partial^2/\partial z^2$  devant  $k\partial/\partial z$  ( $k$  est le nombre d'onde). Physiquement, cela indique que la variation d'intensité d'une impulsion à l'autre est négligeable. La seconde approximation est l'approximation des échantillons minces. Celle-ci permet de négliger la diffraction paraxiale lors de la propagation d'une impulsion, si l'épaisseur du milieu est bien inférieure à la distance de Rayleigh. L'intensité incidente reste constante dans cette zone définie par  $z_R$ . Il est alors possible de négliger les dérivées d'ordre 2 suivant les dimensions orthogonales à la direction propagation, c'est-à-dire que  $\partial^2/\partial x^2 = \partial^2/\partial y^2 = 0$ . En définissant le champ électromagnétique  $E = \xi \exp(i\varphi)$ , où  $\xi$  est l'amplitude du champ et  $\varphi$  est la phase, on obtient l'équation décrivant la dynamique de l'intensité  $I$  suivant la distance de propagation  $z$  en fonction de l'absorption linéaire  $\alpha$ , l'absorption à deux photons  $\beta$  et l'absorption à trois photons  $\gamma$ .

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I - \beta I^2 - \gamma I^3. \quad (3.127)$$

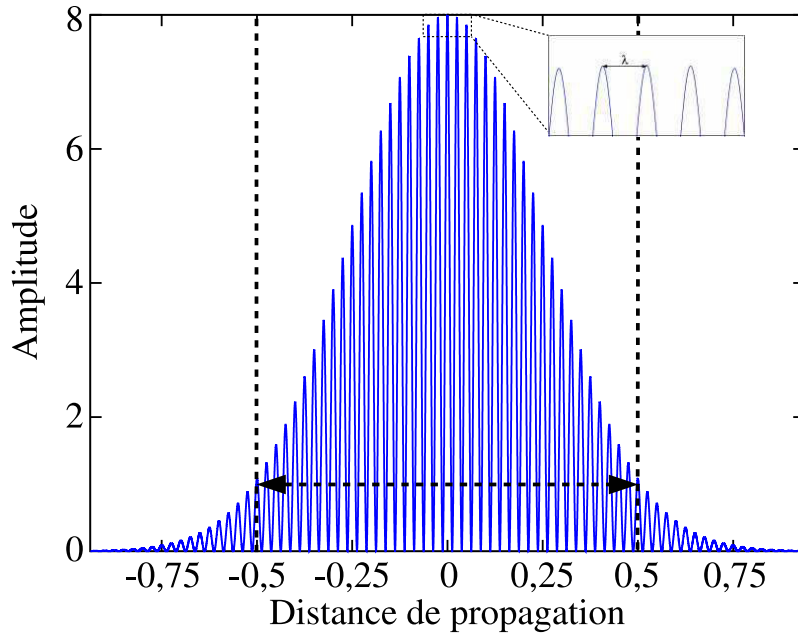


FIGURE 3.6 – Schéma explicatif de l'impulsion laser. L'amplitude est donnée en unité de l'amplitude moyenne. La distance de propagation est donnée en unité de largeur de l'enveloppe, c'est-à-dire le produit de la largeur temporelle et de la vitesse de la lumière. L'enveloppe de notre impulsion a une durée temporelle de  $\tau = 12$  ps, soit une largeur de  $c\tau = 3.6$  mm ( $c$  est la célérité de la lumière). Elle est représentée par la ligne pointillée horizontale avec des flèches aux extrémités. En comparaison, la longueur d'onde de la modulation est de  $\lambda = 532$  nm, l'impulsion contient environ 6760 modulations. La distance d'une longueur d'onde est représentée par la ligne avec deux flèches aux extrémités dans l'encadrée en haut à droite. Il est évident que ce schéma n'est pas à l'échelle

Nous avons largement décrit la résolution de cette équation dans le paragraphe 2.5.1 (voir equation (2.30)). Suivant qu'un ou plusieurs des coefficients  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  soient nuls, la solution de l'équation sera différente. Malgré tout, on notera que l'ensemble des solutions permettent d'exprimer la distance de propagation en fonction de l'intensité :  $z(I)$ . Il est par ailleurs impossible de les inverser analytiquement. On utilise alors une méthode d'inversion numérique : la méthode de Newton.

Les détails ont été vus en détail dans le paragraphe 2.5. On rappellera juste que cette méthode est basée sur le développement limité de la fonction  $z(I)$  au premier ordre. Ainsi pour une fonction  $z(I)$ , le développement limité de la fonction pour l'intensité à la sortie d'un milieu d'épaisseur  $L$

$$z(I_{L,n+1}) = z(I_{L,n}) + z'(I_{L,n})(I_{L,n} - I_{L,n+1}). \quad (3.128)$$

$n$  indique que l'on est à l'itération  $n$ -ième et  $L$  est l'épaisseur du milieu non-linéaire. On

notera que  $\lim_{(n+1) \rightarrow \infty} z(I_{L,n+1}) = L$  ce qui conduit à la relation

$$I_{L,n+1} = I_{L,n} - \frac{(z(I_{L,n}) - L)}{z'(I_{L,n})}. \quad (3.129)$$

C'est la relation (3.129) qui est utilisé dans le processus itératif. Le critère d'arrêt est  $|I_{L,n+1} - I_{L,n}|/I_{L,n} < 0.001$ . On répète la méthode de Newton pour chaque point de la courbe.

### 3.3.3 Cas spécifique du disulfure de carbone

La résolution de l'équation (2.30) conduit à différentes solutions suivant que  $\alpha$  et/ou  $\beta$  et/ou  $\gamma$  sont nuls. On doit donc considérer les spécificités du disulfure de carbone.

Tout d'abord, dus aux caractéristiques techniques du laser, les mesures sont faites à deux longueurs d'ondes  $\lambda = 532$  nm ou  $\lambda = 1064$  nm. Le  $\text{CS}_2$  ne présente pas d'absorption linéaire à ces longueurs d'ondes. Ainsi  $\alpha$  est égal à zéro. De plus à  $\lambda = 532$  nm, le disulfure de carbone ne présente pas d'absorption à deux photons. Dans ce cas  $\beta$  sera nul.

De plus, l'absorption à trois photons a été observée à  $\lambda = 800$  nm pour une intensité importante,  $I_0 = 146$  GW/cm<sup>2</sup> [141]. D'après la figure 3.1, le  $\text{CS}_2$  à  $\lambda = 1064$  nm ne devrait pas exhiber d'absorption linéaire. Et la troisième harmonique de  $\lambda = 1064$  nm est proche de la résonance, ce qui indique que  $\gamma$  ne peut être supposé nul. Cette hypothèse est aussi valable pour  $\lambda = 532$  nm.

Cependant, il a été mesuré par le passé des faibles valeurs de l'absorption à deux photons pour une longueur d'onde (ou proche de)  $\lambda = 1064$  nm [133, 137]. Certes d'après le spectre d'absorption (voir figure 3.1) il est possible que l'on observe seulement de l'absorption à trois photons. Mais il est prudent d'envisager les deux possibilités. Il est donc nécessaire de vérifier si l'absorption que l'on mesure est une absorption à deux ou à trois photons.

On utilisera alors deux solutions distinctes de l'équation (2.30) pour l'ajustement de courbe. La première est

$$L = \frac{I_0 - I_L}{\beta I_L I_0}, \quad (3.130)$$

tandis que la seconde est

$$L = \frac{I_0^2 - I_L^2}{2\gamma I_L^2 I_0^2}. \quad (3.131)$$

On notera que dans le cas des mesures à  $\lambda = 532$  nm il n'est pas nécessaire d'utiliser la fonction (3.130). Ceci-dit, on fera apparaître l'ajustement de courbe avec cette fonction afin d'illustrer notre méthode.

### 3.3.4 Mesures à 532 nm

On mesure l'absorption d'un échantillon à  $\lambda = 532$  nm en régime picoseconde (12 ps) par la méthode d'open aperture Z-scan. L'échantillon est une cellule d'épaisseur  $L = 1$  mm remplie avec du disulfure de carbone liquide. Le taux de répétition du laser est de  $< 1$  Hz afin d'éviter tout effet thermique.

On utilise un objet circulaire à l'entrée du montage, c'est-à-dire au plan image de la lentille  $L_1$  de focale  $f_1 = 20$  cm (voir figure 3.5). Le rayon de l'objet circulaire est de  $w = 1.7$  mm. Celui-ci est déterminé en utilisant la méthode  $D4\sigma$  (voir le chapitre 2.4) sur les images obtenues lorsque l'échantillon est loin du plan focal [108, 111]. Si le diaphragme à la focale de la lentille  $L_1$  à un diamètre  $d$  à la distance focale de  $f_1$ , alors le rayon d'Airy du faisceau à la focale pour un faisceau top-hat est  $1.2 \lambda F$  où  $F = f/d$  [24]. Le rayon du faisceau top-hat à la focale est  $w_0 = 0.7\lambda F$ , donc le rayon du faisceau est  $19 \mu\text{m}$ . Lorsque l'échantillon est dans le plan focal, là où le faisceau est le plus petit ( $w_0 = 19 \mu\text{m}$ ), l'intensité pic à l'entrée du milieu non-linéaire est  $I_0 = 25 \text{ GW/cm}^2$ . C'est le point où l'intensité est la plus élevée.

Le balayage de l'échantillon se fait sur 60 mm autour du plan focal de la lentille  $L_1$  avec une image acquise tous les millimètres. Il est à noter que l'on ajuste la zone de balayage vis-à-vis de la position du plan focal afin que celle-ci corresponde à  $Z = 0$ , où  $Z$  est la position de l'échantillon.

La mesure expérimentale obtenue correspond aux cercles vides de la figure 3.7. Les cercles vides correspondent à la transmission normalisée. Lorsque l'échantillon est dans le plan focal, la transmission normalisée atteint sa valeur la plus faible, environ 0.58. C'est en ce point que l'intensité à l'entrée de la cuve est la plus forte.

La courbe rouge correspond à l'ajustement en ne considérant que l'absorption à trois

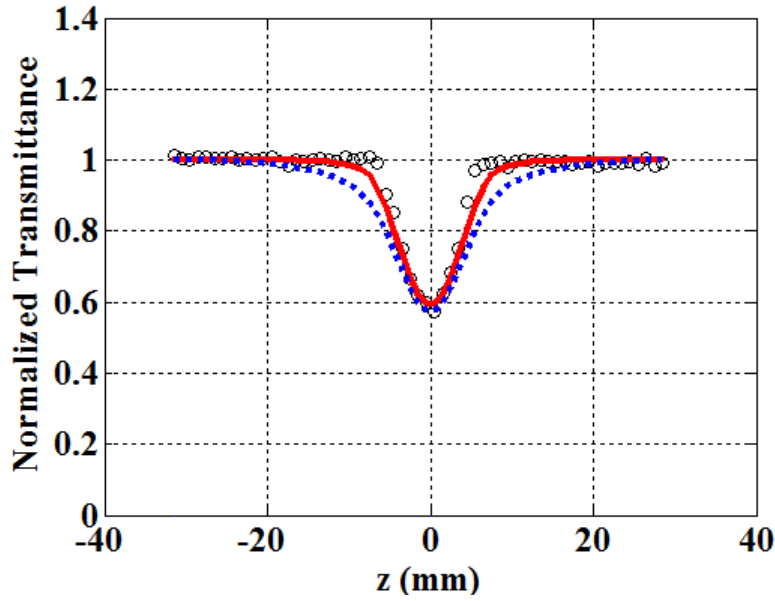


FIGURE 3.7 – Mesure par Open-aperture Z-scan de la transmission normalisée (cercle vide) d’une cellule d’épaisseur de 1 mm remplie avec du  $\text{CS}_2$  à  $\lambda = 532$  nm avec une intensité à l’entrée de la cuve de  $I_0 = 25\text{GW}/\text{cm}^2$ . La ligne rouge est l’ajustement de courbe suivant la fonction ne considérant que l’absorption à trois photons (3.131),  $\gamma = (9.3 \pm 1.9) \times 10^{-26} \text{ m}^3/\text{W}^2$ . La ligne en pointillée bleue est l’ajustement de courbe suivant la fonction ne considérant que l’absorption à deux photons (3.130),  $\beta = (8.5 \pm 0.9) \times 10^{-12} \text{ m}/\text{W}$ .

photons (voir équation (3.131)). Dans cette configuration le coefficient  $\gamma$  prend la valeur  $\gamma = (9.3 \pm 1.9) \times 10^{-26} \text{ m}^3/\text{W}^2$ . L’ajustement en ne considérant que l’absorption à deux photons (voir équation (3.130)) correspond à la courbe en pointillé bleu. L’absorption à deux photons a alors la valeur  $\beta = (8.5 \pm 0.9) \times 10^{-12} \text{ m}/\text{W}$ . C’est sans surprise que l’ajustement de courbe suivant l’absorption à trois photons est le meilleur puisque comme nous l’avons expliqué il est connu que à  $\lambda = 532$  nm le  $\text{CS}_2$  ne présente pas d’absorption à deux photons. Si on considère la courbe en pointillée bleue, l’accord entre les points expérimentaux et l’ajustement est assez mauvais lorsque la transmission normalisée diminue avant ou après le plan focal. Une courbe de transmission en ne considérant que l’absorption à deux photons telle que présentée dans l’équation (3.130) à une variation plus large. C’est-à-dire que la transmission commence à diminuer plus loin du plan focal que dans le cas de l’absorption à trois photons. Cela s’explique par le fait que l’on peut observer l’absorption à deux photons à des intensités plus faibles que l’absorption à trois photons.

Par conséquent on mesure une absorption à trois photons pour le disulfure de carbone



à  $\lambda = 532 \text{ nm}$  de  $\gamma = (9.3 \pm 1.9) \times 10^{-26} \text{ m}^3/\text{W}^2$ . C'est une valeur très élevée. D'après la figure 3.1, il y a une bande de résonance centrée, approximativement à  $200 \text{ nm}$ , soit proche de  $\lambda/3$ . Or la proximité avec cette bande fait que l'on a une susceptibilité du cinquième ordre plus importante et par conséquent une absorption à trois photons importante :  $|\chi^{(5)}| \approx \gamma$ .

On notera que l'incertitude sur la mesure est déterminée en calculant la différentielle exacte de l'expression (3.131). Or les paramètres d'erreur sont les incertitudes sur l'épaisseur de la cuve, sur l'intensité à l'entrée du milieu. L'épaisseur de la cuve est connue exactement tandis que l'intensité à la sortie du matériau est déterminée grâce à notre méthode d'après l'intensité à l'entrée. C'est la mesure de l'intensité à l'entrée du montage qui est notre seule source d'erreur. Cette opération est faite avec un joulemètre. Celui-ci a une précision de 10 %. Ce qui conduit à une mesure de  $\gamma$  avec une précision, dans notre cas, d'environ 20 %.

D'autres équipes ont mesuré l'absorption à trois photons du disulfure de carbone. Dans la références [141], les auteurs mesurent une valeur de  $\gamma = 1.37 \times 10^{-27} \text{ m}^3/\text{W}^2$  pour une longueur d'onde de  $\lambda = 800 \text{ nm}$  en régime picoseconde (120 ps). Notre valeur est en accord avec cette dernière compte tenu de l'écart en longueur d'onde.

Nous allons maintenant mesurer l'absorption à  $\lambda = 1064 \text{ nm}$ .

### 3.3.5 Mesures à 1064 nm

Nous cherchons à mesurer l'absorption à trois photons du disulfure de carbone a dans l'infrarouge ( $\lambda = 1064 \text{ nm}$ ) en régime picoseconde (17 ps). Nous utilisons toujours une cuve d'une épaisseur  $L = 1 \text{ cm}$  remplie de  $\text{CS}_2$ . Le taux de répétition est toujours inférieur à 1 Hz.

Le rayon de l'objet circulaire placé dans le plan objet de la lentille  $L_1$  est de  $w = 1.9 \text{ mm}$ . Le rayon du faisceau dans le plan focal de la lentille sera donc, d'après la définition (2.25), de  $w_0 = 39 \mu\text{m}$ . L'intensité pic à l'entrée de la cuve lorsque celle-ci est dans le plan focal est de  $I_0 = 65 \text{ GW}/\text{cm}^2$ , soit une impulsion environ 40 % plus intense qu'à 532 nm.

Enfin et comme dans le cas de la mesure précédente, le balayage est effectué sur une zone de 60 mm autour du plan focal. On acquiert une image tous les millimètres.

La courbe représentant la transmission normalisée correspond aux cercles vides sur

la figure 3.8. Lorsque l'échantillon est au plan focal, là où l'intensité est la plus forte, la

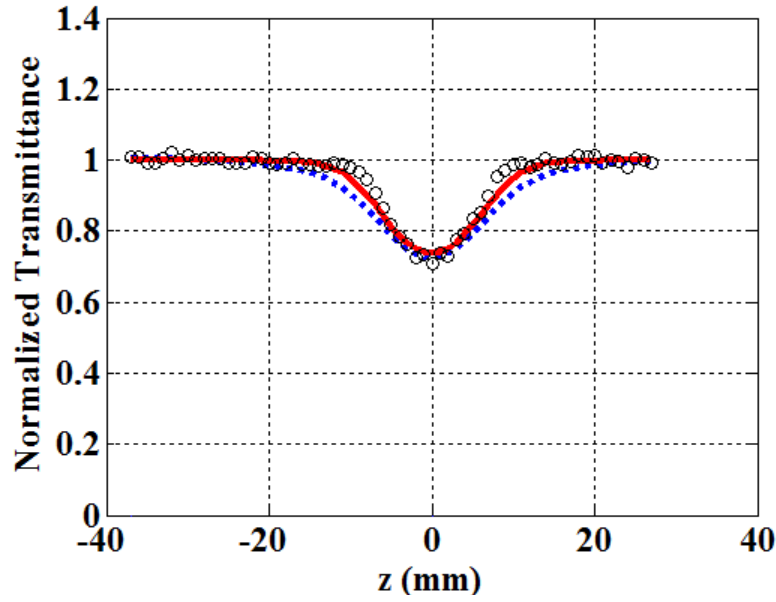


FIGURE 3.8 – Mesure par open-aperture Z-scan de la transmission normalisée (cercle vide) d'une cellule d'épaisseur de 1 mm remplie avec du  $\text{CS}_2$  à  $\lambda = 1064$  nm avec une intensité à l'entrée de la cuve de  $I_0 = 65 \text{ GW/cm}^2$ . La ligne rouge est l'ajustement de courbe suivant la fonction ne considérant que l'absorption à trois photons (3.131),  $\gamma = (4.6 \pm 0.9) \times 10^{-27} \text{ m}^3/\text{W}^2$ . La ligne en pointillée bleue est l'ajustement de courbe suivant la fonction ne considérant que l'absorption à deux photons (3.130),  $\beta = (1.7 \pm 0.2) \times 10^{-12} \text{ m/W}$ .

transmission normalisée atteint sa valeur minimale, environ 0.7. Cette valeur est inférieure à celle obtenue au même point à 532 nm bien que l'intensité soit plus élevée (environ 40 %). Cela indique que l'absorption à trois photons est plus faible à  $\lambda = 1064$  nm qu'à  $\lambda = 532$  nm.

La courbe rouge de la figure 3.8 représente l'ajustement de la courbe expérimentale avec la fonction (3.131), c'est-à-dire, en ne considérant que l'absorption à trois photons. Cette courbe est obtenue avec comme valeur pour l'absorption de  $\gamma = (4.6 \pm 0.9) \times 10^{-27} \text{ m}^3/\text{W}^2$ . La courbe en pointillée bleue correspond à l'ajustement de la courbe expérimentale suivant la fonction (3.130). Dans ce cas on mesure une absorption à deux photons égale à  $\beta = (1.7 \pm 0.2) \times 10^{-12} \text{ m/W}$ .

Comme la mesure à 532 nm, c'est la courbe rouge qui est le meilleur ajustement. La courbe en pointillé bleu reste proche des points expérimentaux, mais comme dans le cas précédent elle décrit une courbe présentant un creux plus large que les points expérimentaux. C'est ce détail qui permet de correctement différencier l'absorption à

deux photons de celui à trois photons. Ainsi le CS<sub>2</sub> ne présente pas d'absorption à deux photons mais principalement de l'absorption à trois photons à  $\lambda = 1064$  nm.

L'absorption à trois photons du CS<sub>2</sub> à  $\lambda = 1064$  nm est de  $\gamma = (4.6 \pm 0.9) \times 10^{-27} \text{ m}^3/\text{W}^2$ . L'absorption à trois photons à  $\lambda = 1064$  nm est environ vingt fois inférieures à l'absorption à trois photons à  $\lambda = 532$  nm :  $\gamma = (4.6 \pm 0.9) \times 10^{-27} \text{ m}^3/\text{W}^2$  contre  $\gamma = (9.3 \pm 1.9) \times 10^{-26} \text{ m}^3/\text{W}^2$ . On se trouve donc beaucoup plus loin de la résonance à  $3\omega$ .

On notera que l'incertitude sur la mesure est de 20 %. Ce qui est normal puisque la seule source d'erreur est la mesure de l'intensité à l'entrée et que celle-ci est de 10 %.

Nous avons aussi cherché à mesurer les indices de réfraction non-linéaire du troisième et du cinquième ordre du CS<sub>2</sub>.

### 3.4 Indices de réfraction non-linéaire cubique et quintique

Pour les mesures des indices de réfraction non-linéaire du troisième et cinquième ordre, le montage expérimental est l'exact identique de celui présenté précédemment. Nous n'avons donc pas jugé nécessaire de le présenter à nouveau. On se contentera de rappeler qu'il est composé de deux bras : l'un incorporant un système imageur 4f et une platine de translation où est disposé l'échantillon ; l'autre permet de contrôler les fluctuations du laser. Les données sont acquises grâce à une caméra CCD refroidie à  $-30$  ° C. Le schéma du montage est représenté sur la figure 3.5. Si le lecteur souhaite avoir davantage d'informations sur le procédé expérimental il peut se référer aux chapitres 2.2 et 3.3.1.

Dans cette section, nous traiterons de la caractérisation des indices de réfraction non-linéaire cubique ( $n_2$ ) et quintique ( $n_4$ ) du disulfure de carbone aux longueurs d'ondes  $\lambda = 532$  nm  $\lambda = 1064$  nm en régime picoseconde (respectivement 12 et 17 ps). Nous introduirons la méthode de traitements numériques des données expérimentales à savoir la méthode  $D4\sigma$ . Puis nous verrons la méthode employée pour l'ajustement des courbes expérimentales obtenues. Après, nous présenterons les valeurs pour ces indices de réfraction à  $\lambda = 532$  nm  $\lambda = 1064$  nm. Nous discuterons alors de ces résultats.

### 3.4.1 Traitement numérique des données expérimentales : méthode $D4\sigma$

Dans le paragraphe 3.3 nous avons présenté la méthode d'open aperture Z-scan. Pour mémoire cette méthode consiste à mesurer la transmission d'une impulsion laser dans un milieu non-linéaire, c'est-à-dire le rapport entre l'énergie à l'entrée et à la sortie du milieu. Habituellement on utilise une méthode similaire : la closed aperture Z-scan. La principale différence est que l'on place avant le capteur (la caméra CCD, ici), un diaphragme de transmittance linéaire en puissance  $S$  [23]. Ainsi, seul le signal passant par le trou du diaphragme atteint le capteur. On observe alors une variation de la transmission. Par exemple, supposons que le milieu non-linéaire présente un indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre positif. Si le milieu est loin du plan focal, avant ou après, la taille du faisceau et la transmission ne varie pas. Lorsque le milieu se rapproche du plan focal de la lentille  $L_1$  (voir figure 3.5) l'intensité à l'entrée augmente. L'indice de réfraction non-linéaire étant positif, il fera converger le faisceau avant le plan focal. Le faisceau à la sortie du montage  $4f$  est donc plus large, son diamètre est plus grand. La transmission diminue, on observe un creux. Après le plan focal, l'indice de réfraction non-linéaire fait que le faisceau converge après le plan focal. Ainsi à la sortie du montage  $4f$ , le faisceau est plus étroit, son diamètre est plus petit. Par conséquent la transmission augmente, on observe un pic. Cependant si le matériau présente de l'absorption non-linéaire il est nécessaire de diviser les données acquises par open aperture Z-scan à celle du closed aperture Z-scan. On notera que puisque nous utilisons une caméra CCD, il est possible de ne pas utiliser un diaphragme physique mais numérique. Cela a son importance puisque notre montage peut alors être insensible à l'instabilité de pointage du laser en cherchant à centrer l'ouverture sur le centre de gravité de la répartition spatiale de l'image.

Ici nous proposons une nouvelle approche qui s'attache à mesurer la variation de la largeur du faisceau après son passage au travers du milieu non-linéaire. On a vu que si l'on a un milieu présentant un indice non-linéaire cubique positif avant le plan focal le faisceau à la sortie est plus large et que par conséquent la transmission diminue, on est dans le creux. Après avoir passé le plan focal, on a un faisceau à la sortie est plus étroit et une transmission qui augmente, on se trouve le pic. Il est donc possible de mesurer

l'indice de réfraction non-linéaire via la variation de la largeur du faisceau. Cette méthode présente l'avantage de ne pas être sensible à la présence d'absorption non-linéaire, elle permet de mesurer directement l'indice de réfraction non-linéaire. De plus il n'est pas nécessaire d'utiliser un diaphragme, physique ou numérique. On intègre sur l'ensemble du capteur, c'est-à-dire que l'on utilise l'intégralité des pixels de la caméra.

La principale difficulté lorsque que l'on veut mesurer la largeur d'un faisceau est de définir ce qu'est la largeur. Soyons clair, pour un cercle représenté sur un axe  $(x, y)$ , la définition et surtout la mesure du diamètre sont évidents. Lorsque l'on considère une Gaussienne optique, la question est plus épineuse. Tout d'abord il existe plusieurs définitions, nous choisirons la plus commune c'est-à-dire que le diamètre est la distance entre deux points symétriques par rapport à l'axe centrale de la Gaussienne et situés à  $1/\exp(2)$  du maximum de la Gaussienne. Ainsi il suffit de déterminer la valeur maximale de la Gaussienne, de trouver deux points diamétralement opposées dans le plan situé à  $1/\exp(2)$  du maximum. Cependant dans le cadre de l'expérience, il est impossible d'avoir une Gaussienne parfaite. En effet la forme du faisceau peut tout à fait être marginale. De plus il est possible d'utiliser un faisceau d'une forme différente comme un faisceau multimodal. Où se situe le centre dans ce cas ? Comment déterminer le maximum de ces fonctions ? Est-ce qu'il doit y avoir correspondance entre la position du centre et celle du maximum ? Par conséquent nous avons décidé d'utiliser la définition ISO standard 11146 : la méthode  $D4\sigma$ . Celle-ci est expliquée en détail dans le paragraphe 2.4. Le nom de la méthode vient du fait que l'on calcule l'écart-type  $\sigma$  de la distribution marginale suivant l'axe  $x$  ou suivant l'axe  $y$ . Pour obtenir le diamètre on multiplie cette écart type par 4. Le diamètre ( $D$ ) est égale à 4 fois (4) l'écart-type ( $\sigma$ ). Considérons un faisceau dont la distribution spatiale de l'intensité est  $I(x, y)$ , on définit alors le rayon du faisceau suivant l'axe  $x$  comme étant

$$w_x = 2\sqrt{\frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y) (x - \bar{x})^2 dx dy}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y) dx dy}}, \quad (3.132)$$

où

$$\bar{x} = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} x I(x, y) dx dy}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y) dx dy} \quad (3.133)$$

est la position du centre du faisceau suivant l'axe  $x$ . On notera que si l'on a une distribution qui correspond à une Gaussienne, la méthode  $D4\sigma$  est équivalente avec la méthode de  $1/\exp(2)$ . Cependant, la méthode de  $1/\exp(2)$  ne cherche à déterminer que le maximum de la Gaussienne, sa position est considérée comme la position du centre. Cette dernière est sensible au bruit, contrairement à la méthode  $D4\sigma$  puisque dans celle-ci on intègre sur chacun des pixels. On fait aussi la moyenne sur le bruit. Le rapport signal-sur-bruit est meilleurs.

Comme précédemment (voir partie 3.3.1), on corrige numériquement chacune des images prises par la caméra CCD afin d'améliorer la précision de nos résultats. Ainsi on corrige les fluctuations lasers grâce aux données obtenues via le second bras et on soustrait à toutes les images du bruit qu'on aura pris soin d'enregistrer avant toute série d'acquisition. On supprime les effets de diffractions, de diffusions et ou les imperfections en utilisant les acquisitions linéaires.

On peut alors appliquer les formules (3.132) et (3.133) à chaque image. Puisque l'on cherche à appliquer numériquement cette méthode, on discrétise alors les formules (3.132) et (3.133). On notera que les dérivées suivant  $x$  ou  $y$  correspondent à la taille du pixel de la caméra suivant l'axe  $x$  ou  $y$ . En appliquant ces formules aux images prises en régime non-linéaire ainsi qu'en régime linéaire, on détermine le rayon du faisceau en régime non-linéaires  $w_{NL}$  et en régime linéaire  $w_L$ . La variation relative du rayon du faisceau est obtenue en calculant

$$\Delta w = \frac{w_{NL} - w_L}{w_L}. \quad (3.134)$$

On a alors la variation relative du rayon en fonction de la position du milieu non-linéaire. Si on suppose un milieu avec un indice de réfraction non-linéaire cubique ( $n^2$ ) positif on observe alors un pic puis un creux comme l'illustre la figure 2.5. Sur celle-ci,  $\Delta w_{pv}$  est la différence de rayon entre le creux et le pic de la courbe. Dans le cas d'un faisceau gaussien à l'entrée du système 4f, il est possible d'établir une relation linéaire entre  $\Delta w_{pv}$  et le déphasage effectif  $\varphi_{NL0}^{eff}$  (voir formule (2.21)). La linéarité reste valide en présence d'absorption non-linéaire importante. Tout cela à été vu en détail dans le paragraphe 2.3. On se permettra de rappeler que si on connaît l'ensemble des autres paramètres du déphasage effectif  $\varphi_{NL0}^{eff}$  il est possible de déterminer l'indice de réfraction du troisième

ordre. Cependant, nous cherchons à déterminer aussi l'indice de réfraction quintique et il n'est pas possible de le faire en utilisant la formule (2.21).

Pour faire cela, on reprend l'équation (2.37) (voir le paragraphe 2.5.2).

$$\frac{d\varphi}{dI} = -\frac{k(n_2I + n_4I^2)}{\alpha I + \beta I^2 + \gamma I^3}. \quad (3.135)$$

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 2.5.2, il est possible de résoudre analytiquement cette équation. En intégrant l'équation (2.37) de l'intensité à l'entrée du milieu  $I_0$  à l'intensité à la sortie du milieu  $I_L$ , on obtient la fonction suivante :

$$\Delta\varphi = \frac{k}{\gamma(X_+ - X_-)} \left[ -(n_2 + n_4X_+) \ln \left( \frac{I_L - X_+}{I_0 - X_+} \right) + (n_2 + n_4X_-) \ln \left( \frac{I_L - X_-}{I_0 - X_-} \right) \right], \quad (3.136)$$

où  $\Delta\varphi = \varphi_L - \varphi_0$  est le déphasage induit dans le milieu non-linéaire et  $k = 2\pi/\lambda$  est le module du vecteur d'onde. De plus  $X_{\pm} = (\pm\sqrt{\beta^2 - 4\gamma\alpha})/2\gamma$ , en supposant que  $\beta^2 > 4\gamma\alpha$ . La valeur de l'intensité à la sortie du milieu doit être déterminée avant. En ajustant la courbe théorique à la courbe expérimentale on peut donc déterminer l'indice de réfraction non-linéaire du cinquième ordre  $n_4$ .

Si on considère les spécificités du disulfure de carbone à 532 nm et 1064 nm, le  $\text{CS}_2$  ne présente pas d'absorption linéaire ou d'absorption à deux photons. Par conséquent  $\alpha = 0$  et  $\beta = 0$ . La formule décrivant le déphasage en fonction de la différence d'intensité entre l'entrée et la sortie du milieu est

$$\Delta\varphi = -\frac{k}{\gamma} \left[ n_2 \frac{I_L - I_0}{I_L I_0} + n_4 \ln \left( \frac{I_L}{I_0} \right) \right] \quad (3.137)$$

C'est donc cette fonction que nous utiliserons pour ajuster les courbes expérimentales obtenues.

Cependant nous utiliserons une seconde formule ne tenant compte que des effets liés au troisième ordre de la susceptibilité non-linéaire. C'est-à-dire en considérant tous les indices nuls à l'exception de  $n_2$  et  $\beta$ . Dans ce cas la formule est

$$\Delta\varphi = -\frac{k}{\beta} n_2 \ln \left( \frac{I_L}{I_0} \right). \quad (3.138)$$

Cette relation sert pour la mesure de  $n_2$  à faible intensité.

Le lecteur notera que la résolution de la propagation du plan objet de la lentille  $L_1$  à l'entrée du milieu, ou la résolution de la propagation de la sortie du milieu à la caméra CCD ne change pas. Il n'y a que le calcul du déphasage induit par le milieu non-linéaire qui diffère. On utilise toujours le système imageur  $4f$  et par conséquent les opérations mathématiques présentées en détail dans le paragraphe 2.3.

Nous allons maintenant présenter les résultats expérimentaux, tout d'abord à  $\lambda = 532$  nm puis à  $\lambda = 1064$  nm. Nous discuterons ensuite des résultats.

### 3.4.2 Mesure à 532 nm

On cherche à mesurer les indices de réfraction non-linéaire  $n_2$  et  $n_4$ . Nous allons comparer deux ajustement de courbes possibles. Le premier utilise la fonction (3.138) et ne considère que les effets de  $n_2$ . Le second, utilise la fonction (3.137) et considère des effets lié à la fois au troisième( $n_2$ ) et au cinquième ordre de la susceptibilité ( $n_4$  et  $\gamma$ ). Pour l'absorption à trois photons  $\gamma$ , on reprendra la valeur déterminée dans le paragraphe 3.3.4. On doit donc déterminer les indices  $n_2$  et  $n_4$ . Mesurer directement à haute intensité les deux indices est impossible. Différentes combinaisons de ces derniers peuvent ajuster convenablement la courbe expérimentale. Il serait alors facile de donner des valeurs de  $n_2$  et  $n_4$  erronés. Pour éviter cette déconvenue, on mesurera en premier lieu l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre à faible intensité. La contribution des non-linéarités quintiques est alors négligeable, on mesure bien un pur effet cubique.

On procède alors à la mesure de  $n_2$  à une intensité de  $I_0 = 1.6$  GW/cm<sup>2</sup>. C'est l'intensité la plus faible qui permette la détection d'un signal non-linéaire. La figure 3.9 présente la courbe expérimentale (cercles). L'ajustement de la courbe est réalisée en utilisant la fonction (3.138). Les résultats sont  $\beta < 0.2$  cm/GW et  $n_2 = (1.5 \pm 0.3) \times 10^{-18}$  m<sup>2</sup>/W. La mesure de l'absorption n'est pas présenté ici, on notera tout de même que celle-ci s'est faite grâce à la méthode présentée dans le paragraphe 3.3.4 en utilisant la fonction (3.130). La valeur de  $\beta$  est si faible qu'il est difficile, voir impossible, d'en observer les effets sur le signal. En effet la variation de la transmission que l'on ajuste, peut tout aussi bien être due à l'incertitude sur la mesure qu'aux effets non-linéaires. On considéra l'absorption à deux photons comme nulle  $\beta = 0$  pour la mesure de  $n_4$ .



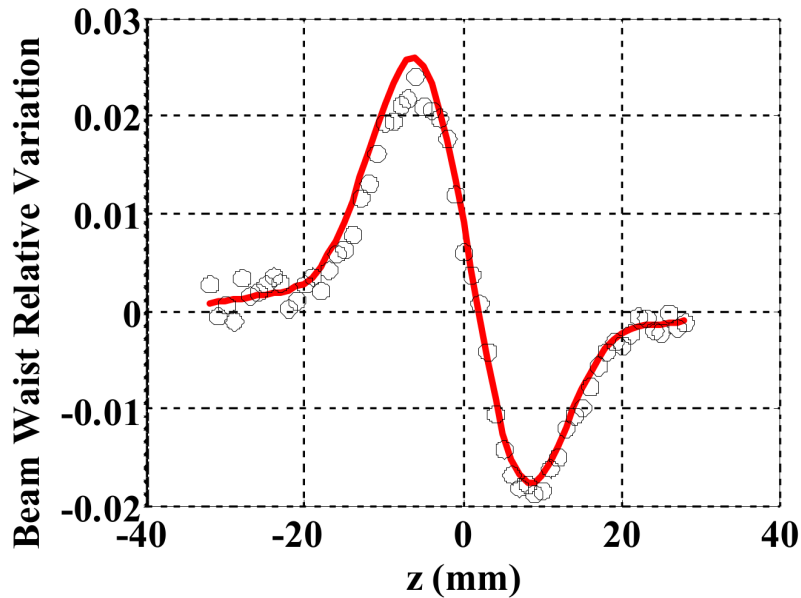


FIGURE 3.9 – Variation relative du rayon du faisceau (cercles) en fonction de la position  $z$  de la cuve de 1 mm d'épaisseur remplie de  $\text{CS}_2$  mesurée à  $\lambda = 532 \text{ nm}$  avec  $I_0 = 1.6 \text{ GW/cm}^2$ . La courbe rouge correspond à l'ajustement de la courbe avec la fonction (3.138) avec les paramètres  $\beta < 0.2 \text{ cm/GW}$  et  $n_2 = (1.5 \pm 0.3) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$

On peut procéder à la mesure de l'indice de réfraction non-linéaire quintique,  $n_4$ . Les données expérimentales utilisées sont celles aussi utilisées pour la mesure de l'absorption à trois photons  $\gamma$ . L'intensité à l'entrée du montage est  $I_0 = 25 \text{ GW/cm}^2$ . La courbe expérimentale est présentée sous forme de cercle sur la figure 3.10. Elle correspond à la variation relative du rayon du faisceau en fonction de la position de l'échantillon  $z$ . L'ajustement de la courbe, utilisant la fonction 3.137, correspond à la courbe rouge. Celle-ci est obtenue en considérant les paramètres  $\gamma = (9.3 \pm 1.9) \times 10^{-26} \text{ m}^3/\text{W}^2$ ,  $n_2 = (1.5 \pm 0.3) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$  et  $n_4 = (1.2 \pm 0.3) \times 10^{-32} \text{ m}^4/\text{W}^2$ . L'indice de réfraction non-linéaire du cinquième ordre est positif. On notera que la courbe théorique est très proche de la courbe expérimentale. Sur cette même figure (3.10), la courbe en pointillé bleu correspond à l'ajustement de courbe en utilisant la fonction (3.138). Les paramètres utilisés sont  $\beta = (8.5 \pm 0.9) \times 10^{-12} \text{ m/W}$  et  $n_2 = (2.7 \pm 0.3) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$ . Ce second ajustement de courbe est très proche de la courbe expérimentale. On notera que la valeur de l'absorption à deux photons utilisée pour l'ajustement de courbe est celui déterminé dans la partie 3.3.4.

Il est évident que les deux ajustements de courbes, que ce soit avec la fonction (3.137) (courbe rouge) ou avec la fonction (3.138) (courbe de pointillées bleues), sont très proches

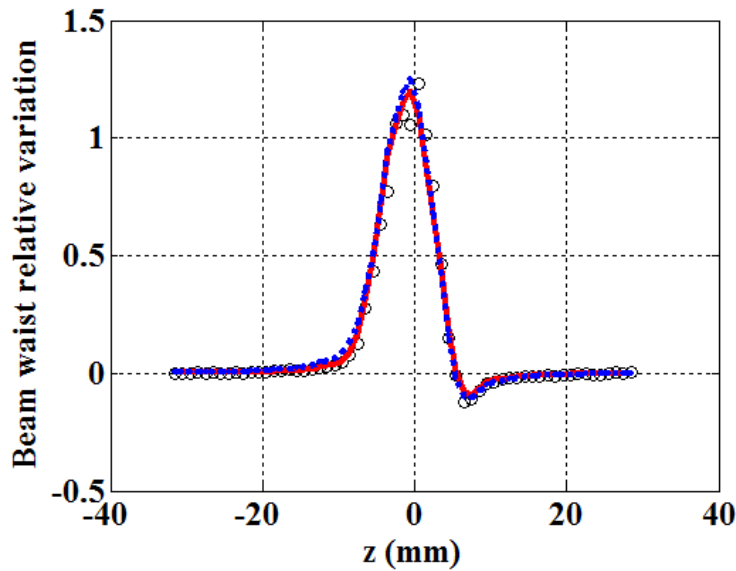


FIGURE 3.10 – Variation relative du rayon du faisceau (cercles) en fonction de la position  $z$  de la cuve de 1 mm d'épaisseur remplie de  $\text{CS}_2$  mesurée à  $\lambda = 532$  nm avec  $I_0 = 25$  GW/cm<sup>2</sup>. La courbe de pointillées bleues correspond à l'ajustement de courbe en considérant seulement les effets liés à  $\chi^{(3)}$  (fonction (3.138)) avec les paramètres  $\beta = (8.5 \pm 0.9) \times 10^{-12}$  m/W et  $n_2 = (2.7 \pm 0.3) \times 10^{-18}$  m<sup>2</sup>/W. La courbe rouge correspond à l'ajustement de courbe en utilisant la fonction (3.137) avec les paramètres  $\gamma = (9.3 \pm 1.9) \times 10^{-26}$  m<sup>3</sup>/W<sup>2</sup>,  $n_2 = (1.5 \pm 0.3) \times 10^{-18}$  m<sup>2</sup>/W et  $n_4 = (1.2 \pm 0.3) \times 10^{-32}$  m<sup>4</sup>/W<sup>2</sup>

des données expérimentales. Nous reviendrons sur les résultats dans le paragraphe 3.4.4. Intéressons nous tout d'abord à la mesure de ces mêmes coefficients à  $\lambda = 1064$  nm.

### 3.4.3 Mesure à 1064 nm

Nous procédons aux mêmes mesures, à savoir la mesure des indices de réfraction non-linéaires  $n_2$  et  $n_4$  à une longueur d'onde de  $\lambda = 1064$  nm. Il est de nouveau nécessaire de mesurer  $n_2$  à une intensité relativement faible, là où les effets non-linéaires quintiques sont négligeables. On notera que la sensibilité décroît lorsque l'on augmente la longueur d'onde. La conséquence est que nous sommes obligés d'augmenter l'intensité pour les mesures dans le domaine de l'infrarouge. La mesure de  $n_2$  se fait à une intensité de  $I_0 = 4.5$  GW/cm<sup>2</sup> et est présentée sur la figure 3.11. Les points expérimentaux sont représentés par les cercles. La courbe théorique est obtenue en ajustant les données expérimentales avec la fonction 3.138. Les paramètres utilisés sont  $\beta < 0.05$  cm/GW et  $n_2 = (4.5 \pm 1.3) \times 10^{-19}$  m<sup>2</sup>/W. C'est cette valeur qui sera utilisée pour la mesure de  $n_4$ . Comme dans le

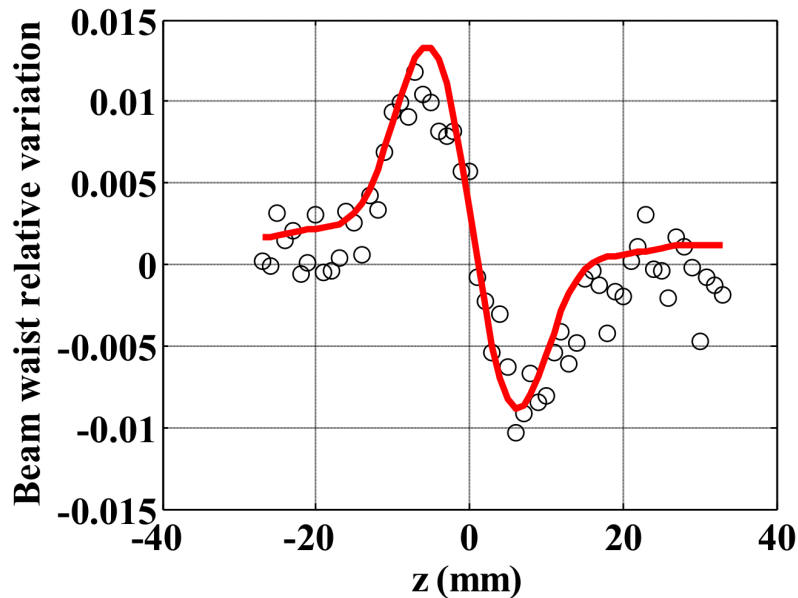


FIGURE 3.11 – Variation relative du rayon du faisceau (cercles) en fonction de la position  $z$  de la cuve de 1 mm d'épaisseur remplie de  $\text{CS}_2$  mesurée à  $\lambda = 1064 \text{ nm}$  avec  $I_0 = 4.5 \text{ GW/cm}^2$ . La courbe rouge correspond à l'ajustement de courbe en utilisant la fonction (3.138) avec les paramètres  $\beta < 0.05 \text{ cm/GW}$  et  $n_2 = (4.5 \pm 1.3) \times 10^{-19} \text{ m}^2/\text{W}$

paragraphe précédent, la mesure de l'absorption n'est pas présentée. On rencontre le même problème, c'est-à-dire qu'il est impossible de déterminer l'absorption non-linéaire puisque les variations de transmission relevées peuvent aussi bien être l'œuvre des effets non-linéaires que des incertitudes sur la mesure. On considéra l'absorption à deux photons comme nulle  $\beta = 0$  pour la mesure de l'indice de réfraction non-linéaire du cinquième ordre.

On utilise les mêmes données expérimentales que ceux de la mesures de l'absorption non-linéaire dans le paragraphe (3.3.5). On a donc les mêmes paramètres expérimentaux et notamment l'intensité à l'entrée du montage qui est de  $I_0 = 65 \text{ GW/cm}^2$ . Toutefois, le traitement de ces données est différent. Les points expérimentaux sont présentés sur la figure 3.12 et correspondent aux cercles. Le courbe en rouge correspond à l'ajustement des données expérimentales suivant la fonction (3.137) avec les paramètres  $\gamma = (4.6 \pm 1.9) \times 10^{-27} \text{ m}^3/\text{W}^2$ ,  $n_2 = (4.5 \pm 1.3) \times 10^{-19} \text{ m}^2/\text{W}$  et  $n_4 = (2.2 \pm 0.4) \times 10^{-33} \text{ m}^4/\text{W}^2$ . On notera que la valeur de  $n_2$  est celle déterminée précédemment. La courbe théorique est très proche de celle expérimentale. Le second ajustement des données expérimentales, la courbe en pointillé bleu. Celle-ci est obtenue en utilisant la fonction (3.138) avec les paramètres  $\beta = (1.7 \pm 0.2) \times 10^{-12} \text{ m/W}$  et  $n_2 = (1.4 \pm 0.2) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$ . On notera que la valeur

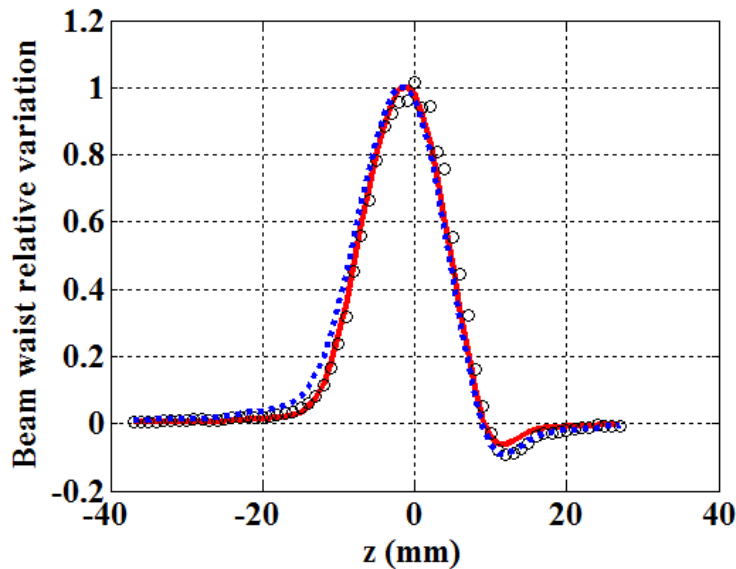


FIGURE 3.12 – Variation relative du rayon du faisceau (cercles) en fonction de la position  $z$  de la cuve de 1 mm d'épaisseur remplie de  $\text{CS}_2$  mesurée à  $\lambda = 1064 \text{ nm}$  avec  $I_0 = 65 \text{ GW/cm}^2$ . La courbe en pointillée bleue correspond à l'ajustement de courbe en considérant seulement les effets liés à  $\chi^{(3)}$  (fonction (3.138)) avec les paramètres  $\beta = (1.7 \pm 0.2) \times 10^{-12} \text{ m/W}$  et  $n_2 = (1.4 \pm 0.2) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$ . La courbe rouge correspond à l'ajustement de courbe en utilisant la fonction (3.137) avec les paramètres  $\gamma = (4.6 \pm 1.9) \times 10^{-27} \text{ m}^3/\text{W}^2$ ,  $n_2 = (4.5 \pm 1.3) \times 10^{-19} \text{ m}^2/\text{W}$  et  $n_4 = (2.2 \pm 0.4) \times 10^{-33} \text{ m}^4/\text{W}^2$

de l'absorption à deux photons utilisés correspond à celle déterminée dans le paragraphe 3.3.5. Cette ajustement présente un très bon accord avec les données expérimentales.

Comme dans le cas de la mesure à  $\lambda = 532 \text{ nm}$ , les deux ajustements de courbes sont très proches des données expérimentales. Nous allons maintenant discuter de ces résultats.

### 3.4.4 Discussion sur les mesures des indices de réfraction non-linéaires

Que ce soit à  $\lambda = 532 \text{ nm}$  ou à  $\lambda = 1064 \text{ nm}$ , les ajustements de courbes présentent tous un très bon accord. Les ajustements ne tenant compte que des effets cubiques, suivant la fonction (3.138), et ceux considérant une contribution cubique et quintique, suivant la fonction (3.137) se superposent (voir les figures 3.10 et 3.12). Il est ainsi difficile de dire lequel des ajustements correspond à la situation réelle.

Si on s'intéresse au spectre d'absorption (voir figure 3.1), on remarque qu'aux longueurs d'ondes qui nous intéressent la troisième harmonique est résonnante. Nous avons

établi précédemment que si on a une troisième harmonique résonnante, les non-linéarités quintiques ne peuvent être ignorés (voir partie 3.2.2). Ainsi il est juste de considérer  $\gamma$  non nul. De plus, il est connu qu'à  $\lambda = 532$  nm le disulfure de carbone a une absorption à deux photons nulle [141, 143, 151]. Par conséquent ce sont les ajustements tenant compte de  $n_2$ ,  $n_4$  et  $\gamma$  et surtout les valeurs de ces derniers qui devraient décrire au mieux la réponse du disulfure de carbone. À  $\lambda = 532$  nm les coefficients ont pour valeurs  $\gamma = (9.3 \pm 1.9) \times 10^{-26} \text{ m}^3/\text{W}^2$ ,  $n_2 = (1.5 \pm 0.3) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$  et  $n_4 = (1.2 \pm 0.3) \times 10^{-32} \text{ m}^4/\text{W}^2$ . Tandis qu'à  $\lambda = 1064$  nm, ceux-ci ont pour valeurs  $\gamma = (4.6 \pm 1.9) \times 10^{-27} \text{ m}^3/\text{W}^2$ ,  $n_2 = (4.5 \pm 1.3) \times 10^{-19} \text{ m}^2/\text{W}$  et  $n_4 = (2.2 \pm 0.4) \times 10^{-33} \text{ m}^4/\text{W}^2$ .

Cependant, nous avons mesuré les non-linéarités à faible intensité pour déterminer ceux à forte intensité. Si nous n'avions que les données à forte intensité et que nous n'avions pas accès au spectre d'absorption, la confusion aurait pu être facile. Nous aurions alors surestimé l'indice de réfraction du troisième ordre :  $n_2$ . Cette erreur peut être évitée en faisant, au préalable, une série de mesure à faible intensité. On notera toutefois que le disulfure de carbone est très souvent utilisé pour calibrer les systèmes de mesures non-linéaire puisqu'il présente un signal non-linéaire important. De plus, jusqu'à maintenant la valeur du  $n_2$  était connue présentement et était considérée comme peu dépendante de l'intensité du faisceau, or nous venons de voir que les effets de l'indice de réfraction quintiques interviennent dans les mesures. Et comme nous venons de le préciser il est très facile de surestimer la valeur de  $n_2$ . Au-delà du fait que ce matériau peut présenter une réponse non-linéaire suivant les caractéristiques du faisceau incident : longueur d'onde, durée d'impulsion, polarisation ... Nous démontrons ici la dépendance suivant l'intensité du faisceau incident. Il est alors préférable de ne pas utiliser le  $\text{CS}_2$  pour calibrer les mesures, ou alors il est nécessaire de clairement indiquer l'intensité du faisceau utilisée durant le processus de calibration. Une bonne alternative à ce matériau est le verre de quartz. Celui présente un temps de réponse très rapide (de l'ordre de la femtoseconde) mais nécessite une intensité très importante pour exciter les réponses du troisième ordre.

On notera que les valeurs de la réfraction non-linéaire du cinquième ordre sont, à  $\lambda = 532$  nm,  $n_4 = (1.2 \pm 0.3) \times 10^{-32} \text{ m}^4/\text{W}^2$  et, à  $\lambda = 1064$  nm,  $n_4 = (2.2 \pm 0.4) \times 10^{-33} \text{ m}^4/\text{W}^2$ . Dans ces deux cas,  $n_4$  est positif. Or De Gui KONG et Al. établisent que la valeur de  $n_4$  à  $\lambda = 800$  nm en régime femtoseconde est  $n_4 = -2 \times 10^{-35} \text{ m}^4/\text{W}^2$  [141]. Tan-

dis que Edilson L. FALCÃO-FILHO et Al. ont déterminé la valeur de  $n_4$  à  $\lambda = 920$  nm en régime femtoseconde (100 fs) :  $n_4 = -5.2 \times 10^{-35} \text{ m}^4/\text{W}^2$  [11]. Ces deux dernières valeurs sont négatives. Tous ces résultats sont établis à proximité d'une bande d'absorption à la troisième harmonique. Nous avons déterminé, dans le paragraphe 3.2.2, que dans le cas de la résonance à la troisième harmonique le fait de franchir, en changeant la fréquence du faisceau incident, la fréquence de résonance  $\omega_0$  le signe de l'indice de réfraction du cinquième ordre change. C'est-à-dire que à l'instant où l'on dépasse cette fréquence,  $n_4$  change de signe. Si on suppose que dans une bande d'absorption, la fréquence de résonance est unique. C'est-à-dire qu'il n'y a qu'une seule fréquence de résonance par bande d'absorption. Ainsi puisque à  $\lambda = 532$  nm on a trouvé un indice  $n_4$  positif. De Gui KONG et Al. ont établi qu'à  $\lambda = 800$  nm,  $n_4$  est négatif. On a donc franchi la fréquence de résonance. De même, Edilson L. FALCÃO-FILHO et Al. ont déterminé que  $n_4$  est négatif à  $\lambda = 920$  nm. Or nous avons déterminé qu'à  $\lambda = 1064$  nm, la valeur de  $n_4$  est positif. On a donc franchi de nouveau une fréquence de résonance.

Un point à retenir est qu'il est possible de déterminer la fréquence de résonance d'une bande d'absorption en trouvant, pour deux longueurs d'onde proches, des indices de réfraction du cinquième ordre de signes opposés. Ainsi on peut déterminer que le disulfure de carbone à une fréquence de résonance comprise entre 1,69 PHz, troisième harmonique de  $\lambda = 532$  nm (177 nm), et 1,12 PHz, troisième harmonique de  $\lambda = 800$  nm (267 nm). De même, il y a une autre fréquence de résonance qui est comprise entre 0,94 PHz, troisième harmonique de  $\lambda = 960$  nm (320 nm), et 0,84 PHz, troisième harmonique de  $\lambda = 1064$  nm (355 nm).

Enfin on notera que d'après la formule 3.54, plus on se rapproche de la fréquence de résonance plus la valeur de  $n_4$  est grande. En combinant ces deux caractéristiques il est possible de savoir si on se rapproche ou si l'on franchit la fréquence de résonance.

## 3.5 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons déterminé les caractéristiques non-linéaires du disulfure de carbone jusqu'au cinquième ordre pour un faisceau laser incident de  $\lambda = 532$  nm et  $\lambda = 1064$  nm en régime picoseconde, respectivement, 12 ps et 17 ps. Nous avons tout

d'abord présenté une approche simple consistant à considérer le barycentre du nuage comme une charge ponctuelle classique soumise à une force de Coulomb dû à un champ extérieur ainsi qu'à un potentiel dû à la molécule. Ce modèle correspond à celui de l'oscillateur anharmonique classique avec un potentiel quintique. En résolvant ce dernier et en considérant le cas particulier de la troisième harmonique résonante (cas du disulfure de carbone), nous avons pu obtenir des expressions pour l'indice de réfraction quintique  $n_4$  et pour l'absorption à trois photons  $\gamma$ . Grâce à ces résultats, nous avons prédit que le signe de  $n_4$  change suivant que la fréquence spatiale incidente franchisse la fréquence de résonance. En outre, plus la fréquence spatiale du laser est proche de la fréquence de résonance, plus la valeur de  $n_4$  est importante.

Cependant, il est nécessaire de prendre en compte les effets du champ local afin de corriger les expressions obtenues. Pour cela nous avons utilisé la définition du champ local de Lorentz jusqu'au cinquième ordre. Nous avons ainsi déterminé les formules de la composante linéaire, cubique et quintique de la polarisation. En reprenant les hypothèses correspondantes à nos matériaux, nous avons démontré que les corrections sur les hyperpolarisabilités quintiques sont négligeables.

Bien que le montage expérimental utilisé est un montage Z-scan classique intégré avec un système imageur 4f, la mesure des non-linéarités quintiques a nécessité l'utilisation de différentes méthodes de mesures et d'analyses numériques. Tout d'abord nous avons présenté la méthode d'open-aperture Z-scan, celle-ci nous a permis de mesurer les variations de transmission en fonction de la position de la cuve remplie de  $\text{CS}_2$ . Cette méthode est déjà bien connue et maîtrisée. L'analyse des données expérimentales est quand à elle la véritable innovation. En effet le système imageur 4f permet d'utiliser l'optique de Fourier [108] pour calculer numériquement la propagation du faisceau avant et après l'échantillon. Pour la propagation à l'intérieur de l'échantillon, nous avons résolu analytiquement l'équation décrivant l'évolution de l'intensité en fonction de la taille de l'échantillon en tenant compte des absorptions linéaire, à deux photons et à trois photons (voir équation (2.30)). Malheureusement les solutions analytiques expriment la taille de l'échantillon en fonction de l'intensité et il est impossible des les inverser. Nous avons utilisé la méthode de Newton afin d'inverser numériquement les solutions. Il a alors été possible de résoudre numériquement la propagation du faisceau depuis l'entrée du montage jusqu'à la caméra

CCD. L'ajustement de la courbe expérimentale ainsi obtenue a permis de quantifier l'absorption à trois photons du  $\text{CS}_2$  à 532 nm :  $\gamma = (9.3 \pm 1.9) \times 10^{-26} \text{ m}^3/\text{W}^2$  ; et à 1064 nm :  $\gamma = (4.6 \pm 0.9) \times 10^{-27} \text{ m}^3/\text{W}^2$ . On notera que cette méthode est valable pour la mesure de l'absorption non-linéaire cubique.

Pour la mesure des indices de réfraction non-linéaires, nous avons présenté la méthode  $D4\sigma$ . Elle consiste à mesurer la variation du rayon du faisceau en fonction de la position de l'échantillon. Nous avons ainsi mesuré à 532 nm, la réfraction non-linéaire cubique  $n_2 = (1.5 \pm 0.3) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$  et quintique  $n_4 = (1.2 \pm 0.3) \times 10^{-32} \text{ m}^4/\text{W}^2$ . Les mêmes mesures ont été faites à 1064 nm. Les résultats sont :  $n_2 = (4.5 \pm 1.3) \times 10^{-19} \text{ m}^2/\text{W}$  et  $n_4 = (2.2 \pm 0.4) \times 10^{-33} \text{ m}^4/\text{W}^2$ .

Nous avons ainsi caractérisé les non-linéarités du disulfure de carbone. Nos résultats ont permis de mettre en lumière le fait que ce matériau ne présente pas d'absorption à deux photons à 532 nm et 1064 nm. De plus, on observe un changement de signe de  $n_4$  entre nos mesures et celles d'autres publications [11, 141]. Notre modèle théorique propose une explication, cela serait dû à un franchissement par la troisième harmonique de la fréquence de résonance des bandes d'absorptions. De plus, nous avons démontré qu'il était possible de sur-estimer la valeur de l'indice de réfraction si l'on ne mesure les non-linéarités qu'à forte intensité. C'est-à-dire là où la réponses quintiques ne peut être négligée.

On notera pour finir qu'il est possible de prédire théoriquement les valeurs des indices non-linéaire quintiques. Cependant, cela implique de connaître l'indice de réfraction linéaire ainsi que l'absorption linéaire à la troisième harmonique.

L'observation de la dynamique spatiale de la lumière à travers le disulfure de carbone liquide a permis d'observer expérimentalement le phénomène de filamentation du faisceau. Cependant les modèles existant explique la filamentation en utilisant un équilibre entre les effets liés à  $n_2$  et ceux à  $n_4$  : c'est la saturation de l'effet Kerr. Cela n'est possible que si  $n_2$  est positif et que  $n_4$  est négatif. Ce qui n'est pas notre cas. Il est alors nécessaire de trouver un nouveau modèle décrivant les observations expérimentales. De plus ce modèle doit être confirmé par des mesures expérimentales. La mesure de l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre relatif, c'est-à-dire dépendant de l'intensité incidente, grâce aux méthodes de mesures que nous venons de présenter est une piste pour établir notre nouveau modèle. C'est le sujet du prochain chapitre.





# Chapitre 4

## Filamentation dans le disulfure de carbone

### 4.1 Introduction

L'invention du laser durant les années 1960 (laser rubis en 1960 par Théodore MAIMAN, laser à gaz par Ali JAVAN et laser à liquide en 1966 par Peter SOROKIN) a permis l'observation de phénomènes issus de l'interaction entre la lumière laser et la matière. C'est l'avènement d'un nouveau domaine de la physique : l'optique non-linéaire. Historiquement, c'est avec l'observation expérimentale de la génération de la seconde harmonique en 1961 par P. A. FRANKEN et al., qu'a débuté l'optique non-linéaire. À partir de cette date, de nombreux travaux de recherches se sont attachés à étudier ces interactions. Ainsi de très nombreux phénomènes ont été découverts. Les intensités lumineuses étaient suffisamment importantes pour qu'il ne soit plus possible de considérer les paramètres optiques habituels de ces matériaux comme constants. Ceux-ci doivent être définies en fonction de l'intensité lumineuse.

En 1965, N. F. PILIPTESKII et al. observent expérimentalement une auto-focalisation du faisceau laser lors de son passage dans différents liquides qui conduit à une filamentation du faisceau [38]. Ce n'est que l'année suivante que V. I. BESPALOV et al. introduise un modèle décrivant ce phénomène en utilisant un effet Kerr cubique [101].

On définit la filamentation comme la situation pour laquelle un faisceau laser auto-focalise suffisamment pour s'effondrer.

À cet instant, ce dernier diminue de taille jusqu'à avoir un rayon étroit avec une intensité plus élevée qu'à l'origine. Le rayon du faisceau reste étroit même lorsque la distance de propagation du faisceau dépasse la longueur de Rayleigh. Contrairement au soliton, le filament n'est pas une structure localisée dans le temps ou l'espace. C'est donc une structure dynamique. Il est possible d'obtenir plus d'un filament à partir d'un unique faisceau. On notera que pour observer la filamentation d'un faisceau il est nécessaire que l'intensité de celui-ci soit très importante. Il est ainsi possible d'observer d'autres effets non-linéaires tels que la génération de hautes harmoniques ou la génération de supercontinuum.

De nombreux mécanismes ont été proposés pour expliquer l'arrêt de l'effondrement du faisceau. On citera par exemple des effets de la polarisation [39] ou l'ellipticité du faisceau [40]. En 1997, V. SKARKA et al. expliquent qu'il est possible de stabiliser les filaments ou les solitons, dans le cas spatial, avec un équilibre simultané entre l'auto-focalisation non-linéaire et la diffraction [15]. Différents travaux ont étudié l'influence des termes d'ordres supérieurs de la dispersion ainsi que l'auto-focalisation dû aux non-linéarités cubiques et quintiques [41]. Plus récemment, E. FALCÃO-FILHO et al. ont présenté un mécanisme de stabilisation dû à un équilibre entre  $\chi^{(3)}$  et  $\chi^{(5)}$  pour la propagation d'un soliton spatial tri-dimensionnel dans le cas du disulfure de carbone à  $\lambda = 920$  nm [11].

La filamentation dans l'air a aussi été étudiée et il a été montré que l'arrêt de l'effondrement du faisceau est dû à l'ionisation [44]. L. BERGÉ et al. ont observé expérimentalement la filamentation multiple de faisceau laser térawatt dans l'air [45].

La filamentation peut être utilisée pour de nombreuses applications. Notamment la fabrication de guide d'onde en modifiant de façon permanente l'indice de réfraction du milieu [46]. L'idée est d'endommager volontairement le milieu avec le faisceau laser en induisant et contrôlant sa filamentation. D'ores et déjà, de telles structures ont été réalisées par de nombreux groupes [47–53]. Pour espérer maîtriser les applications de la filamentation, il est important de comprendre en détails les mécanismes des interactions entre le faisceau laser et le milieu.

Dans ce chapitre nous allons étudier la filamentation dans le disulfure de carbone ( $\text{CS}_2$ ) d'un faisceau laser de longueur d'onde  $\lambda = 532$  nm en régime picoseconde. Nous présenterons tout d'abord une observation expérimentale du phénomène, puis nous chercherons

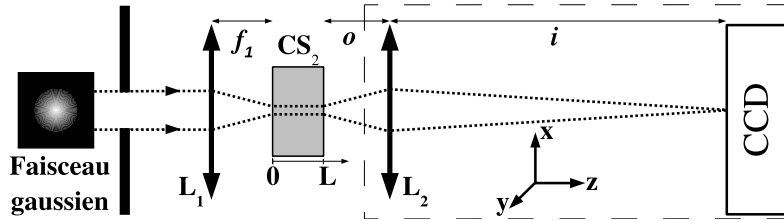


FIGURE 4.1 – Schéma du montage expérimental utilisé pour produire la filamentation et l’observer en sortie de la cuve de  $\text{CS}_2$  d’épaisseur  $L$ .  $L_1$  et  $L_2$  sont des lentilles. La focale de la lentille  $L_1$  est  $f_1$ .  $i$  indique la distance de l’image et  $o$  la distance de l’objet. La boîte en pointillés correspond au système imageur qui peut se déplacer suivant l’axe  $z$  afin de former l’image de la sortie de cuve sur la caméra avec un grossissement de  $\times 10$ .

à expliquer l’arrêt de l’effondrement grâce au mécanisme présenté par E. FALCÃO-FILHO et al. [11]. Nous reviendrons sur la mesure des non-linéarités du disulfure de carbone que nous avons présenté dans le paragraphe précédent (voir le chapitre 3). Mais nous verrons que celles-ci ne sont pas suffisantes pour expliquer l’arrêt de l’effondrement du faisceau. Nous procéderons à de nouvelles mesures et nous proposerons un modèle théorique inédit pour décrire la dynamique de la filamentation dans le  $\text{CS}_2$ . Enfin nous présenterons un nouveau modèle théorique.

## 4.2 Observation de la filamentation

Nous avons procédé à une observation expérimentale de la filamentation dans le disulfure de carbone. Notre source laser provient d’un laser impulsionnelle Nd :YAG polarisé linéairement à  $\lambda = 532 \text{ nm}$  avec une longueur temporelle de 12 ps et un profil temporel Gaussien. Le taux de répétition du laser est suffisamment faible afin de prévenir tout effet thermique. Le montage expérimental correspond à la figure 4.1. Le milieu utilisé est une cuve remplie de  $\text{CS}_2$  d’une épaisseur de  $L = 10 \text{ mm}$ . La distance focale de la lentille  $L_1$  est  $f_1 = 200 \text{ mm}$ . La cuve est disposée de sorte que le faisceau soit focalisé juste sur la face d’entrée. La boîte en pointillés est un système imageur comprenant la lentille  $L_2$  et la caméra CCD. Le système imageur se déplace suivant  $z$ , pour avoir l’image de la sortie de cuve sur le CCD, plus généralement de n’importe quel plan compris entre l’entrée et la sortie de la cuve (de  $z = 0$  jusqu’à  $z = L$ ). La distance  $o$  correspond à la distance entre le plan objet et la lentille  $L_2$ , tandis que la distance  $i$  correspond à la distance entre le plan image et la lentille  $L_2$ . Le rapport entre  $i$  et  $o$  est choisi pour avoir à un grossissement

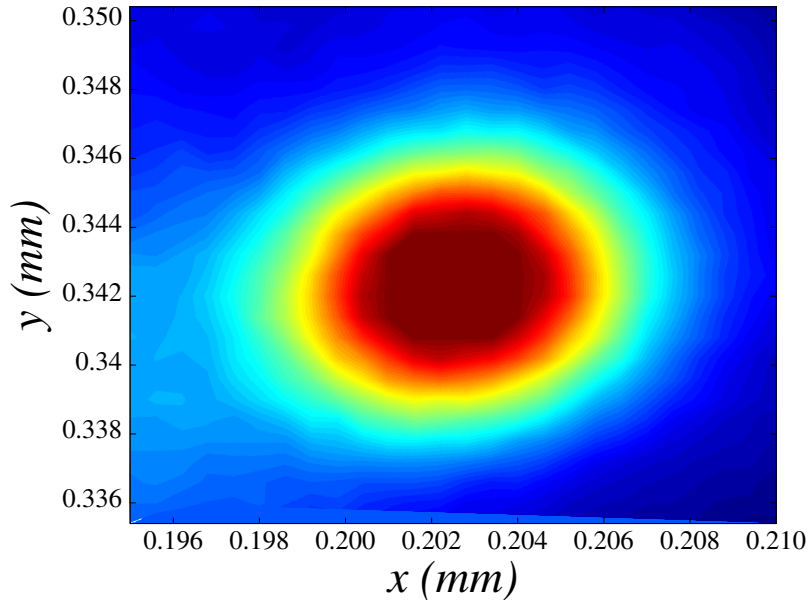


FIGURE 4.2 – Image de la sortie de cuve sur la caméra CCD. L'énergie relevée au joulemètre est de  $44 \text{ GW/cm}^2$ .

de 10. Le faisceau est collecté sur la caméra CCD. Le capteur de la caméra a une taille de  $(1024 \times 768)$ -pixels. Chaque pixel a pour dimension  $6.45 \times 6.45 \mu\text{m}^2$ . Les acquisitions de la caméra sont synchronisées avec les tirs lasers à l'aide d'un boîtier électronique relié à une photodiode rapide. A l'entrée du montage on a placé une lame demi-onde et un prisme de Glan. Ils permettent de contrôler l'intensité lumineuse à l'entrée de la cuve et ils assurent le maintien d'une polarisation linéaire. Enfin on utilise un filtre spatial à l'entrée du montage afin que le profil spatial du faisceau collimaté soit proche de la Gaussienne.

La distance de Rayleigh du faisceau est choisie pour correspondre à un dixième de l'épaisseur de la cuve :  $z_R = L/10 = 1 \text{ mm}$ . Pour obtenir ce résultat nous avons dû ajuster le diamètre du faisceau à l'entrée de  $L_1$ , compte tenu de la focale de la lentille. Ainsi le rayon du faisceau dans le plan focal était  $w_0 = \sqrt{z_R \lambda / \pi} = 13 \mu\text{m}$ .

D'après l'expression (1.42) [102], la puissance critique pour qu'un faisceau de profil gaussien filamente dans le disulfure de carbone est de  $0.018 \text{ MW}$ .

Pour cette première expérience, nous avons uniquement changé l'intensité. On notera que l'on utilise un joulemètre calibré pour relever l'énergie à l'entrée de la cuve.

Ainsi on a observé, via la caméra, la formation de filaments. Le premier filament est apparu lorsque le faisceau a une intensité de  $44 \text{ GW/cm}^2$  à l'entrée de la cuve (voir la figure 4.2). Si on considère le faisceau comme gaussien alors la puissance critique de filamentation est de  $0.074 \text{ MW}$ , soit une puissance 4 fois supérieure à celle calculée d'après l'expression

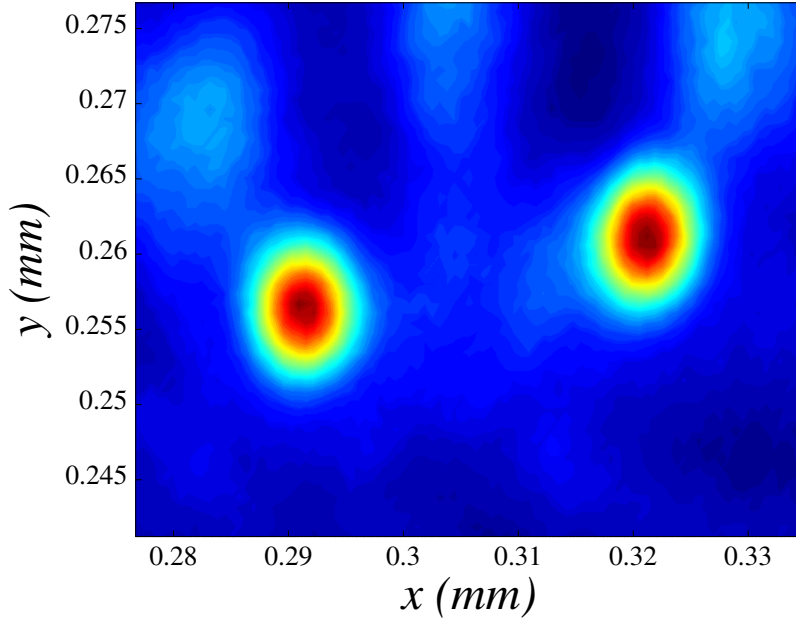


FIGURE 4.3 – Image de la sortie de cuve sur la caméra CCD. On peut observer la filamentation multiple du faisceau laser. L'énergie relevée au joulemètre est de  $85 \text{ GW/cm}^2$ .

(1.42). L'analyse numérique des données expérimentales donne une puissance critique de  $0.041 \text{ MW}$ , soit une puissance critique 2.3 fois supérieure à celle calculée d'après l'expression (1.42). Le rayon, suivant la définition  $D4\sigma$  du filament est estimé à  $(4 \pm 0.6) \mu\text{m}$ . Le filament est moins large que le faisceau dans le plan focal.

Le second filament apparaît lorsque l'énergie du faisceau est de  $85 \text{ GW/cm}^2$ . Les deux filaments présentent le même profil spatial et ils ont un rayon de  $4 \mu\text{m}$  (voir figure 4.3). L'intensité (et donc l'énergie) du faisceau à l'entrée de la cuve est le paramètre clef, en l'augmentant on augmente aussi le nombre de filaments. Par exemple, avec une intensité de  $440 \text{ GW/cm}^2$ , on observe une filamentation multiple (voir figure 4.4). On constate que les filaments ont des profils spatiaux proches les uns des autres.

Comme nous l'avons précisé dans l'introduction, le phénomène de filamentation est un phénomène d'optique non-linéaire. Parmi les différentes explications de l'arrêt de l'effondrement du faisceau, V. SKARKA et al. ont proposé un mécanisme d'équilibre entre l'auto-focalisation non-linéaire et la diffraction [15]. Récemment, E. FALCÃO-FILHO et al. ont observé expérimentalement des solitons bidimensionnels dans le disulfure de carbone [11]. Ils expliquent la stabilité des solitons par un équilibre entre les susceptibilités non-linéaires cubique et quintique. Ainsi ils ont considéré un indice de réfraction non-linéaire cubique,  $n_2$ , positif et un indice de réfraction non-linéaire quintique,  $n_4$ , négatif.

D. KONG et al. ont mesuré à  $800 \text{ nm}$  un indicé  $n_4$  négatif [141], de même la valeur

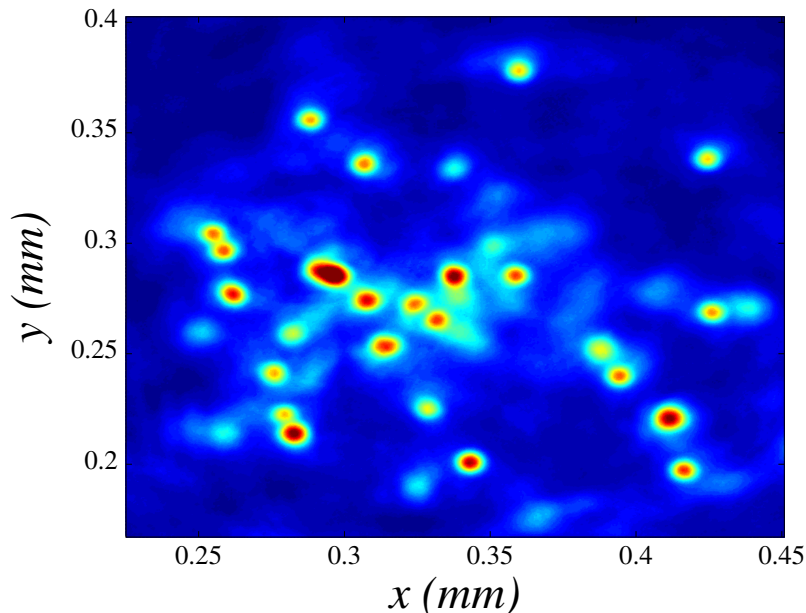


FIGURE 4.4 – Image de la sortie de cuve sur la caméra CCD. On peut observer la filamentation multiple du faisceau laser. L'énergie relevée au joulemètre est de  $440 \text{ GW/cm}^2$ .

de ce même indice à  $918 \text{ nm}$  que E. FALCÃO-FILHO et al. ont publié est négative [11]. Cependant, nous avons mesuré à  $532 \text{ nm}$  et  $1064 \text{ nm}$  des indices  $n_4$  positifs (voir le chapitre 3). Cette opposition de signes entre nos mesures et celles de D. KONG et al. et de E. FALCÃO-FILHO et al. s'explique par le fait que nous franchissons un pic de résonance à  $3\omega$  pour  $\lambda = 532 \text{ nm}$  et  $1064 \text{ nm}$ . Le premier pic de résonance se situe à environ  $200 \text{ nm}$  tandis que le second se situe à  $317 \text{ nm}$ . L'équilibre de l'effondrement du faisceau peut-être expliqué par la saturation de l'effet grâce à l'indice  $n_4$ , alors de signe opposé à  $n_2$ . Puisque nous n'avons pas cette opposition de signe, nous devons trouver un autre modèle.

Il est probable qu'un mécanisme d'équilibre apparaisse en mesurant les indices de réfraction non-linéaire des ordres supérieurs. Mais un modèle reposant sur une saturation de l'effet Kerr, suppose que l'on puisse développer en fonction de l'intensité les indices de réfraction non-linéaires. S'il est raisonnable de penser que dans un régime faiblement non-linéaire, seul les non-linéarités cubiques et quintiques, autrement dit les susceptibilités non-linéaires du troisième et cinquième ordres, s'expriment et que par conséquent il est possible de négliger les ordres supérieurs. Cela n'est plus forcément le cas lorsque l'on commence à considérer le septième ordre. De plus, puisque les indices d'ordres non-linéaires successifs sont de plus en plus petits, il est impossible de justifier le fait de négliger les termes à partir d'un certain ordre. Et même si nous considérerions un très grand nombre d'ordres, il est très difficile de mesurer les indices non-linéaires d'ordres supérieurs à cinq.

Par conséquent il est nécessaire de trouver un nouveau modèle décrivant la filamentation et l'arrêt de l'effondrement du faisceau. Dans le prochain chapitre nous allons mesurer l'indice de réfraction cubique effectif. C'est-à-dire que nous ne considérons plus un indice  $n_2$  indépendant de l'intensité, mais un indice de réfraction cubique pouvant varier en fonction de l'intensité du faisceau. Nous allons tout d'abord présenter notre méthode de mesure, puis notre montage expérimental et enfin nous présenterons les valeurs mesurées.

## 4.3 Mesure de l'indice de réfraction cubique effectif

Dans ce chapitre nous allons présenter la méthode expérimentale que nous avons utilisée pour mesurer l'indice de réfraction cubique effectif  $n_{2,eff}$ . Le laser utilisé pour ces mesures est le même que celui utilisé pour l'observation expérimentale de la filamentation dans le disulfure de carbone. Cependant, nous avons mesuré l'indice de réfraction cubique effectif à deux longueurs d'ondes différentes :  $\lambda = 532$  nm et  $\lambda = 1064$  nm.

Nous allons tout d'abord présenter la méthode de mesure utilisée.

### 4.3.1 Méthodes expérimentales

De nombreuses méthodes de mesures des non-linéarités existent. Une des plus connues est celle développée par M. Sheik-Bahae et al. : la méthode Z-scan [22, 23]. Nous utilisons ici une méthode dérivée de cette dernière. En effet, nous employons un montage Z-scan compris dans un système imageur 4f. Nous avons déjà décrit dans le chapitre 3.4 ce montage. Cependant, afin d'éviter au lecteur un aller-retour entre les pages, nous allons redonner suffisamment de détails à propos à cette méthode ainsi que le schéma du montage expérimental. Toutefois, si le lecteur souhaite en apprendre d'avantage, nous le renvoyons au chapitre 3.4.

On propage un faisceau laser issue d'une source laser Nd :YAG, il est possible d'avoir des impulsions de longueur d'onde  $\lambda = 532$  nm, avec une durée temporelle de 12 ps, ou  $\lambda = 1064$  nm, avec une durée temporelle de 17 ps. Le taux de répétition est inférieur à 1 Hz grâce à un obturateur commandé par le système d'acquisition situé à l'entrée du montage, on évite ainsi de mesurer des non-linéarités influencées par les effets thermiques. Le faisceau est polarisé linéairement. Comme pour le montage expérimental présenté dans



le chapitre 4.2, on contrôle l'intensité du faisceau et la linéarité de la polarisation grâce à une lame demi-onde et un prisme de Glan. Le montage 4f [108] (voir la figure 4.5) est composé de deux lentilles,  $L_1$  et  $L_2$ . Le faisceau dans le plan objet (à la focal) de

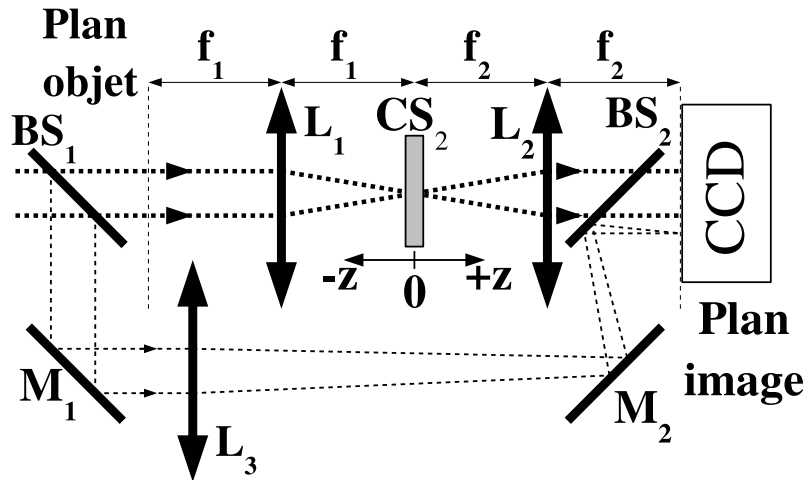


FIGURE 4.5 – Schéma de montage expérimental utilisé pour faire les mesures de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre de la cuve remplie de disulfure de carbone. Il est composé de :  $BS_1$  et  $BS_2$ , deux séparatrices ;  $M_1$  et  $M_2$ , deux miroirs ;  $L_1$  jusqu'à  $L_3$ , trois lentilles avec des distances focales de  $f_1$  à  $f_3$  ; et une caméra CCD refroidie pour l'acquisition des images. Le filtre numérique permet de passer d'une méthode mesure à l'autre : Open-perture Z-scan (OA), Closed-aperture Z-scan (CA) ou  $D4\sigma$ -Z-scan ( $D4\sigma$ ).

la lentille  $L_1$  est de forme circulaire, on utilisera la terminologie anglaise : faisceau top-hat pour signifier que l'intensité qui a un profil gaussien diaphragmé à son sommet où l'intensité varie faiblement. La lentille  $L_1$  nous permet d'obtenir la transformée de Fourier spatiale [108] du faisceau se trouvant à l'entrée du montage dans le plan focal où se trouve le milieu non-linéaire, une cuve d'épaisseur de  $1\text{ mm}$  remplie de disulfure de carbone, placé sur une translation motorisée. Cette translation est placée entre les lentilles  $L_1$  et  $L_2$ , de telle sorte que lorsque la cuve se trouve au milieu de la translation sa position coïncide avec le plan focal de la lentille  $L_1$ . La translation s'effectue parallèlement à la direction de propagation du faisceau. On notera que la translation permet un déplacement pas à pas de la cuve remplie de  $CS_2$ . La lentille  $L_2$  est placée pour que son plan objet soit équivalent au plan focal de la lentille  $L_1$ . On utilise une caméra refroidie ( $-30^\circ\text{C}$ ) avec un capteur de  $1000 \times 1018$  pixels. Chaque pixel mesure  $12 \times 12\mu\text{m}^2$ . La caméra est placée dans le plan image de la lentille  $L_2$ . C'est-à-dire la transformée de Fourier de la transformée de Fourier du plan objet de la lentille  $L_1$ . Cela permet de facilement caractériser l'objet qui se trouve à l'entrée du système, c'est-à-dire notre faisceau top-hat. L'optimisation de ce

montage à fait l'objet d'une thèse [36] ce qui a permis d'améliorer la sensibilité de notre méthode de mesure tout en maximisant le rapport signal optique sur bruit généré par le système.

On notera que la séparatrice  $BS_1$  sépare le faisceau en deux parts non-égales. 92 % du faisceau entre dans le montage 4f, tandis que 8 % est dirigé dans le second bras. Ce dernier est composé de deux miroirs,  $M_1$  et  $M_2$  et d'une seconde séparatrice  $BS_2$ . Ce second bras sert à enregistrer les variations en énergie du laser afin de les corriger lors du traitement des données.

On procède à deux balayages successifs. Le premier balayage est effectué en régime linéaire, c'est-à-dire à une intensité suffisamment faible pour ne pas observer d'effets non-linéaires. Le second est effectué en régime non-linéaire. Les données du premier balayage serviront à corriger les inhomogénéités du milieu et les effets de la diffraction linéaire. Cela améliore sensiblement la précision des mesures des indices non-linéaires.

La méthode de mesure nécessite de calibrer l'intensité incidente, on utilise pour cela un milieu non-linéaire, historiquement, le disulfure de carbone. Récemment, des méthodes dites "absolues" ont vu le jour et permettent de ne pas avoir à calibrer la mesure [37]. La mesure de l'intensité est alors la principale source d'incertitude dans nos mesures, celle-ci est donnée par un joulemètre avec une précision de 10 % aux longueurs d'ondes considérées. Nous ne tiendrons pas compte des erreurs générées par la durée des impulsions que l'on considère comme constante quelque soit le tir et le vieillissement du colorant laser ("dye laser") qu'il faut remplacer toutes les 3 semaines. Cette source d'erreur peut être importante mais n'est pas quantifiable de façon précise compte tenu de la brièveté de l'impulsion.

Nous allons maintenant présenter la méthode de traitement numérique des données expérimentales.

### 4.3.2 Traitement numérique des données

Comme pour les mesures des indices de réfraction non-linéaire du troisième et du cinquième ordre que nous avons présenté dans le chapitre 3.4.1, on utilisera la méthode  $D4\sigma$  [122,154–156] pour traiter numériquement les données expérimentales. Puisque cette méthode a déjà été présentée dans le chapitre précédant, nous rappellerons ici seulement

les informations nécessaires à la compréhension. Si le lecteur souhaite en apprendre plus, il trouvera des informations complémentaires au chapitre 3.4.1.

La méthode D4 $\sigma$  consiste à mesurer, pour chaque image prise par la caméra, le rayon du faisceau  $w$ . Pour cela on calcule l'écart type de la distribution marginale qu'est le profil du faisceau  $I(x, y)$  :

$$w_x = 2 \sqrt{\frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y) (x - \bar{x})^2 dx dy}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y) dx dy}}, \quad (4.1)$$

où

$$\bar{x} = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} x I(x, y) dx dy}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(x, y) dx dy}. \quad (4.2)$$

La formule du rayon du faisceau suivant la dimension  $y$  est identique à la formule (4.1) en remplaçant  $x$  et  $\bar{x}$ , respectivement, par  $y$  et  $\bar{y}$ . Le calcul du rayon du faisceau est fait à chacune des positions de la cuve, pour le balayage en régime linéaire ( $w_L$ ) et en régime non-linéaire ( $w_{NL}$ ). On peut alors calculer la variation relative du rayon du faisceau  $\Delta w(z)$  en fonction de la position du milieu non-linéaire

$$\Delta w(z) = \frac{w_{NL}(z) - w_L(z)}{w_L(z)}. \quad (4.3)$$

Une fois que nous avons traité nos données expérimentales, l'étape suivante est d'en extraire l'indice recherché. On notera qu'ici nous n'utiliserons pas la méthode de Newton pour obtenir les valeurs des indices de réfraction non-linéaire, mais une relation entre la différence de valeur de la variation relative du rayon du faisceau maximale (pic) et minimale (vallée)  $\Delta w_{pv}$  et le déphasage non-linéaire effectif à l'origine  $\varphi_{NLO}^{eff}$ . Le lecteur trouvera plus de détails dans le paragraphe 2.4.

Avant d'introduire cette relation, il est nécessaire de connaître le profil de l'intensité du faisceau à l'entrée du milieu non-linéaire. Puisque l'on utilise un montage 4f, on peut se servir de l'optique de Fourier et ainsi suivre analytiquement la propagation du faisceau du plan objet de la lentille  $L_1$  à l'entrée de la cuve. En supposant un profil de faisceau dans le plan objet défini comme  $E(x, y)$ , celui-ci aura pour spectre spatial  $S(u, v) = \mathcal{F}[E(x, y)]$ , où  $\mathcal{F}$  indique l'opérateur transformée de Fourier et  $(u, v)$  sont les fréquences spatiales normalisées. On peut ainsi propager l'onde sur une distance  $z'$  finie en appliquant la

fonction de transfert

$$H(u, v) = \exp\left(i2\pi z' \sqrt{1 - (\lambda u)^2 - (\lambda v)^2}\right). \quad (4.4)$$

Cette fonction permet de propager le faisceau du plan objet à l'entrée de la lentille  $L_1$  et de la sortie de la lentille à l'entrée de la cuve. De plus on suppose la lentille convergente  $L_1$  mince, par conséquent la propagation de l'onde au travers la lentille n'induit qu'une variation dans la phase du faisceau. On applique alors la fonction de transformation de phase

$$t_{L_1}(x, y) = \exp\left[-\frac{i\pi(x^2 + y^2)}{\lambda f_1}\right], \quad (4.5)$$

où  $f_1$  est la distance focale de la lentille  $L_1$ .

Une fois ces étapes faites, il reste à prendre en compte la propagation au sein du milieu non-linéaire. La relation entre la différence de valeur de la variation relative du rayon du faisceau maximal (pic) et minimal (vallée)  $\Delta w_{pv}$  et le déphasage non-linéaire effectif à l'origine  $\varphi_{NL0}^{eff}$  est établi dans l'espace des fréquences. On suppose ainsi un milieu non-linéaire mince, c'est-à-dire que l'épaisseur  $L$  du milieu doit être inférieur à la longueur de diffraction du faisceau : la longueur de Rayleigh. On suppose aussi que le milieu ne présente que des non-linéarités cubiques, soit l'absorption linéaire  $\alpha$  ( $m^{-1}$ ), l'absorption à deux photons  $\beta$  ( $m/W$ ) et la réfraction non-linéaire du troisième ordre  $n_2$  ( $m^2/W$ ). Le déphasage non-linéaire induit par un milieu à la position  $z$  est défini

$$\Delta\phi_{NL}^{eff}(u, v, z) = \frac{2\pi n_2 L_{eff} I_{eff}(u, v, z)}{\lambda}, \quad (4.6)$$

où

$$L_{eff} = [1 - \exp(-\alpha L)] / \alpha \quad (4.7)$$

est la longueur effective, et

$$I_{eff}(u, v, z) = I(u, v, z) \log[1 + q(u, v, z)] / q(u, v, z) \quad (4.8)$$

est l'intensité effective. On définit  $q(u, v, z) = \beta L_{eff} I(u, v, z)$ . Il est important de remarquer que si l'absorption linéaire est nulle, la longueur effective correspond à l'épais-

seur du milieu non-linéaire  $L_{eff} = L$ . De même, si l'absorption à deux photons est nulle, alors l'intensité effective équivaut à l'intensité à l'entrée du milieu non-linéaire  $I_{eff}(u, v, z) = I(u, v, z)$ .

Effectivement, dans le cas des mesures des non-linéarités du troisième ordre du disulfure de carbone aux longueurs d'ondes de  $\lambda = 532$  nm et  $\lambda = 1064$  nm, l'absorption linéaire et l'absorption à deux photons sont nulles. Considérons alors le déphasage non-linéaire au centre de l'axe de propagation ( $u = 0$  et  $v = 0$ ) induit par un milieu se trouvant dans le plan focal de la lentille  $L_1$  ( $z = 0$ ), on pose  $\Delta\phi_{NL}^{eff}(0, 0, 0) = \varphi_{NL0}^{eff}$ . On pose également  $I(0, 0, 0) = I_0$ . La relation (4.6) devient alors

$$\varphi_{NL0}^{eff} = \frac{2\pi n_2 L I_0}{\lambda}. \quad (4.9)$$

On introduit la relation entre la variation relative du rayon du faisceau et le déphasage non-linéaire effectif

$$\Delta w_{pv} = 0.34 \times \varphi_{NL0}^{eff}. \quad (4.10)$$

Par conséquent on peut déterminer l'indice de réfraction non-linéaire  $n_2$  dès lors que l'on connaît l'ensemble des paramètres de la relation (4.9), ce qui est notre cas. On notera que  $n_2 \equiv n_{2,eff}$  dans le cas nous concernant.

Il est important de noter que cette méthode reste valide si l'on peut considérer le milieu non-linéaire comme peu épais [23]. C'est-à-dire que l'on peut considérer l'auto-réfraction comme une action externe au milieu,

$$\varphi_{NL0}^{eff} < \frac{Z_R}{L}, \quad (4.11)$$

où  $Z_R$  est la longueur de Rayleigh du faisceau et  $L$  est l'épaisseur du milieu. D'après M. SHEIK-BAHAË et al [23],  $\varphi_{NL0}^{eff}$  ne doit pas excéder  $\pi$ . Dans le cas contraire, l'auto-focalisation ne peut être négligée et la taille de faisceau observée serait alors inférieure à celle mesurée en ne tenant compte que de la réfraction non-linéaire. Les indices  $n_2$  mesurés seraient sur-estimés. Dans une première approche nous avons négligé l'influence de l'auto-focalisation sur les mesures. Cependant, de récents calculs (actuellement en cours) amèneront des corrections minimales aux résultats publiés et figurant dans cette thèse.

Nous pouvons maintenant présenter les résultats de mesures.

### 4.3.3 Résultats des mesures de $n_{2,eff}$

Nous avons procédé à la mesure des indices de réfraction non-linéaires effectifs du troisième ordre  $n_{2,eff}$ . Ces mesures ont été faites à deux longueurs d'ondes différentes :  $\lambda = 532$  nm et  $\lambda = 1064$  nm, en régime picoseconde. Nous présenterons tout d'abord les mesures effectuées à  $\lambda = 532$  nm puis celles à  $\lambda = 1064$  nm.

#### Mesures à $\lambda = 532$ nm

Nous avons choisi de présenter les résultats dans le tableau 4.1. Les mesures de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre  $n_{2,eff}$  ont été faites sur une plage d'intensité allant de  $I_0 = 1.8$  à  $101$  GW/cm<sup>2</sup>. On remarque que les valeurs de  $n_{2,eff}$  augmentent en même temps que l'intensité et cela même avec une intensité relativement faible (1.8 à 3 GW/cm<sup>2</sup>). La non-linéarité cubique du disulfure de carbone apparaît comme non-constante. Les valeurs de  $n_{2,eff}$  atteignent un palier pour une intensité proche de 17 GW/cm<sup>2</sup>. Au delà de cette intensité les valeurs de  $n_{2,eff}$  décroissent. On notera que pour la mesure de  $n_{2,eff}$  à 101 GW/cm<sup>2</sup>, le déphasage non-linéaire effectif dans le plan focal est de l'ordre de  $\pi$ . En adéquation avec ce que nous avons présenté dans le paragraphe 4.3.2, les valeurs de  $n_{2,eff}$  ont pu être surévaluées. Nous pensons que lorsque l'intensité augmente, dans le cas où l'auto-focalisation a pu avoir une forte influence, alors les valeurs de  $n_{2,eff}$  seraient plus faibles et la décroissance devrait être alors plus forte.

Nous avons représenté les mesures de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre ( $n_{2,eff}$ ) suivant l'intensité incidente  $I_0$  sur la figure 4.6. La figure 4.6 montre que les variations de l'indice  $n_{2,eff}$  ne suivent aucun des modèles précédemment proposés [11, 15]. Ainsi il est impossible de définir, de manière standard,  $n_{2,eff} = n_2 + n_4 I$  puisque  $n_4$  ne serait alors pas constant. Il est nécessaire de développer un nouveau modèle pour décrire l'évolution de  $n_{2,eff}$ . C'est avec ce nouveau modèle qu'il nous sera possible d'expliquer le mécanisme d'arrêt de l'effondrement du faisceau et de décrire le phénomène de filamentation.

De plus, il est connu que les matériaux ont des réponses différentes suivant la largeur temporelle de l'impulsion, sa longueur d'onde et sa polarisation. Il apparaît nettement que

$I_0$ (en GW/cm <sup>2</sup> )	$(n_{2,eff} \pm \Delta n_{2,eff}) \times 10^{-18}$ (en m <sup>2</sup> /W)
1.8	$0.9 \pm 0.2$
2	$1.1 \pm 0.5$
3.1	$1.0 \pm 0.3$
7	$1.7 \pm 0.2$
10	$2.5 \pm 0.3$
14	$2.7 \pm 0.4$
17	$3.3 \pm 0.4$
25	$2.7 \pm 0.4$
70	$2.1 \pm 0.4$
101	$0.84 \pm 0.2$

TABLE 4.1 – Mesure de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre ( $n_{2,eff}$ ) suivant l'intensité incidente  $I_0$  à  $\lambda = 532$  nm suivant la méthode D4 $\sigma$ .  $\Delta n_{2,eff}$  correspond à l'incertitude sur la mesure de  $n_{2,eff}$ .

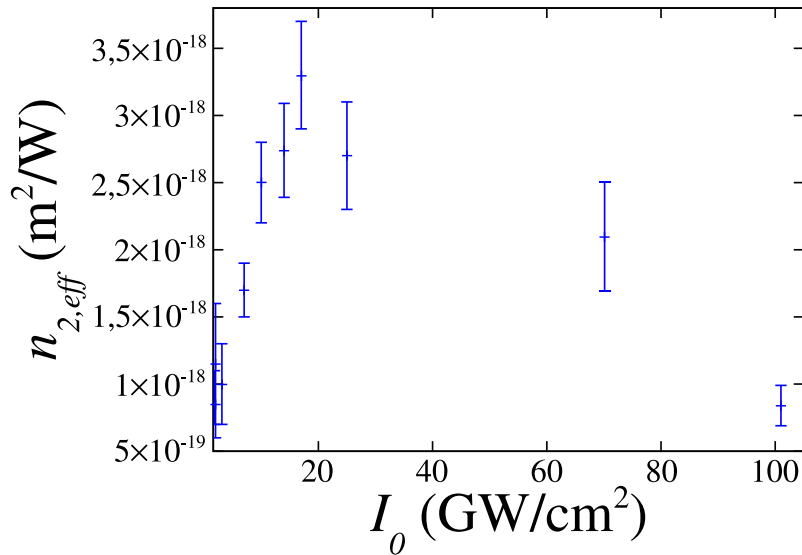


FIGURE 4.6 – Mesure de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre ( $n_{2,eff}$ ) en fonction de l'intensité incidente  $I_0$  à  $\lambda = 532$  nm. Les barres verticales correspondent aux incertitudes sur la mesure.

le disulfure de carbone présente un indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre ( $n_{2,eff}$ ) qui varie rapidement avec l'intensité. Comme dans le cas des mesures des non-linéarités quintiques du disulfure de carbone faites dans le paragraphe 3, les mesures de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre ( $n_{2,eff}$ ) remettent en cause l'utilisation de ce matériau comme référence pour calibrer l'intensité incidente.

Avant de s'intéresser au développement d'un nouveau modèle de  $n_{2,eff}$ , nous allons mesurer ce même indice à une autre longueur d'onde :  $\lambda = 1064$  nm.

**Mesures à  $\lambda = 1064$  nm**

On procède de manière identique au chapitre précédent. Les résultats des mesures sont résumés dans le tableau 4.2. Nous avons mesuré l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre ( $n_{2,eff}$ ) sur une plage d'intensité allant de  $I_0 = 4.5$  à  $183$  GW/cm<sup>2</sup>. On observe une croissance des valeurs de  $n_{2,eff}$  en même temps que l'intensité incidente croît. Après avoir atteint une valeur maximale de l'ordre de  $n_{2,eff} = 1.37 \times 10^{-18}$  m<sup>2</sup>/W pour une intensité voisine de  $68$  GW/cm<sup>2</sup>, on observe une décroissance des valeurs de  $n_{2,eff}$ . Les valeurs de  $n_{2,eff}$  mesurées à  $I_0 = 112$  GW/cm<sup>2</sup> et plus induisent un déphasage de l'ordre de  $\pi$ , et même supérieur à cette limite pour  $I_0 = 160$  et  $183$  GW/cm<sup>2</sup>, il est alors possible que les valeurs que nous mesurons soient surestimées. Mais cela ne remet pas en cause la décroissance de ces dernières. Tout au plus cette décroissance serait plus forte.

$I_0$ (en GW/cm <sup>2</sup> )	$(n_{2,eff} \pm \Delta n_{2,eff}) \times 10^{-18}$ (en m <sup>2</sup> /W)
4.5	$0.4 \pm 0.1$
11	$0.5 \pm 0.1$
13	$0.8 \pm 0.1$
34	$1.3 \pm 0.2$
68	$1.37 \pm 0.2$
89	$1.2 \pm 0.2$
112	$0.9 \pm 0.2$
130	$0.8 \pm 0.1$
160	$0.7 \pm 0.1$
183	$0.6 \pm 0.1$

TABLE 4.2 – Mesure de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre ( $n_{2,eff}$ ) suivant l'intensité incidente  $I_0$  à  $\lambda = 1064$  nm suivant la méthode D4 $\sigma$ .  $\Delta n_{2,eff}$  correspond à l'incertitude sur la mesure de  $n_{2,eff}$ .

La figure 4.6 représente les mesures de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre ( $n_{2,eff}$ ) en fonction de l'intensité incidente  $I_0$ . Les incertitudes sur les mesures sont représentées par les barres verticales. Comme précédemment (voir le chapitre 4.3.3), le tableau 4.2 et la figure 4.7 montrent que l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre ( $n_{2,eff}$ ) ne suit pas les modèles proposés précédemment [11, 15]. Cela confirme ce que nous avons observé à la longueur d'onde  $\lambda = 532$  nm, il est nécessaire de développer un nouveau modèle pour tenir compte de l'évolution de  $n_{2,eff}$  à ces deux longueurs d'ondes.

Il apparaît aussi, et comme nous l'avons établi dans le paragraphe précédent dans le



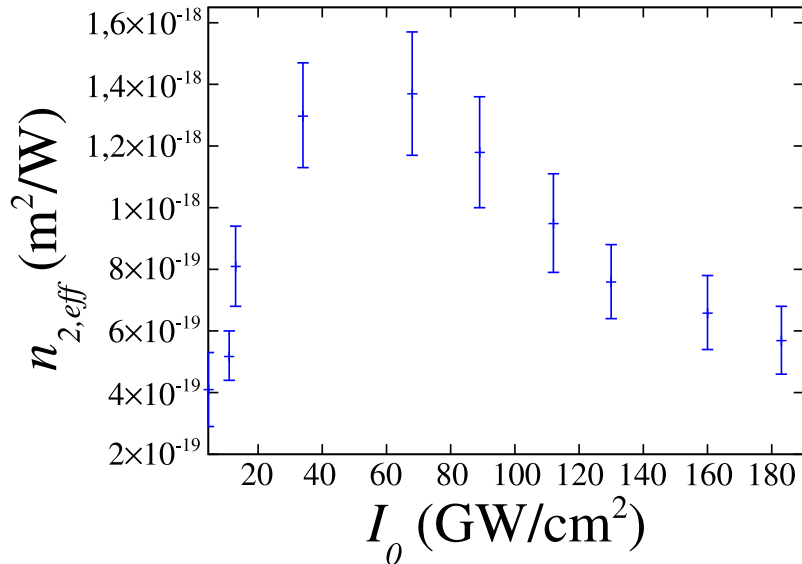


FIGURE 4.7 – Mesure de l’indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre ( $n_{2,eff}$ ) en fonction de l’intensité incidente  $I_0$  à  $\lambda = 1064$  nm. Les barres verticales correspondent aux incertitudes sur la mesure.

vert, que l’utilisation du disulfure de carbone comme matériau de référence pour calibrer l’intensité lors de mesures pour caractériser les non-linéarités est à proscrire. L’indice  $n_2$  ne peut être défini sans ambiguïté. Il semble préférable d’utiliser le verre de quartz si le montage expérimental est suffisamment sensible et si le signal est suffisamment fort [157]. Ou bien on peut utiliser le  $\text{CS}_2$  en précisant l’intensité à laquelle la mesure a été faite.

Nous allons maintenant présenter un nouveau modèle permettant de décrire le comportement des non-linéarités cubiques du disulfure de carbone.

## 4.4 Vers un nouveau modèle

Précédemment on définissait l’indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre  $n_{2,eff}$  à l’aide d’un développement en série de l’intensité en tenant compte des ordres cubique et quintique de la réfraction non-linéaire

$$n_{2,eff}(I) = n_2 + n_4 I. \quad (4.12)$$

Si l’on observe les mesures qui ont été faites à  $\lambda = 532$  nm et  $\lambda = 1064$  nm (voir les figures 4.6 et 4.7),  $n_{2,eff}$  croît pour des intensités modérées avant d’atteindre un maximum. Pour des intensités plus forte,  $n_{2,eff}$  diminue et tend asymptotiquement vers une valeur. Il est

évident que la relation (4.12) ne peut désormais plus être utilisée.

Un des modèles qui permettent d'expliquer l'arrêt du collapse fait intervenir une saturation de l'effet Kerr [15]. Dans ce cas on a un  $n_2$  positif tandis que  $n_4$  est négatif. Cela correspond finalement à un  $n_{2,eff}$  qui décroît. E. FALCÃO-FILHO et al. ont expliqué la stabilité du soliton bi-dimensionnel observé expérimentalement dans le disulfure de carbone grâce à ce mécanisme de saturation de l'effet Kerr. À 920 nm ils avaient considéré  $n_4 = -5.2 \times 10^{-35} \text{ GW}^4/\text{W}^2$  [11]. D. KONG et al. ont mesuré à 800 nm un  $n_4$  négatif ( $n_4 = -2 \times 10^{-35} \text{ GW}^4/\text{W}^2$ ) [141]. Or ici il apparaît que pour des intensités modérées  $n_{2,eff}$  croît et par conséquent le signe de  $n_4$  est positif. Par ailleurs, les résultats des mesures que nous avons présentées dans le chapitre 3.4 confirment que les indices de réfraction non-linéaire du cinquième ordre sont positifs à  $\lambda = 532 \text{ nm}$  ( $n_4 = (1.2 \pm 0.3) \times 10^{-32} \text{ GW}^4/\text{W}^2$ ) et à  $\lambda = 1064 \text{ nm}$  ( $n_4 = (2.2 \pm 0.4) \times 10^{-33} \text{ GW}^4/\text{W}^2$ ) [143]. On notera que l'inversion de signe de  $n_4$  s'explique par un franchissement de la résonance à la troisième harmonique, elle a été étudiée en détail dans le paragraphe 3.

Ainsi on ne peut pas considérer la saturation de l'effet Kerr comme étant due au terme  $n_4 I^2$ . On pourrait alors envisager d'étendre le développement en série de la fonction de réponse du milieu en fonction du champ électrique. Dans notre cas ce n'est pas possible. Bien que du point de vue théorique, dès que la correction introduite par le terme d'ordre le plus haut devient du même ordre de grandeur que le terme d'ordre le plus bas, l'approche utilisant un développement en série n'est plus valable. Certes, lorsque E. FALCÃO-FILHO et al. ont évalué grâce à la résolution numérique la valeur  $n_4$  du disulfure de carbone à 920 nm, les termes  $n_4 I^2$  et  $n_2 I$  étaient comparables. Dans ce cas-ci la troisième harmonique de la fréquence considérée ( $\lambda = 920 \text{ nm}$ ) est très proche de la bande d'absorption ( $\approx 317 \text{ nm}$ ) [11]. Or on suppose qu'aux longueurs d'ondes que nous considérons la troisième harmonique est résonnante, cependant il est difficile de mesurer expérimentalement l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre  $n_2$  avec une grande précision. Il est encore plus difficile de mesurer précisément l'ordre quintique  $n_4$ . Cette difficulté s'accroît bien plus pour les ordres supérieurs. Or si on souhaite obtenir un modèle reproduisant l'expérience et susceptible d'être résolu numériquement, il est nécessaire de déterminer le plus précisément possible les paramètres. Il n'est pas possible en pratique d'obtenir  $n_4$  avec une précision suffisante pour évaluer les ordres supérieurs.

### 4.4.1 Ajustement des courbes expérimentales

Afin d'obtenir un modèle décrivant de manière satisfaisante l'évolution de  $n_{2,eff}$ , on ajuste les courbes expérimentales (voir les figures 4.6 et 4.7) en choisissant un Ansatz adéquat ayant une variation en "cloche". Pour ce faire, nous avons essayé différents Ansätze avec différents paramètres afin d'établir le meilleur ajustement :

$$n_{2,eff}(I) = \frac{aI}{(1 + b^2 I^2)^c}, \quad (4.13)$$

$$n_{2,eff}(I) = \frac{aI}{(1 + b^2 I)^c}, \quad (4.14)$$

$$n_{2,eff}(I) = aI \exp(-bI^c) \quad (4.15)$$

avec  $c = 1$  ou  $2$ .

Afin d'ajuster les courbes expérimentales nous avons utilisé l'algorithme d'ajustement non-linéaire Levenberg-Marquardt [158, 159]. L'algorithme a été proposé par Kenneth LEVENBERG [158] en 1944, puis publié par Donald MARQUARDT [159] en 1963. Celui-ci permet de minimiser une fonction dépendante de plusieurs variables. Cet algorithme interpole ceux du gradient et de Gauss-Newton mais est plus stable que ces derniers, il lui est possible de converger même si la donnée initiale est éloignée du minimum.

Nous avons fait le choix d'utiliser une version déjà implémentée dans le logiciel de calcul numérique GNU Octave sur un système d'exploitation GNU/Linux.

Le meilleur ajustement, que ce soit dans le cas de la courbe expérimentale obtenue pour  $\lambda = 532$  nm (voir figure 4.6) ou celle obtenue pour  $\lambda = 1064$  nm (voir figure 4.7), est obtenu avec l'Ansatz (4.13). Le paramètre  $a$  est en  $\text{m}^4/\text{W}^2$ , c'est-à-dire la dimension de  $n_4$ . Le produit entre  $bI^2$  sans dimension, donc  $b$  doit avoir la dimension de  $n_2$  ( $\text{m}^2/\text{W}$ ). Les valeurs des paramètres d'ajustement ont été inscrites dans le tableau 4.3.

Paramètres d'ajustement	Longueurs d'ondes (nm)	
	532	1064
a ( $\text{m}^4/\text{W}^2$ )	$3.3921 \times 10^{-32}$	$6.2989 \times 10^{-33}$
b ( $\text{m}^2/\text{W}$ )	$5.7643 \times 10^{-15}$	$2.2673 \times 10^{-15}$
c	1	1

TABLE 4.3 – Valeurs des paramètres de la fonction (4.13) pour l'ajustement des courbes expérimentales de  $n_{2,eff}$  à  $\lambda = 532$  nm (voir figure 4.6) et à  $\lambda = 1064$  nm (voir figure 4.7).

Les figures 4.8 et 4.9 illustrent les ajustements obtenus en utilisant l'Ansatz (4.13) avec les paramètres d'ajustement déterminés précédemment. La courbe obtenue pour  $\lambda = 532$  nm est visible sur la figure 4.8. La courbe obtenue pour  $\lambda = 1064$  nm est visible

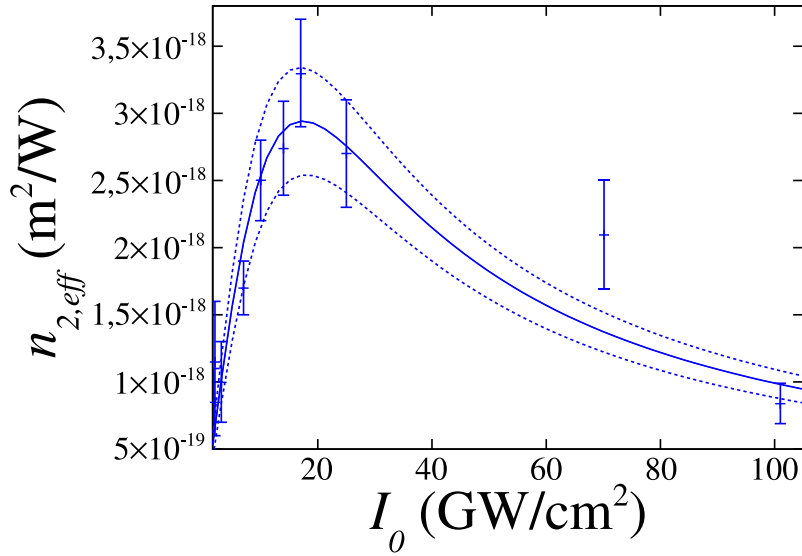


FIGURE 4.8 – La courbe bleue représente  $n_{2,eff}$  ( $\text{m}^2/\text{W}$ ) en fonction de l'intensité incidente  $I_0$  ( $\text{W}/\text{m}^2$ ) à  $\lambda = 532$  nm ajustée à l'aide de l'Ansatz (4.13) avec les données dans le tableau 4.3. Les barres verticales représentent les valeurs de  $n_{2,eff}$  mesurées, avec les incertitudes de mesures. Les courbes en pointillées correspondent à un ajustement des incertitudes de  $n_{2,eff}$ .

sur la figure 4.9.

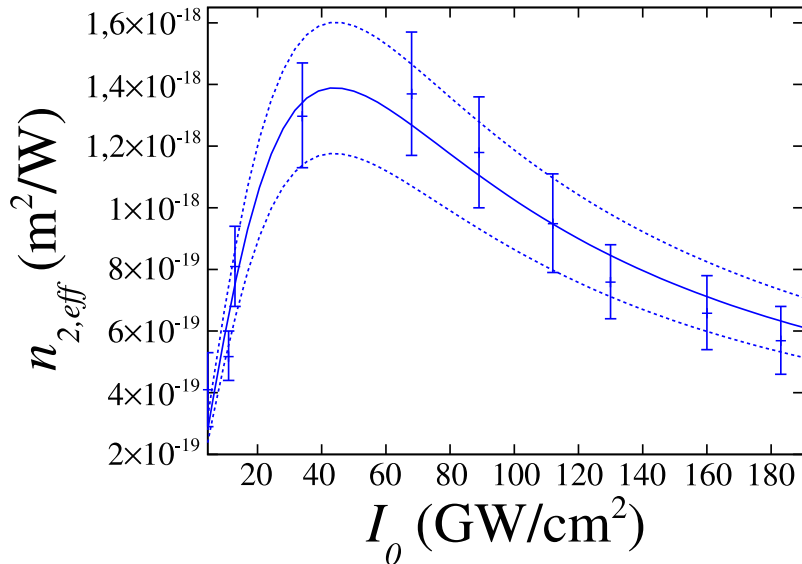


FIGURE 4.9 – La courbe bleue représente  $n_{2,eff}$  ( $\text{m}^2/\text{W}$ ) en fonction de l'intensité incidente  $I_0$  ( $\text{W}/\text{m}^2$ ) à  $\lambda = 1064$  nm ajustée à l'aide de l'Ansatz (4.13) avec les données dans le tableau 4.3. Les barres verticales représentent les valeurs de  $n_{2,eff}$  mesurées, avec les incertitudes de mesures. Les courbes en pointillées correspondent à un ajustement des incertitudes de  $n_{2,eff}$ .

Il est donc possible de décrire l'évolution de l'indice de réfraction non-linéaire effectif

du troisième ordre du disulfure de carbone à  $\lambda = 532$  nm en utilisant la fonction (4.13) en utilisant les paramètres  $a = 3.3921 \times 10^{-32} \text{ m}^4/\text{W}^2$ ,  $b = 5.7643 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{W}$  et  $c = 1$ .

On va maintenant développer un nouveau modèle pour décrire la propagation du faisceau en tenant compte de l'évolution observée de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre.

#### 4.4.2 Équation de Schrödinger non-linéaire

L'équation de Schrödinger non-linéaire (NLS) est un modèle universel qui décrit de nombreuses situations. Nous nous intéresserons seulement à l'optique non-linéaire. Dans ce contexte l'équation NLS permet de décrire la propagation d'une impulsion dans une fibre optique ou un faisceau de lumière intense dans certains milieux non-linéaires. Elle permet de décrire la dynamique de certaines structures telles que les solitons.

Une forme générale de l'équation décrivant l'évolution d'une onde quasi-monochromatique est

$$i \frac{\partial E}{\partial z} = -\frac{1}{2n_0 k} \Delta_{\perp} E - F(|E|) E, \quad (4.16)$$

où l'opérateur Laplacien,  $\Delta_{\perp} = \partial^2/\partial x^2 + \partial^2/\partial y^2$ , représente la diffraction paraxiale,  $k = 2\pi/\lambda$  est la norme du vecteur d'onde dans le vide,  $n_0$  est l'indice de réfraction linéaire et la fonction  $F(|E|)$  permet de tenir compte des non-linéarités. Pour que l'équation (4.16) soit conservative, la fonction  $F(|E|)$  doit être réelle. Par exemple, pour un effet Kerr cubique,

$$F(|E|) = \frac{3k}{2n_0} \text{Re}(\chi^{(3)}) |E|^2. \quad (4.17)$$

Maintenant, prenons en compte l'absorption jusqu'au cinquième ordre de la susceptibilité non-linéaire. La fonction  $F(|E|)$  devient alors

$$F(|E|) = k^2 [i \text{Im}(\chi^{(1)}) + 3\chi^{(3)} |E|^2 + 10\chi^{(5)} |E|^4], \quad (4.18)$$

où  $\chi^{(1)}$ ,  $\chi^{(3)}$  et  $\chi^{(5)}$  sont, respectivement, les termes linéaire, cubique et quintique de la susceptibilité optique. On notera que dans ce cas, ces termes sont complexes. Seule la partie réelle de  $\chi^{(1)}$  n'apparaît pas, en effet elle est incluse dans l'indice de réfraction linéaire  $n_0$  dans l'équation (4.16).

On remarquera que l'équation NLS (4.16), définie dans le cas où  $F(|E|)$  est définie par (4.18), est formellement identique à l'équation de Ginzburg-Landau complexe cubique quintique. Cependant cette dernière est toujours considérée en présence de gain, or notre système n'en présente pas. Il présente seulement de la dissipation et les propriétés physiques sont beaucoup plus proches de celles du modèle conservatif.

Nous cherchons maintenant à déterminer l'expression de la fonction  $F(|E|)$  qui intervient dans l'équation NLS (4.16) correspondant à l'expression obtenue pour  $n_{2,eff}$ . Pour cela nous reprenons les équations du modèle standard qui décrit l'évolution de l'intensité lumineuse  $I$  et de la phase  $\varphi$  du faisceau qui se propage dans un milieu non-linéaire présentant un indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre ( $n_{2,eff}$ ) ainsi que de l'absorption linéaire ( $\alpha$ ), de l'absorption à deux photons ( $\beta$ ) et de l'absorption à trois photons ( $\gamma$ ), dans l'approximation des échantillons minces et en négligeant la diffraction [23]. On a pour l'intensité, l'équation

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I - \beta I^2 - \gamma I^3, \quad (4.19)$$

et pour la phase

$$\frac{d\varphi}{dz} = n_{2,eff} I. \quad (4.20)$$

Dans le cas du disulfure de carbone, nous avons montré qu'aux longueurs d'onde  $\lambda = 532$  nm et  $\lambda = 1064$  nm, l'absorption linéaire et l'absorption à deux photons étaient nulles (voir chapitre 3.3). Seule l'absorption à trois photons est non nulle, avec pour valeur  $\gamma = (9.3 \pm 1.9) \times 10^{-26}$  m<sup>3</sup>/W<sup>2</sup> à  $\lambda = 532$  nm et  $\gamma = (4.6 \pm 0.9) \times 10^{-27}$  m<sup>3</sup>/W<sup>2</sup> à  $\lambda = 1064$  nm.

En tenant compte des particularités du CS<sub>2</sub>, les équations (4.19) et (4.20) se réduisent à

$$\frac{dI}{dz} = -\gamma I^3, \quad (4.21)$$

$$\frac{d\varphi}{dz} = \frac{aI}{(1 + b^2 I^2)} I. \quad (4.22)$$

On applique à l'équation NLS (4.16) les mêmes approximations que celles qui mènent aux équations (4.21) et (4.22). L'approximation des échantillons minces implique que la

diffraction soit négligeable, autrement dit  $\Delta_{\perp} E \equiv 0$ . L'équation NLS se réduit alors à

$$i \frac{\partial E}{\partial z} = -F(|E|) E. \quad (4.23)$$

Le champ électrique peut être écrit comme

$$E = |E| \exp(i\varphi), \quad (4.24)$$

où  $|E|$  est l'amplitude et la  $\varphi$  phase. Si on applique alors la définition du champ électrique (4.24) dans l'équation de Schrödinger non-linéaire (4.23) on obtient

$$i \left( |E|_z + i \frac{\partial \varphi}{\partial z} |E| \right) \exp(i\varphi) = -F(|E|) |E| \exp(i\varphi). \quad (4.25)$$

On peut alors séparer la partie réelle et la partie imaginaire de l'équation (4.25). En multipliant la partie imaginaire par  $|E|$  et en utilisant la relation entre l'intensité et l'amplitude du champ, ( $|E|^2 = I/2c\epsilon_0 n_0$ ), on peut écrire pour la partie réelle

$$\frac{\partial I}{\partial z} = -2 \operatorname{Im} [F(|E|)] I, \quad (4.26)$$

et pour la partie imaginaire

$$\frac{\partial \varphi}{\partial z} = \operatorname{Re} [F(|E|)]. \quad (4.27)$$

En comparant les équations (4.21) et (4.22) avec les équations (4.26) et (4.27) on obtient pour la partie réelle

$$\operatorname{Im} [F(|E|)] = \frac{\gamma I^2}{2}, \quad (4.28)$$

et pour la partie imaginaire

$$\operatorname{Re} [F(|E|)] = \frac{aI}{(1 + b^2 I^2)} I. \quad (4.29)$$

Il est alors possible d'écrire notre modèle dérivé de l'équation NLS (4.25)

$$i \frac{\partial E}{\partial z} = \frac{-1}{2n_0 k} \nabla_{\perp}^2 E - \left[ \frac{ka(2n_0 c \epsilon_0 |E|^2)^2}{(1 + b^2 (2n_0 c \epsilon_0 |E|^2)^2)} + i \frac{\gamma (2n_0 c \epsilon_0 |E|^2)^2}{2} \right] E \quad (4.30)$$

Il est a priori impossible de résoudre analytiquement l'équation (4.30). Cependant il est possible de résoudre numériquement cette équation. On va tout d'abord normaliser l'équation afin d'en faciliter la résolution numérique.

## 4.5 Résolution numérique

### 4.5.1 Normalisation

La normalisation permet tout d'abord de réduire le nombre de paramètre et donc de pouvoir appliquer le même résultat numérique à plusieurs situations physiques. La résolution numérique d'une équation différentielle, la différence d'ordre de grandeurs entre les grandeurs physiques peut être source d'erreur. La normalisation permet aussi d'utiliser des valeurs de l'ordre de 1 ce qui permet de mieux contrôler le comportement numérique du calcul.

Pour normaliser l'équation différentielle de notre modèle (4.30), il faut tout d'abord identifier les variables. La variable  $z$  correspond à la position sur l'axe de propagation. Les variables spatiales  $x$  et  $y$  correspondent à la position dans le plan transverse à la direction de propagation. Ces trois variables d'espace ont la dimension d'une longueur. L'autre variable est le champ électrique  $E$ .

Parmi les grandeurs physiques caractéristiques de notre problème physique nous avons choisi le rayon du faisceau à l'entrée du milieu  $w_0$ . Nous définissons aussi une longueur de référence  $l$  et un champ électrique de référence  $E_r$ .  $w_0$  et  $l$  ont pour unité le mètre tandis que  $E_r$  a les dimensions d'un champ électrique.

On procède à un changement des variables :  $X = x/w_0$ ,  $Y = y/w_0$ ,  $Z = z/l$  et  $u = E/E_r$ . L'équation différentielle de notre modèle (4.30) devient :

$$\frac{\partial u}{\partial Z} = \frac{il}{2n_0^2kw_0^2}\Delta u + \frac{i4n_0^2c^2\epsilon_0^2kaE_r^4l|u|^4}{1 + 4n_0^2c^2\epsilon_0^2b^2E_r^4|u|^4}u - \frac{\gamma}{2}4n_0^2c^2\epsilon_0^2E_r^4l|u|^4u, \quad (4.31)$$

où  $\Delta = \partial^2/\partial X^2 + \partial^2/\partial Y^2$ . On définit la longueur de référence comme étant

$$l = n_0kw_0^2. \quad (4.32)$$



On décide de définir un coefficient  $\mu$  correspondant à la normalisation des termes relatifs à l'absorption à trois photons. Ainsi on établit l'égalité suivante

$$\mu = 2\gamma n_0^2 c^2 \epsilon_0^2 E_r^4 l. \quad (4.33)$$

Il reste à définir la normalisation des termes relatifs à la variation de l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre  $n_{2,eff} = 4n_0^2 c^2 \epsilon_0^2 k a E_r^4 |u|^2 / (1 + 4n_0^2 c^2 \epsilon_0^2 b^2 E_r^4 |u|^4)$ . On fait le choix de normaliser le champ électrique par la valeur à laquelle  $n_{2,eff}$  est maximal. Soit la fonction  $f(x) = Ax / (1 + B^2 x^2)$ , où  $x = |u|^2$ ,  $A = 4n_0^2 c^2 \epsilon_0^2 k a E_r^4 l$  et  $B = 2n_0 c \epsilon_0 b E_r^2$ . L'étude de la fonction montre que  $f(x)$  croît de  $x = 0$  jusqu'à  $1/B$  (voire le tableau de variation 4.10). Au delà la fonction  $f(x)$  décroît. Le maximum de la fonction  $f(x)$  est

$x$	<b>0</b>	$1/B$	$+\infty$
$\frac{df(x)}{dx}$		<b>0</b>	
$f(x)$	<b>0</b>	$\frac{A}{2B}$	<b>0</b>

FIGURE 4.10 – Tableau de variation et de signe de la fonction  $f(x)$

$A/2B$  à  $x = 1/B$ . En exprimant cela avec les grandeurs physiques de notre problème, on obtient que l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre  $n_{2,eff}$  est maximal pour une intensité  $|u|^2$  de  $1/2n_0 c \epsilon_0 b E_r^2$  avec comme valeur  $n_0 c \epsilon_0 k a E_r^2 / b$ . Puisque l'on a choisi de normaliser le champ électrique par la valeur du champ lorsque  $n_{2,eff}$  est maximal alors on pose  $E_r = 1/\sqrt{2n_0 c \epsilon_0 b}$ . On notera que l'intensité de référence est  $I_r = 2n_0 c \epsilon_0 E_r^2 = 1/b$ . On peut alors écrire l'équation (4.31) sous la forme

$$\frac{\partial u}{\partial Z} = \frac{i}{2} \Delta u + \frac{i\eta |u|^4 u}{1 + |u|^4} - \mu |u|^4 u, \quad (4.34)$$

où

$$\eta = k a l / b^2. \quad (4.35)$$

$\mu$  définit par la relation (4.33) s'écrit plus simplement

$$\mu = \frac{\gamma^l}{2b^2}. \quad (4.36)$$

L'équation différentielle ainsi normalisée est plus commode à résoudre numériquement. Pour définir le schéma numérique, il faut tout d'abord choisir des opérateurs discrets correspondant à ceux différentiels de l'équation (4.34). En premier lieu, intéressons-nous à l'opérateur Laplacien.

### 4.5.2 Méthode des différences finies

La définition de l'opérateur Laplacien de l'équation (4.34) est

$$\Delta = \frac{\partial^2}{\partial X^2} + \frac{\partial^2}{\partial Y^2}, \quad (4.37)$$

ne peut pas être utilisée telle qu'elle par un ordinateur. Il est nécessaire d'utiliser une technique de résolution approchée.

La méthode des différences finies est une technique couramment utilisée pour résoudre les opérateurs dérivations. Elle consiste à approcher la dérivée d'une fonction par une expression algébrique qui fait intervenir les valeurs numériques de la fonction en des points suffisamment proches les uns des autres. Supposons que l'on ait une fonction quelconque  $f(x)$  où  $x$  est une variable spatiale réelle. Pour  $x_0$  fixé et le pas de discrétisation  $h$  petit, la formule de Taylor-Young s'écrit

$$f(x_0 + h) = f(x_0) + \frac{f'(x_0)}{1!}h + \frac{f''(x_0)}{2!}h^2 + \dots + \frac{f^n(x_0)}{n!}h^n + o(h^n), \quad (4.38)$$

où  $f^n(x_0)$  est la dérivée n-ième de la fonction  $f$  au point  $x_0$  et  $o(h^n)$  le reste, est écrit à l'aide ds notation de Landau. On pose  $x_j = x_n + jh$  où  $j$  est un entier. C'est ce que l'on appelle discrétiser la variable  $x$ . La formule de la méthode des différences finies centrée à trois points pour la dérivée seconde, en utilisant la formule de Taylor-Young, est

$$f''(x_n) \simeq \frac{f(x_{j+1}) - f(x_j) + f(x_{j-1}))}{h^2}. \quad (4.39)$$

La discrétisation est une source d'erreur notamment lors des calculs numériques des opérateurs dérivés. Pour réduire cette erreur sans surcharger la mémoire de l'ordinateur il est possible de prendre en compte plus de points pour le calcul des différences finies. Pour déterminer la formule des différences finies à cinq points on approche la fonction  $f(x)$  par son polynôme d'interpolation de Lagrange  $P(x)$  sur les cinq points  $x_{j-2}$ ,  $x_{j-1}$ ,  $x_j$ ,  $x_{j+1}$  et  $x_{j+2}$ . On a

$$P(x) = \sum_{k=j-2}^{j+2} y_k l_k(x), \quad (4.40)$$

où  $y_k = f(x_k)$  et  $l_k(x)$  est le polynôme de degré 4 tel que  $l_k(x_n) = \delta_{kn}$ , c'est-à-dire 1 si  $k = n$  et 0 si  $k \neq n$ , alors

$$f''(x_n) \simeq P''(x_n) = \sum_{k=j-2}^{j+2} y_k l_k''(x_n). \quad (4.41)$$

Il suffit de calculer les coefficients  $l_k''(x_n)$  et on obtient

$$f''(x_0) \simeq \frac{1}{12h^2} [-f(x_{j-2}) + 9f(x_{j-1}) - 30f(x_j) + 9f(x_{j+1}) - f(x_{j+2})]. \quad (4.42)$$

La relation (4.42) est la formule des différences finies centrée à cinq points pour la dérivée seconde.

Revenons à l'équation de notre modèle (4.34), considérons le champ électrique normalisé transverse  $u(X, Y)$ . Dans le cas de la situation expérimentale (voir chapitre 4.2) nous avons une caméra CCD de  $(1024 \times 764)$  pixels de chacun  $(6.45 \times 6.45) \mu\text{m}^2$ . On choisit de discrétiser le domaine spatial transverse  $(X, Y)$  en  $N_x = 1024$  points  $X_i$  et  $N_y = 768$  points  $Y_j$  avec les pas spatiaux normalisés  $h_X = h_Y = 6.45 \times 10^{-6}/w_0$ , on a alors un maillage carré (voir la figure 4.11). On définit  $u_{i,j} = u(X_i, Y_j)$ . Par analogie avec l'expression (4.42), on a pour la dérivée seconde suivant  $X$

$$\frac{\partial u}{\partial X}(X_i, Y_j) \simeq \frac{1}{12h_x^2} [-u_{i-2,j} + 9u_{i-1,j} - 30u_{i,j} + 9u_{i+1,j} - u_{i+2,j}], \quad (4.43)$$

et pour la dérivée seconde suivant  $Y$

$$\frac{\partial u}{\partial Y}(X_i, Y_j) \simeq \frac{1}{12h_y^2} [u_{i,j-2} + 9u_{i,j-1} - 30u_{i,j} + 9u_{i,j+1} - u_{i,j+2}]. \quad (4.44)$$

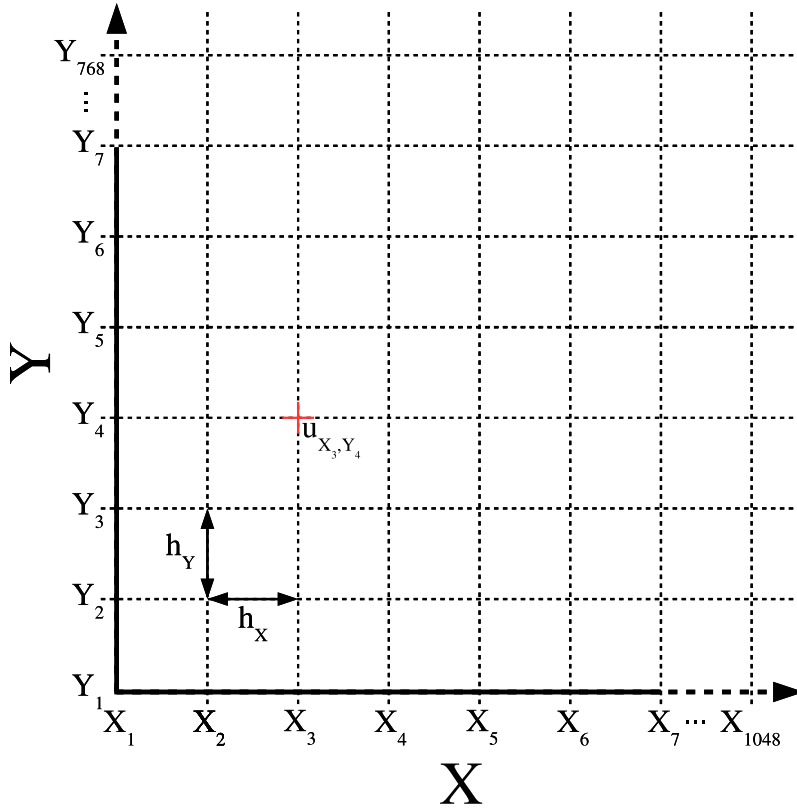


FIGURE 4.11 – Représentation du maillage carré  $(X_i, Y_j)$  du domaine transverse  $(X, Y)$ .  $h_X$  et  $h_Y$  sont les pas spatiaux et  $u_{3,4}$  est la valeur du champ  $u(X, Y)$  aux coordonnées  $X_3$  et  $Y_4$ .

Cependant, que se passe-t-il lorsque l'on calcule le Laplacien  $(\partial u_{i,j}/\partial X)$  pour les limites du domaine (par exemple, pour  $i = 1$ ) ? Si on calcule  $\partial u_{1,j}/\partial X$ , on remarque  $u_{-1,j}$  et  $u_{0,j}$  sont en dehors du domaine. Ils ne sont pas définies et l'ordinateur ne peut résoudre le calcul. On utilise alors des formules des différences finies non-centrées pour calculer la dérivée seconde pour  $X_1, X_2, X_{N_x-1}, X_{N_x}, Y_1, Y_2, Y_{N_y-1}$  et  $Y_{N_y}$ . On a pour les limites de  $X$

$$\frac{\partial u}{\partial X}(X_1, Y_j) \simeq \frac{1}{12h_x^2} [45u_{1,j} - 154u_{2,j} + 214u_{3,j} - 156u_{4,j} + 61u_{5,j} - 10u_{6,j}], \quad (4.45)$$

$$\frac{\partial u}{\partial X}(X_2, Y_j) \simeq \frac{1}{12h_x^2} [10u_{1,j} - 15u_{2,j} - 4u_{3,j} + 14u_{4,j} + 6u_{5,j} + u_{6,j}], \quad (4.46)$$

$$\frac{\partial u}{\partial X}(X_{N_x-1}, Y_j) \simeq \frac{1}{12h_x^2} [10u_{N_x,j} - 15u_{N_x-1,j} - 4u_{N_x-2,j} + 14u_{N_x-3,j} + 6u_{N_x-4,j} + u_{N_x-5,j}], \quad (4.47)$$

$$\frac{\partial u}{\partial X}(X_{N_x}, Y_j) \simeq \frac{1}{12h_x^2} [45u_{N_x,j} - 154u_{N_x-1,j} + 214u_{N_x-2,j} - 156u_{N_x-3,j} + 61u_{N_x-4,j} - 10u_{N_x-5,j}]. \quad (4.48)$$

De même pour les limites de  $Y$

$$\frac{\partial u}{\partial Y}(X_i, Y_1) \simeq \frac{1}{12h_y^2} [45u_{i,1} - 154u_{i,2} + 214u_{i,3} - 156u_{i,4} + 61u_{i,5} - 10u_{i,6}], \quad (4.49)$$

$$\frac{\partial u}{\partial Y}(X_i, Y_2) \simeq \frac{1}{12h_y^2} [10u_{i,1} - 15u_{i,2} - 4u_{i,3} + 14u_{i,4} + 6u_{i,5} + u_{i,6}], \quad (4.50)$$

$$\frac{\partial u}{\partial Y}(X_i, Y_{N_y-1}) \simeq \frac{1}{12h_y^2} [10u_{i,N_y} - 10u_{i,N_y-1} - 4u_{i,N_y-2} + 14u_{i,N_y-3} + 6u_{i,N_y-4} + u_{i,N_y-5}], \quad (4.51)$$

$$\frac{\partial u}{\partial Y}(X_i, Y_{N_y}) \simeq \frac{1}{12h_y^2} [45u_{i,N_y} - 154u_{i,N_y-1} + 214u_{i,N_y-2} - 156u_{i,N_y-3} + 61u_{i,N_y-4} - 10u_{i,N_y-5}]. \quad (4.52)$$

Enfin il faut définir comment se comporte le système physique au bord du domaine, c'est-à-dire fixer des conditions aux bords. Dans l'expérience que nous reproduisons numériquement (voir chapitre 4.2) la lumière incidente peut sortir du domaine, en partie à cause de la diffraction. Pour reproduire cela numériquement, nous avons ajouté à l'équation (4.34) un terme d'absorption linéaire  $\alpha(X, Y)$ . Cette absorption doit être suffisamment importante au voisinage des bords du domaine pour que tous les rayons diffractés à l'infini soient absorbés. Cependant elle doit être nulle ailleurs puisqu'elle n'est qu'un artifice numérique permettant de rendre compte de cet effet. De plus il faut que l'absorption augmente de manière régulière lorsque l'on se rapproche d'un bord afin d'éviter qu'un rayon diffracté vers le bord ne soit réfléchi. On a donc choisi d'augmenter la taille du domaine de 40 %. On définit sur chaque bord, une bande d'une largeur égale à 16 % de la taille du nouveau domaine (voir figure 4.12). On fixe l'absorption linéaire comme étant nulle partout sauf en dehors de ces bandes. Dans ces dernières, l'absorption linéaire augmente de façon quadratique à mesure que l'on se rapproche de la limite du domaine (voir les figures 4.13 et 4.14).

Il est aussi nécessaire de réécrire l'équation (4.34) pour tenir compte de l'absorption linéaire que nous avons ajoutée :

$$\frac{\partial u}{\partial Z} = \frac{i}{2} \Delta u - \alpha u + \frac{i\eta |u|^4 u}{1 + |u|^4} - \mu |u|^4 u. \quad (4.53)$$

La discrétisation de l'opérateur Laplacien est valable en tout point du domaine. Il est

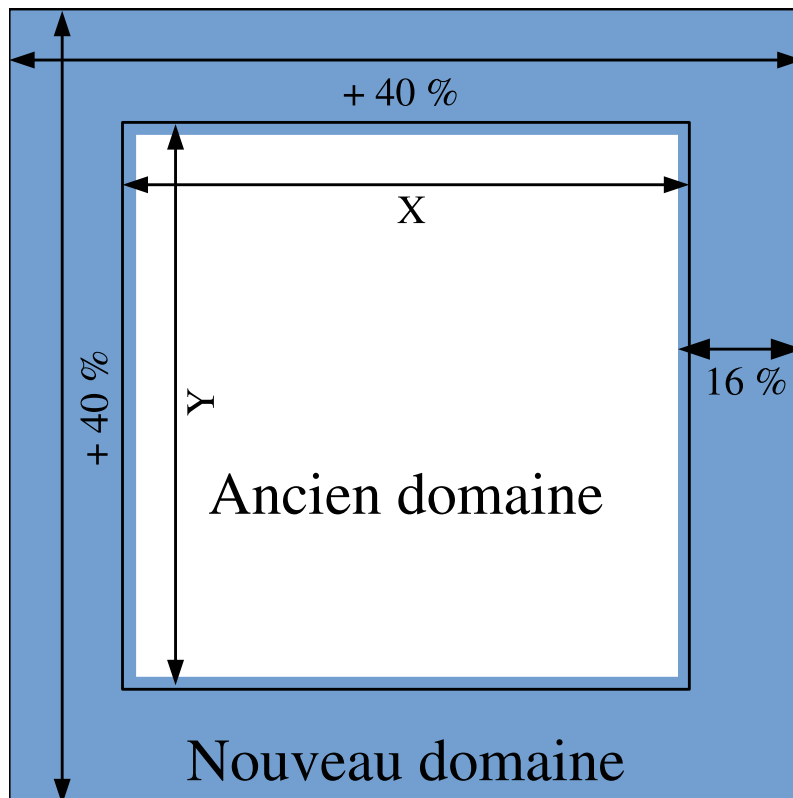


FIGURE 4.12 – Représentation du changement de taille du maillage. Le carré central représente la taille initiale du domaine tandis que le carré extérieur représente la nouvelle taille du domaine après l’augmentation de 40 %. Les bandes en bleu correspondent aux bandes d’une largeur égale à 16 % de la taille du nouveau domaine.

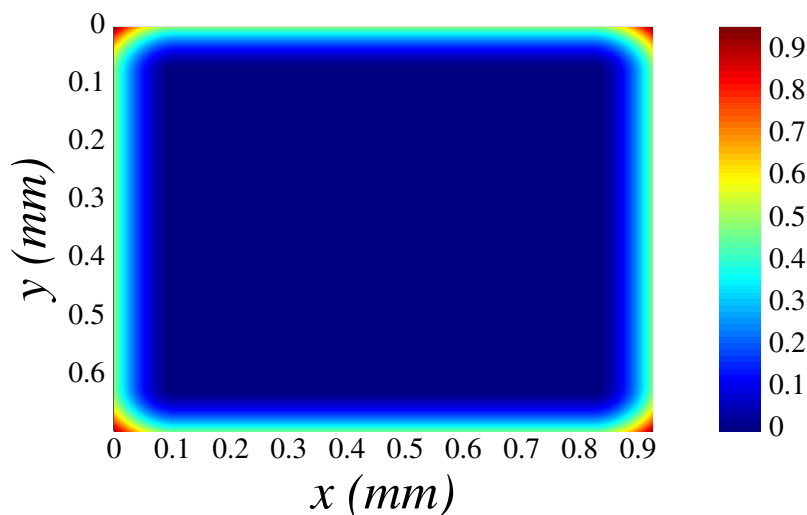


FIGURE 4.13 – Absorption linéaire  $\alpha$  en  $\text{m}^{-1}$ . La taille du domaine est augmentée de 40 %.

donc possible de calculer le Laplacien en utilisant les relations (4.43) et (4.44) dans le cas général et les relations (4.45), (4.46), (4.47), (4.48), (4.49), (4.50), (4.51) et (4.52) lorsque l’on est à moins de 3 points des limites du domaine. Enfin nous avons fixé les conditions aux bords afin d’être le plus proche de la situation expérimentale tout en tenant compte des limitations qu’imposent la résolution numérique par ordinateur.

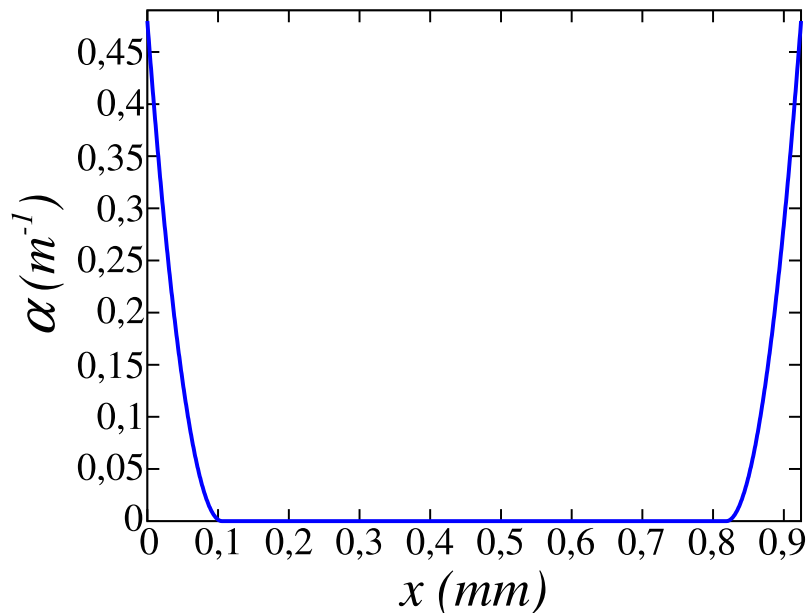


FIGURE 4.14 – Profil de l’absorption linéaire  $\alpha$  en  $m^{-1}$  suivant la dimension  $x$  en (mm). Le profil est établi au milieu de la dimension  $y$ .

Le second opérateur différentiel à discrétiser dans l’équation (4.53) est la dérivée suivant la direction de propagation  $Z$  du champ normalisé  $u$ .

### 4.5.3 Méthode de Runge-Kutta d’ordre 4

Proposées pour la première fois par Carl RUNGE et Martin Wilhelm KUTTA en 1901 [160], les méthodes de Runge-Kutta permettent de résoudre le problème de Cauchy pour une équation différentielle. Elles reposent sur une succession d’un plus ou moins grand nombre de formules d’intégration numérique faisant intervenir un certain nombre de points intermédiaire à chaque pas en  $Z$ . Nous avons utilisé la méthode de Runge-Kutta d’ordre 4. Dans le cas de la méthode Runge-Kutta d’ordre 4, il y a quatre intégrations pour chaque pas. Illustrons nos propos en présentant cette méthode dans le cas d’une équation dérivée simple. Considérons l’équation suivante

$$y' = F(z, y). \quad (4.54)$$

L’équation (4.54) est une équation différentielle du première ordre où  $y$  est une fonction inconnue de la distance  $z$ . Considérons que à  $z = 0$ , la fonction  $y$  est connue

$$y(0) = y_0. \quad (4.55)$$

On discrétise l'ensemble des valeurs  $z$  en  $N + 1$  valeurs discrètes. On résout l'équation (4.54) pour l'ensemble des positions  $z_0, z_1, \dots, z_N$ . On cherche alors les solutions associées aux pas  $y_0, y_1, \dots, y_N$ . On introduit quatre pas intermédiaires de tel sorte que

$$y_{n+1} = y_n + \frac{h}{6} (k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4), \quad (4.56)$$

où  $h$  est le pas de discrétisation. Les fonctions  $k_1, k_2, k_3$  et  $k_4$  correspondent aux variations de la fonction  $y_n$  à chaque sous-pas.

Si nous revenons à notre champ  $u(X, Y, Z)$ , d'après la relation (4.56) on a

$$u_{n+1}(X, Y) = u_n(X, Y) + \frac{h_Z}{6} (k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4), \quad (4.57)$$

avec

$$k_1 = f(Z_n, u_n(X, Y)), \quad (4.58)$$

pour  $k_2$

$$k_2 = f\left(Z_n + \frac{h_Z}{2}, u_n(X, Y) + \frac{h_Z}{2}k_1\right), \quad (4.59)$$

pour  $k_3$

$$k_3 = f\left(Z_n + \frac{h_Z}{2}, u_n(X, Y) + \frac{h_Z}{2}k_2\right) \quad (4.60)$$

et pour  $k_4$

$$k_4 = f(Z_n + h_Z, u_n(X, Y) + h_Z k_3). \quad (4.61)$$

La fonction  $f$  correspond ici au second membre de l'équation (4.53). Nous avons défini un pas variable  $h_{Z_n}$ . On calcule tout d'abord  $k_1$  et on prend

$$h_{Z_n} = 1 \times 10^{-2} \frac{|u_n|}{|k_1|}. \quad (4.62)$$

Si le champ varie peu, la valeur du pas sera grande, il n'est pas nécessaire de calculer finement la propagation du faisceau. À l'inverse, si le champ varie beaucoup alors la valeur du pas sera petite, on aura ainsi une résolution fine de la propagation du faisceau. La résolution est donc plus précise lorsque c'est nécessaire et on gagne du temps de calcul lorsque le système évolue peu.



On notera que la méthode de Runge-Kutta d'ordre 4 induit une erreur numérique à chacun des pas (erreur de consistance) qui se cumule sur une distance de propagation finie. L'erreur à chaque pas est de l'ordre de  $O(h_Z^5)$  tandis que l'erreur totale accumulée (erreur globale de convergence) est de l'ordre de  $O(h_Z^4)$ .

La méthode de Runge-Kutta d'ordre 4 offre l'avantage d'être une méthode très simple à programmer et elle très stable. Elle ne nécessite que la connaissance du champ initial. Cette précision a un prix : un temps de calcul relativement long. Nous avons un bon compromis entre temps de calcul et précision en utilisant les pas adaptatifs.

Maintenant que nous avons défini la méthode numérique d'intégration de la dérivée du champ normalisé  $u$  suivant la direction de propagation  $Z$ , nous pouvons présenter les résultats de la résolution du schéma numérique.

#### 4.5.4 Résultats de la résolution numérique

Nous avons procédé à la résolution numérique de l'équation (4.53) en utilisant la méthode des différences finies pour l'opérateur Laplacien suivant les dimensions transverses  $x$  et  $y$  (voir le paragraphe 4.5.2) et la méthode de Runge-Kutta d'ordre 4 pour intégrer la dérivée du champ  $u$  suivant l'axe de propagation  $Z$  (voir le paragraphe 4.5.3). Nous avons utilisé le langage de programmation GNU Octave pour écrire le programme de résolution numérique. C'est un langage interprété et structuré qui a les avantages d'être open-source et gratuit. Il est par ailleurs très proche du langage MatLAB et est compatible avec les bibliothèques standards des langages C et C++. Nous avons utilisé un système d'exploitation GNU/Linux et plus précieusement la distribution Ubuntu puisqu'elle est open-source et gratuite. En outre ce système est plus léger que ceux de Microsoft ou d'Apple. Ce gain de puissance disponible et de place dans la mémoire vive est important lorsque l'on cherche à optimiser le temps de calcul.

On profite de ce chapitre pour se permettre une petite digression. Il n'est pas correct de parler de système d'exploitation Linux. En effet, le terme Linux fait référence au noyau du système. Or le système est aussi composé de nombreux logiciels libres du Projet GNU. On doit alors parler de système GNU/Linux.

L'algorithme de résolution numérique est composé de plusieurs étapes. Tout d'abord on définit l'ensemble des paramètres expérimentaux :

- la longueur d'onde du faisceau,  $\lambda = 532 \times 10^{-9}$  m.
- l'épaisseur de la cuve remplie de  $\text{CS}_2$ ,  $L = 1 \times 10^{-2}$  m.
- l'absorption à trois photons,  $\gamma = 9.3 \times 10^{-26} \text{ m}^3/\text{W}^2$ .
- le pas spatial suivant la dimension transverse  $x$ ,  $dx = 6.45 \times 10^{-7}$  m.
- le pas spatial suivant la dimension transverse  $y$ ,  $dy = 6.45 \times 10^{-7}$  m.
- l'indice de réfraction linéaire,  $n_0 = 1.6$ .
- le paramètre  $a$  de l'ajustement de la courbe de l'indice de réfraction non-linéaire effectif (voir formule (4.13)),  $a = 3.3921 \times 10^{-32} \text{ m}^4/\text{W}^2$ .
- le paramètre  $b$  de l'ajustement de la courbe de l'indice de réfraction non-linéaire effectif (voir formule (4.13)),  $b = 5.7643 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{W}$ .
- le paramètre  $c$  de l'ajustement de la courbe de l'indice de réfraction non-linéaire effectif (voir formule (4.13)),  $c = 1$ .
- l'intensité pic du faisceau,  $I_0$  en  $\text{W}/\text{m}^2$ .

On définit aussi les constantes physiques nécessaires :

- la célérité de la lumière dans le vide,  $c = 299792458$  m/s.
- la permittivité du vide,  $\epsilon_0 = 8.85418782 \times 10^{-12} \text{ s}^4\text{A}^2/\text{m}^3\text{kg}^1$ .

Ici nous étudions l'influence de l'intensité pic du faisceau ( $I_0$ ) sur la filamentation du faisceau. Nous devons définir le profil initial (à  $z = 0$ ) du champ  $E(x, y)$ . Pour cela nous avons enregistré via la caméra CCD une image du faisceau à l'entrée du milieu non-linéaire ainsi qu'une image du bruit. L'image est discrétisée en une matrice de taille  $(1024 \times 748)$  (autant que de pixels de la caméra) :  $E(x_n, y_m)$ .  $n$  est un entier compris entre 0 et 1023,  $m$  est un entier compris entre 0 et 747. Nous utilisons un sous-programme pour acquérir et convertir l'image de la caméra en une donnée utilisable pour la résolution numérique. Nous soustrayons le bruit au profil de l'intensité du faisceau. Puis nous convertissons le profil d'intensité en champ électrique grâce à la relation

$$|E| = \sqrt{\frac{I}{2c\epsilon_0 n_0}}. \quad (4.63)$$

Puisque le faisceau est focalisé à l'entrée de la cuve, la phase de ce faisceau est plane et on peut donc la prendre nulle. Puis on mesure le rayon du faisceau à l'entrée de la cuve grâce à la méthode  $D4\sigma$  (voir le chapitre 2.4). La donnée initiale correspond à la figure 4.15. On voit que le faisceau n'occupe qu'une petite partie de l'image, on recentre alors

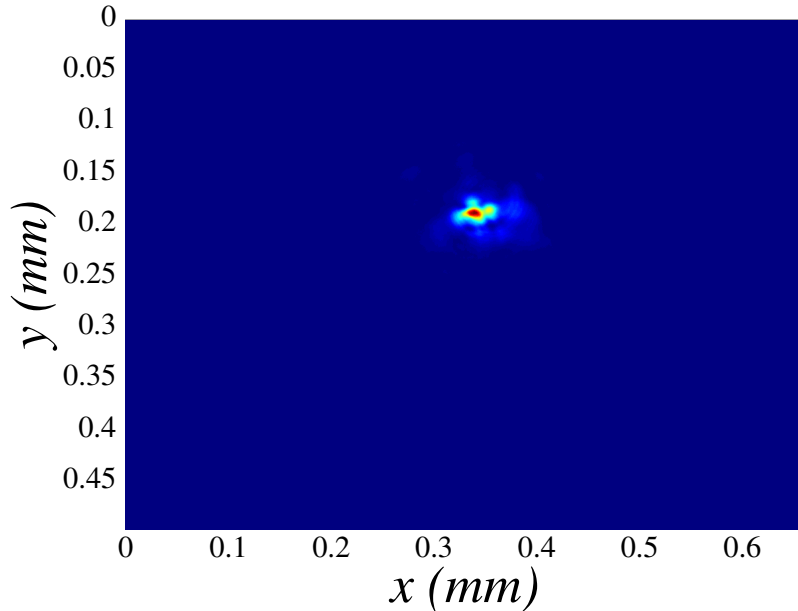


FIGURE 4.15 – Donnée initiale utilisée pour la résolution numérique.

celle-ci sur le centre du faisceau et on en réduit la taille grâce à un sous-programme. Cela permet de réduire le temps de calcul de la résolution numérique. La quantité des données est plus petite ainsi. La taille finale de l'image correspond à six fois le rayon du faisceau à l'entrée (voir la figure 4.16). Ensuite nous normalisons les paramètres expérimentaux afin qu'ils correspondent à ceux de l'équation normalisée (4.53). Pour cela nous appliquons les relations que nous avons déterminées dans le paragraphe 4.5.1. Puis nous résolvons l'équation normalisée (4.53) en utilisant la méthode de résolution numérique exposée dans les parties 4.5.2 et 4.5.3 ci-dessus. Le programme s'arrête une fois que le faisceau a été propagé jusqu'à la distance de propagation  $z = L$ . Afin de réduire la quantité de données conservées, on n'enregistre pas le profil du champ à chaque pas. En règle générale, nous effectuons un enregistrement pour cent pas effectués, mais cette valeur peut être modifiée. Enfin, pour pouvoir comparer les résultats numériques avec les résultats expérimentaux on dénormalise les résultats numériques. On peut alors traiter les données expérimentales.

Avec les paramètres de références :

- l'intensité de référence :  $I_r = 17.348 \text{ GW/cm}^2$ ,

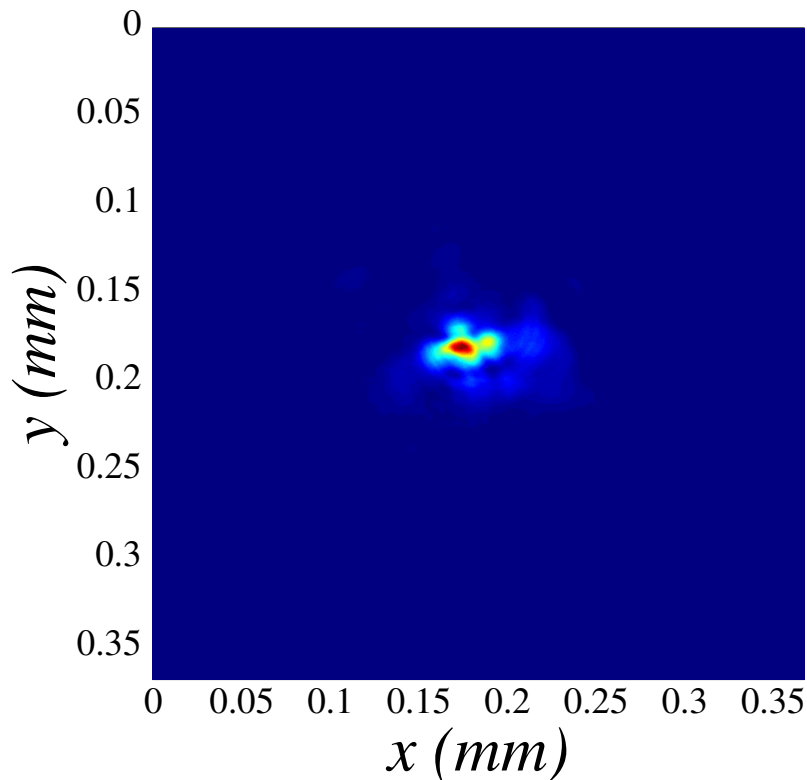


FIGURE 4.16 – Donnée initiale utilisée pour la résolution numérique, après recentrage. La taille du domaine est fixée à  $6w_0$ .

- longueur de référence :  $l = 70.369$  mm,
- le rayon du faisceau :  $w_0 = 17$   $\mu\text{m}$ ,

et les paramètres expérimentaux définis précédemment on calcule les paramètres normalisés

- la distance de propagation :  $Z = 0.14 \times 10^{-4}$ .
- le pas spatial normalisé suivant la dimension transverse  $x$  :  $dX = 1.057 \times 10^{-2}$ .
- le pas spatial normalisé suivant la dimension transverse  $y$  :  $dY = 1.057 \times 10^{-2}$ .
- le paramètre non-linéaire relatif à l'effet Kerr  $\eta = 848.45$ .
- le paramètre non-linéaire relatif à l'absorption non-linéaire cubique  $\mu = 98.479$ .

Si on trace la courbe de la fonction

$$n_{2,eff} \times I_0 = \frac{kaI_0^2}{1 + b^2I_0^2}, \quad (4.64)$$

suivant l'intensité pic incidente  $I_0$ , on observe une saturation de l'effet Kerr (voir la figure 4.17). Cette saturation commence à  $50 \text{ GW/cm}^2$  et devient très importante à partir de

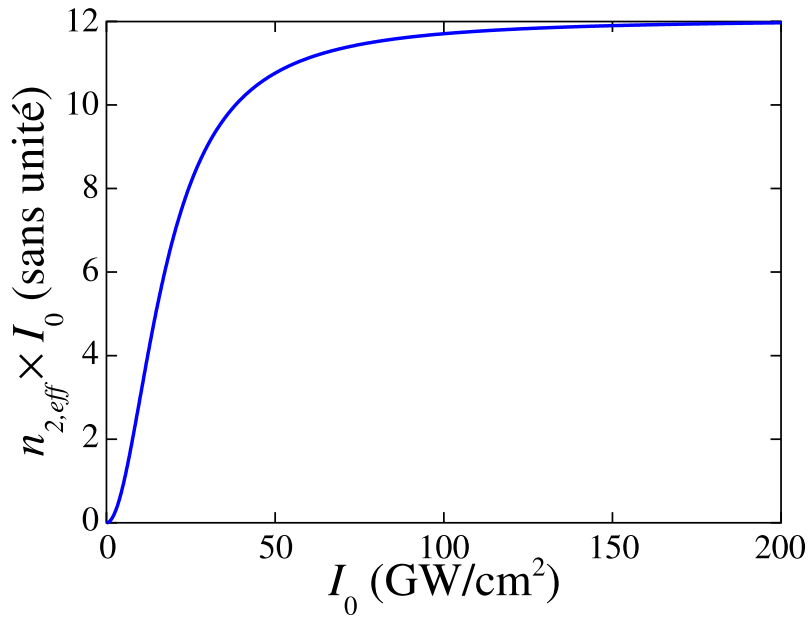


FIGURE 4.17 – Saturation de l'effet Kerr  $n_{2,eff} \times I_0 = (kaI_0^2) / (1 + b^2I_0^2)$  en fonction de l'intensité incidente pic  $I_0$  en  $\text{GW/cm}^2$ .

$150 \text{ GW/cm}^2$ . C'est pour cela que nous avons étudié une plage d'intensités pic à l'entrée du milieu non-linéaire allant de 1 à  $150 \text{ GW/cm}^2$ . Cela correspond à une plage de valeurs d'intensité normalisée allant de 0.06 à 8.65.

Pour des intensités pics inférieures à  $5.53 \text{ GW/cm}^2$  (valeur normalisée 0.32) on n'observe pas de filamentation. Le faisceau ne fait que se diffracter dans le plan transverse à l'axe de propagation. Ce n'est qu'à partir d'une intensité pic de  $5.54 \text{ GW/cm}^2$  que le premier filament apparaît (voir la figure 4.18). Le rayon du filament est d'environ  $4 \mu\text{m}$  suivant la définition  $D4\sigma$ . Le second filament apparaît pour une intensité pic incidente de  $I_0 = 15 \text{ GW/cm}^2$ . Le rayon des filaments est sensiblement le même ( $\approx 4 \mu\text{m}$ ). Au delà le nombre de filaments augmente très rapidement. Ainsi on compte environ cinq filaments lorsque l'intensité incidente est égale à  $I_0 = 139 \text{ GW/cm}^2$  (voir la figure 4.19). Le lecteur pourra être surpris par l'utilisation du qualificatif "environ". Bien que les filaments aient des profils d'intensités proche de la distribution Gaussienne, les intensités maximales de chacun des filaments peuvent avoir des valeurs très différentes. Ainsi lors du dépouillage numérique les fausses couleurs utilisées par le programme ne permettent pas de voir précisément chaque filament. Malgré cela, on constate un très bon accord entre les observations expérimentales et les résultats numériques. Notre modèle de saturation

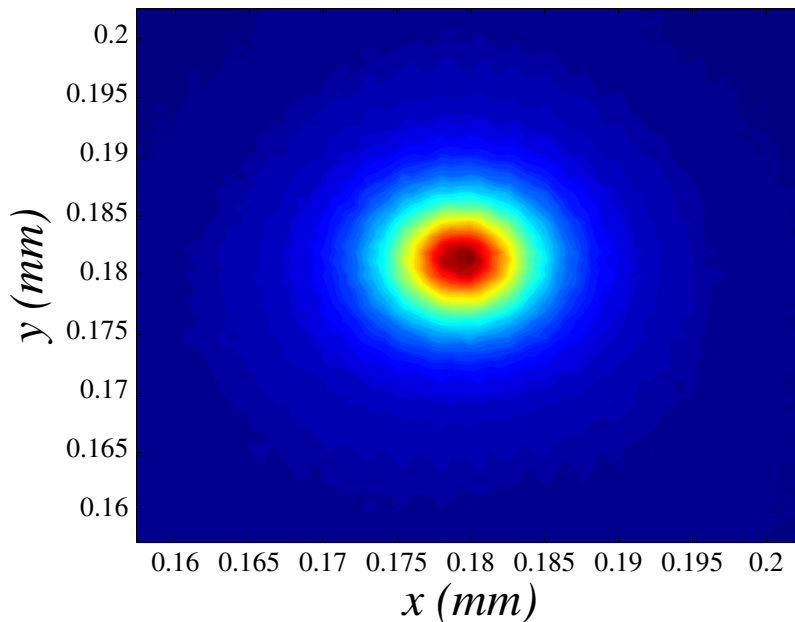


FIGURE 4.18 – Profil de l'intensité après une propagation de 10 mm (épaisseur de la cuve) obtenue grâce à la résolution numérique de l'équation (4.53) pour une intensité pic à l'entrée du milieu non-linéaire de  $I_0 = 5.53 \text{ GW/cm}^2$ .

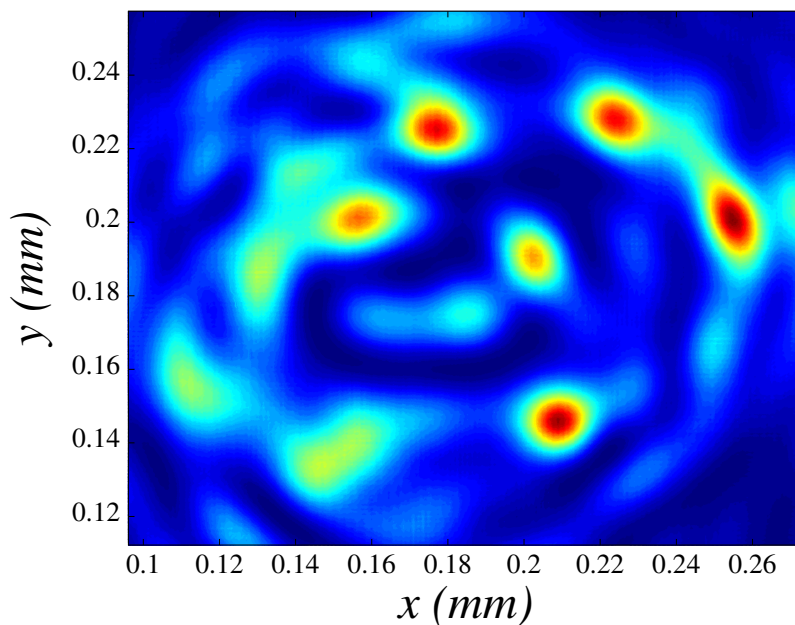


FIGURE 4.19 – Profil de l'intensité après une propagation de 10 mm (épaisseur de la cuve) obtenu grâce à la résolution numérique de l'équation (4.53) pour une intensité pic à l'entrée du milieu non-linéaire de  $I_0 = 139 \text{ GW/cm}^2$ .

de l'effet Kerr correspond donc bien à la situation expérimentale.

Puisque ce modèle retranscrit de façon convaincante la réalité expérimentale, nous avons pu jouer avec d'autres paramètres du faisceau afin d'essayer de contrôler la filamentation.

## 4.6 Contrôle de la filamentation

Nous l'avons vu, le phénomène de filamentation est utilisé pour la fabrication de guides d'ondes [46–53]. Le contrôle de la filamentation, c'est-à-dire la possibilité de choisir à quel endroit le ou les filaments se forment ainsi que leurs caractéristiques (rayon du filament, intensité pic) permettrait la réalisation de guides d'ondes plus sophistiqués, de réseaux de guides d'ondes, c'est-à-dire d'une modulation périodique de l'indice de réfraction. Nous avons cherché à savoir dans quelle mesure la phase du faisceau incident influence la filamentation. Cependant ces travaux ont été menés à la toute fin de la thèse si bien que ce chapitre constitue plus une ouverture qu'une étude complète de l'influence de la phase. Nous allons tenter de démontrer les possibilités qu'offre le contrôle de la phase et l'auteur de ce manuscrit espère que ces/ses travaux seront poursuivis.

Nous avons utilisé le nouveau modèle de saturation de l'effet Kerr pour étudier numériquement l'influence de la phase sur le faisceau. Puis nous avons confronté nos résultats numériques à l'expérience. Cependant, on présentera cette étude dans un autre ordre. Alors que l'expérience fut réalisée après l'étude numérique, il a été nécessaire de prendre en compte les spécificités de l'expérience d'abord, notamment celles imposées par le contrôle de la phase. Ainsi il nous apparaît plus naturel de présenter en premier lieu le montage expérimental, puis l'algorithme de résolution numérique, ensuite les résultats numériques obtenus et enfin les résultats expérimentaux.

### 4.6.1 Montage expérimental

Le montage expérimental est très proche de celui présenté dans le paragraphe 4.2. On utilise toujours une source laser Nd :YAG polarisée linéairement à  $\lambda = 532$  nm avec une longueur temporelle de 12 ps et un profil temporel Gaussien. Le taux de répétition du laser est de 10 Hz. On voit sur la figure 4.20 que l'on utilise toujours une lentille  $L_1$  de distance focale  $f_1 = 200$  mm. La caméra *CCD* utilisée est équipée d'un capteur de  $(1038 \times 1388)$  pixels. La dimension du pixel est  $(6.45 \times 6.45)$   $\mu\text{m}$ . La caméra est synchronisée avec les tirs lasers. Le système imageur composé de la caméra *CCD* et de la lentille  $L_2$  est indiqué sur la figure 4.20 par le rectangle en pointillés. Ces deux éléments sont fixés sur un rail de translation de façon à conserver la distance  $i$  constante. La distance  $i$  entre l'image

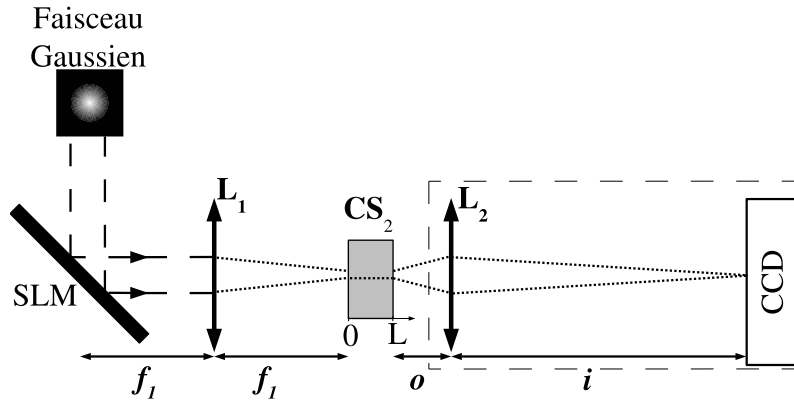


FIGURE 4.20 – Schéma du montage expérimental utilisé pour étudier l'influence de la phase du faisceau sur la filamentation dans la cuve de  $CS_2$  d'épaisseur  $L$ .  $L_1$  et  $L_2$  sont des lentilles convergentes. La focale de la lentille  $L_1$  est  $f_1$ .  $o$  est la distance entre le plan objet et la lentille  $L_2$ ,  $i$  la distance entre la lentille  $L_2$  et l'image formée sur la caméra. La boîte en pointillés correspond au système imageur qui peut se déplacer suivant l'axe  $z$  afin de former l'image du plan objet sur la caméra avec un grossissement de 10. SLM désigne au modulateur spatial de lumière. Il permet de modifier la phase du faisceau laser.

formée sur la caméra et la lentille  $L_2$  est dix fois supérieure à la distance  $o$  entre le plan objet que l'on veut visualiser et la lentille  $L_2$ . On a un agrandissement égal à  $\times 10$ . Le milieu non-linéaire étudié est une cuve remplie de disulfure de carbone, d'une épaisseur  $L$  de 10 mm. Une lame demi-onde et un prisme de Glan permettent d'ajuster l'intensité du faisceau à l'entrée. De plus un filtre spatial placé en amont du montage assure que le profil spatial du faisceau est gaussien. La lame demi-onde, le prisme de Glan et le filtre spatial n'apparaissent pas sur la figure 4.20.

Le contrôle de la phase du faisceau incident est accompli par le modulateur spatial de la lumière (SLM). Le SLM est composé d'une matrice réfléchive LCOS (Liquid Crystal On Silicon), c'est-à-dire une matrice composée de cristaux liquides déposés sur une base de silicium. Cette matrice est contrôlée électriquement par un interface logiciel fourni par le fabricant. Ce logiciel permet de modifier une valeur de gris qui est transformée, via une carte graphique dans l'ordinateur, par une modification de l'alignement des cristaux. Lorsque le faisceau frappe la matrice sa phase est modifiée, le déphasage peut aller jusqu'à  $2\pi$ , et le faisceau est alors réfléchi. Le logiciel de contrôle du SLM permet de gérer chaque pixel indépendamment. On peut donc faire afficher n'importe quelle configuration de phase sur la matrice. Cette matrice est de taille  $(1920 \times 768)$  pixels, chacun mesurant  $(8 \times 8) \mu m^2$ . Afin de profiter pleinement du potentiel du SLM et d'éviter de l'endommager, il convient d'ajuster la taille du faisceau pour qu'il occupe toute la matrice. De plus le



faisceau doit-être parallèle pour que le front d'onde soit plan. Le SLM est placé dans le plan objet de la lentille  $L_1$ .

Maintenant que nous avons présenté le montage expérimental, nous allons pouvoir expliquer l'algorithme de calcul utilisé pour la résolution numérique de la propagation du faisceau.

## 4.6.2 Résolution numérique

La grande différence avec la résolution numérique que nous avons présenté dans le paragraphe 4.5 est que la phase du faisceau est dorénavant un paramètre sur lequel nous pouvons jouer. Bien qu'il soit très simple de définir une phase à l'entrée du milieu non-linéaire celle-ci doit être reproductible expérimentalement. Or nous venons de voir que le SLM ne se situe pas à l'entrée du milieu mais avant la lentille  $L_1$ . La conséquence est que la phase du faisceau à l'entrée de la cuve ne sera pas celle affichée sur le SLM. Il est nécessaire de prendre en compte la propagation du faisceau du SLM jusqu'à l'entrée du milieu non-linéaire.

L'axe de propagation  $z$  est défini de façon que le plan focal de la lentille  $L_1$  est situé à  $z = 0$ , la lentille  $L_1$  est située à  $z = f_1$  et le plan focal de la lentille  $L_1$  est situé à  $z = 2f_1$ . Ce dernier coïncide avec l'entrée du milieu non-linéaire. Puisque le SLM se trouve avant la lentille  $L_1$ , il est possible d'utiliser l'optique de Fourier pour calculer la propagation du faisceau [108] du SLM jusqu'à l'entrée du milieu non-linéaire. Le champ électrique dans le plan objet de la lentille  $L_1$  est

$$E(x, y) = E(x, y, 0) \exp(-i\varphi(x, y, 0)), \quad (4.65)$$

où  $E(x, y, 0)$  est l'amplitude et  $\varphi(x, y, 0)$  est la phase du faisceau à la position  $z = 0$  sur l'axe de propagation. Soit  $\mathcal{E}(k_x, k_y, z) = \mathcal{F}E(x, y)$  la transformée de Fourier du faisceau où  $k_x$  et  $k_y$  sont les variables réciproques.  $\mathcal{E}(k_x, k_y, 0)$  correspond au spectre de Fourier du champ dans le plan objet de la lentille  $L_1$ . On obtient le champ électrique à la position  $z = f_1$

$$E(x, y, f_1) = \mathcal{F}^{-1}[\mathcal{E}(k_x, k_y, 0) H(k_x, k_y, f_1)], \quad (4.66)$$

où  $\mathcal{F}^{-1}$  désigne la transformée de Fourier inverse et  $H(u, v, f_1)$  est la fonction de propagation en espace libre à la distance finie  $f_1$

$$H(u, v, f_1) = \exp\left(i2\pi f_1 \sqrt{1 - (\lambda u)^2 - (\lambda v)^2}\right). \quad (4.67)$$

Le passage du faisceau au travers de la lentille implique une transformation de phase. La fonction de transfert de cette transformation de phase est définie par

$$t_{L_1}(x, y) = \exp\left[-\frac{i\pi(x^2 + y^2)}{\lambda f_1}\right], \quad (4.68)$$

dans l'approximation des lentilles minces. Ainsi, on obtient le champ électrique après la lentille comme le produit du champ (4.66) par la fonction de transfert (4.68)

$$E'(x, y, f_1) = E(x, y, f_1) \exp\left[-\frac{i\pi(x^2 + y^2)}{\lambda f_1}\right]. \quad (4.69)$$

En appliquant alors de nouveau la fonction de propagation en espace libre à la distance  $f_1$  (4.67) à la transformée de Fourier du champ électrique  $E'(x, y, f_1)$ , puis en calculant la transformée inverse de Fourier du résultat on a

$$E(x, y, 2f_1) = \mathcal{F}^{-1}[E'(k_x, k_y, f_1) H(k_x, k_y, f_1)]. \quad (4.70)$$

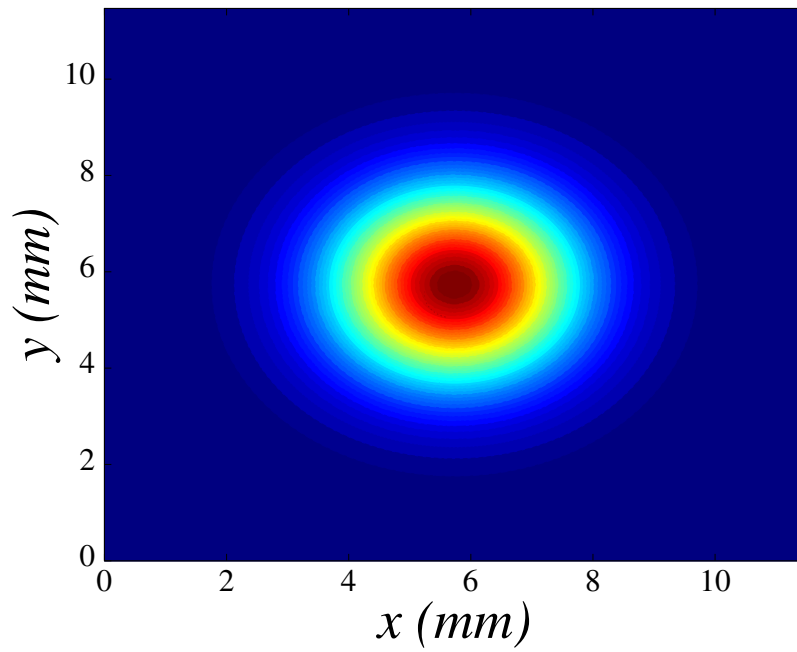
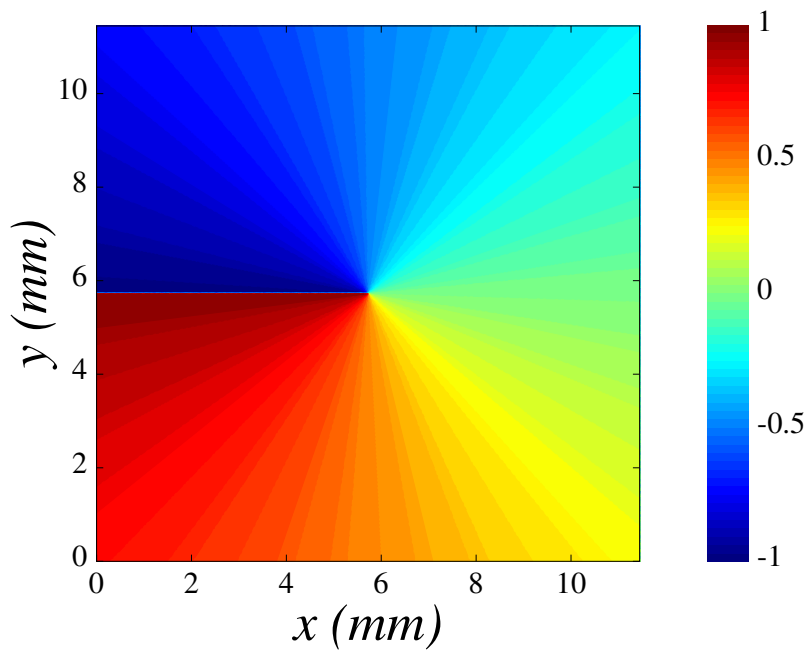
La discrétisation des étapes nécessaires au calcul du champ électrique à l'entrée du milieu non-linéaire ne pose pas de problème majeur. En effet les relations (4.67) et (4.68) sont explicites. La principale difficulté vient du calcul de la transformée de Fourier et de son inverse. On utilise pour cela l'algorithme de transformée de Fourier rapide à deux dimensions. Cet algorithme est directement implémenté dans le logiciel de calcul numérique GNU Octave. Il impose une restriction, la taille de la matrice à laquelle on applique cet algorithme doit être égale à une puissance de deux. De plus, cette valeur doit-être la plus grande possible, pour qu'on aie la transformée de Fourier (ou Fourier inverse) la plus précise puisque définie pour un nombre maximal de points. Il faut cependant que les valeurs proches des bords de la matrice soient nulles. Dans le cas contraire on observera la figure de diffraction des bords du domaine, ce qui est dans ce cas une erreur numérique. Cependant,

la mémoire de l'ordinateur limite néanmoins la taille de la matrice considérée, et la taille maximale à laquelle nous pouvons prétendre est  $(2^{13})^2 = 8192 \times 8192$ . On définit alors l'amplitude du champ électrique comme une matrice  $|E(x_n, y_m)|$  de taille  $(8192 \times 8192)$  de profil gaussien. Les pas spatiaux à l'entrée sont  $dx = dy$ . La phase  $\varphi(x, y)$ , introduite par le SLM, est déterminée par l'utilisateur, elle correspond à une matrice  $\varphi(x_n, y_m)$  de même dimension que le champ électrique.

On applique aux matrices la relation (4.65), on nomme  $E(x_n, y_m)$  la matrice complexe de dimension  $(8192 \times 8192)$  obtenue. C'est ce champ qui va être soumis à l'algorithme de transformée de Fourier rapide à deux dimensions. Les variables d'espaces sont  $(x, y)$  tandis que les variables réciproques sont  $(k_x, k_y)$ . Les pas spatiaux dans l'espace réciproques  $dk_x$  et  $dk_y$  et sont définis tels que  $dx \times dk_x = 1/8192$ .

Une fois la propagation de cette matrice calculée, on peut utiliser l'algorithme de résolution numérique de l'équation (4.53) correspondant à notre modèle de saturation de l'effet Kerr présenté dans le paragraphe 4.5.4. L'inconvénient de considérer une matrice aussi grande est que le temps de calcul devient très important. Comme précédemment, on réduit la taille de la matrice à un domaine de longueur et de largeur égales à  $6w_0$  (approximativement  $(465 \times 465)$  pixels). Nous ne représenterons pas l'algorithme de résolution numérique de l'équation (4.53) puisqu'il a déjà été présenté en détail dans le paragraphe 4.5.4. Une fois la résolution achevée, on obtient l'image de la sortie de cuve.

Parmi les quelques configurations de phases que nous avons étudiées (phase incurvée, phase suivant une fonction de Bessel, phase top-hat), le vortex s'est révélé très prometteur. Nous avons étudié la propagation d'un champ électrique de profil gaussien (voir la figure 4.21) de rayon  $w_0 = 15 \mu\text{m}$  et avec une phase de type vortex (voir la figure 4.22). La singularité de phase au centre du vortex est une instabilité qui lors de la propagation peut engendrer des effets intéressants. La position du centre de l'amplitude du champ électrique coïncide avec celle de la singularité de phase. L'intensité à l'entrée de la cuve est de  $I_0 = 6 \text{ GW/cm}^2$ . Les paramètres de l'équation (4.53) sont les mêmes que ceux donnés dans le paragraphe 4.5.4. Le profil de l'intensité à l'entrée du milieu non-linéaire est représenté sur la figure 4.23, tandis que le profil de l'intensité à la sortie est représenté sur la figure 4.24. On observe une séparation du faisceau initial en deux filaments symétriques par rapport au centre de la figure. On notera tout de même que les deux filaments sont

FIGURE 4.21 – Amplitude du champ dans le plan objet de la lentille  $L_1$ .FIGURE 4.22 – Phase du champ dans le plan objet de la lentille  $L_1$ . La phase est donnée en part de  $\pi$ .

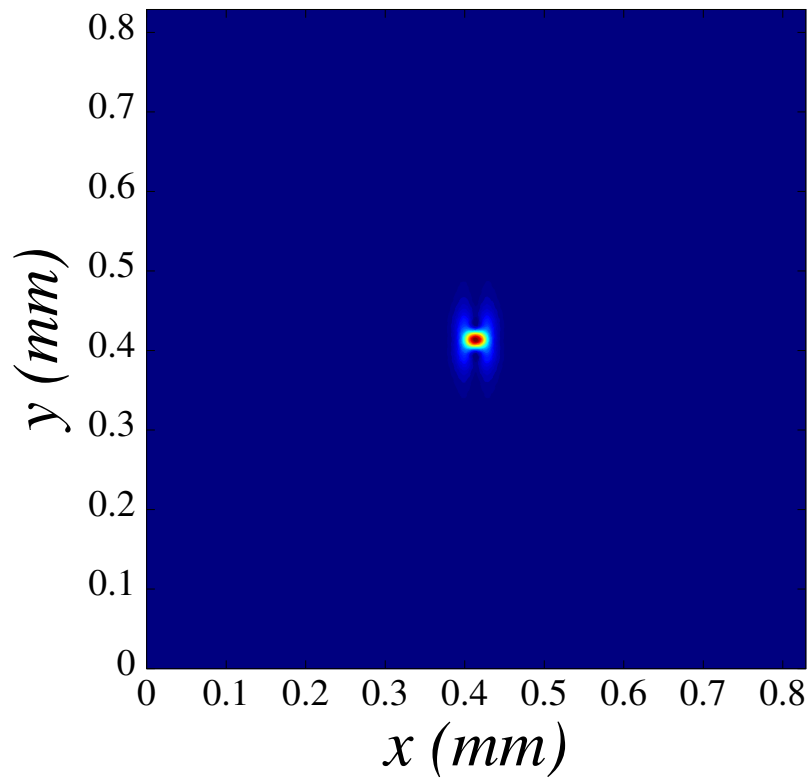


FIGURE 4.23 – Profil numérique de l'intensité à l'entrée du milieu non-linéaire.

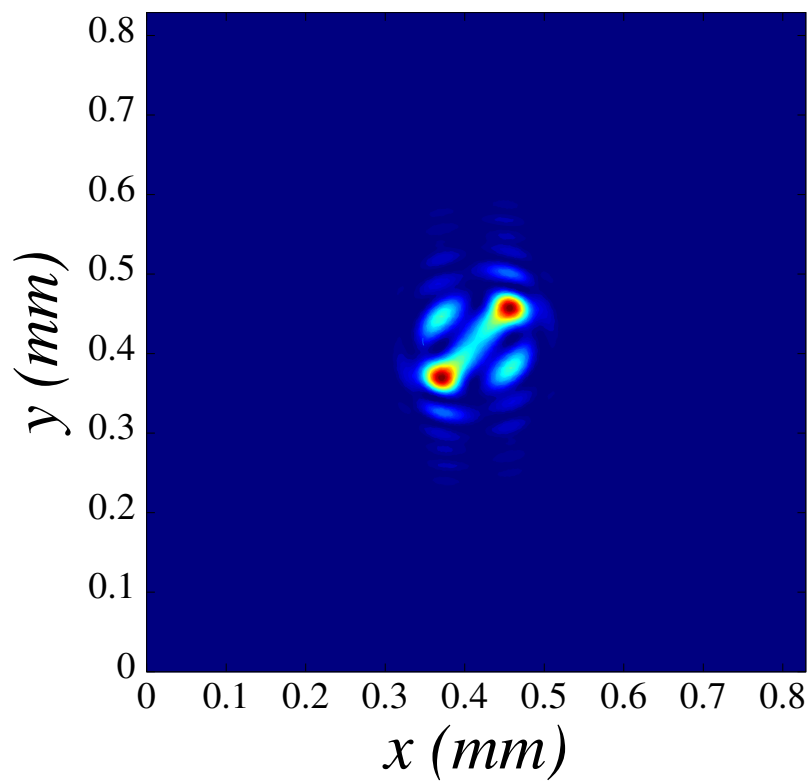


FIGURE 4.24 – Profil de l'intensité à la sortie du milieu non-linéaire obtenue par résolution numérique de la propagation du faisceau.

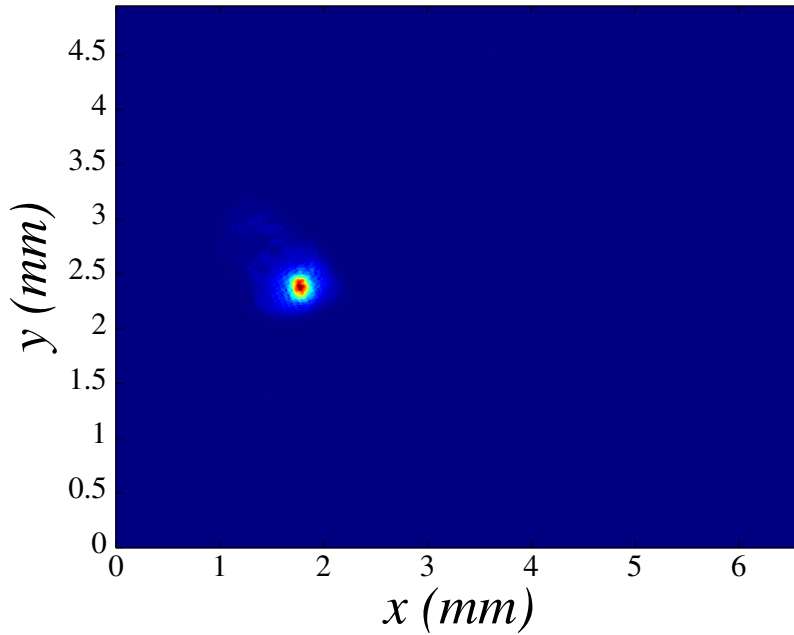


FIGURE 4.25 – Profil de l’intensité à la sortie du milieu non-linéaire. Le faisceau à l’entrée du milieu non-linéaire a une phase nulle.

légèrement plus larges que le faisceau initial.

Nous avons vu qu’avec un faisceau muni d’une phase de type vortex de vorticité 1, il est possible de séparer le faisceau en deux filaments distincts. Il est intéressant de reproduire cette situation dans le cadre expérimental.

### 4.6.3 Résultats expérimentaux

Le montage expérimental utilisé est identique à celui présenté ci-dessus (voir la figure 4.20). Grâce au logiciel de contrôle du SLM, il est possible de définir un vortex proche de celui de la résolution numérique (voir la figure 4.22). L’image reçue par la caméra CCD correspond à l’intensité du faisceau en sortie du milieu non-linéaire. Le laser Nd :YAG délivre une impulsion picoseconde à  $\lambda = 532 \text{ nm}$ . Le faisceau a un rayon de  $w_0 \approx 15 \mu\text{m}$ . Ainsi la longueur de Rayleigh est dix fois inférieure à l’épaisseur de la cuve ( $L = 10 \text{ mm}$ ). Pour ne pas endommager le SLM, nous sommes restés à des intensités modérées (5 à  $6 \text{ GW/cm}^2$ ). On remarque qu’en absence de modulation de la phase, on observe un filament unique à la sortie de la cuve remplie de disulfure de carbone (voir la figure 4.25). Nous avons centré le vortex sur le filament et on a observé, comme la résolution numérique le prédit, une séparation du filament en deux (voir la figure 4.26). Cependant on remarque que les deux filaments ne sont pas d’intensité égale. Les résultats préliminaires bien que

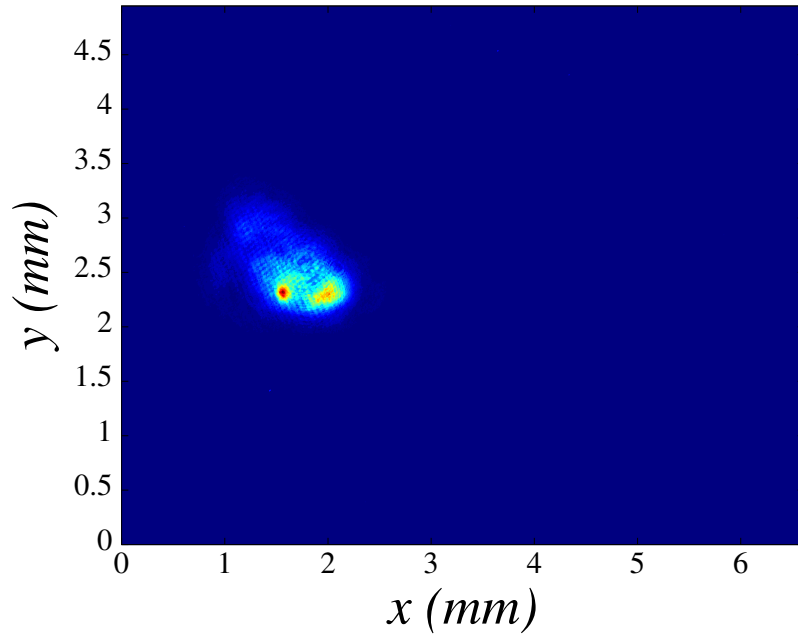


FIGURE 4.26 – Profil de l'intensité à la sortie du milieu non-linéaire. Le faisceau à l'entrée du milieu non-linéaire a une phase de type vortex.

loin d'être parfaits sont prometteurs.

L'accord entre les observations expérimentales et les résultats numériques est bon. Certes, les résultats numériques présentent une forte symétrie entre les filaments par rapport au centre du faisceau. Cependant la donnée numérique initiale est un faisceau Gaussien parfait, c'est-à-dire avec une symétrie de révolution. La scission du faisceau brise cette symétrie azimutale, mais pas au point de créer un système sans symétrie. C'est pour cela que l'on obtient deux filaments, parfaitement identiques et symétriques par rapport au centre du faisceau. De plus, il y a conservation du moment cinétique puisque l'équation (4.53) est conservative. La situation expérimentale est différente puisque le faisceau réel n'a pas de symétrie de révolution parfaite. C'est cet écart entre le modèle théorique et l'expérience qui est le plus important, mais aussi, le plus difficile à rendre. Puisque le faisceau réel n'est pas symétrique à l'entrée, il ne peut être symétrique à la sortie par conservation du moment cinétique.

Malgré le peu de temps que nous avons pu accorder à la réalisation du montage expérimental, ces premiers résultats sont très prometteurs.

## 4.7 Conclusion

Nous avons vu le phénomène de filamentation qui est connu et étudié depuis longtemps [38, 45, 101]. De nombreuses explications à l'arrêt de l'effondrement du faisceau ont été proposées : effets de la polarisation [39], l'ellipticité du faisceau [40], équilibre simultané entre l'auto-focalisation non-linéaires et la diffraction [15, 41–43], effet de l'ionisation dans le cas de la filamentation de l'air [44, 45].

Nous avons observé la filamentation d'un faisceau picoseconde à  $\lambda = 532$  nm issu d'une source laser Nd :YAG dans une cuve remplie de disulfure de carbone d'épaisseur  $L = 10$  mm (voir les figures 4.2, 4.3 et 4.4). On a pu déterminer que le premier filament apparaissait pour un faisceau d'intensité pic de  $I_0 = 44$  GW/cm<sup>2</sup>. De plus le rayon du filament est égal à  $w_0 = (4 \pm 0.6)$   $\mu$ m.

Nous avons mesuré l'indice de réfraction effectif non-linéaire du troisième ordre  $n_{2,eff}$  (en m<sup>2</sup>/W) en augmentant l'intensité jusqu'à des valeurs relativement élevées. Grâce à l'utilisation de la méthode de mesure  $D4\sigma$  couplée à un système imageur  $4f$  (voir le paragraphe 4.3.1), nous avons relevé une variation de l'indice  $n_{2,eff}$  inédite que ce soit à  $\lambda = 532$  nm (voir la figure 4.6) ou à  $\lambda = 1064$  nm (voir la figure 4.7). Habituellement on définissait l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre  $n_{2,eff}$  comme un développement en série de l'intensité suivant les ordres cubiques et quintiques de la réfraction non-linéaire (voir la formule (4.12)). Or les variations de  $n_{2,eff}$  ne peuvent être décrites avec ce modèle. Nous avons donc développé notre propre modèle.

En utilisant l'algorithme Levenberg-Marquardt [158, 159], nous avons ajusté les courbes expérimentales de variation de  $n_{2,eff}$  en fonction de l'intensité incidente  $I$  grâce à l'Ansatz  $n_{2,eff}(I) = aI / (1 + b^2I^2)$ . Nous avons déterminé l'ajustement à  $\lambda = 532$  nm. En adaptant l'équation de Schrödinger non-linéaire à l'Ansatz utilisé pour l'ajustement de courbe nous avons obtenu un nouveau modèle (4.30).

En normalisant l'équation et en utilisant la méthode des différences finies (voir le paragraphe 4.5.2) et la méthode de Runge-Kutta d'ordre 4 (voir le paragraphe 4.5.3), il a été possible de calculer numériquement la propagation du faisceau au travers du milieu non-linéaire. On a observé numériquement la formation du premier filament à une intensité pic incidente voisine de  $I_0 = 5$  GW/cm<sup>2</sup>. De plus le rayon  $w_0$  du filament valait environ



4  $\mu\text{m}$ . Quand on augmente l'intensité pic incidente, la filamentation devient multiple et on observe que les filaments ont sensiblement la même taille indépendamment de la puissance incidente.

On observe un très bon accord entre nos résultats expérimentaux et notre modèle théorique. La saturation atypique de l'effet Kerr que nous avons observée est bien responsable du phénomène de filamentation.

Enfin nous avons présenté des résultats préliminaires d'une étude théorique et expérimentale de l'influence de la phase sur la filamentation (voir le paragraphe 4.6). Nous avons tout d'abord prédit qu'il est possible de contrôler la filamentation en utilisant un faisceau muni d'une phase de type vortex. On observe la séparation du filament unique en deux filaments identiques disposés symétriquement de part et d'autre de la singularité de phase du faisceau. Le contrôle de la phase est accompli grâce à un modulateur spatial de la lumière placée dans le plan objet de la lentille  $L_1$  (voir la figure du montage expérimentale 4.20). Les résultats expérimentaux montrent qu'un faisceau modérément intense muni d'une phase de type vortex se scinde en deux filaments.

Ces résultats restent encourageants et méritent d'être approfondies. Il serait intéressant d'étudier d'autre type de phases telles que une phase définie par une fonction de Bessel ou des combinaisons de vortex.

# Chapitre 5

## Dynamique des solitons dissipatifs et des solitons vortex

### 5.1 Introduction

Le soliton est défini par P.G. DRAZIN et R.S. JOHNSON dans *Solitons : an introduction* [161] comme une onde ou un paquet d'onde localisé, qui conserve sa forme au cours de sa propagation et peut interagir avec d'autres solitons, de telle façon que seule la phase du soliton est modifiée par cette interaction. Ce type d'onde nécessite que les effets non-linéaires du milieu compensent la dispersion (soliton temporel) ou le diffraction (soliton spatial). Si ce sont ces deux effets qui sont compensés alors on parle de soliton spatio-temporel. Différentes solutions de type soliton ont été trouvées dans différentes équations aux dérivées partielles (EDP), telles que l'équation de Schrödinger non-linéaire, l'équation Korteweg-de Vries (KdV), l'équation sine-Gordon... De telles ondes ont été observées dans différents domaines de la physique : hydrodynamique, optique non-linéaire, condensats de Bose-Einstein... Des solitons ont été observés dans des domaines autres que la physique comme par exemple la biologie [162–166].

Historiquement c'est en 1834 que J. S. RUSSEL alors ingénieur naval observa la formation, dans le Canal de l'Union qui relie Édimbourg à Forth-Clyde, d'une onde de forte amplitude dû à l'arrêt brutal d'un bateau [99]. Il l'a décrit en ces termes :

I was observing the motion of a boat which was rapidly drawn along a narrow channel by a pair of horses, when the boat suddenly stopped – not so the

mass of water in the channel which it had put in motion; it accumulated round the prow of the vessel in a state of violent agitation, then suddenly leaving it behind, rolled forward with great velocity, assuming the form of a large solitary elevation, a rounded, smooth and well-defined heap of water, which continued its course along the channel apparently without change of form or diminution of speed. I followed it on horseback, and overtook it still rolling on at a rate of some eight or nine miles an hour, preserving its original figure some thirty feet long and a foot to a foot and a half in height. Its height gradually diminished, and after a chase of one or two miles I lost it in the windings of the channel. Such, in the month of August 1834, was my first chance interview with that singular and beautiful phenomenon which I have called the Wave of Translation [99].

Ce soliton hydrodynamique remontant le courant sur plusieurs kilomètres sans faiblir est modélisé par J. V. BOUSSINESQ en 1871 [167]. Ce n'est que l'année suivant que J. V. BOUSSINESQ propose une EDP et en donne une solution qui décrit le soliton fondamental [168]. C'est en 1895 que D. KORTEWEG et G. DE VRIES proposèrent à nouveau cette EDP qui porte aujourd'hui leurs noms équation Korteweg-de Vries (KdV) [169]. Parmi les différentes solutions de cette équation, on retrouve celle pour le soliton hydrodynamique de J. S. RUSSEL. On notera que cette solution est obtenue en utilisant la méthode de diffusion inverse. Enfin c'est en 1965 que N. ZABUSKY et M. KRUSKAL résolvent numériquement l'équation de KdV grâce à la méthode des différences finies [170]. Ils démontrent que deux solitons peuvent entrer en collision et qu'ils conservent leur enveloppe et leur vitesse propre après séparation. C'est N. ZABUSKY et M. KRUSKAL qui pour la première fois nomment ces ondes solitaires aux comportements si particulier "solitons". C. S. GARDNER et al. présenteront en 1967 une méthode pour résoudre le problème de valeur initiale de l'équation de KdV [171].

C'est avec l'arrivée des lasers en 1960, que l'optique est entrée dans l'ère du non-linéaire. Le principal phénomène qui permet l'existence de soliton en optique non-linéaire est l'effet Kerr optique (voir le paragraphe 1.4) [150]. Cet effet est la dépendance de l'indice

de réfraction  $n$  par rapport à l'intensité, qui peut s'écrire

$$n(I) = n_0 + n_2 I, \quad (5.1)$$

où  $n$  est l'indice de réfraction,  $n_0$  est la valeur de celui-ci en optique linéaire,  $n_2$  est l'indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre (en  $\text{m}^2/\text{W}$ ) et  $I$  est l'intensité du faisceau laser.

La variation de l'indice de réfraction  $n$  en fonction de l'intensité  $I$  de l'impulsion laser induit une modulation de la phase, maximale au pic d'intensité de l'impulsion. Pour les solitons temporels, ce retard de phase va compenser la dispersion chromatique. C'est avec ce raisonnement que A. HASEGAWA et F. TAPPERT prédisent théoriquement l'existence de solitons temporels dans les fibres optiques de silice en 1973 [12]. La première observation expérimentale de ceux-ci fut faite en 1980 par L.F. MOLLENAUER et al. [13]. Ce n'est que 8 ans plus tard que L.F. MOLLENAUER et K. SMITH utilisent les impulsions lasers comme vecteurs d'informations et parviennent à transmettre un signal à plus de 4000 km de distance grâce aux propriétés des solitons temporels [14]. Nous ne parlerons pas d'avantage des solitons temporels ici, notre étude portant sur les solitons spatiaux dissipatifs. Le lecteur désireux d'en savoir davantage pourra se reporter au livre de G.P. AGRAWAL, très complet sur le sujet [172].

C'est le même effet Kerr (5.1) qui permet aux solitons spatiaux d'exister. La modulation de phase induit dans ce cas un phénomène d'auto-focalisation si  $n_2$  est positif, ou d'auto-défocalisation si  $n_2$  est négatif, qui permet de compenser la diffraction spatiale comme illustré sur la figure 5.1. Bien que tout autant intéressant et utilisable pour des applications réelles, les solitons spatiaux restent plus étudiés du point de vue fondamental que les solitons temporels. En effet, l'auto-focalisation est observable dans de nombreux matériaux, alors que dans le cas des solitons temporels, la plupart des études s'intéressent à la propagation dans les fibres optiques en silice. Les études sur les solitons spatiaux se portent alors sur de nombreux phénomènes physiques mis en jeu, de nombreuses applications potentielles ont été envisagées comme le routage optique ou l'ordinateur tout optique. Cependant, la compréhension des divers mécanismes influençant la dynamique de ces solitons n'est toujours pas suffisante pour permettre la réalisation de produits commer-

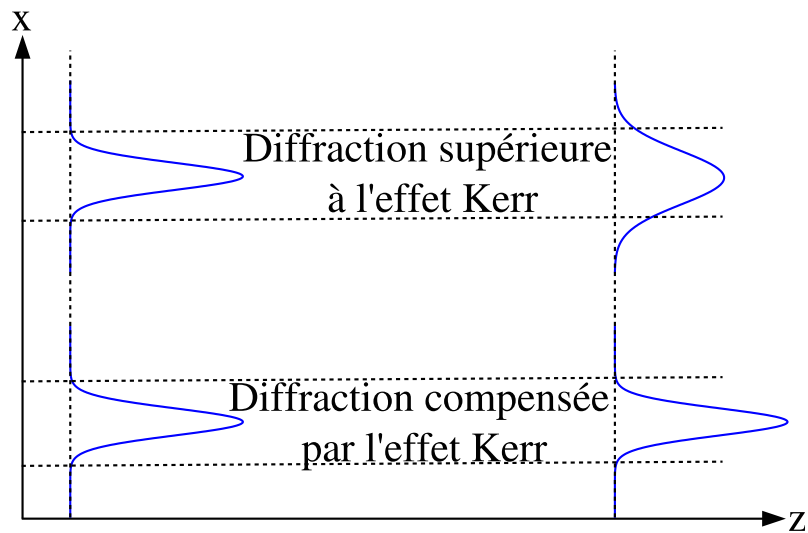


FIGURE 5.1 – Illustration de la formation du soliton spatial suivant le rapport entre la diffraction spatiale et l'effet Kerr.

ciaux. C'est pour cela que les recherches se portent plus sur la théorie que l'expérience. Par exemple le phénomène d'auto-focalisation n'a été observé qu'en 1964 [7, 8]. C'est aussi la première observation expérimentale de soliton spatial. Cependant ce n'est que bien plus tard que ces deux phénomènes ont été reliés [9, 10]. Les études sur le sujet sont toujours d'actualité et de nombreux milieux sont aujourd'hui à l'étude. Très récemment E.L. FALCÃO-FILHO et al. [11] ont observé expérimentalement des solitons spatiaux dans le disulfure de carbone. Ils ont expliqué l'existence d'une telle structure dans le disulfure de carbone grâce aux contribution simultanées des susceptibilités non-linéaires cubiques et quintiques.

La recherche progressant, les chercheurs en sont venus à étendre les études à des systèmes non conservatifs, c'est-à-dire des systèmes admettant la possibilité de gain et de perte d'énergies. Dans ces systèmes il existe deux équilibres. Le premier équilibre est entre les différents effets conservatifs (diffraction et auto-focalisation), tandis que le second équilibre est entre les différents effets non conservatifs (pertes et gains) [104]. Ces structures ont été nommées solitons dissipatifs [173, 174]. Un modèle particulièrement important ayant comme solution des solitons dissipatifs, suivant ce mécanisme d'équilibre, est l'équation complexe de Ginzburg-Landau (CGL) avec les termes cubiques-quintiques (CQ). On retrouve ces solitons dans les milieux amplificateurs [175–187] ainsi que dans les cavités plasmoniques [188–197] En plus d'être un modèle pour la physique des lasers ainsi que les cavités plasmoniques, l'équation CGL, incluant les variantes CQ, est aussi utilisée

dans d'autres domaines de la physique comme les condensats de Bose-Einstein dans les systèmes ouverts (tels que les condensats de quasi-particules dans les solides) [198–203], les systèmes à réaction-diffusion [204] ou la physique des supraconducteurs [205, 206]. On notera que l'équation CGL constitue une classe universelle de modèles décrivant les ondes non-linéaires et la formation de différentes structures dans les milieux actifs.

Dans ce chapitre nous allons commencer par formuler l'équation complexe de Ginzburg-Landau cubique-quintique (CGL-CQ) ainsi que la méthode que nous avons utilisée pour résoudre numériquement cette équation. Nous introduirons les paramètres sur lesquels nous allons jouer pour étudier la dynamique des solitons dissipatifs et les structures en découlant : la norme et la phase du vecteur d'onde transverse. Nous calculerons alors, sous certaines approximations, une formule analytique pour déterminer la valeur seuil d'inclinaison nécessaire au déplacement du soliton. Puis on présentera le résultats des résolutions numériques en fonction des paramètres dans différentes configurations. Tout d'abord on s'intéressera aux solitons fondamentaux, puis on étudiera la dynamique des solitons multipôles : les dipôles et les quadrupôles. Enfin, on exposera les résultats concernant les vortex rhombiques et carrés.

## 5.2 Équation complexe de Ginzburg-Landau cubique-quintique

Historiquement, c'est en 1984 que V. I. PETVIASHVILI et A. M. SERGEEV postulent un modèle décrivant différentes structures bi-dimensionnelles locales et stables : l'équation complexe de Ginzburg-Landau cubique-quintique (CGL-CQ) [58]. Cette équation ou des variantes de celle-ci ont été utilisés dans de nombreuses situations afin décrire et d'étudier les solutions localisées en particuliers celles uni- ou bi-dimensionnelles appelées les solitons dissipatifs [59–89].

Dans le cadre de l'optique non-linéaire, il est possible de décrire une cavité laser bi-dimensionnelle contenant une modulation transversale périodique de l'indice en utilisant l'équation CGL-CQ avec un potentiel périodique transverse (représentant la modulation transverse) [90]. On notera qu'il est possible de fabriquer des modulations transversales dans des matériaux épais grâce aux méthodes de gravure optique [207]. De même, il

est possible d'obtenir des modulations transversales de l'indice non-permanentes dans les cristaux photoréfractifs, en utilisant deux lasers pompes polarisés ordinairement qui induisent un réseau d'interférence transversal dans le cristal tandis qu'un faisceau sonde avec une polarisation particulière, se propage suivant l'axe  $z$  [208]. De fait, les cavités lasers avec une modulation transversale peuvent être considérées comme des cristaux photoniques réalisés dans le domaine temporel. Des potentiels périodiques ont été réalisés dans le domaine temporel à l'aide d'un faisceau laser externe modulé activement agissant dans des systèmes optiques passifs,. Dans les systèmes actifs, on a surtout considéré une modulation dans le domaine spatial. Cette modulation effective peut être induite par des modulations spatiales du faisceau pompe [209, 210].

Récemment, il a été démontré qu'il existe des vortex localisés composés de quatre pics piégés dans les sites du potentiel périodique, qui sont stables en absence du terme diffusion dans l'équation CGL-CQ nulle [90]. En effet, la diffusion est nécessaire pour stabiliser les solitons vortex dissipatifs dans les milieux uniformes [78–82], mais ce terme est absent lorsque l'on considère un guide d'onde. La diffusion est présente dans les modèles qui décrivent le comportement de la lumière piégée dans une cavité où la variable d'évolution est le temps plutôt que la direction de propagation [211]. Les solitons fondamentaux ainsi que les solitons vortex ont été étudiés en détail pour l'équation CGL-CQ incluant un potentiel périodique à deux dimensions [212] ou à trois dimensions [213]. Les solitons dissipatifs spatio-temporels ont aussi été étudiés avec le modèle de l'équation CGL-CQ pour décrire une cavité laser tri-dimensionnelle incluant un potentiel périodique [213]. Dans ce dernier modèle, on a trouvé des solutions numériques représentant les solitons fondamentaux ou les solitons vortex ont été trouvés comme solution numérique. La stabilité de ces solutions face à de fortes perturbations aléatoires a été établie numériquement.

Bien que la question de la stabilité des solitons dissipatifs bi-dimensionnels dans le modèle de l'équation CGL-CQ en présence d'un potentiel transversal soit résolue, il reste la question de la mobilité de ces solitons au travers de ce potentiel transverse sous l'action d'un vecteur d'onde transverse. Concrètement, un vecteur d'onde transverse correspond à un inclinaison du faisceau incident par rapport à la normale au plan d'entrée du milieu non-linéaire. Or l'équation complexe de Ginzburg-Landau (ECGL) modélise tout autant les amplificateurs optiques que les cavités lasers. Dans le cas des cavités lasers, l'évolution

est considérée dans le domaine temporel, tandis que pour les amplificateurs optiques, c'est la distance de propagation qui est la variable de propagation. Afin de reproduire la situation numérique, il faut incliner le faisceau très rapidement. Dans les cavités lasers, il est possible d'incliner le faisceau au moyen d'un miroir optique ou d'un réseau de diffraction, en utilisant un dispositif rapide. En revanche, dans les amplificateurs optiques à un seul passage, le faisceau incident peut être incliné aisément en désalignant le faisceau vis-à-vis de l'axe de l'amplificateur. Notre analyse est faite en considérant un montage amplificateur, pour lequel la situation expérimentale est plus aisée à concevoir.

Par conséquent, on considère une source externe délivrant un faisceau laser qui, grâce à un montage expérimental adéquat, à le profil du soliton fondamental de l'amplificateur. Puis on incline la direction du faisceau incident par rapport à l'axe de l'amplificateur, la composante transverse de la quantité de mouvement du vecteur d'onde se comporte comme un vecteur d'onde transverse appliqué au soliton fondamental.

### 5.2.1 Présentation de l'équation

D'après les références [90, 212] l'équation CGL-CQ normalisée décrivant l'évolution de l'amplitude du champ électromagnétique  $u(X, Y, Z)$  à deux dimensions avec les coordonnées transverses  $\vec{R} = (X, Y)$  suivant la direction de propagation  $Z$  est

$$\frac{\partial u}{\partial Z} = \left[ -\delta + iV(X, Y) + \frac{i}{2}\nabla_{\perp}^2 + (i + \epsilon)|u|^2 - (i\nu + \mu)|u|^4 \right] u, \quad (5.2)$$

où l'opérateur Laplacien transverse  $\nabla_{\perp}^2 = \partial^2/\partial X^2 + \partial^2/\partial Y^2$  représente la diffraction paraxiale,  $\delta$  représente les pertes linéaires,  $\epsilon$  correspond au gain cubique et  $\mu$  désigne les pertes quintiques. Le coefficient  $\nu$  représente la saturation de l'effet Kerr et est par conséquent strictement positif. Enfin la modulation transversale est représentée par le potentiel périodique

$$V(X, Y) = V_0 [\cos(2X) + \cos(2Y)], \quad (5.3)$$

d'amplitude  $V_0$  (voir figure (5.2)). La normalisation du champ et des coordonnées est choisie de sorte que la période du potentiel soit égale à  $\pi$ . Les modes localisés de l'équation (5.2), qui correspondent physiquement à un faisceau lumineux piégé dans le plan  $(X, Y)$ ,



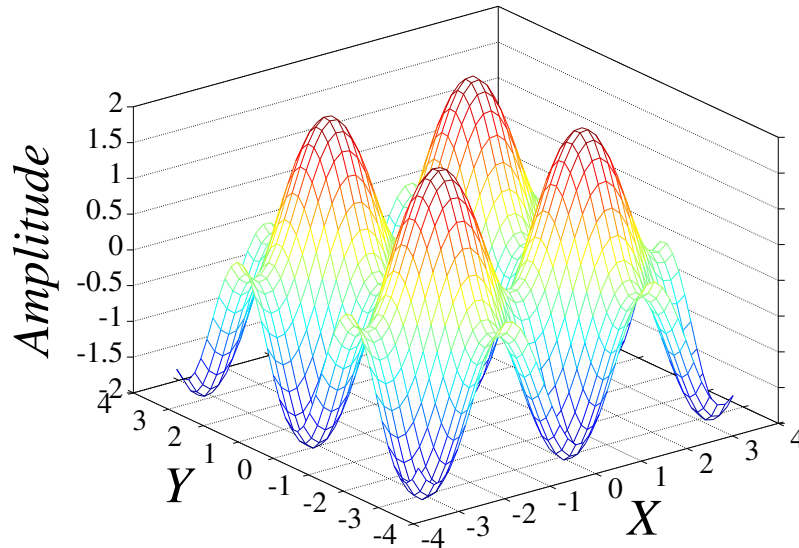


FIGURE 5.2 – Potentiel périodique  $V(x, y)$ .

sont caractérisés par la puissance totale

$$P = \int \int |u(X, Y, Z)|^2 dX dY. \quad (5.4)$$

Afin de résoudre l'équation (5.2), on utilise une méthode de résolution numérique qui combine l'algorithme de Runge-Kutta d'ordre 4 et pour calculer la propagation suivant l'axe  $Z$ , la méthode des différences finies à 5 points pour résoudre numériquement l'opérateur Laplacien  $\nabla_{\perp}^2$ . Ces deux méthodes ont déjà été longuement décrites dans les sections 4.5.3 et 4.5.2. Nous ne reviendront pas dessus. Cependant, nous choisissons ici des conditions aux limites périodiques. Dans l'étude de la mobilité des solitons, un soliton qui se déplace et qui sort par un des bords du domaine, poursuit sa propagation en rentrant par le bord opposé. Numériquement, il suffit d'écrire la méthode des différences finies pour les points situés aux bords du domaine en utilisant des points placés de part et d'autre du bord. Ces conditions permettent de simuler un domaine numériquement infini, et ainsi de réduire le temps de résolution numérique par rapport à ce que requerrait un domaine très grand.

Pour toutes les configurations considérées (soliton fondamental, dipôle, quadrupôle, vortex cubique, vortex rhombique) nous avons utilisé les paramètres normalisés de l'équation (5.2) :

- $\delta = 0.4$ ,

- $\epsilon = 1.85$ ,
- $\mu = 1$ ,
- $\nu = 0.1$ ,
- $V_0 = 1$ .

Ils ont été choisis de sorte que chacune des configurations initiales soient stable.

Intéressons nous maintenant au vecteur d'onde transverse.

### 5.2.2 Vecteur d'onde transverse

Pour la résolution numérique de l'équation (5.2), le vecteur d'onde transverse  $\vec{k}_0$  est appliqué au faisceau initial en multipliant l'état stable  $u_0$  par  $\exp(i\vec{k}_0 \cdot \vec{R})$ . On utilisera le terme d'onde inclinée pour désigner l'état initial modifié par le vecteur d'onde transverse. Le vecteur d'onde transverse s'écrit

$$\vec{k}_0 = (k_0 \cos \theta, k_0 \sin \theta), \quad (5.5)$$

où  $k_0$  est la norme du vecteur et  $\theta$  est l'angle qu'il fait avec l'axe des  $X$ . Du fait de la symétrie carrée du potentiel, il est possible de confiner  $\theta$  à l'intervalle  $0 \leq \theta \leq \pi/4$ . Du point de vue du montage amplificateur, un petit angle  $\varphi$  entre le vecteur d'onde  $\vec{K}_0 = (K_x, K_y, K_z)$  de l'onde porteuse du faisceau et l'axe des  $Z$  donne naissance au vecteur d'onde transverse  $\vec{k}_0$ . L'approximation paraxiale implique que

$$\varphi \approx \sqrt{K_x^2 + K_y^2}/K_z \ll 1. \quad (5.6)$$

Avant d'étudier l'influence du vecteur d'onde transverse sur la mobilité du soliton, il est important d'expliquer en détail la situation expérimentale afin de s'assurer que l'onde inclinée reste bien dans l'approximation paraxiale.

L'équation (5.2) peut être obtenue de l'équation d'onde en appliquant l'approximation de l'enveloppe lentement variable (SVEA) [175]. Ainsi le champ électrique  $E$  (dans sa forme scalaire) peut être séparée en deux parties : l'amplitude variant lentement et les

oscillations rapides de la porteuse

$$E = \mathcal{A}(x, y, z - vt)e^{i(K_x x + K_y y + K_z z - \omega t)} + \text{c.c.}, \quad (5.7)$$

où  $(x, y, z, t)$  sont les coordonnées spatiales et temporelles dans les unités physiques,  $v$  est la vitesse de groupe et *c.c.* signifie complexe conjugué. On peut aussi écrire que

$$E = A(x, y, z - vt)e^{i(K_z z - \omega t)} + \text{c.c.} \quad (5.8)$$

La différence est que dans l'équation (5.7) l'onde porteuse est oblique, tandis que dans l'équation (5.8) l'onde porteuse est toujours définie droite. Il est alors évident que  $A(x, y, z - vt) = \mathcal{A}(x, y, z - vt)e^{i(K_x x + K_y y)}$  et que ces deux formulations sont équivalentes dans la SVEA si les oscillations dues au terme  $e^{i(K_x x + K_y y)}$  sont aussi lentes que la variation transverse de l'onde décrite par l'amplitude  $\mathcal{A}(x, y, z - vt)$ . On peut donc écrire la relation (5.8) d'après la SVEA avec  $K_z = 2\pi n/\lambda$ , où  $n$  désigne l'indice de réfraction linéaire du milieu.

Pour normaliser l'équation (5.2), nous avons posé la relation  $(X, Y) \equiv (x, y)/w$ , où  $w$  correspond à la taille caractéristique du rayon du faisceau, soit approximativement  $w \sim 10 \mu\text{m}$  pour un faisceau étroit dont la longueur d'onde est de l'ordre de  $\lambda \sim 1 \mu\text{m}$ . Ainsi la période du potentiel (5.3) est  $\pi w$  dans les unités physiques. Par exemple, pour un faisceau de rayon  $w \sim 10 \mu\text{m}$ , on a une période de  $\pi w \sim 30 \mu\text{m}$ , ce qui est une estimation pertinente puisqu'il est déjà possible de réaliser ces modulations périodiques. La distance de propagation normalisée est  $Z = z/(K_z w) \equiv (\lambda/2\pi n w) z$ , l'amplitude normalisée de l'onde est

$$u = \sqrt{\frac{1}{2} \text{Re}(\chi^{(3)})} \frac{\omega w}{c} A, \quad (5.9)$$

où  $\chi^{(3)}$  est la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre. De plus, la mise à l'échelle des composantes du vecteur d'onde transverse est donnée par  $(k_x, k_y) = w(K_x, K_y)$ . On peut alors estimer l'angle de déviation par  $\tan \varphi = \sqrt{K_x^2 + K_y^2}/K_z \equiv (\lambda/2\pi n w) \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$  et, pour les modes inclinés génériques, avec  $\sqrt{k_x^2 + k_y^2} \sim 1$  dans la notation normalisée, la condition (5.6) pour que l'approximation paraxiale soit valable implique que  $\lambda \ll 2\pi n w$  ce qui est l'hypothèse paraxiale standard.

En considérant les valeurs typiques précédemment citées,  $\lambda \sim 1 \mu\text{m}$  et  $w \sim 10 \mu\text{m}$ ,

ainsi que  $n \simeq 1.5$ , on a alors  $\varphi \sim 0.01$  (rad). Alors la distance de propagation la plus courte que l'on puisse envisager expérimentalement,  $z \sim 1$  cm, correspond à une déviation transverse de l'onde inclinée de  $\Delta x \sim 100 \mu\text{m}$ , qui peut donc être facilement détectée et utilisée dans les applications.

Nous allons calculer la valeur minimale de la norme du vecteur d'onde transverse qui permet au soliton de se déplacer.

### 5.2.3 Approximation analytique du seuil de mobilité

La première caractéristique  $(k_0)_{\text{thr}}$  ( $k_0 < (k_0)_{\text{thr}}$ ) de la déviation du faisceau est la valeur seuil,  $(k_0)_{\text{thr}}$ , en dessous de laquelle le soliton reste piégé au creux du potentiel périodique (5.3) alors qu'au dessus ( $k_0 > (k_0)_{\text{thr}}$ ) le soliton se déplace. Afin de développer une approximation analytique dans le but de prédire la valeur seuil, on peut, à l'ordre le plus bas, négliger dans l'équation (5.2) les termes de perte et de gain, ainsi que le potentiel périodique. On retrouve alors l'équation de Schrödinger non-linéaire avec pour solution les solitons de Townes, qui ont une seule valeur de puissance totale,  $P_T \approx 5.85$  [41]. Cette famille de solitons peut être approchée par un Ansatz utilisant la Gaussienne isotropique, d'amplitude arbitraire  $A$ ,

$$u\left(Z, R \equiv \sqrt{X^2 + Y^2}\right) = A \exp\left(ibZ - \frac{\pi A^2}{2P_T} R^2\right), \quad (5.10)$$

et de la constante de propagation  $b = A^2/4$  [214]. Puis, en prenant en compte les termes de gains et de pertes comme des perturbations, on peut prédire la valeur d'équilibre pour l'amplitude à l'aide du bilan d'énergie

$$\delta \cdot P + \mu \int \int |u(X, Y)|^6 dXdY = \epsilon \int \int |u(X, Y)|^4 dXdY. \quad (5.11)$$

En remplaçant l'approximation (5.10) dans l'équation (5.11), on obtient une équation du second degré pour  $A^2$ , avec pour racines

$$A^2 = \frac{3\epsilon \pm \sqrt{3(3\epsilon^2 - 16\mu\delta)}}{4\mu}. \quad (5.12)$$

La solution la plus grande correspond à un soliton dissipatif stable (la plus petite correspond à un soliton instable) [215].

Maintenant, considérant le faisceau incliné, notre soliton subit l'onde transverse, que l'on désignera par soliton incliné. La valeur seuil de la norme du vecteur d'onde transverse qui permet de mettre en mouvement le soliton incliné  $(k_0)_{\text{thr}}$  peut être estimée en comparant la barrière de potentiel de Peierls-Nabarro (PN)  $U_{\text{PN}}$  et l'énergie cinétique du soliton incliné  $E_C$ . L'invariance Galiléenne de l'équation (5.2) [216] (en absence de tout potentiel) induit que la norme du vecteur d'onde transverse (5.5) donne naissance à une vitesse  $\vec{k}_0$ , ce qui implique que la solution devient une fonction de  $\vec{R} - \vec{k}_0 Z \equiv \vec{R} - \vec{\Upsilon}$  au lieu de  $\vec{R}$ . L'énergie cinétique correspondante devient

$$E_C = (1/2)Pk_0^2, \quad (5.13)$$

où  $P$  joue le rôle de masse effective du soliton. En supposant que le soliton incliné se déplace en suivant la direction définie par  $\theta$  (5.5), l'énergie effective de l'interaction du soliton prise selon l'Ansatz (5.10) avec le potentiel (5.3) traité lui aussi comme une perturbation est

$$\begin{aligned} E_{\text{pot}}(\Upsilon) &= -V_0 \int \int [\cos(2X) + \cos(2Y)] |u(X - \Upsilon \cos \theta, Y - \Upsilon \sin \theta)|^2 dXdY \\ &= -V_0 P \exp\left(-\frac{P_{\text{T}}}{\pi A^2}\right) [\cos(2\Upsilon \cos \theta) + \cos(2\Upsilon \sin \theta)], \end{aligned} \quad (5.14)$$

où  $\Upsilon$  est le décalage du soliton à partir de la position  $X = Y = 0$  dans la direction définie par  $\theta$ . Il ressort de cette expression que la barrière PN, c'est-à-dire la différence entre la plus grande valeur et la plus petite valeur de l'énergie potentielle, est estimée pour

$$E_{\text{PN}} = V_0 P \exp\left(-\frac{P_{\text{T}}}{\pi A^2}\right) \Delta(\theta), \quad (5.15)$$

où  $\Delta(\theta)$  est la différence entre le maximum et le minimum de la fonction  $[\cos(2\Upsilon \cos \theta) + \cos(2\Upsilon \sin \theta)]$ . Il est évident que  $\Delta(0) = 2$  et  $\Delta(\pi/4) = 4$ . Pour les valeurs intermédiaires de  $\theta$ , il est possible d'approcher  $\Delta(\theta)$  par la différence des valeurs de la fonction entre les points

$\Upsilon = 0$  et  $\pi/2 \cos \theta$ , c'est-à-dire

$$\Delta(\theta) \approx 3 - \cos(\pi \tan \theta). \quad (5.16)$$

Enfin on détermine la valeur seuil en fixant les conditions,  $E_C = E_{PN}$ , on obtient

$$(k_0)_{\text{thr}} = \sqrt{2V_0 [3 - \cos(\pi \tan \theta)]} \exp\left(-\frac{P_T}{2\pi A^2}\right). \quad (5.17)$$

Cette prédiction sera comparée par la suite aux résultats numériques.

Nous allons présenter les résultats numériques. Intéressons nous tout d'abord aux solitons fondamentaux.

## 5.3 Solitons fondamentaux

Le soliton dissipatif fondamental que nous obtenons par résolutions numériques est une solution numérique de l'équation (5.2) avec le potentiel (5.3) et les valeurs des paramètres données précédemment. Le soliton est visible sur les figures (5.3) et (5.4). Le domaine de simulation est une matrice  $(X, Y)$  de  $256 \times 256$  points couvrant la zone  $|X|, |Y| \leq 22$ . On notera que le soliton épouse le site du potentiel périodique. Pour le jeu de paramètres, la prédiction analytique indique une amplitude pour le soliton stable de  $A \approx 1.496$ , or l'amplitude de la solution numérique est voisine :  $A \approx 1.479$ . Par conséquent la Gaussienne isotropie (5.10) est un Ansatz approprié à la description des propriétés statiques des solitons.

### 5.3.1 Formation de la flèche de soliton

En premier lieu nous avons fixé  $\theta = 0$ , c'est-à-dire qu'on considère des solitons inclinés par rapport à l'axe des  $X$  (voir l'équation (5.5)). Nous avons trouvé numériquement que le seuil que la norme doit franchir pour que le soliton sorte du site est

$$(k_0)_{\text{thr}}(\theta = 0) \approx 1.6865. \quad (5.18)$$

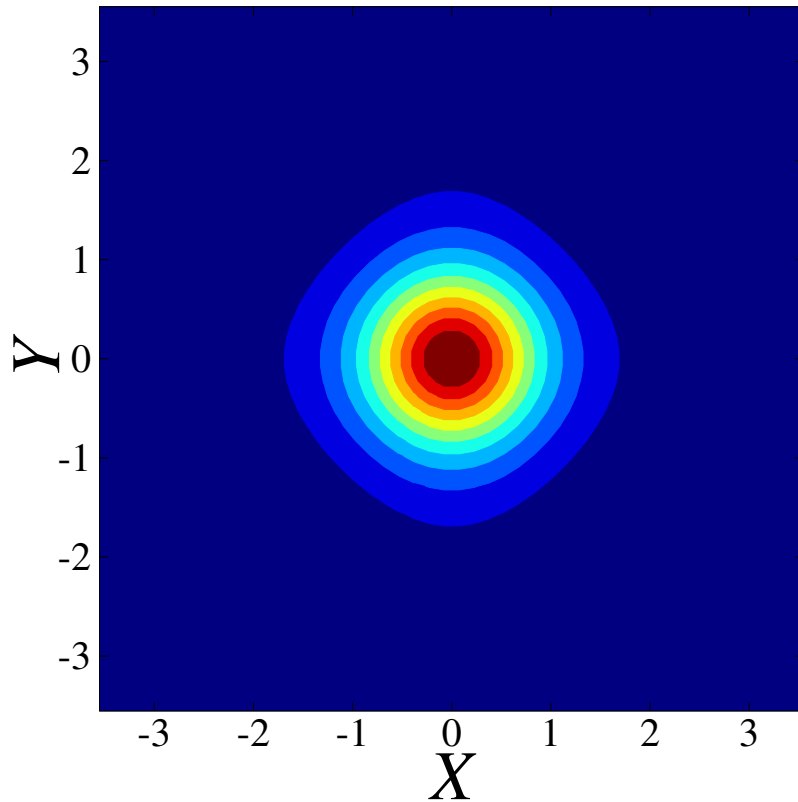


FIGURE 5.3 – Courbe de niveau de l’amplitude du soliton fondamental stable  $|u(X, Y)|$ .

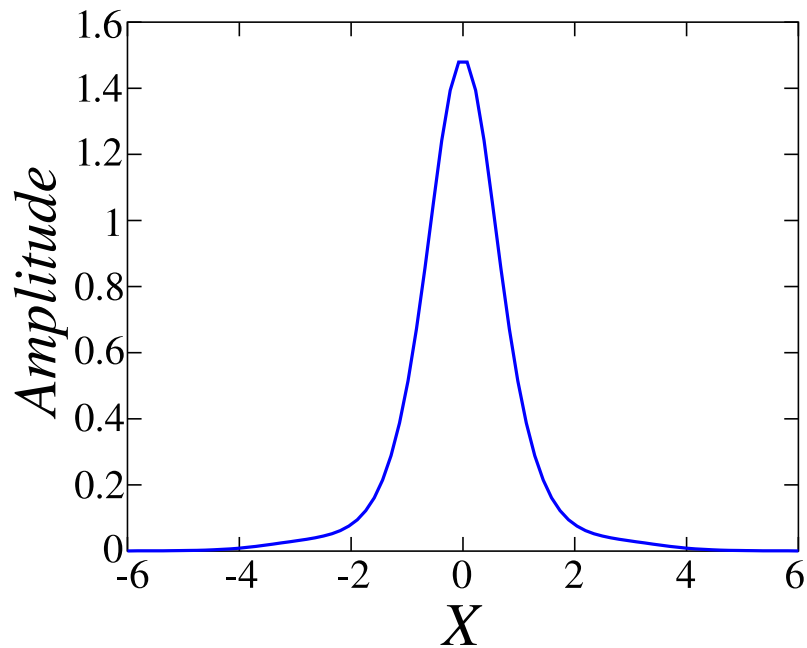


FIGURE 5.4 – Coupe transversale de l’amplitude du soliton stable  $|u(X)|$  à  $Y = 0$ .

Lorsque l’on est en dessous de ce seuil, le soliton incliné oscille dans le site du potentiel, autour de son minimum (voir la figure 5.5). Ces oscillations sont amorties. Pour  $0 < Z < 8$  (voir la figure 5.6), la puissance totale augmente subitement puis diminue et revient à sa valeur initiale  $P \approx 3.2$ . Une partie de l’onde franchit la barrière de potentiel et se déplace dans le site voisin (voir la figure 5.5). Cependant, pour  $k_0 < (k_0)_{\text{thr}} \simeq 1.6865$ , la puissance

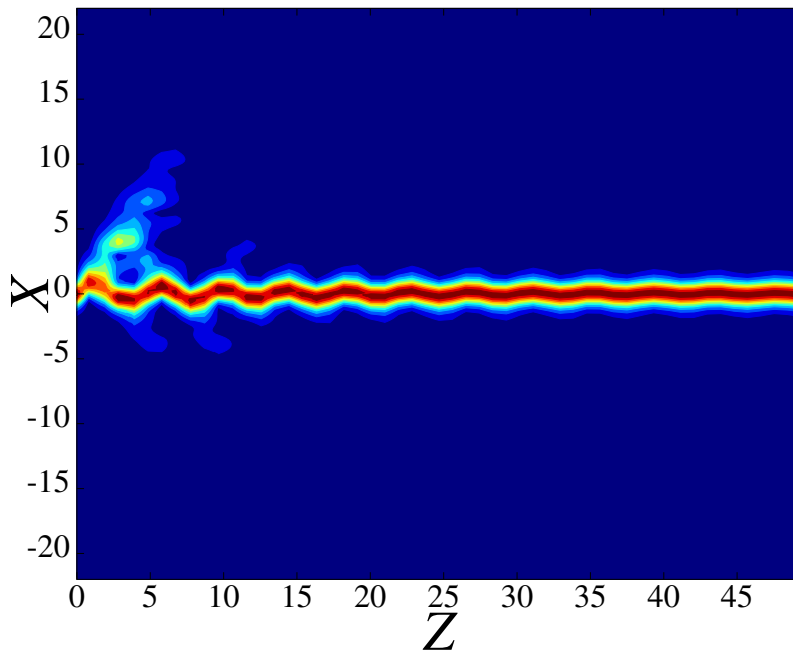


FIGURE 5.5 – Évolution de l'amplitude locale  $|u(X, Z)|$  de la section transverse  $Y = 0$  du soliton fondamental, soumis à un vecteur d'onde transverse de norme  $k_0 = 1.61$  et avec  $\theta = 0$ .

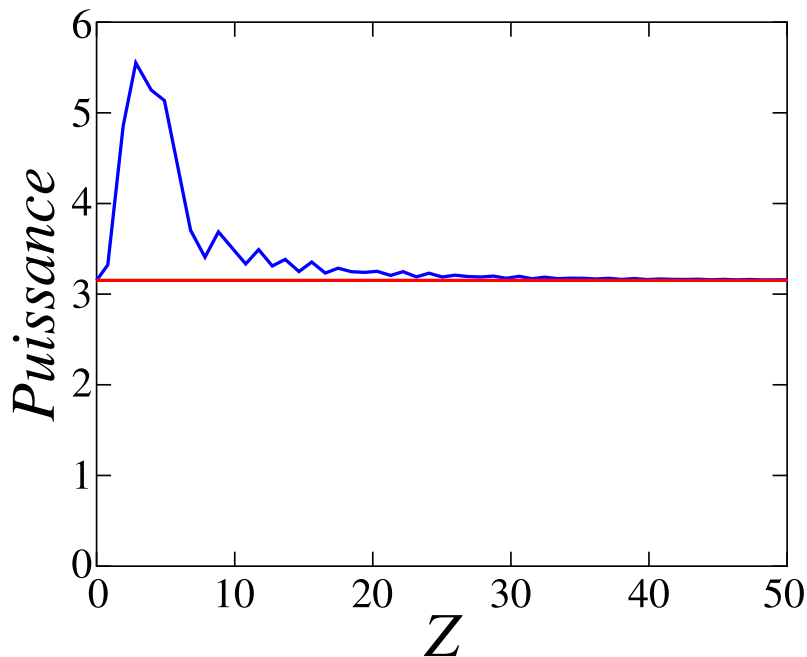


FIGURE 5.6 – Évolution de la puissance totale d'un soliton incliné avec un vecteur d'onde de norme,  $k_0 = 1.61$  et avec  $\theta = 0$ .

transmise dans le nouveau site n'est pas suffisante pour créer un nouveau soliton et est absorbée par le milieu. En revanche, la prédiction analytique (5.18) donne le résultat  $(k_0)_{\text{thr}}(\theta = 0) \approx 1.32$ , soit un écart relatif de  $\simeq 20\%$  avec la valeur obtenue par la résolution numérique (5.18). Cela s'explique par le fait que, près du seuil, le soliton se déforme, alors que notre approche analytique se base sur la forme du soliton (5.10), et



donc ne prend pas en compte l'énergie perdue (ce facteur rehausse la valeur du seuil).

Si  $k_0 > (k_0)_{\text{thr}}$ , alors la portion de l'onde qui passe la barrière de potentiel est suffisamment grande pour créer un nouveau soliton dissipatif dans le site adjacent. Ensuite, ce nouveau soliton peut rester dans ce site ou bien continuer à se déplacer dans la modulation. On voit sur la figure 5.7 la création d'un second soliton pour  $k_0 = 1.6878$ , c'est-à-dire pour une valeur de  $k_0$  légèrement supérieure au seuil. Cette figure représente le scénario

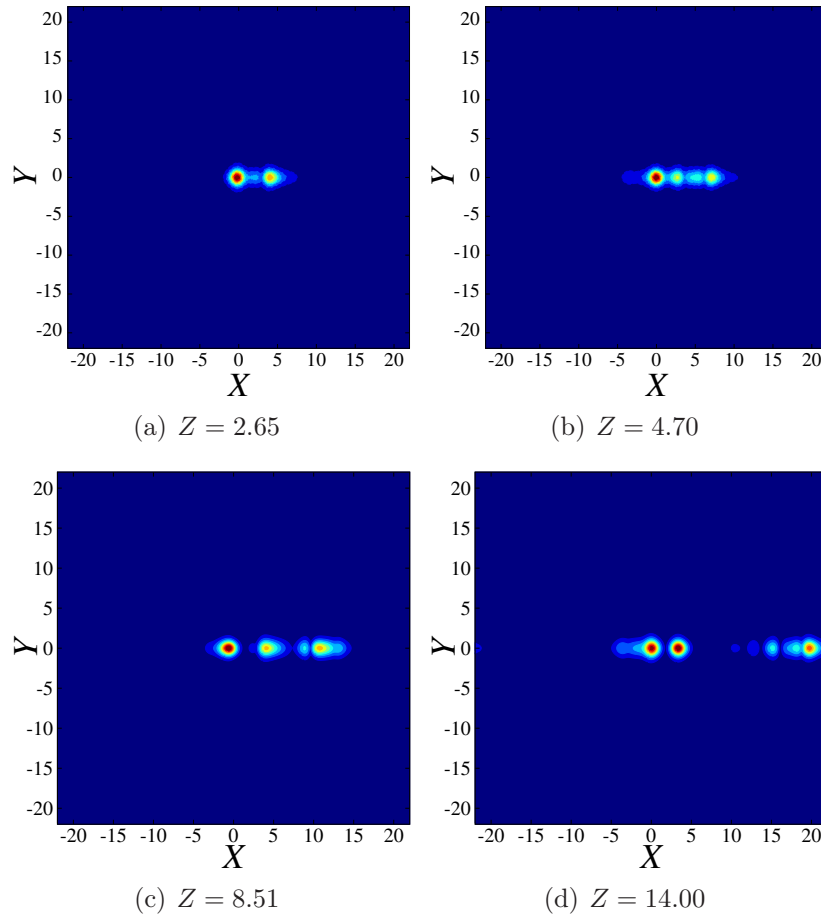


FIGURE 5.7 – Évolution de l'amplitude du champ local  $|u(X, Y)|$  correspondant au soliton incliné, obtenu pour  $k_0 = 1.6878$  et  $\theta = 0$ . La distribution du champ est montrée pour différentes distances de propagation  $Z$ .

standard de la dynamique du soliton, on peut la résumer de la façon suivante

1. Le soliton initial (ou seulement une partie de celui-ci) passe la barrière de potentiel et se déplace sur le second site.
2. Le soliton reste sur le site un certain temps.
3. Si  $k_0$  n'est pas suffisamment fort, le second soliton reste de façon permanente dans le site.

4. Si  $k_0$  est suffisamment fort, alors le soliton passe de nouveau la barrière de potentiel et se déplace vers le troisième site. Il est possible que le soliton continue à se déplacer le long de la modulation.
5. Une partie du second soliton reste dans le deuxième site et grandit dans ce site pour devenir un soliton.
6. Quand  $k_0$  n'est plus suffisamment fort pour permettre de remplir un nouveau site, alors tous les solitons restent oscillent et relaxent dans leur site respectif (voir la figure 5.7).

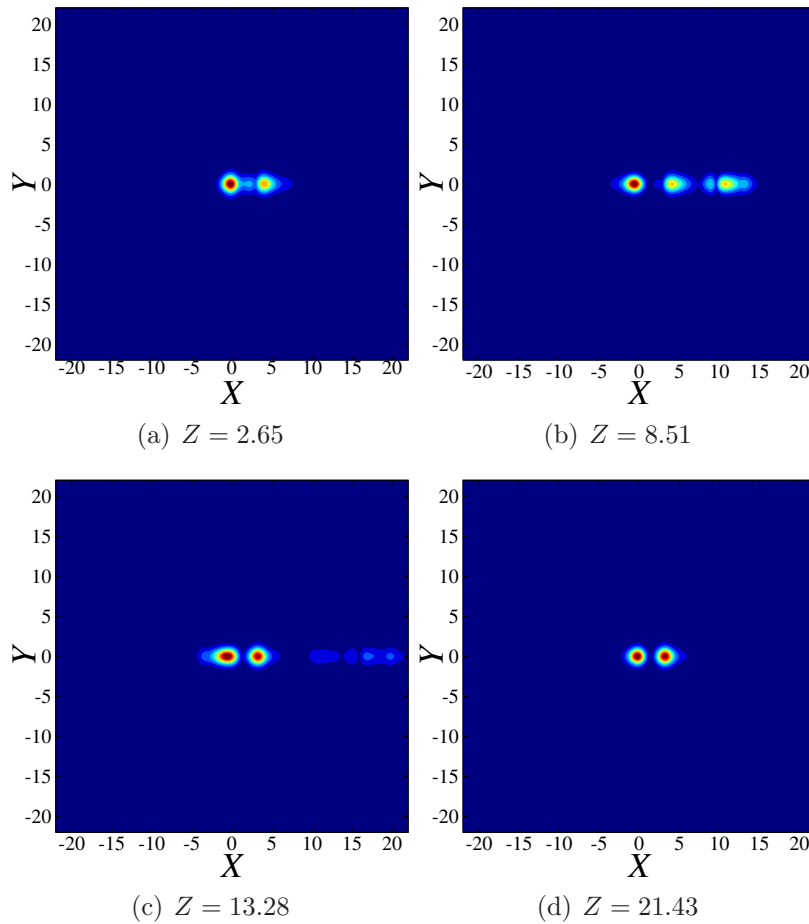


FIGURE 5.8 – Identique à la figure 5.7, mais pour  $k_0 = 1.6872$  et  $\theta = 0$ .

On observe sur la figure 5.9 l'évolution de la puissance totale pour  $k_0 = 1.6878$  et  $\theta = 0$ , c'est-à-dire correspondante à la situation présentée sur la figure 5.7. On voit que la puissance est maximale pour  $Z = 15.89$  et qu'au-delà de cette valeur, elle oscille. Chaque minimum correspond à la collision de deux solitons. On a ajouté sur la figure 5.9 des lignes horizontales qui correspondent à la puissance de 1, 2, 3 ou 4 solitons au repos. La puissance totale pour un seul soliton au repos est en effet  $P_{\text{sol}} \approx 3.15$ .

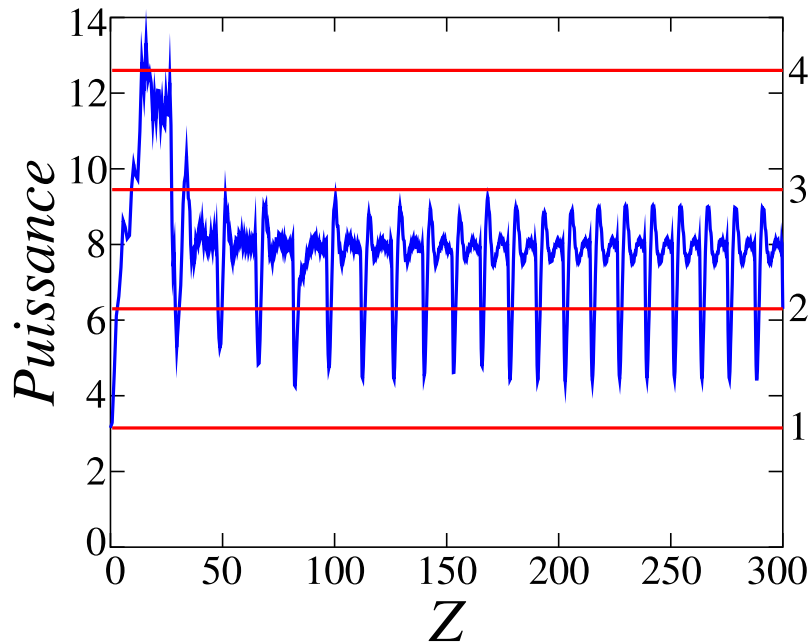


FIGURE 5.9 – Évolution de la puissance totale pour la situation correspondant à la figure 5.7, avec  $k_0 = 1.6878$  et  $\theta = 0$ . Les lignes horizontales montrent la puissance qui correspondant à 1, 2, 3 ou 4 solitons fondamentaux au repos.

Nous avons trouvé que les solitons peuvent être dupliqués de nombreuses fois, la configuration obtenue est appelée flèche de solitons. L'augmentation de la valeur de  $k_0$  conduit à la diminution du nombre de solitons dans la flèche. Le soliton se déplace alors plus rapidement et ne passe plus suffisamment de temps dans chaque site pour y créer un nouveau soliton. Pour  $k_0 = 1.6872$  on obtient un seul nouveau soliton et les deux solitons restent confinés dans leur site respectif (voir la figure 5.8). On notera que cette valeur de  $k_0$  est inférieure à celle de la figure 5.7 ( $k_0 = 1.6878$ ). De plus, pour  $k_0 = 2.082$  le soliton se déplace sans entrave et ne génère aucun nouveau soliton.

En revanche, pour des valeurs de  $k_0$  inférieures, le mouvement du soliton peut engendrer la création d'une flèche de solitons. La figure 5.10 présente le résultat de la dynamique du soliton soumis pour  $k_0 = 1.694$ . On observe qu'une flèche de cinq solitons est créée, avec en plus un sixième soliton qui reste libre et continue à se déplacer comme une quasi-particule [217] jusqu'à ce qu'il entre en collision avec la flèche de soliton qu'il rencontre par le côté opposé à cause des conditions aux limites périodiques. Le soliton libre est absorbé par la flèche durant cette collision. Cette collision est visible sur la figure 5.10(f), où l'on voit le soliton libre à gauche de  $X = 0$ . Nous reviendrons plus tard en détail sur les collisions entre solitons.

En observant la coupe transversale de la flèche de soliton (voir la figure 5.11), on

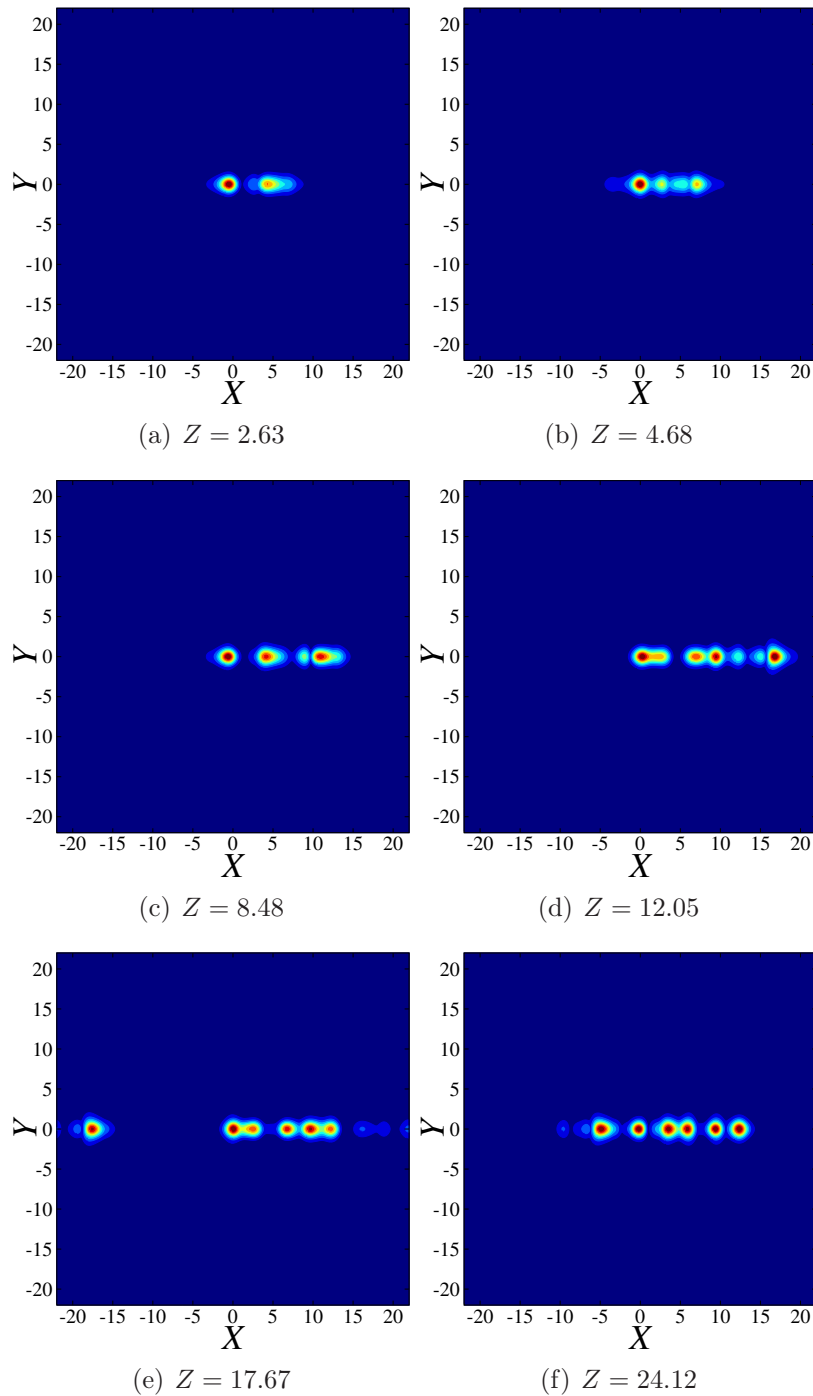


FIGURE 5.10 – Identique aux figures 5.7 et 5.8, mais pour  $k_0 = 1.694$ . Ici, le soliton incliné crée une flèche de cinq solitons (l'image (f) montre le soliton libre supplémentaire, le sixième, qui frappe la flèche dans la direction opposée, finissant son tour du domaine).

voit qu'elle reste dans un état excité. On observe des ondes locales de la densité qui se déplacent le long de la flèche. Cette onde est réfléchiée par le vide après le dernier soliton de la flèche. De telles perturbations locales de la densité se propageant au travers d'une chaîne de solitons piégés sont équivalentes aux superfluxons, qui ont été étudiés

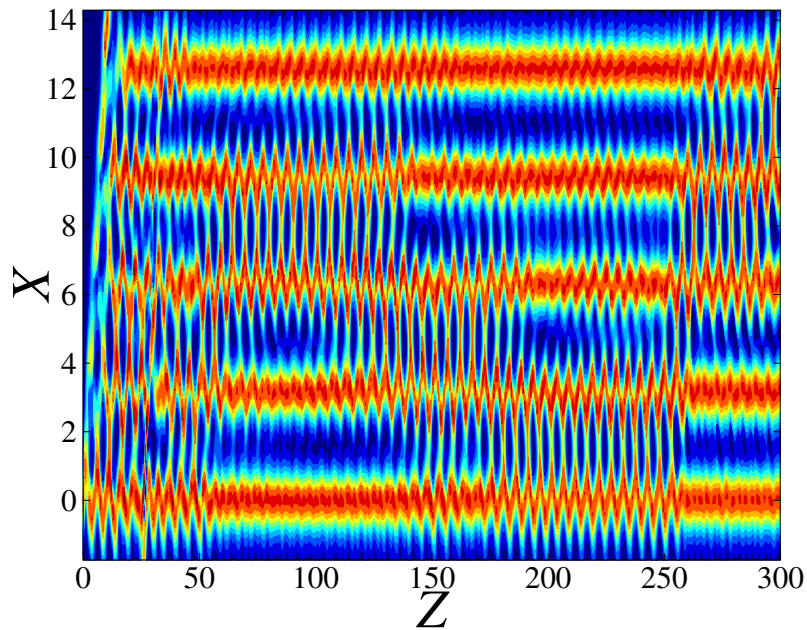


FIGURE 5.11 – Évolution de l'amplitude locale  $|u(X, Z)|$  dans le plan transverse  $Y = 0$ , dans la même situation que celle de la figure 5.10 ( $k_0 = 1.694$  et  $\theta = 0$ ).

théoriquement et expérimentalement dans les flèches de fluxons<sup>1</sup> piégés dans une jonction de Josephson avec un réseau périodique d'imperfections locales [218]. Ces perturbations correspondent aussi à celles que l'on a observées dans une série de solitons se repoussant mutuellement qui forment un pendule de Newton, dans un modèle de Bose-Einstein à deux composantes [219].

### 5.3.2 Influence de $k_0$

La figure 5.12 résume les résultats de l'analyse systématique de notre modèle (5.2). Nous avons déterminé le nombre de solitons obtenus en fonction de la norme  $k_0$  du vecteur d'onde transverse, pour  $\theta = 0$ . Les plages de valeurs correspondent aux valeurs de  $k_0$  pour laquelle on obtient le même nombre de soliton.

Dans le cas où l'on a un soliton libre qui entre en collision avec la flèche stable, après avoir effectué un tour complet du domaine (grâce aux conditions aux limites périodiques), comme par exemple dans les cas décrits par les figures 5.10 et 5.13 (la figure 5.14 montre la coupe dans le plan transverse  $Y = 0$  de ce dernier), le nombre de soliton est établi juste avant la première collision. Sinon, le nombre est compté une fois que le système s'est immobilisé.

1. Les fluxons sont des solitons topologiques qui représentent des quanta de flux magnétiques.

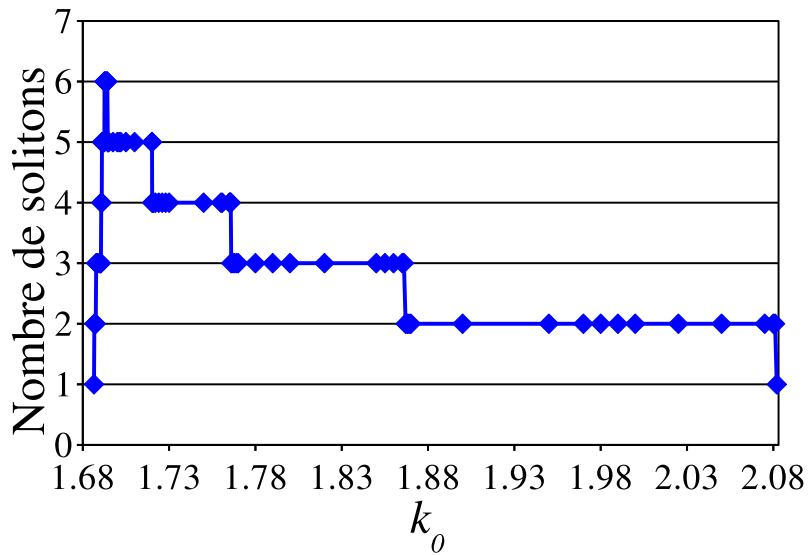


FIGURE 5.12 – Le nombre de solitons en fonction de la norme  $k_0$  du vecteur d'onde transverse pur  $\theta = 0$ . Dans les espaces étroits visibles entre les intervalles sur le graphique, le nombre de soliton ne peut pas être définie exactement, puisque les saut de valeur pour le nombre de soliton est au minimum de 1.

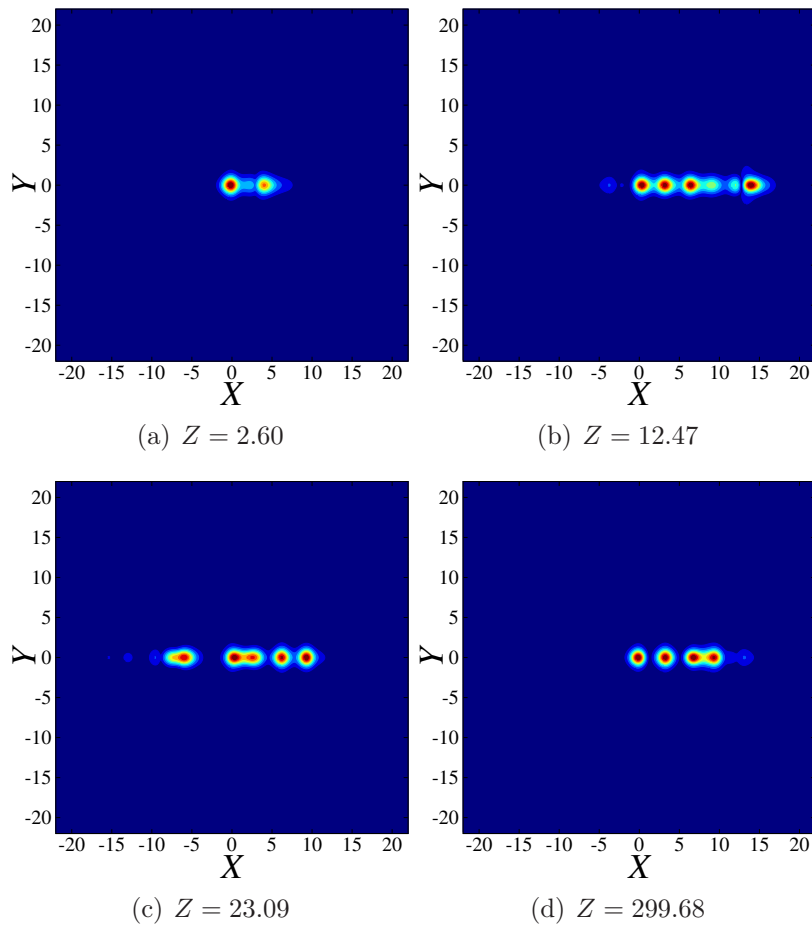


FIGURE 5.13 – Identique à la figure 5.10, mais pour  $k_0 = 1.705$ . Ici, le soliton libre se sépare de la flèche et vient la percuter par l'autre côté. La flèche absorbe le soliton libre.

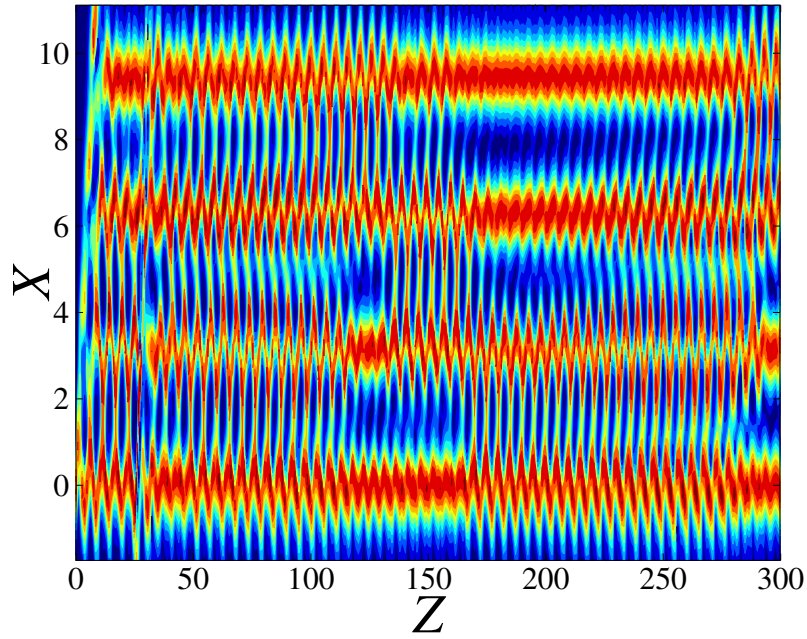


FIGURE 5.14 – Évolution de l’amplitude locale  $|u(X, Z)|$ , dans le plan transverse  $Y = 0$ , dans la même situation que pour la figure 5.13.

Les résultats numériques montrent que le nombre de solitons augmente rapidement de 1 la valeur obtenue pour  $k_0 \leq (k_0)_{\text{thr}} \approx 1.6865$  (voir l’équation 5.18) jusqu’à un maximum de 5, plus un sixième qui se déplace librement, pour  $k_0 = 1.6927$ . Chaque nouveau soliton s’ajoute à la flèche de solitons suivant le scénario décrit précédemment (voir le paragraphe 5.3.1). À partir de  $k_0 = 2.082$ , le nombre de solitons décroît, avec des plages de valeurs de  $k_0$  de plus en plus longue (voir la figure 5.14).

Comme nous l’avons dit précédemment, on obtient au maximum 6 pour  $1.6927 < k_0 < 1.6942$ . En plus des figures 5.10 et 5.11, cette situation est illustrée par la figure 5.3.2 où la puissance totale moyenne est de  $P = 23$  (voir la figure 5.16). Les lignes horizontales sur cette figure représentent la puissance totale d’un à sept solitons stables. On rappelle que la puissance totale pour un seul soliton stable est de  $P_{\text{sol}} \approx 3.2$ . On observe alors que la puissance totale de la structure à six soliton dépasse la puissance totale de sept solitons stables. Ceci est du au fait que la puissance totale du soliton en mouvement est environ égale au double de la puissance totale du soliton stable.

Pour  $k_0 \geq 2.082$ , le soliton incliné se déplace librement le long du domaine de simulation (voir la figure 5.17). Dans ce cas, la figure 5.18 montre que la vitesse du soliton augmente et tend vers une valeur limite. Pour calculer numériquement la vitesse, on a déterminé pour chaque  $Z$  la position du centre du soliton à l’aide d’une interpolation

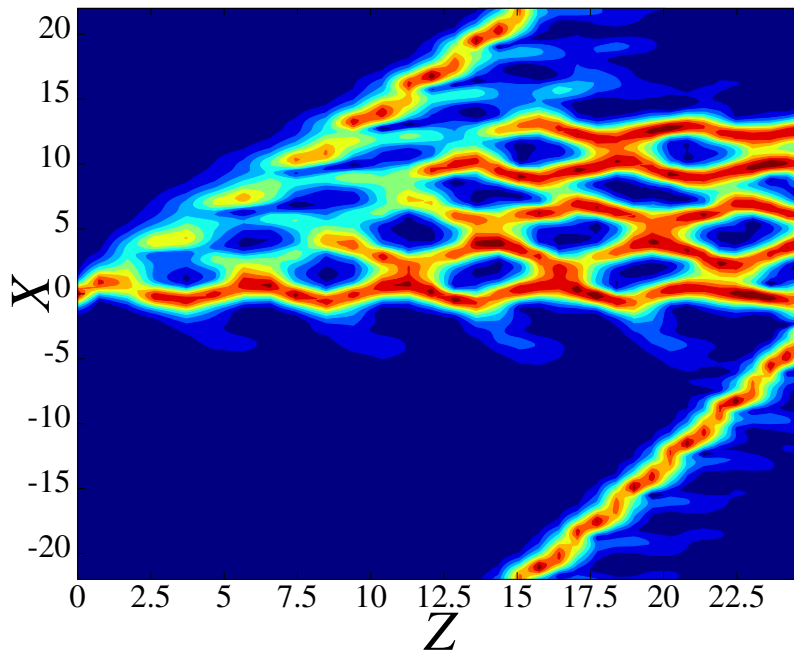


FIGURE 5.15 – Coupe transversale de l’amplitude du champ  $|u(X, Z)|$ , suivant  $Y = 0$ , pour  $k_0 = 1.693$  et  $\theta = 0$ . On obtient une configuration à six solitons.

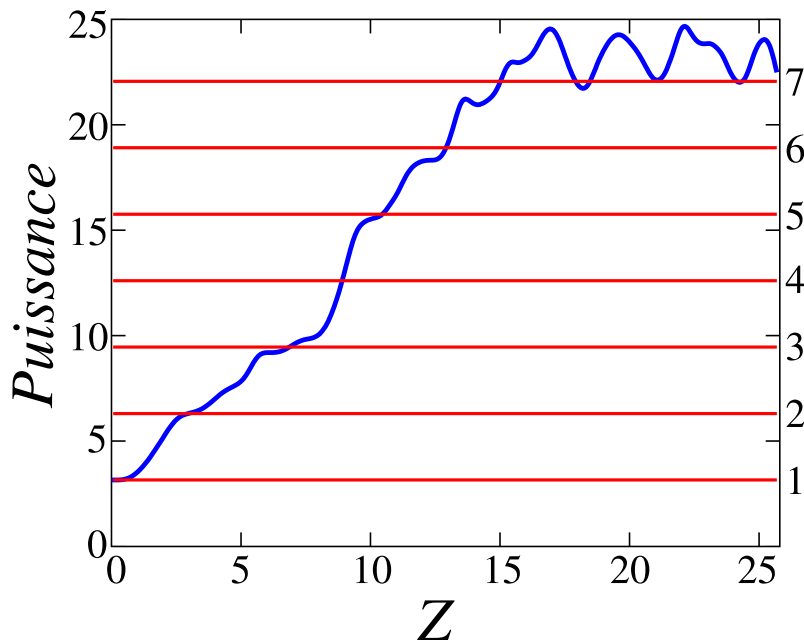


FIGURE 5.16 – Évolution de la puissance totale, pour  $k_0 = 1.693$  et  $\theta = 0$ , qui conduit à la création d’une configuration à six solitons.

de Lagrange de degré deux des données numériques. De plus, on a observé de petites oscillations de la vitesse lorsque le soliton se déplace le long du potentiel périodique. Il est naturel que la vitesse varie lorsque le soliton passe du creux au sommet du potentiel. Le soliton ralentit lorsqu’il gravit le potentiel et il accélère lorsqu’il descend du sommet vers le creux. Ces oscillations ont été lissées en moyennant la vitesse sur une quinzaine de périodes.



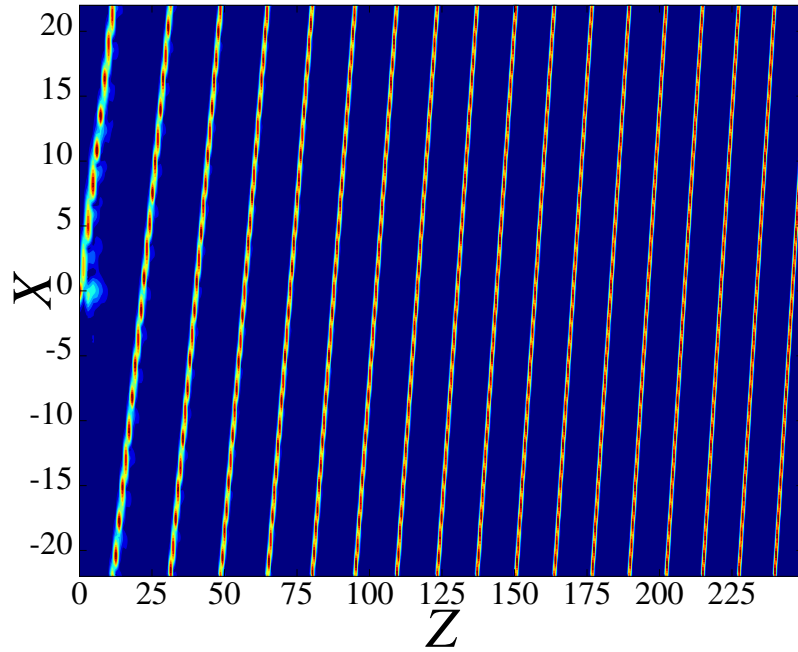


FIGURE 5.17 – Coupe transversale de l'amplitude  $|u(X, Z)|$  du champ, suivant  $Y = 0$ , pour  $k_0 = 2.1$  et  $\theta = 0$ .

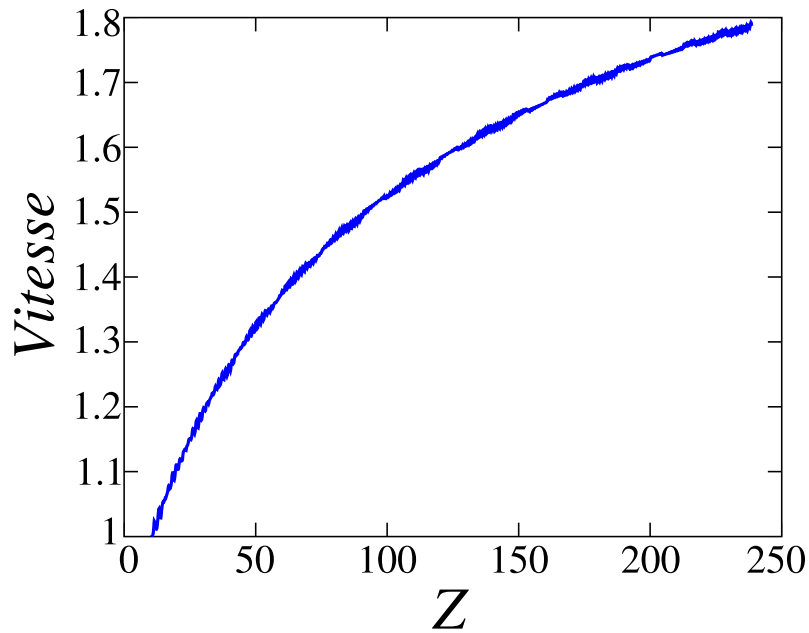


FIGURE 5.18 – Évolution de la vitesse du soliton fondamental incliné pour  $k_0 = 2.1$  et  $\theta = 0$ .

Nous allons maintenant faire varier, en plus de la norme  $k_0$  du vecteur d'onde transverse, l'angle  $\theta$  d'inclinaison de celui-ci.

### 5.3.3 Dynamique du soliton fondamental suivant l'inclinaison de sa vitesse initiale

On applique le vecteur d'onde transverse dans une direction faisant un angle  $\theta \neq 0$  avec l'axe des  $X$  (voir l'équation (5.5)). Les résultats ont été résumés dans le tableau 5.1 pour  $\theta = \pi/4$  (le vecteur d'onde est alors orienté suivant la diagonale) et dans le tableau 5.2 pour  $\theta = \pi/8$ .

Nombre de solitons	Intervalle de valeurs de $k_0$
1	$k_0 \in [0, 2.355]$
0	$k_0 \in [2.36, 4.337]$
1	$k_0 \in [4.563, 10]$

TABLE 5.1 – Le nombre de soliton obtenus en fonction de  $k_0$  pour  $\theta = \pi/4$ .

Pour  $\theta = \pi/4$ , le soliton fondamental reste piégé dans son site pour  $k_0 \leq (k_0)_{\text{thr}}(\theta = \pi/4) = 2.166$  et il est détruit pour  $2.25 < k_0 < 4.337$ . Pour  $k_0 > 4.337$ , un seul soliton subsiste et se déplace librement suivant la diagonale. De plus, pour  $\theta = \pi/4n$  on n'obtient jamais que 0 ou 1 soliton, quelque soit la valeur de  $k_0$  (voir le tableau 5.1). La prédiction analytique (5.17) indique que  $(k_0)_{\text{thr}}(\theta = \pi/4) \approx 1.87$ , ce qui est environ  $\approx 16\%$  plus faible que la valeur obtenue par la résolution numérique. L'écart relatif est donc du même ordre que dans le cas  $\theta = 0$ .

On notera qu'avec de très grandes valeurs de  $k_0$  (un ou deux ordres de grandeurs au-dessus des valeurs du tableau 5.1), on observe la création de solitons sombres ("dark-solitons"). La puissance totale peut alors excéder celle du soliton fondamental par un facteur de l'ordre de 1000. La figure 5.19 montre que les trous dans le fond continu sont stables. De plus, les centres de ces trous coïncident avec les singularités de phase (voir la figure 5.20), ce sont des vortex soutenus par le fond continu.

La création d'un nouveau soliton est toutefois possible dans le cas du vecteur d'onde transverse oblique avec  $\theta = \pi/8$ . Dans ce cas, le nouveau soliton est orienté suivant l'axe des  $X$ , comme l'indique le tableau 5.2. Le nombre total de soliton inclut tous les solitons sauf le soliton original, s'il subsiste.

De plus, pour un angle  $\theta = \pi/8$ , les résolutions numériques montrent que le soliton incliné reste piégé dans le site du potentiel pour  $k_0 \leq (k_0)_{\text{thr}}(\theta = \pi/8) = 1.816$ , tandis que

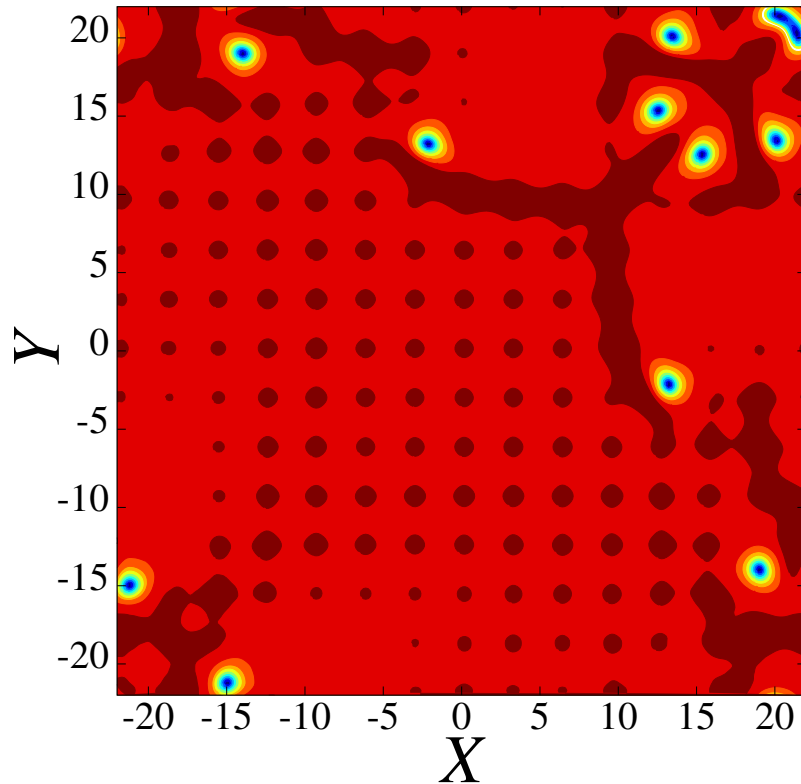


FIGURE 5.19 – Distribution de l’amplitude  $|u(X, Y)|$  du champ dans le cas d’un soliton fondamental initial incliné suivant la diagonale ( $\theta = \pi/4$ ), pour  $k_0 = 100$ , à  $Z = 49.98$ .

Nombre de solitons			Intervalle de valeurs de $k_0$
Total	suivant l’axe des $X$	suivant l’axe $Y$	
1	0	0	$k_0 \in [0, 1.816]$
3	2	0	$k_0 = 1.974$
2	1	0	$k_0 = 2.1$
1	0	0	$k_0 \in [2.224, 4.569]$
0	0	0	$k_0 \in [4.816, 5.804]$
1	0	0	$k_0 \in [6.05, \infty)$

TABLE 5.2 – Identique au tableau 5.1, mais pour un angle  $\theta = \pi/8$ .

l’approximation analytique (5.17), indique dans le même cas que  $(k_0)_{\text{thr}}(\theta = \pi/8) \approx 1.54$ . La création de nouveaux solitons se produit au dessus de ce seuil pour  $\theta = 0$  et  $\theta = \pi/4$ . Le plus grand nombre de solitons obtenus une configuration de trois solitons, et est obtenue pour  $k_0 = 1.974$ . Elle est composée de deux solitons piégés dans leurs sites, qui oscillent, et d’un soliton en déplacement libre, comme on peut le voir sur la figure 5.21. Pour  $k_0 = 2.1$ , on obtient un soliton en déplacement libre, en plus d’un soliton piégé. Les résultats numériques montrent que, dans tous les cas le soliton, qui se déplace librement le fait suivant l’axe des  $X$ , malgré le fait que le vecteur d’onde transverse soit oblique.

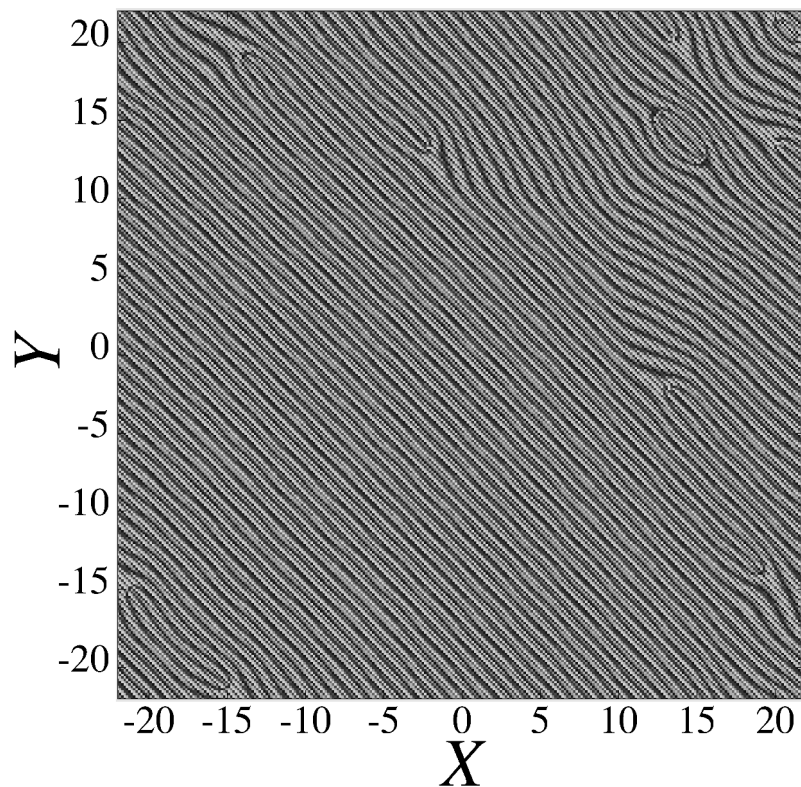


FIGURE 5.20 – Phase de la distribution  $u(X, Y)$  pour le soliton fondamental incliné suivant la diagonal ( $\theta = \pi/4$ ) pour  $k_0 = 100$  à  $Z = 49.98$ .

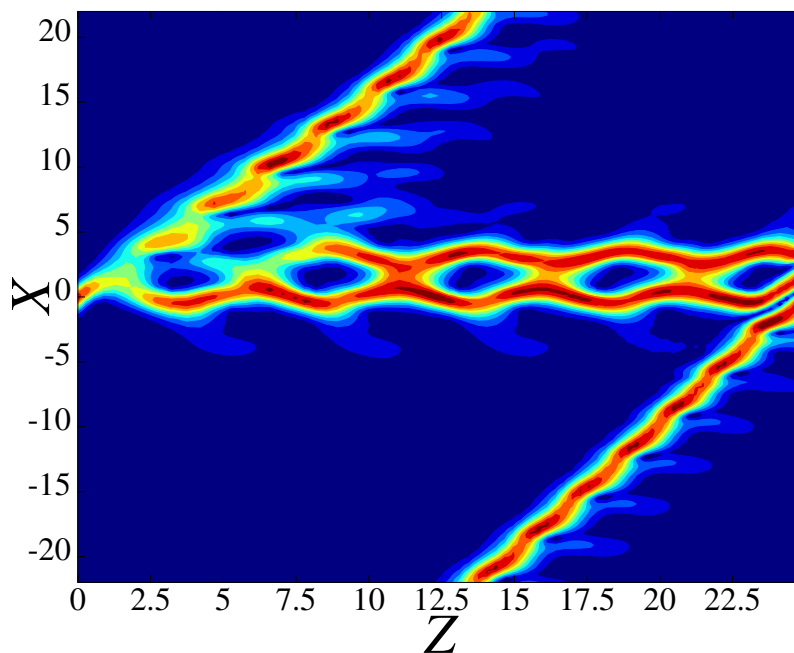


FIGURE 5.21 – Amplitude  $|u(X, Z)|$  du champ en coupe transversale selon  $Y = 0$ , pour  $k_0 = 1.9743$  et  $\theta = \pi/8$ .

Si la norme du vecteur d'onde transverse est plus grande,

$$4.816 < k_0 < 5.804, \quad (5.19)$$

alors le soliton est détruit. La puissance totale du soliton augmente tout d'abord, tandis qu'il se déplace au travers de la première barrière de PN, puis elle décroît jusqu'à atteindre zéro. Pour un  $k_0$  supérieur, le soliton survit, mais dans ce cas sa trajectoire dans le plan XY est courbe (voir la figure 5.22).

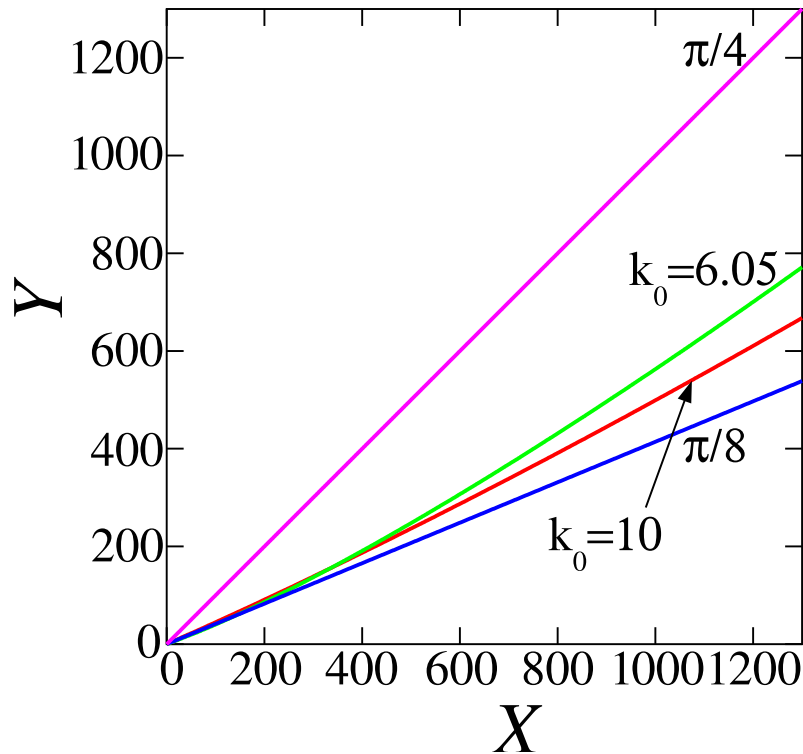


FIGURE 5.22 – Exemples de trajectoires courbes pour les solitons pour  $\theta = \pi/8$  et pour deux valeurs de  $k_0$ , 6.05 et 10, dans le plan XY. On a tracé, pour référence, les trajectoires obtenues pour  $\theta = \pi/8$  et  $\theta = \pi/4$ .

Il est pertinent de comparer le nombre de solitons obtenus dans nos résolutions numériques pour  $\theta = 0$  à ceux obtenus pour  $\theta = \pi/8$ . Dans les deux cas, ces nombres sont résumés en fonction de la projection  $k_{0x} \equiv k_0 \cos \theta$  de  $\vec{k}_0$  sur l'axe des X (voir le tableau 5.3). On remarque que le nombre de solitons varie sensiblement de la même manière en fonction de  $k_{0x}$  pour  $\theta = 0$  et pour  $\theta = \pi/8$ , sauf pour le cas de la destruction du soliton (0 dans le tableau), qui a lieu pour  $\theta = \pi/8$ , mais pas pour  $\theta = 0$ .

De plus, l'évolution de la vitesse du soliton avec la distance de propagation  $Z$  est présentée sur la figure 5.23 pour différentes valeurs de  $k_0$ . Rappelons que, pour  $\theta = \pi/8$ , il y a deux domaines de valeurs de  $k_0$  pour lesquels le soliton incliné se déplace, séparés par un intervalle (5.19) dans lequel le soliton est détruit. On observe que les solitons accélèrent en-dessous de l'intervalle de non-existence du soliton (5.19) et décélèrent au-dessus de celui-ci. Cependant la vitesse tend vers une valeur finie dans tous les cas. De

Intervalle de valeur de $k_0$	Intervalle de valeur de la projection $k_{0x}$	Nombre de solitons pour $\theta = 0$	Nombre de solitons pour $\theta = \pi/8$
[0, 1.816]	[0, 1.6778]	1	1
1.974	1.8237	3	3
2.1	1.9401	2	2
[2.224, 4.569]	[2.0547, 4.2212]	1	1
[4.816, 5.804]	[4.4494, 5.3622]	1	0

TABLE 5.3 – Nombre de solitons en fonction de  $k_{0x}$ , pour les angles  $\theta = 0$  et  $\theta = \pi/8$ .

plus, la figure 5.23 suggère que, après une longue distance de propagation, la vitesse tend vers un valeurs discrète proche de 2 ou proche de 3. Comme dit ci-dessus, ces vitesses (autrement dit, les valeurs de  $k_0$  qui peuvent, directement, produire une telle vitesse, voir les lignes horizontales sur la figure 5.23) correspondent à un soliton se déplaçant le long de l'axe des  $X$ , plutôt que suivant un angle. La conclusion est que le système relaxe vers des valeurs discrètes de la vitesse, ceci est normal pour un système dissipatif qui donne naissance à un ou plusieurs *attracteurs* isolés, plutôt qu'à une famille d'états continue, qui aurait alors une vitesse arbitraire.

Un comportement similaire est observé pour d'autre angles. On a tracé des courbes correspondant à  $\theta = 0$  sur la figure 5.23, et aussi sur la figure 5.18. Ici aussi la vitesse approche asymptotiquement la même valeur discrète, proche de 2 et 3, avec une accélération en-dessous ou une décélération au-dessus de ces valeurs. Pour  $\theta = \pi/4$ , lorsque le soliton est dans ce régime, il se déplace librement en diagonale.

Nous allons à présent nous intéresser à la collision entre solitons.

### 5.3.4 Collisions entre solitons

Une des interactions possibles entre les configurations multi-solitons et un soliton se déplaçant librement, précédemment observée, est la collision entre la structure immobile et le soliton en mouvement, qui arrive par le côté opposé à celui par lequel il est sorti de la boîte (voir les figures 5.10, 5.13, 5.3.2, et 5.21). La collision est possible puisque nous utilisons des conditions aux limites périodiques. Il existe deux scénarios distincts pour ces collisions. L'un montre une collision élastique, dans laquelle le soliton incident semble passer au travers de la structure stable (suivant un mécanisme proche de celui du pendule de Newton [219]), et réapparaît avec la même vitesse qu'avant l'interaction et

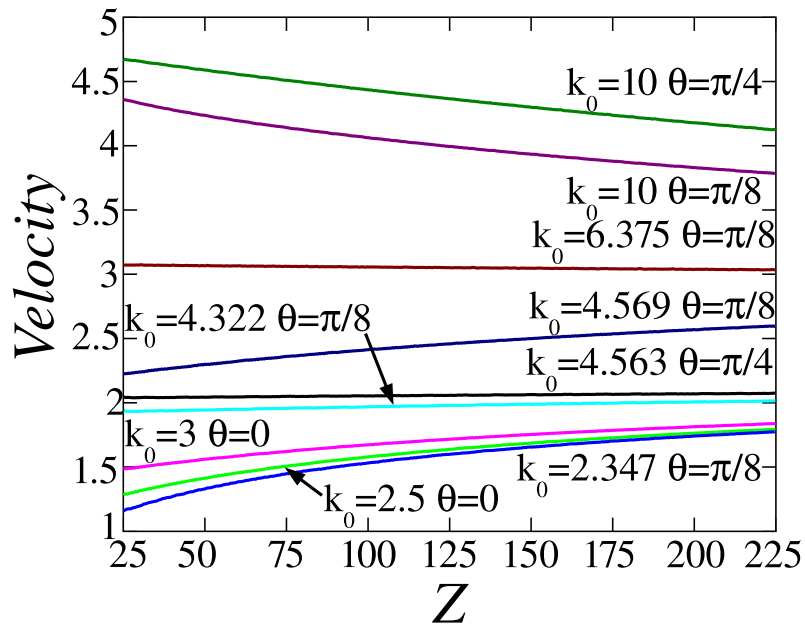


FIGURE 5.23 – Évolution de la vitesse du soliton en fonction de la distance de propagation  $Z$  pour différentes valeurs de  $k_0$  et de  $\theta$ .

dans le même sens (voir la figure 5.24). L'autre scénario est l'absorption du soliton en mouvement par la structure (voir la figure 5.25).

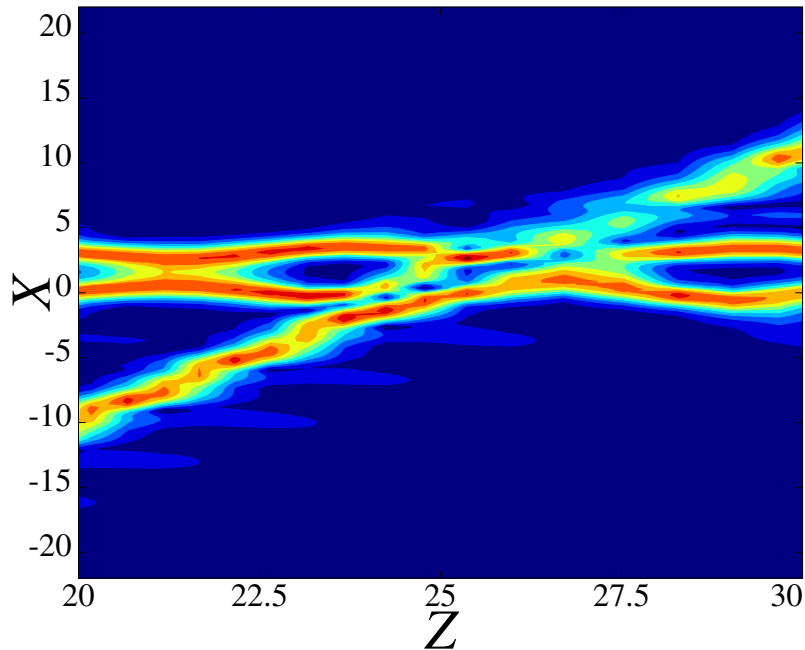


FIGURE 5.24 – Collision élastique entre un soliton en déplacement et une structure multi-solitonique stable, pour  $k_0 = 1.8$  et  $\theta = 0$ .

Des interactions plus compliquées ont aussi été observées. Par exemples, certaines combinent plusieurs collisions élastiques ou quasi-élastiques, et se terminent par l'absorption du soliton en déplacement. Les résultats des collisions ont été résumés dans le tableau 5.4 (l'intervalle  $k_0 > 2.081$  n'apparaît pas dans le tableau puisque pour ces valeurs de

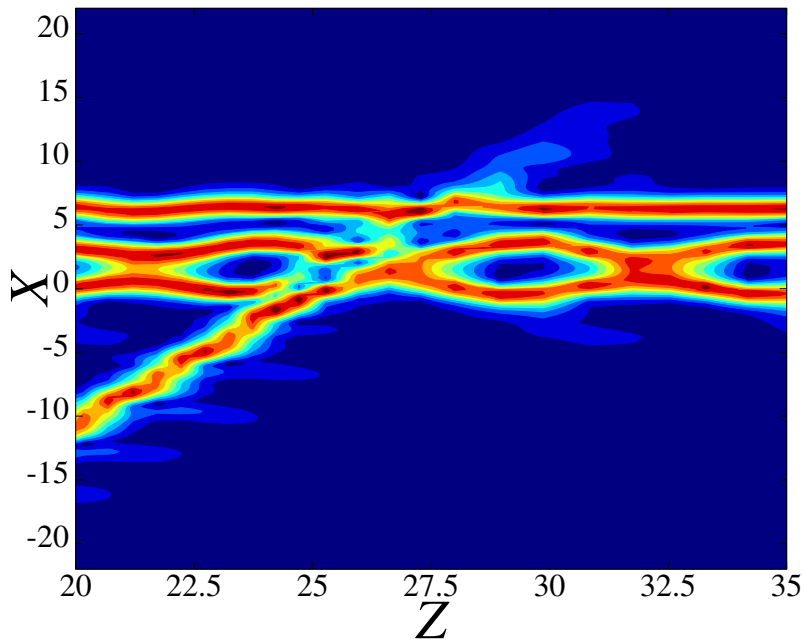


FIGURE 5.25 – Absorption du soliton incident par la structure multi-solitonique stable lors d’une collision, pour  $k_0 = 1.765$  et  $\theta = 0$ .

$k_0$  on n’a qu’un seul). Pour  $1.766 < k_0 < 1.86$ , on a observé une succession de collisions élastiques, de 1 à 5, leur nombre variant de manière apparemment aléatoire, à la suite desquelles le soliton mobile est absorbé. Ce scénario est nommé "pendule de Newton avec amortissement" dans le tableau 5.4. Pour  $k_0 > 1.86$ , nous avons observé des collisions élastiques qui arrive se reproduisent de manière périodique, comme dans le pendule de Newton (nom qui est utilisé dans le tableau 5.4), voir la figure 5.26.

Type de collision	Intervalle de valeur de $k_0$
absorption	$k_0 = 1.6879$
pendule de Newton avec amortissement	$k_0 = 1.6909$
absorption	$k_0 = 1.692$
complexe	$k_0 = 1.693$
absorption	$k_0 \in [1.695, 1.765]$
pendule de Newton avec amortissement	$k_0 \in [1.766, 1.86]$
pendule de Newton	$k_0 \in [1.866, 2.081]$

TABLE 5.4 – Type de collision en fonction la norme  $k_0$  du vecteur d’onde transverse.

Il existe toutefois une situation particulière, celle où l’on obtient le plus grand nombre de soliton, pour  $k_0 = 1.693$ , que nous avons vu précédemment. Dans ce cas, le scénario de collision est complexe, comme le montre la figure 5.27. On observe aussi bien des collisions élastiques (à  $Z \simeq 50$  et  $100$ ) que des absorptions (à  $Z \simeq 238$ ). Une caractéristique inattendue est la mise en mouvement de deux solitons dans le sens contraire à celui du



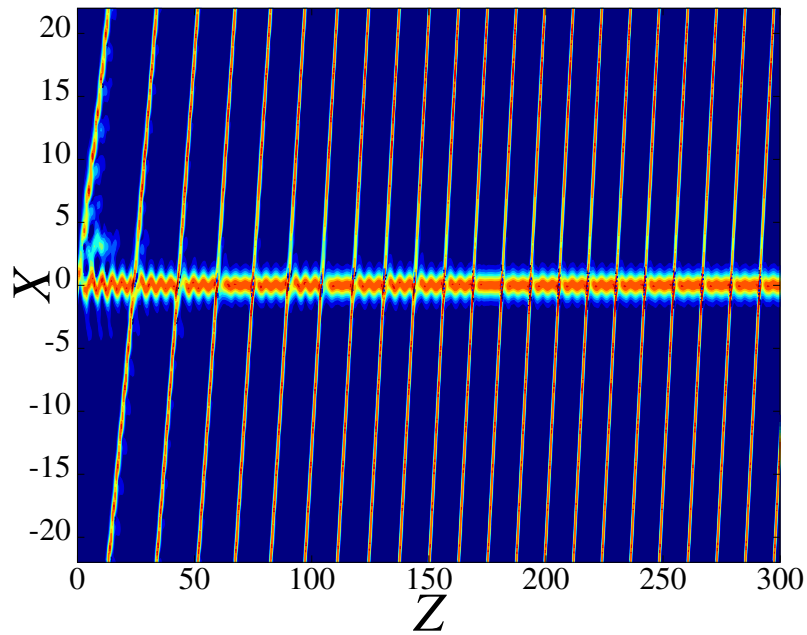


FIGURE 5.26 – Exemple de collisions élastiques périodiques comme dans le pendule de Newton, pour  $k_0 = 1.867$  et  $\theta = 0$ .

soliton incident, autour de  $Z \simeq 150$ . Le motif global finit par relaxer (un peu plus loin) vers une flèche de 6 solitons, ce que confirme la courbe d'évolution de la puissance totale de la figure 5.28.

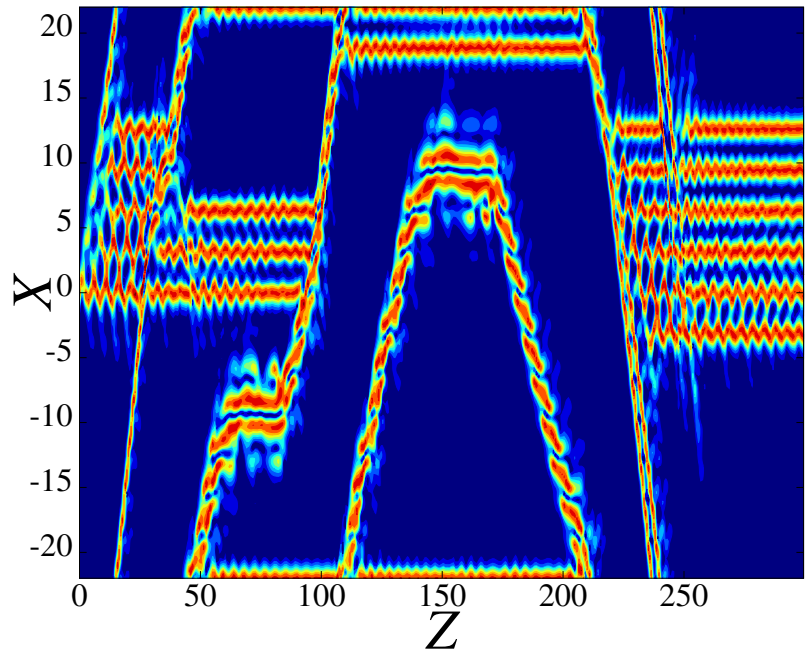


FIGURE 5.27 – Exemple de l'interaction complexe entre le soliton incident et la structure immobile pour  $k_0 = 1.693$  et  $\theta = 0$ . La figure présente la distribution de l'amplitude du champ  $|u(X, Z)|$ , suivant la coupe transversale  $Y = 0$ .

Dans le cas où de nombreuses collisions élastiques entre deux solitons se répètent régulièrement sur une très longue distance de propagation, nous avons vérifié que la vitesse

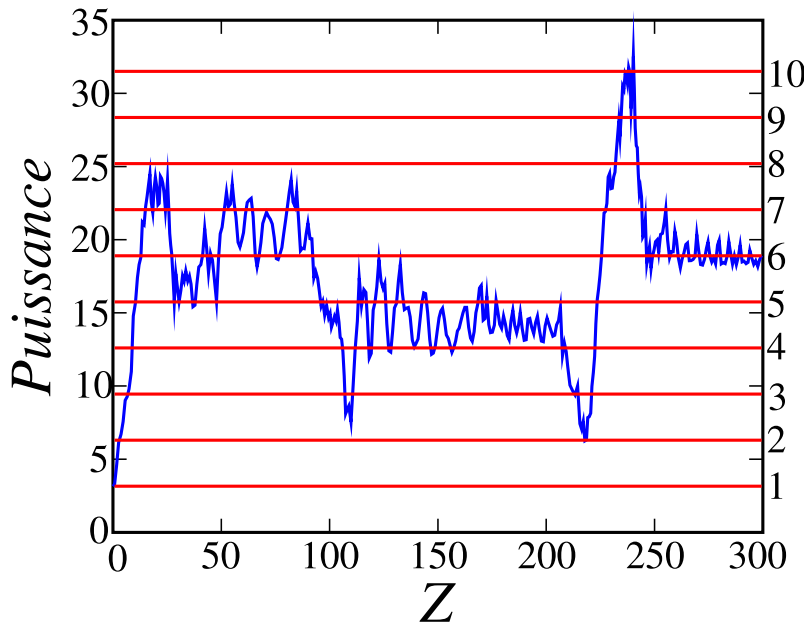


FIGURE 5.28 – Courbe de la puissance totale en fonction de la distance de propagation  $Z$ . Les lignes horizontales correspondent à des multiples de la puissance totale du soliton fondamental stable.

était transmise du solitons en mouvement avant la collision à celui mis en mouvement après la collision. Le cas de  $k_0 = 1.974$  et  $\theta = 0$  rend bien compte de ce phénomène. Après le premier tour de cavité, le premier soliton, l'original, est stable tandis que le second, nouvellement généré, se précipite sur le premier. On voit sur la figure 5.29 que chaque collision conduit à un échange de la vitesse entre les deux solitons, comme dans le cas d'une collision élastique entre deux particules. De plus, nous avons identifié la vitesse du centre de masse des solitons du système. La figure 5.30 montre que celle-ci augmente au fil des collisions et se rapproche d'une des valeurs discrètes de la vitesse présentées précédemment. Dans ce cas, la vitesse tend vers une valeur asymptotique proche de 1.

Après avoir utilisé le soliton fondamental unique comme donnée initiale, nous allons considérer d'autres configurations, intéressons nous tout d'abord aux dipôles.

## 5.4 Dipôles

### 5.4.1 Création de configuration à plusieurs dipôles

Considérons le complexe de solitons le plus simple, le dipôle, qui correspond à deux solitons alignés (suivant l'axe des  $Y$ ) et occupant deux sites adjacents. De plus, les deux solitons sont (mutuellement) verrouillés en phase avec une différence de phase de  $\pi$ . Le

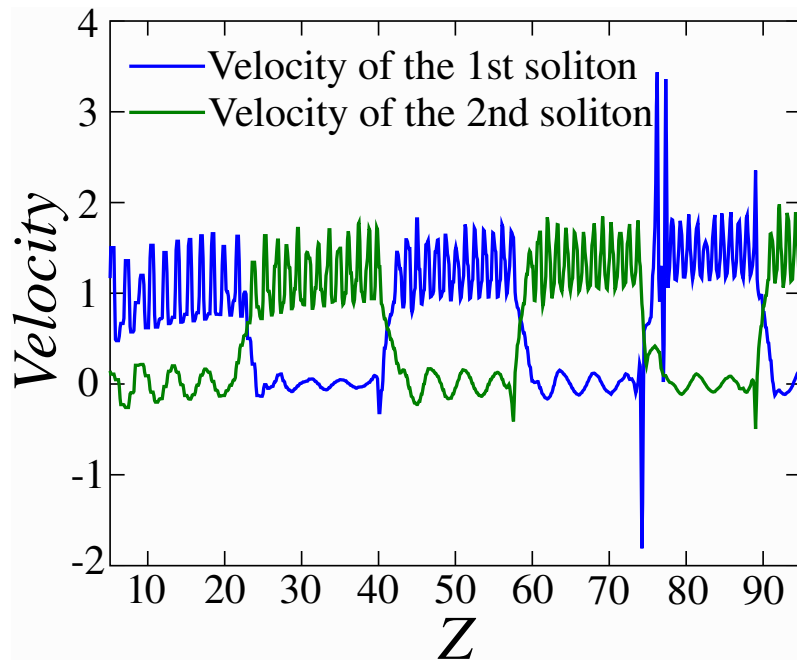


FIGURE 5.29 – Courbe de la vitesse de chaque soliton suivant la distance de propagation  $Z$ , pour une paire de solitons entrant périodiquement en collision. Ici  $k_0 = 1.974$  et  $\theta = 0$ .

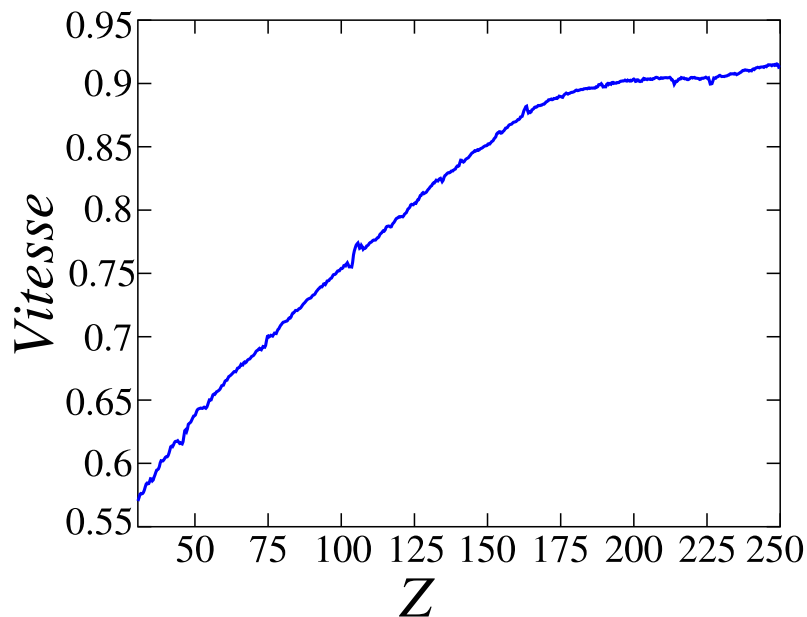


FIGURE 5.30 – Vitesse du centre de masse en fonction de  $Z$  pour une paire de solitons entrant périodiquement en collision. Ici  $k_0 = 1.974$  et  $\theta = 0$ .

dipôle est présenté sur la figure 5.31. On utilisera le même code couleur pour toutes les figures présentant la distribution d’amplitude des différentes structures multi-photoniques (dipôle, quadrupôle, vortex carré et vortex rhombique). Le dipôle est mis en mouvement de la même façon que le soliton fondamental, c’est-à-dire en appliquant un vecteur d’onde transverse. Commençons par étudier l’influence de  $k_0$  pour  $\theta = 0$  (déplacement suivant l’axe des  $X$ ).

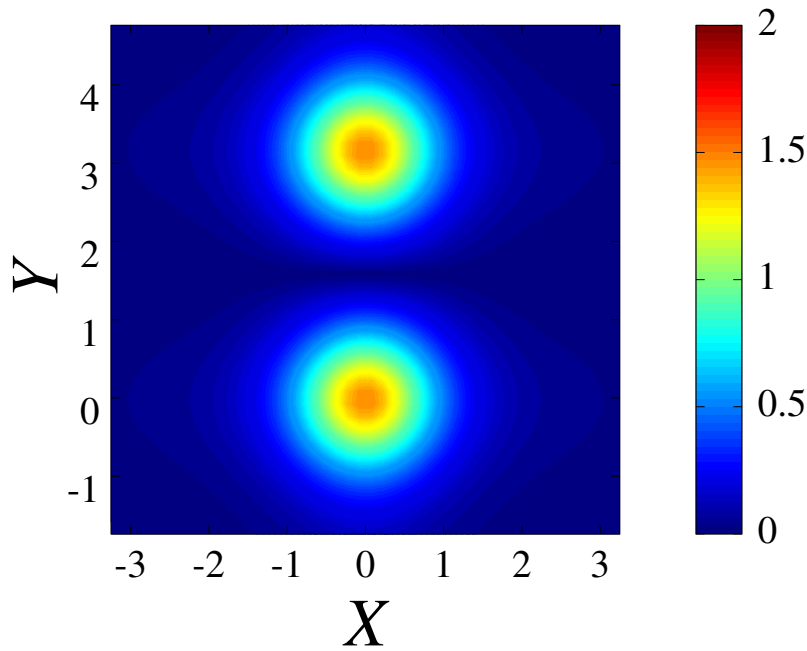
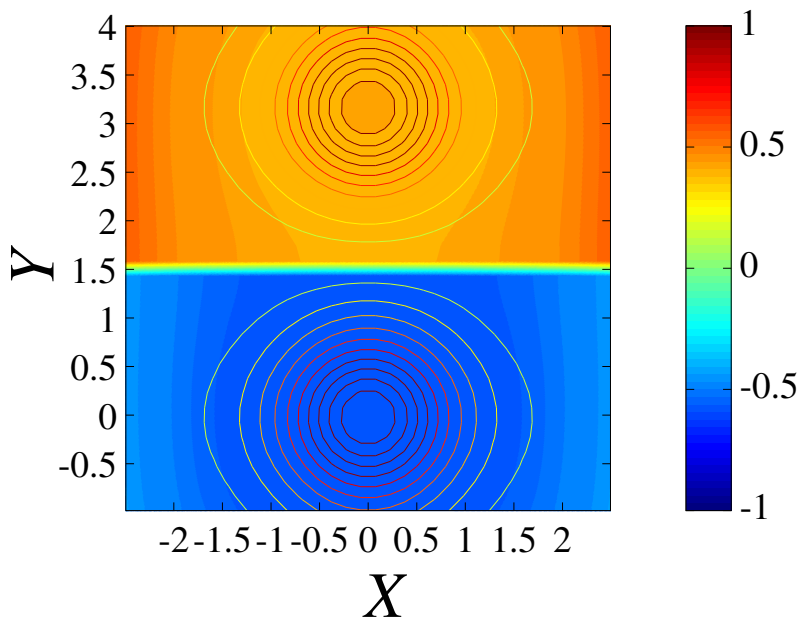


FIGURE 5.31 – Distribution en amplitude du dipôle stable.

FIGURE 5.32 – Phase (en fractions de  $\pi$ ) du dipôle stable.

Comme on le montre dans la figure 5.33, le dipôle en déplacement se multiplie en une série de dipôles secondaires, de façon identique au mécanisme présenté pour le soliton fondamental. Chaque nouveau dipôle créé présente un déphasage de  $\pi$  entre les deux solitons qui le constituent. De plus, la nouvelle structure obtenue est stable. La configuration présentée sur la figure 5.33 est une chaîne de 5 dipôles piégés et d'un dipôle mobile. Ce dernier poursuit son déplacement le long du domaine. Les conditions aux limites périodiques lui permettent de sortir du domaine par la droite et de réapparaître par la gauche. Le dipôle mobile finit par heurter la chaîne de dipôles. Il est absorbé par la chaîne du-

rant la collision. On conserve alors une configuration de 5 dipôles stables. Immédiatement après la collision la chaîne de dipôles oscille et finit par relaxer.

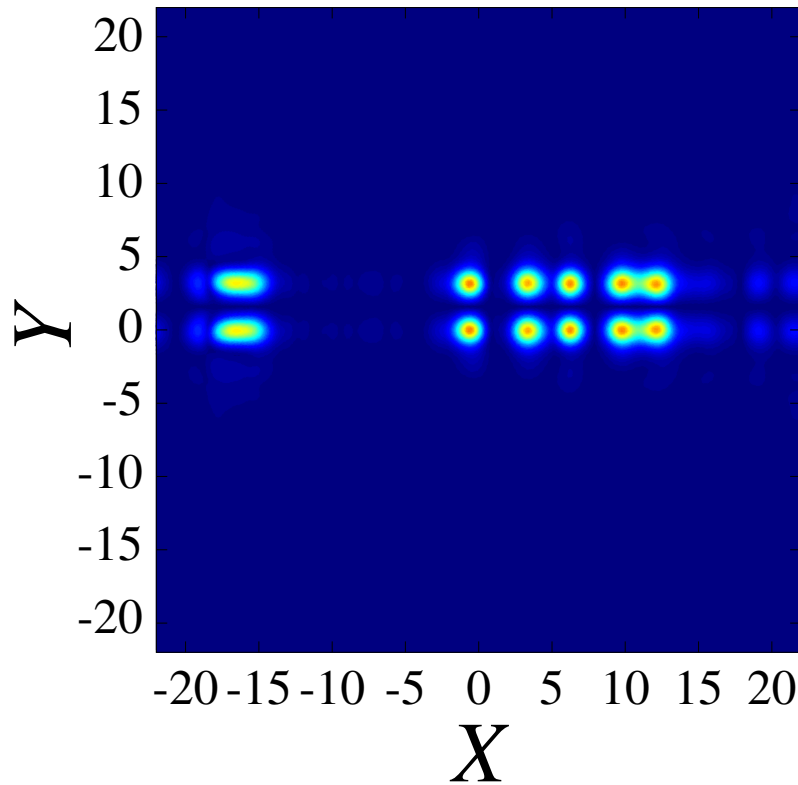


FIGURE 5.33 – Amplitude  $|u(X, Y)|$  du champ obtenue en inclinant le dipôle initial pour  $k_0 = 1.665$  et  $\theta = 0$ , à la distance de propagation  $Z = 22.410$ . Le dipôle le plus à gauche est mouvement vers la droite.

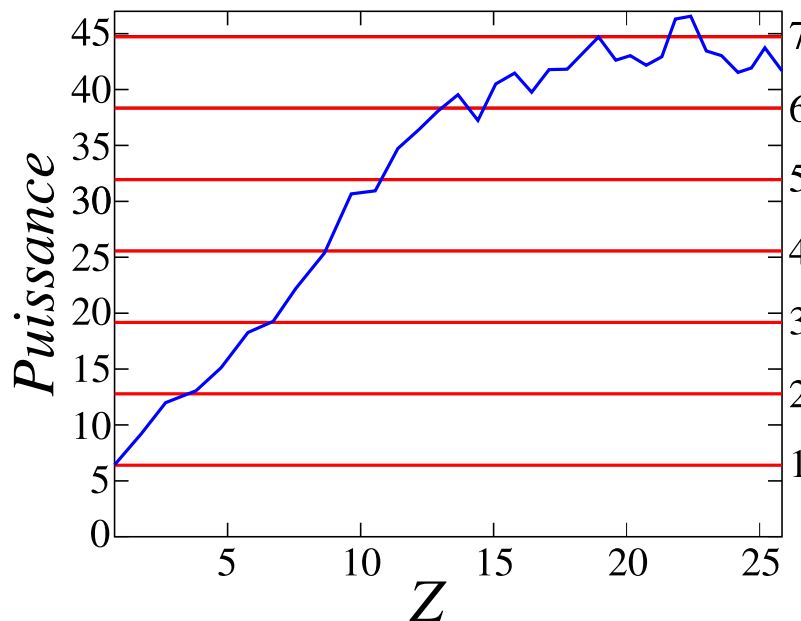


FIGURE 5.34 – Évolution de la structure produite par le dipôle, de la puissance totale du champ en fonction de la distance de propagation  $Z$ . Les lignes horizontales rouges indiquent la puissance totale correspondant à un nombre entier de dipôles stables.

L'image 5.33 corrobore ce que nous avons observé pour les solitons fondamentaux : le

plus grand nombre de dipôles obtenu est de 6 (5 dipôles stables et 1 dipôle en mouvement). Il est important de noter que, comme le montre la figure 5.34, la puissance totale de la structure à 6 dipôles est proche de la puissance totale de 7 dipôles stables. Cela est dû au fait que la puissance d'un dipôle en déplacement est approximativement égale à celle de 2 dipôles stables.

Afin d'étudier le résultat de la dynamique de la formation des structures de façon analogue au cas du soliton fondamental, nous avons calculé le nombre de solitons obtenu en fonction de la norme  $k_0$  du vecteur d'onde transverse. Nous avons résumé ces résultats sur la figure 5.35. Ceci nous donne une caractérisation des interactions qui nous permet de choisir judicieusement quels cas traiter et d'améliorer le traitement des données.

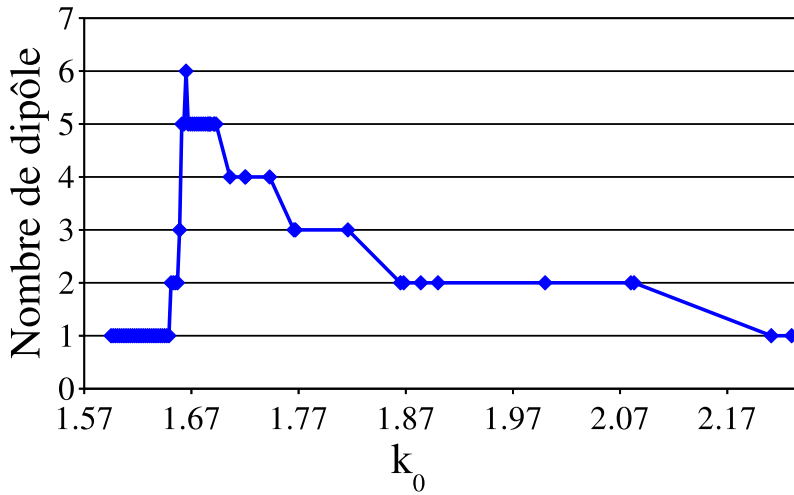


FIGURE 5.35 – Nombre des dipôles dans la structure finale, en fonction de la valeur  $k_0$  appliquée au dipôle ( $\theta = 0$ ).

En dessous de la valeur seuil de  $k_0$  qui a été déterminée numériquement,

$$k_0^{(\text{thr})}(\theta = 0) \approx 1.651, \quad (5.20)$$

le dipôle se met à osciller puis relaxe. Il reste piégé proche du minimum de la cellule du potentiel périodique où il se trouve. Puis, comme on le voit dans la figure 5.35, le nombre de dipôles augmente graduellement suivant  $k_0$ , jusqu'à atteindre un maximum de 6 dipôles pour  $k_0 = 1.665$ . Il est nécessaire de mentionner que cette valeur de  $k_0$  ne se trouve pas dans l'intervalle pour  $[1.6927, 1.6942]$ , dans lequel on obtient le maximum de solitons à partir du soliton fondamental (voir le paragraphe 5.3.1). Cette observation suggère que la création d'un nouveau dipôle ne se résume pas à la création simple des

deux nouveaux solitons fondamentaux composant celui-ci. Passé la valeur  $k_0 = 1.665$ , le nombre de dipôles diminue graduellement.

### 5.4.2 Dynamique induite par l'action du vecteur d'onde transverse sur le dipôle

Par souci d'exhaustivité dans la description du système à deux dimensions, nous avons aussi étudié numériquement la dynamique des régimes quasi uni-dimensionnels en mettant en mouvement le dipôle à l'aide d'un vecteur d'onde transverse faisant un angle  $\theta = \pi/2$  avec l'axe des  $X$ , c'est-à-dire dans l'axe du dipôle (5.5). Cette configuration entraîne la possibilité de générer de nouveaux dipôles mais aussi des solitons fondamentaux. Nous avons trouvé que la valeur minimale pour laquelle le dipôle est mis en mouvement est plus petite que celle obtenue pour  $\theta = 0$  (5.20) :

$$k_0^{(\text{thr})}(\theta = \pi/2) \approx 1.303. \quad (5.21)$$

Les résultats obtenus pour cette configuration sont résumés dans le tableau 5.5. Au-

Comportement de la structure	Intervalle de valeur de $k_0$	Nombre de nouveaux solitons créés suivant la direction $Y$
1 dipôle	$k_0 \in [0, 1.303]$	0
1 dipôle et 1 soliton	$k_0 \in [1.304, 1.875]$	1
1 dipôle et 2 solitons mobiles	$k_0 \in [1.88, 1.885]$	2
2 dipôles et 2 solitons mobiles	$k_0 \in [1.89, 2.015]$	4
2 dipôles et 1 soliton mobiles	$k_0 \in [2.02, 2.17]$	3
1 dipôle et 2 solitons mobiles	$k_0 \in [2.175, 2.255]$	2
2 dipôles et 1 soliton mobiles	$k_0 \in [2.26, 2.36]$	3
1 soliton piégé et 2 solitons mobiles	$k_0 \in [2.365, 2.46]$	2
2 solitons en déplacement	$k_0 \in [2.465, \infty)$	0

TABLE 5.5 – Le nombre de dipôles et de solitons fondamentaux établi en fonction de  $k_0$ , pour un vecteur d'onde transverse dans la direction de l'axe du dipôle ( $\theta = \pi/2$ ). Dans la colonne de droite, chaque nouveau dipôle est compté comme deux solitons.

dessus de la valeur seuil (5.21), de nouveaux solitons mobiles sont créés : un pour  $k_0 \in [1.304, 1.875]$ , et deux dans un intervalle étroit  $k_0 \in [1.880, 1.885]$ . Puis pour  $k_0 \in [1.89, 2.015]$ , un nouveau soliton mobile apparaît, et se déplace suivant la même direction que le dipôle. Il est accompagné par deux solitons mobiles. Pour  $k_0 \in [2.02, 2.17]$ , on a un soliton mobile

de moins et pour  $k_0 \in [2.175, 2.255]$ , le dipôle original disparaît au cours de la propagation, on ne conserve qu'un dipôle et deux solitons, tous mobiles. Pour  $k_0 \in [2.26, 2.36]$ , on observe la même structure que pour  $k_0 \in [2.02, 2.17]$  (deux dipôles et un soliton mobile). Puis, pour  $k_0 \in [2.365, 2.46]$ , le dipôle se sépare en deux solitons mobiles, et le soliton supérieur laisse un troisième soliton piégé dans le site qu'il occupait initialement. On retrouve la même dynamique pour des  $k_0$  supérieurs, à la différence près que le soliton ne laisse plus rien derrière lui, et ne fait que se déplacer le long du réseau défini pour la modulation.

### 5.4.3 Différent scénarios de collisions entre les dipôles

Toutes les mesures et résultats établis dans le paragraphe précédent l'ont été pour une propagation sur une grande distance, mais avant que le dipôle mobile et la structure immobile entrent en collision. On rappelle que le dipôle mobile peut entrer en collision avec la structure en sortant par le bord droit du domaine d'étude puis en réapparaissant par le bord gauche, ce sont les conditions aux limites périodiques qui le permettent. Grâce aux conditions aux limites périodiques, le dipôle mobile que l'on voit sur la figure 5.33 fait le tour complet du domaine et entre en collision avec la chaîne de dipôles immobiles. Les résultats de nos nombreuses résolutions numériques correspondant à cette situation peuvent être regroupé en trois types, qui peuvent présenter une dynamique persistante ou transitoire. On notera que tous ces régimes ont été observés pour  $\theta = 0$  (vecteur d'onde transversale suivant l'axe des  $X$ ). Les trois régimes sont :

- Le régime de collisions élastiques périodiques, qui correspond au passage du dipôle mobile au travers du dipôle immobile de façon récurrente et périodique (voir les figures 5.36 et 5.37). Ce régime survient pour  $k_0 \in [1.865, 1.868]$ . On remarque que, dans cet intervalle, conformément à la figure 5.35, la structure laissée dans le sillage du dipôle en mouvement contient exactement un autre dipôle immobile.
- Le régime transitoire, qui présente un certain nombre de collisions quasi-élastiques, avant que le dipôle mobile ne soit finalement absorbé par la structure immobile. Cette structure correspond à deux dipôles liés entre eux (voir les figures 5.38 et 5.39). Ce régime transitoire apparaît pour  $k_0 = 1.816$ , dans ce cas la figure 5.36



confirme que le dipôle mobile laisse un groupe de 2 dipôles supplémentaires dans son sillage.

- Le régime de "suppression de l'obstacle", au contraire du précédent, présente plusieurs collisions élastiques avant que le dipôle immobile soit absorbé par celui en mouvement (voir les figures 5.40 et 5.41). Ce scénario est possible pour  $k_0 \in [1.884, 1.9]$  et autour de  $k_0 = 2.083$  (dans cet intervalle, la figure 5.35 confirme que le dipôle mobile créé, originelement, un dipôle immobile).

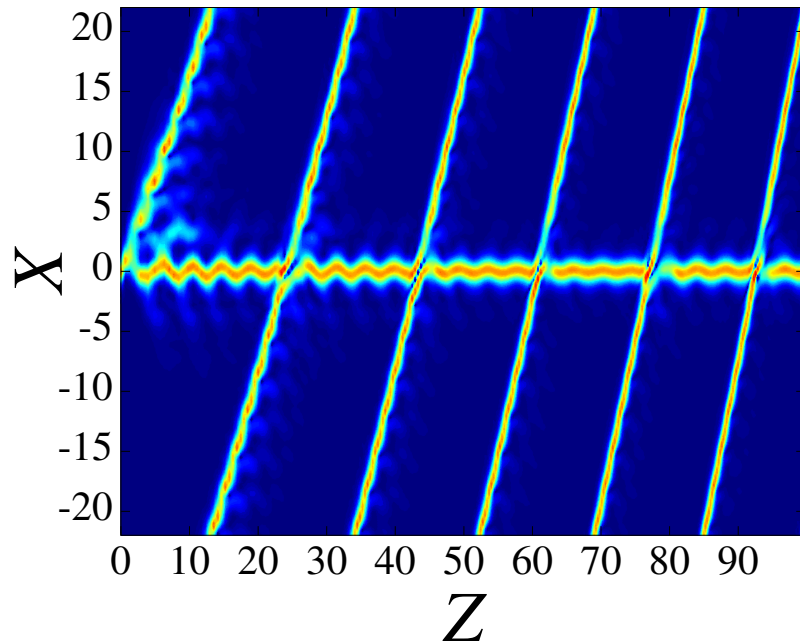


FIGURE 5.36 – Coupe transverse du champ  $|u(X, Y, Z)|$  pour  $Y = 0$ , dans le plan  $XZ$ , pour  $k_0 = 1.865$ . C'est une illustration du scénario des collisions élastiques périodiques, où le dipôle mobile répète les collisions élastiques avec le dipôle immobile.

Dans les autres cas, le dipôle mobile est absorbé par la structure immobile dès la première collision.

Il convient de souligner que les deux premiers régimes ont été observés pour les collisions de solitons fondamentaux (voir le paragraphe 5.3.4). Le troisième régime ("suppression de l'obstacle") est original. Une autre caractéristique de ce régime est que le dipôle subsistant finit par se séparer en deux solitons fondamentaux indépendants (voir la figure 5.42(a)). Afin d'étudier cette séparation, nous avons identifié la position  $(X_c, Y_c)$  de l'amplitude maximale de chacun des solitons (de son centre), ainsi que la phase en ce points, en fonction de la distance de propagation  $Z$ . On observe que la séparation du dipôle et la perte de la corrélation de phase entre les solitons commence de façon "cachée"

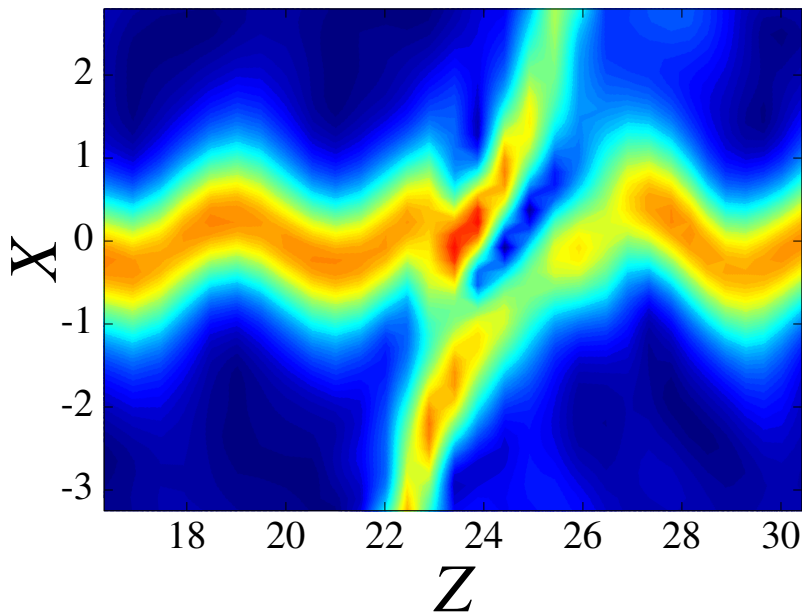
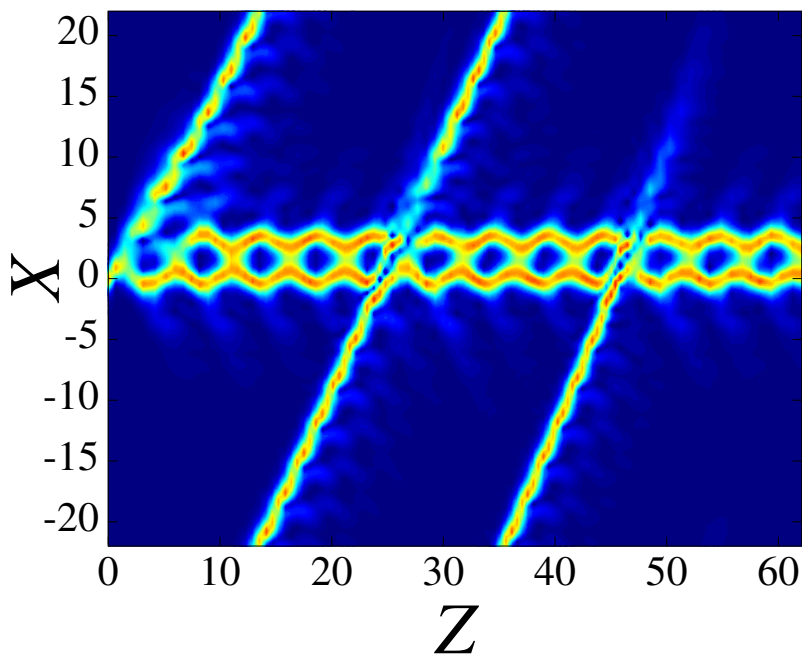


FIGURE 5.37 – Vue rapprochée d’une des collisions de la figure 5.36.

FIGURE 5.38 – Coupe transverse du champ  $|u(X, Y, Z)|$  pour  $Y = 0$ , dans le plan  $XZ$ , pour  $k_0 = 1.816$ . C’est une illustration du régime transitoire, dans lequel le dipôle mobile est absorbé par une paire de dipôles piégés, après un certain nombre de collisions élastiques.

à  $Z \approx 102.8$ , et devient visible à  $Z \simeq 112.5$  (voir les figures 5.42(c) et 5.42(d)). Les deux solitons se séparent définitivement à  $Z \simeq 115$ . Cette séparation conduit aussi à une vitesse de déplacement différente entre les solitons (la vitesse est définie comme  $dX_c/dZ$ ), comme l’illustre la figure 5.42(b).

Intéressons nous maintenant à la dynamique des quadrupôles.

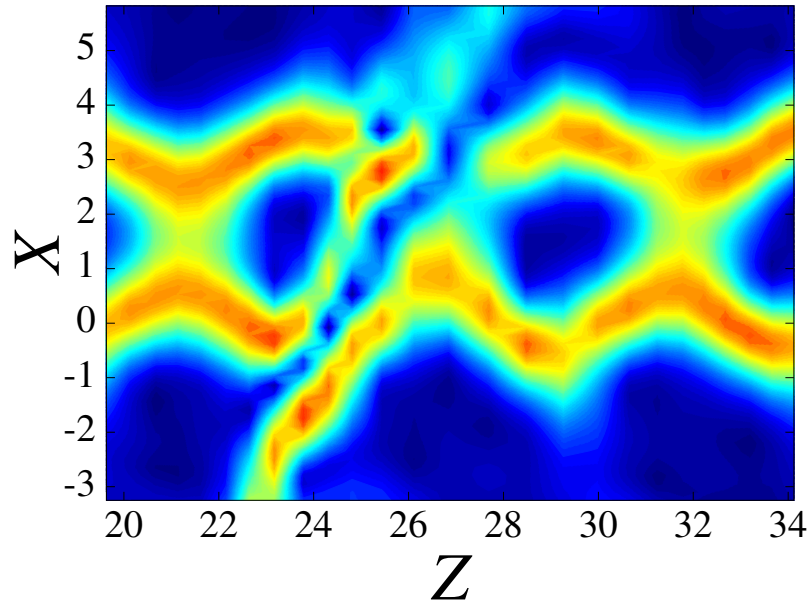


FIGURE 5.39 – Vue rapprochée de la collision absorbante de la figure 5.38.

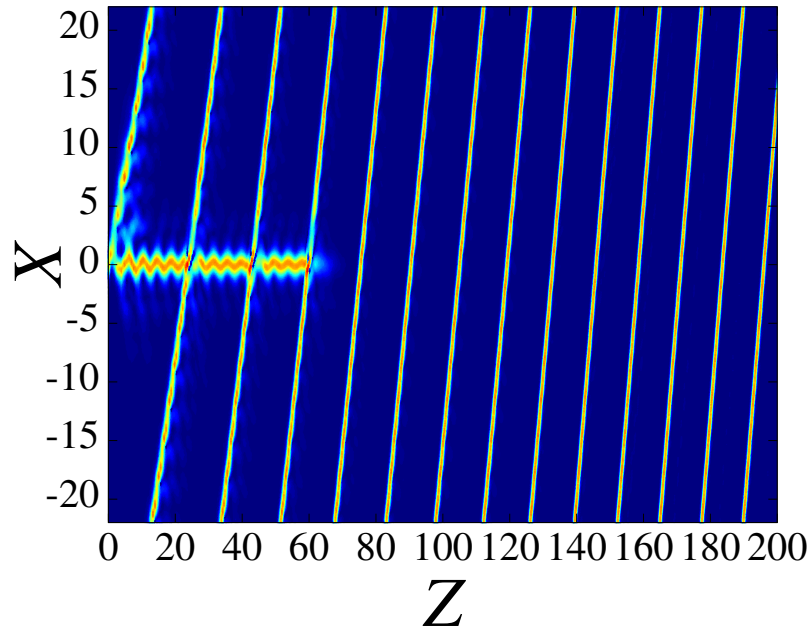


FIGURE 5.40 – Coupe transverse du champ  $|u(X, Y, Z)|$  pour  $Y = 0$ , dans le plan  $XZ$ , pour  $k_0 = 1.884$ . C'est une illustration du régime "suppression de l'obstacle", dans lequel le dipôle mobile absorbe le dipôle stationnaire, après un certain nombre de collisions entre eux.

## 5.5 Quadrupôles

Le quadrupôle est composé de quatre solitons, qui sont mutuellement verrouillés en phase, avec une différence de  $\pi$  entre deux solitons adjacents. La figure 5.43 représente le quadrupôle initial. Même si cette structure ne présente pas de vorticit , nos r solutions num riques montrent qu'elle est extr mement stable. Nous avons concentr  notre  tude sur les r gimes dynamiques induits par l'application du vecteur d'onde transverse (5.5) sur

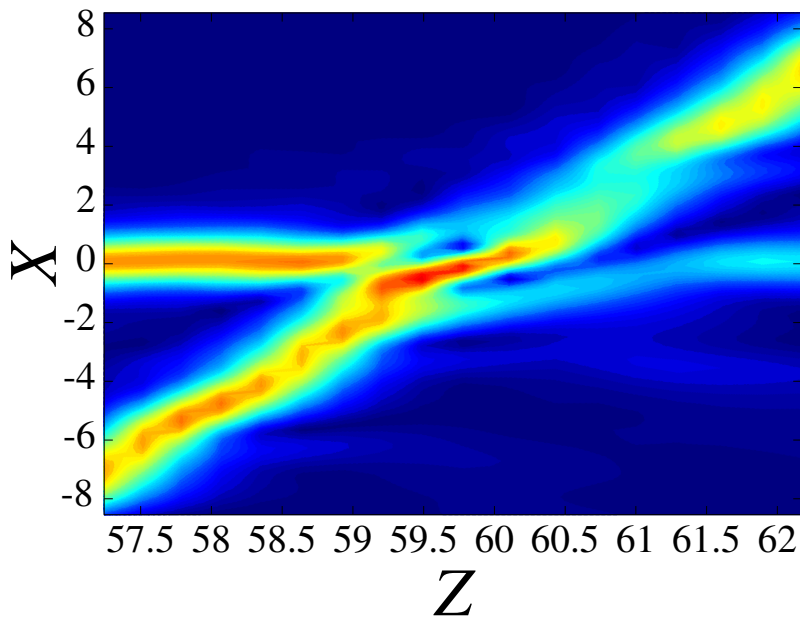


FIGURE 5.41 – Vue rapprochée de la collision absorbante de la figure 5.40.

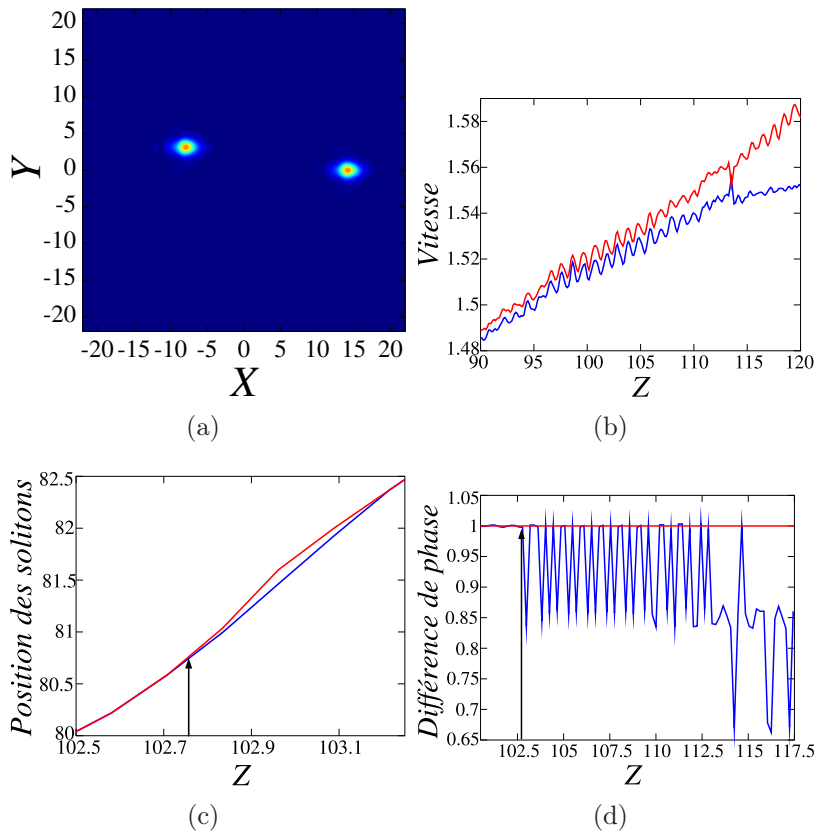


FIGURE 5.42 – Exemple de séparation de l'unique dipôle survivant, du régime "suppression de l'obstacle", en deux solitons fondamentaux non-corrélés, pour  $k_0 = 1.884$ . (a) Amplitude  $|u(X, Y)|$  du champ pour  $Z = 199.965$ . (b) Vitesse et (c) position de chacun des solitons en fonction de la distance de propagation  $Z$ . (d) Différence de phase entre les solitons en fonction de la distance de propagation  $Z$ , en fractions de  $\pi$ . La ligne horizontale rouge correspond à une différence de phase égale à  $\pi$ . Les flèches sur les figures (c) et (d) indiquent le début de la perte de cohérence de phase et de la séparation des deux solitons.

le quadrupôle. La valeur seuil de  $k_0$  qui permet de mettre en mouvement le quadrupôle,

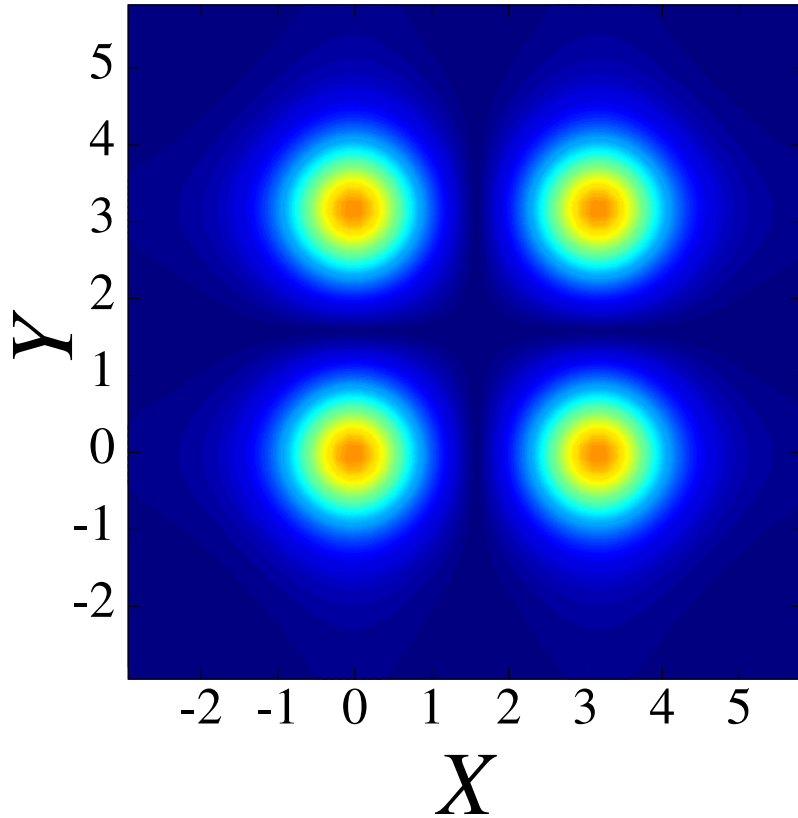


FIGURE 5.43 – Distribution de l’amplitude du quadrupôle stable utilisé comme donnée initiale dans les résolutions numériques.

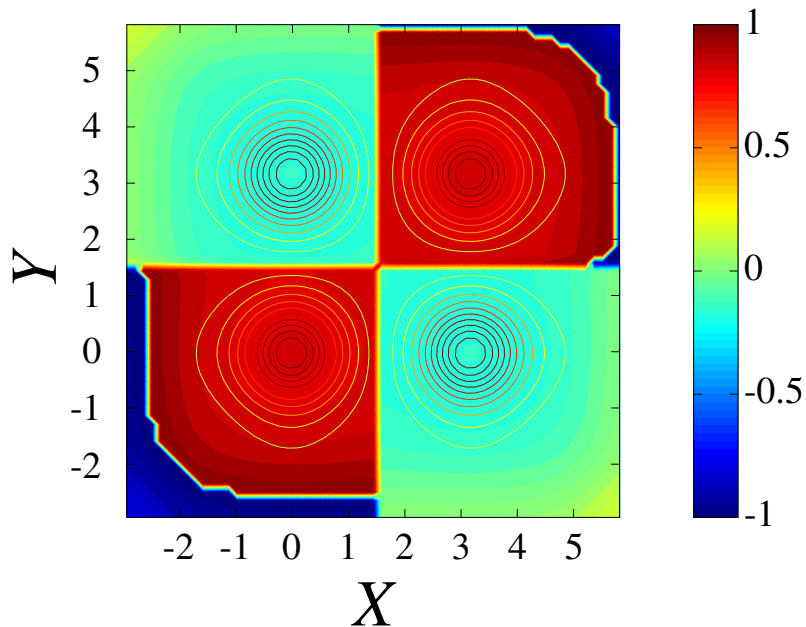


FIGURE 5.44 – Phase (en fraction de  $\pi$ ) du quadrupôle stable utilisé comme donnée initiale pour les résolutions numériques.

obtenue numériquement, est

$$k_0^{(\text{thr})}(\text{quadr}) = 1.28, \quad (5.22)$$

Lors du déplacement horizontal du quadrupôle, celui-ci se sépare en deux dipôles et génère un certain nombre d'autres dipôles (paires de solitons) immobiles, avec un déphasage de  $\pi/2$  entre eux. Le nombre de solitons obtenus est tracé en fonction de  $k_0$  (pour  $\theta = 0$ ) sur la figure 5.45. Puisque ces résolutions numériques ont été faites en utilisant des conditions aux limites périodiques, le dipôle libre complète sa progression du domaine (suivant l'axe des  $X$ ) et finit par entrer en collision avec la structure immobile. Le nombre de solitons a été évalué juste avant la collision.

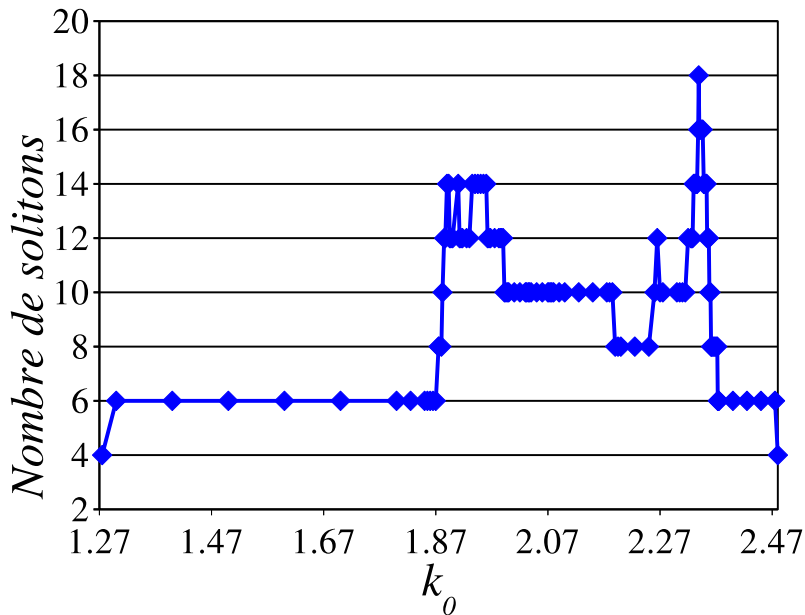


FIGURE 5.45 – Nombre total de solitons fondamentaux obtenu dans les structures en fonction de la norme  $k_0$  du vecteur d'onde transverse appliqué à un quadrupôle stable. Chaque dipôle compte comme 2 solitons.

La courbe est très différente de celles obtenues pour le soliton fondamental (voir la figure 5.12) et pour le dipôle (voir la figure 5.35). En dessous de la valeur seuil (5.22), le nombre de solitons fondamentaux dans les structures émergentes augmente et reste constant pour un large intervalle de valeurs de  $k_0$  ( $k_0 \in [1.28, 1.87]$ ). Puis, le nombre de solitons augmente jusqu'à un maximum de 14, obtenu dans plusieurs plages :  $k_0 \in [1.89, 1.893]$ ,  $k_0 = 1.91$  et  $k_0 \in [1.935, 1.96]$ . On notera que cette augmentation n'est pas monotone. Par exemple, on a 12 solitons générés pour  $k_0 \in [1.885, 1.887]$  et  $k_0 \in [1.895, 1.9]$ . Alors que, dans  $k_0 \in [1.9125, 2.338]$ , le nombre de solitons varie entre 8 et 16. Le nombre maximum de solitons obtenu est 18, atteint pour  $k_0 = 2.339$ . Puis, le nombre de solitons tombe à 6, et cette valeur reste constante dans un large intervalle,  $k_0 \in [2.373, 2.475]$ . Puis, dans un intervalle encore plus large, aucun nouveau soliton n'est

créé par la mise en mouvement du quadrupôle initial. Mais, le dernier se sépare alors en deux dipôles libres.

Pour  $k_0 = 2.339$ , la résolution numérique montre la création d'une structure à 18 solitons. Au départ, les deux dipôles mobiles sont issus de la séparation du quadrupôle originel, voir la figure 5.46(a). Le dipôle le plus rapide (celui dont la trajectoire est caractérisée par la pente  $dX_c/dZ$  la plus forte), se déplace sans créer de nouveaux solitons, tandis que le plus lent crée un certain nombre de nouveaux dipôles : un troisième dipôle mobile, ainsi que 6 dipôles immobiles. On a donc un total de 18 solitons. La puissance totale augmente jusqu'à atteindre l'équivalent de celle de 24 solitons stables. Cela correspond à 12 solitons immobiles avec 3 dipôles en mouvement. Ceci est illustré par la figure 5.46(b)). Grâce aux conditions aux limites périodiques, on observe la collision des 3 dipôles mobiles, l'un après l'autre, avec la chaîne de dipôle précédemment générée (voir la figure 5.46(a)). Les deux premiers dipôles sont capturés par la chaîne, augmentant ainsi le nombre de solitons liés, tandis que le troisième dipôle mobile est absorbé sans qu'un nouveau soliton soit ajouté à la chaîne. On obtient une chaîne de 8 dipôles stables, soit 16 solitons. On observe alors, au sein de la chaîne de dipôles, une oscillation interne qui finit par relaxer, voir la figure 5.46(d). La figure 5.46(a), étant une coupe dans le plan  $Y = 0$ , ne montre que les solitons qui s'y trouvent (la rangée du bas). Il en est de même pour la figure 5.46(c). Les autres solitons de la chaîne de dipôle se situent sur la ligne  $Y = 3$  et présentent les mêmes caractéristiques.

Comme nous l'avons indiqué précédemment (voir la figure 5.47), pour  $k_0 > 2.48$ , le quadrupôle initial se sépare en deux dipôles se déplaçant à des vitesses différentes. Il n'y a pas formation de nouvelle paire de solitons. La différence de phase entre les deux solitons constituant chaque dipôle reste  $\pi$ .

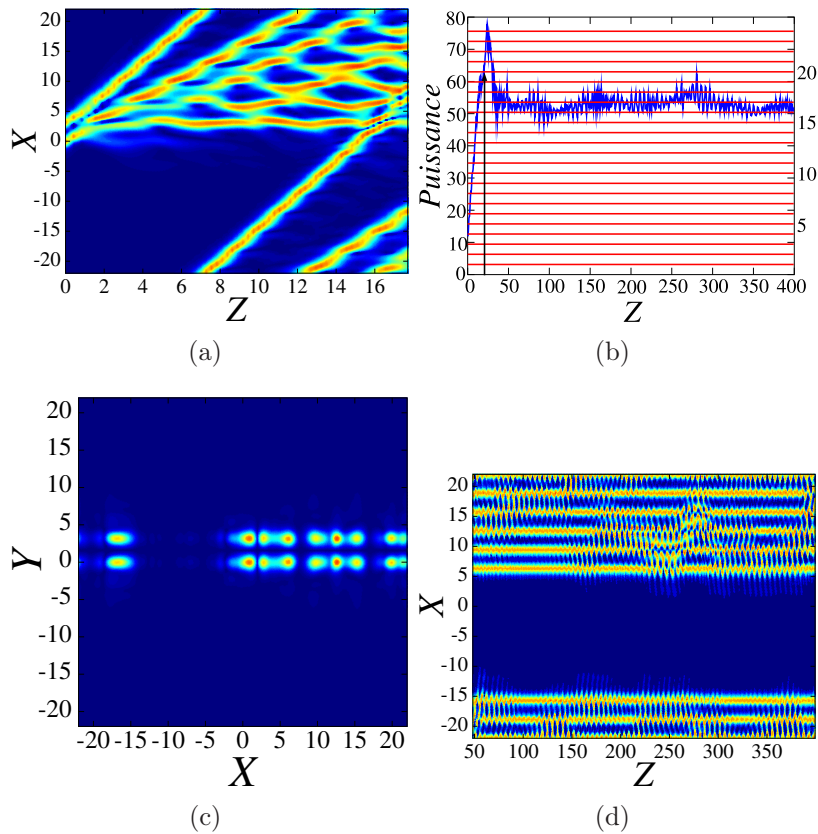


FIGURE 5.46 – Évolution du quadrupôle mobile pour  $k_0 = 2.339$ . (a) L'amplitude  $|u(X, Y, Z)|$  du champ suivant la coupe transversale  $Y = 0$ , avant la collision du dipôle mobile avec la structure immobile. (b) Puissance totale en fonction de  $Z$  (les flèches verticales montrent l'endroit où les collisions se produisent) ; les lignes horizontales rouges montrent la puissance correspondant à  $n$  solitons fondamentaux stables,  $n$  étant le nombre de solitons indiqué sur l'axe vertical de droite. (c) Amplitude  $|u(X, Y)|$  du champ à  $Z = 399.34$ . (d) Amplitude  $|u(X, Y, Z)|$  du champ suivant la coupe transversale  $Y = 0$ , après la collision.

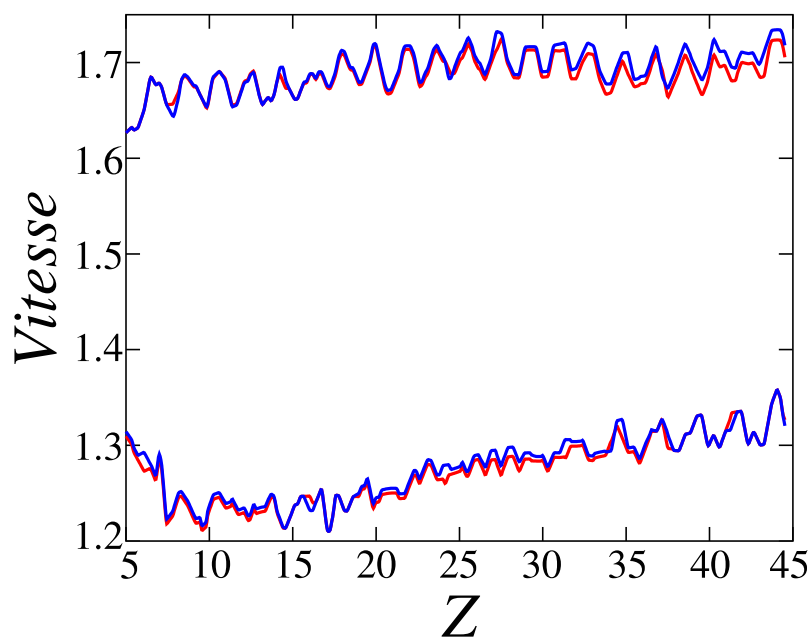


FIGURE 5.47 – Vitesse des deux dipôles issus de la scission du quadrupôle initial, pour  $k_0 = 3$ .



Comme nous l'avons indiqué dans l'introduction, il existe un autre type de structures stables solutions de l'équation CGL-CQ : les solitons vortex.

## 5.6 Solitons vortex

### 5.6.1 Génération de configuration chaotique par inclinaison de vortex rhombiques

Il a déjà été établi que la modulation périodique de l'indice permet la stabilisation des vortex localisés de deux types appelés les carrés (centrés sur le site) et le rhombiques (centrés hors du site) [220–223]. Considérons tout d'abord la dynamique des vortex rhombiques. Le vortex est composé de 4 solitons piégés, entourant un site inoccupé (voir la figure 5.48). C'est d'ailleurs ce site qui porte la circulation de phase de  $2\pi$ , correspondant à la charge topologique de  $S = 1$ , c'est-à-dire la vorticité (voir la figure 5.49).

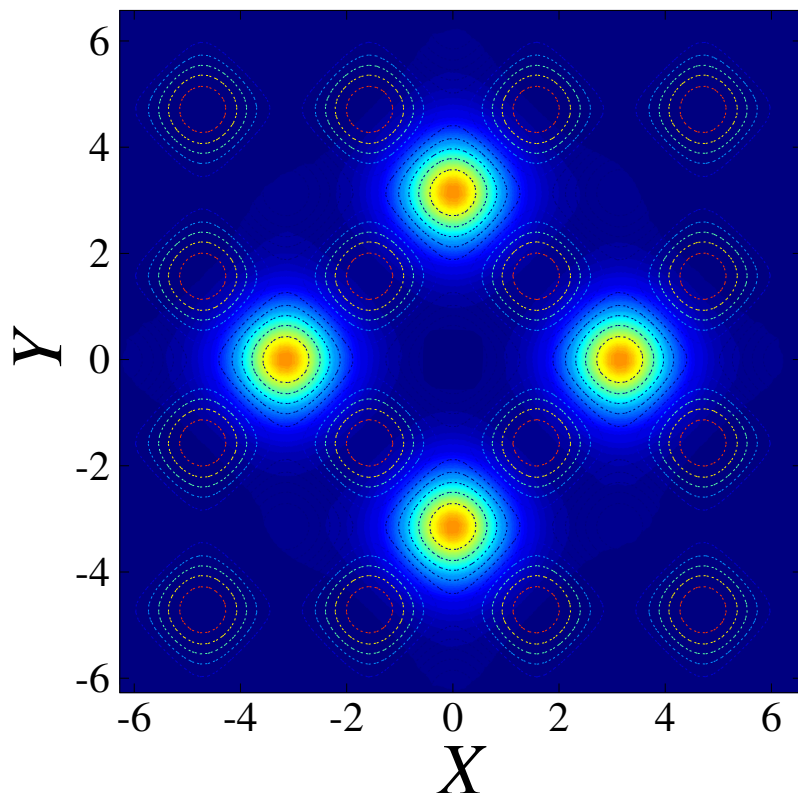


FIGURE 5.48 – Distribution de l'amplitude dans le cas du vortex rhombique stable. Les lignes correspondent aux courbes de niveau du potentiel  $V$ .

Pour un faible vecteur d'onde transverse faible, ( $k_0 \lesssim 0.1$ ), chacun des solitons fondamentaux composant le vortex oscille, tandis que la vorticité  $S = 1$  est conservée (c'est-

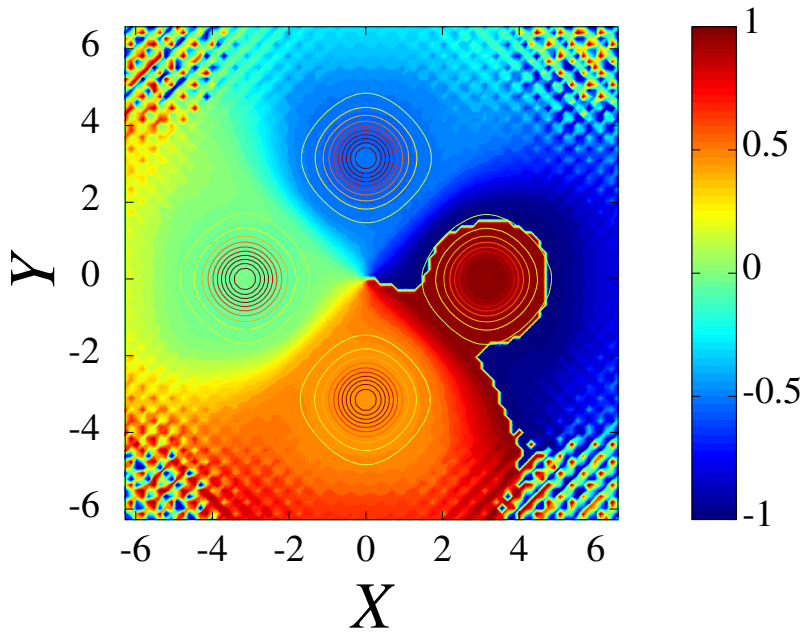


FIGURE 5.49 – Distribution de la phase (en fractions de  $\pi$ ) dans le cas du vortex rhombique stable.

à-dire que la différence de phase entre les solitons adjacents reste proche de  $\pi/2$ ), voir la figure 5.50(b). Pour un  $k_0$  plus important,  $k_0 = 0.5$ , la structure de phase du vortex est détruite. Le vortex devient un quadrupôle comme le montre la figure 5.50(c).

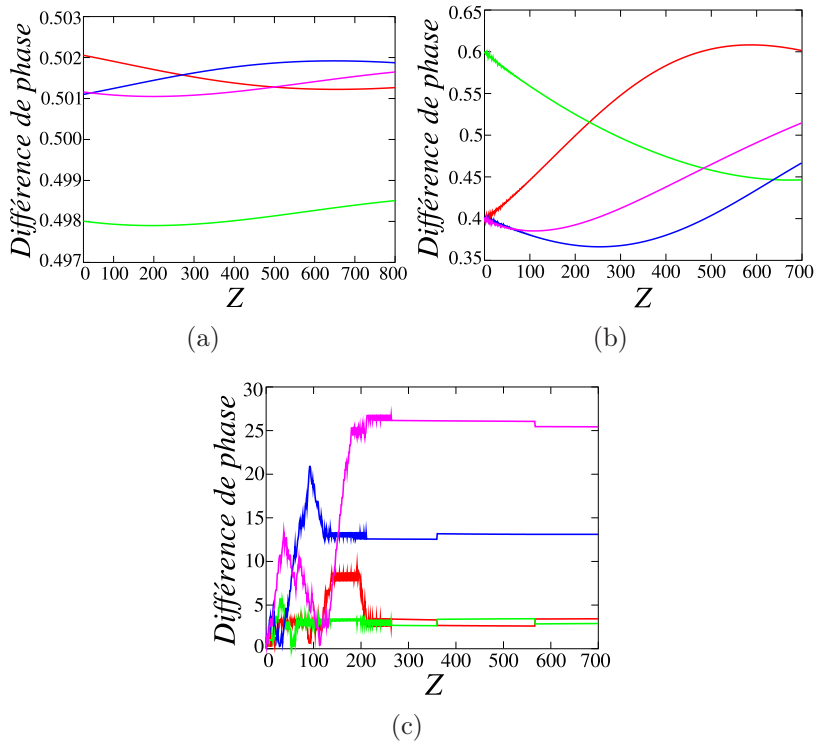


FIGURE 5.50 – Différence de phase entre les solitons adjacents du vortex (en fractions de  $\pi$ ), en fonction de  $Z$ , (a) pour  $k_0 = 0$ , (b) pour  $k_0 = 0.1$  et (c) pour  $k_0 = 0.2$ .

Pour  $k_0 = 1.0$  et  $k_0 = 1.5$ , voir les figures 5.51 et 5.52, le vortex est détruit et est

remplacé par des groupes apparemment aléatoires de solitons fondamentaux.

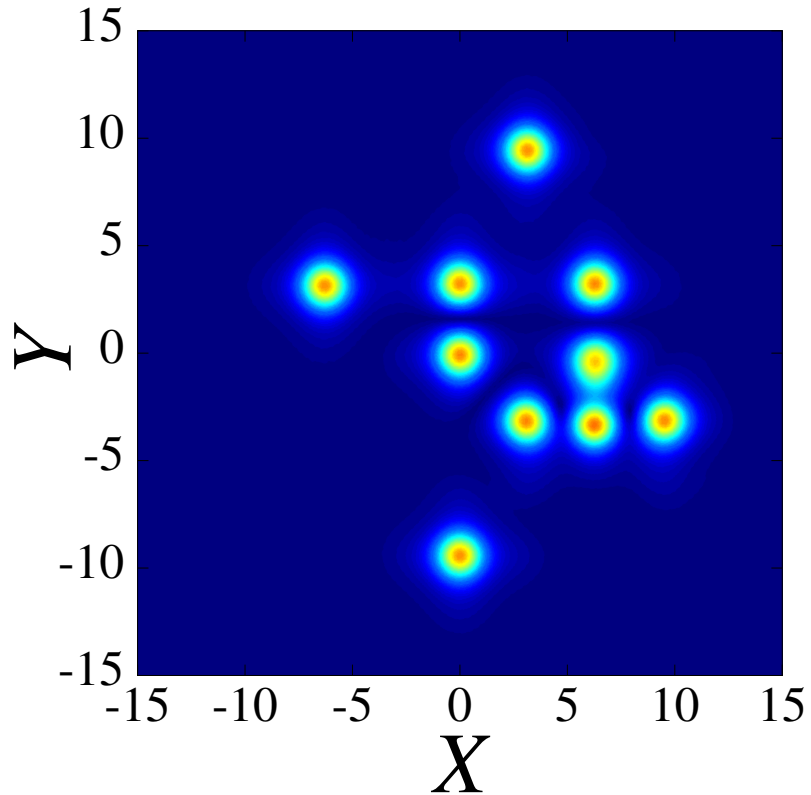


FIGURE 5.51 – Amplitude  $|u(X, Y)|$  du champ à  $Z = 299.725$ , généré par un vortex rhombique suivant  $k_0 = 1.0$ .

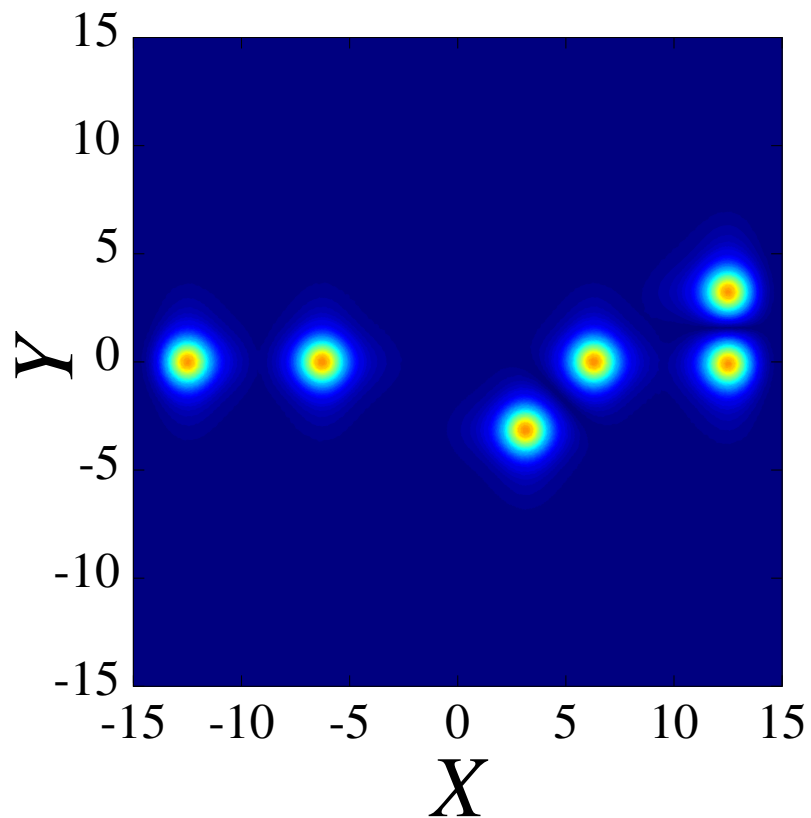


FIGURE 5.52 – Identique à la figure 5.51, mais pour  $k_0 = 1.5$ .

### 5.6.2 Vortex carrés

Contrairement à leurs homologues rhombiques, les vortex carrés, tel que celui de la figure 5.53, sont instables pour les valeurs des paramètres de l'équation (5.2) que nous avons choisis. Cette instabilité n'intervient toutefois que pour de longues distance de propagation. En conséquence, les vortex carrés sont plus fragiles que les vortex rhombiques [221]. Les vortex carrés se transforment en quadrupôles stables. Néanmoins, il nous semble pertinent de s'intéresser à la dynamique de formation de structures à partir de vortex instables.

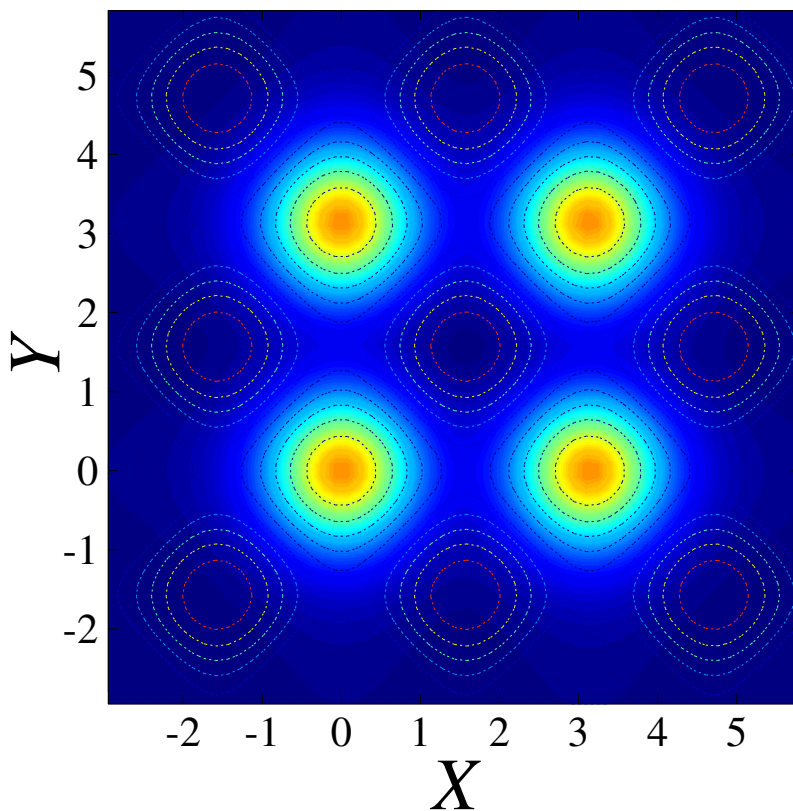


FIGURE 5.53 – Distribution de l'amplitude du vortex carré instable. Les lignes correspondent aux courbes de niveaux du potentiel  $V$ .

Tout d'abord nous considérons l'application du vecteur d'onde transverse (5.5) pour différents  $k_0$  et avec  $\theta = 0$ . Les solitons composant le vortex oscillent sans se déplacer pour  $k_0$  inférieur à un seuil  $k_0^{(\text{thr})} = 1.2125$ , à comparer aux valeurs trouvées dans les autres situations (5.20), (5.21), et (5.22). Il peut arriver qu'un nouveau soliton soit créé et se déplace suivant l'axe des  $X$ . Cependant, la puissance de ce soliton n'est pas suffisante pour qu'il se stabilise. Le nouveau soliton finit toujours par s'affaiblir et disparaître, tandis que le soliton initial appartenant au vortex retrouve sa position initiale. La structure de

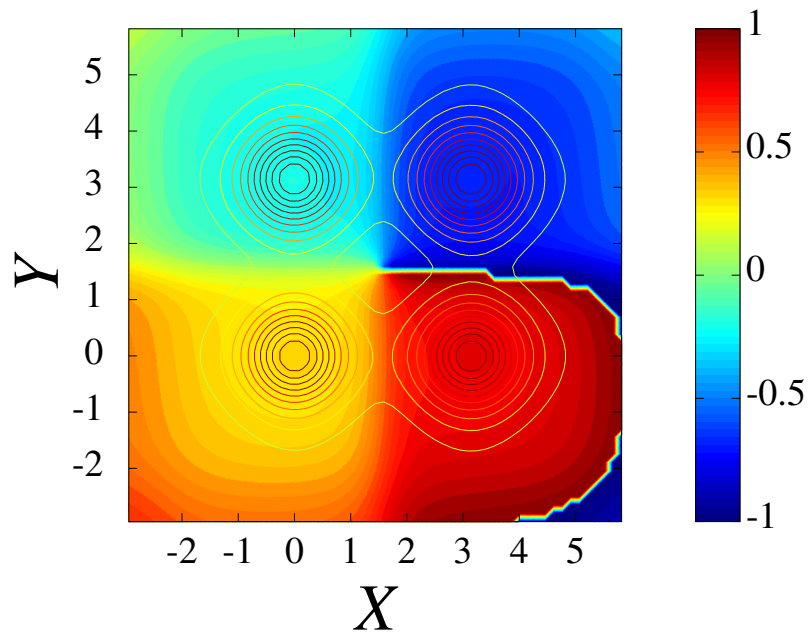


FIGURE 5.54 – Distribution de la phase du vortex carré instable (en fractions de  $\pi$ ).

phase interne du vortex est aussi détruite par les oscillations. On obtient un quadrupôle, conformément à ce que nous avons mentionné précédemment au sujet de l'instabilité de la structure.

L'augmentation de  $k_0$  conduit à la formation de nouvelles structures à deux dimensions. Pour  $k_0 = 1.5$ , les deux solitons fondamentaux de la paire verticale de droite, appartenant au vortex original, se multiplient tandis qu'ils se déplacent vers la droite (c'est-à-dire la direction du vecteur d'onde transverse), voir la figure 5.55. Un effet notable, de rupture de symétrie entre les solitons du haut et ceux du bas, est que seuls les solitons du bas arrivent à créer une flèche horizontale de nouveaux solitons (trois nouveaux). Dans ce cas, la figure 5.56 montre que la puissance totale (5.4) oscille entre la puissance totale de 7 et celle de 8 solitons stables. La configuration résultante est une forme désordonnée qui continue d'osciller au hasard, comme le montre la figure 5.55.

Pour certaines valeurs de  $k_0$  supérieures (par exemple,  $k_0 = 2.0$ ), la configuration originelle à 4 solitons est transformée en un complexe de trois solitons stables tandis qu'un dipôle et des solitons isolés supplémentaires sont créés et se déplacent le long du réseau (voir la figure 5.57).

Finalement, pour des valeurs de  $k_0$  encore plus élevées, le vortex se transforme en une grappe carrée de 4 solitons mobiles. Les figures 5.58 et 5.59, montrent le résultat en 3 dimensions. Pour  $k_0 = 2.5$ , la grappe laisse derrière lui une copie d'un des solitons

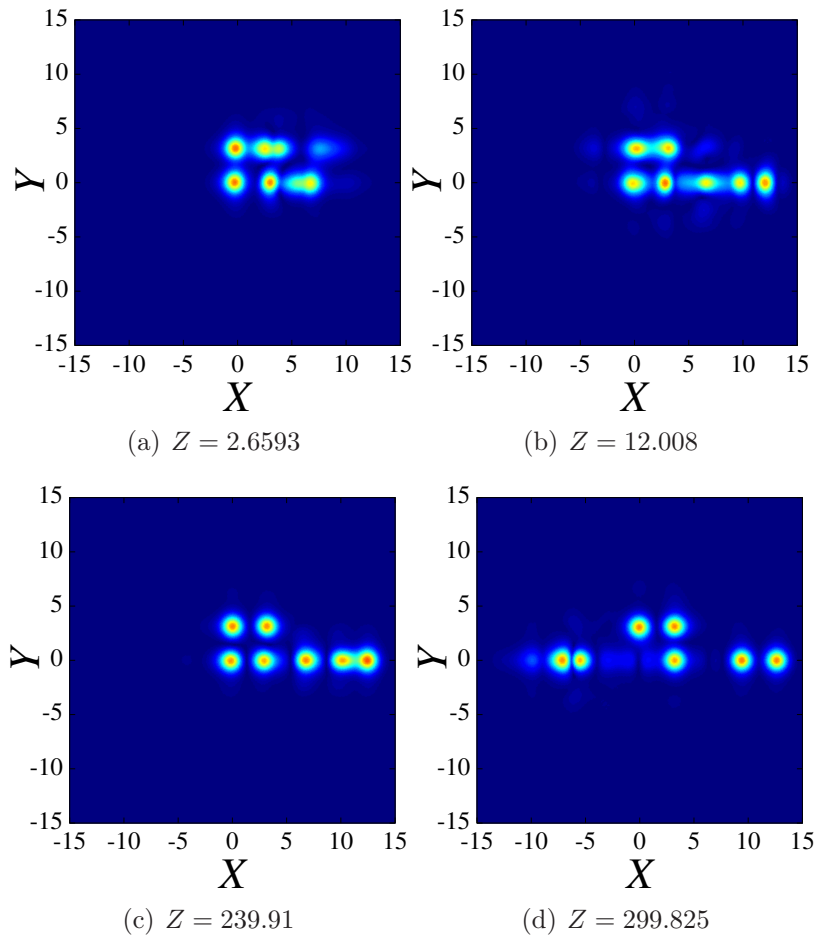


FIGURE 5.55 – Évolution du vortex carré après application du vecteur d’onde transverse pour  $(\theta = 0)$  et  $k_0 = 1.5$ .

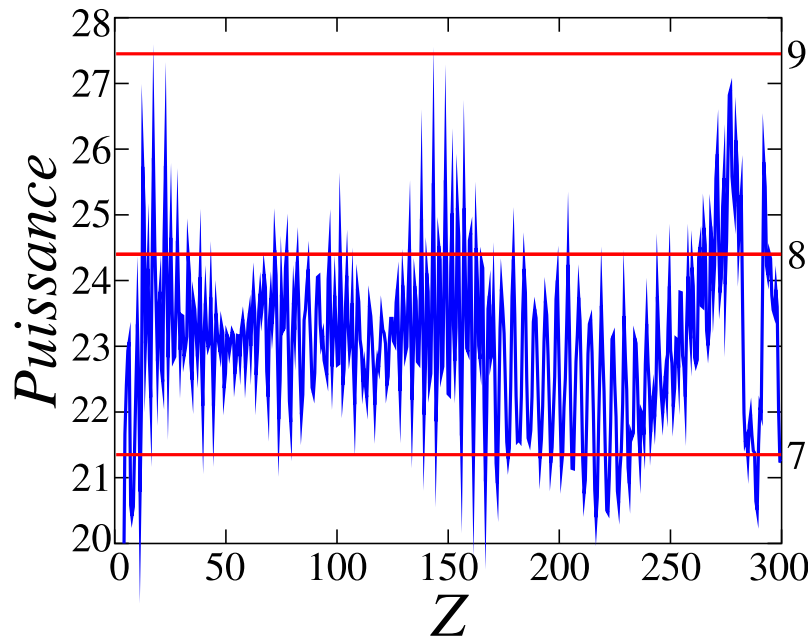


FIGURE 5.56 – Évolution de la puissance totale pour la configuration obtenue à partir du vortex carré pour  $k_0 = 1.5$ . Les lignes horizontales rouges montrent la puissance équivalant à  $n$  solitons stables.

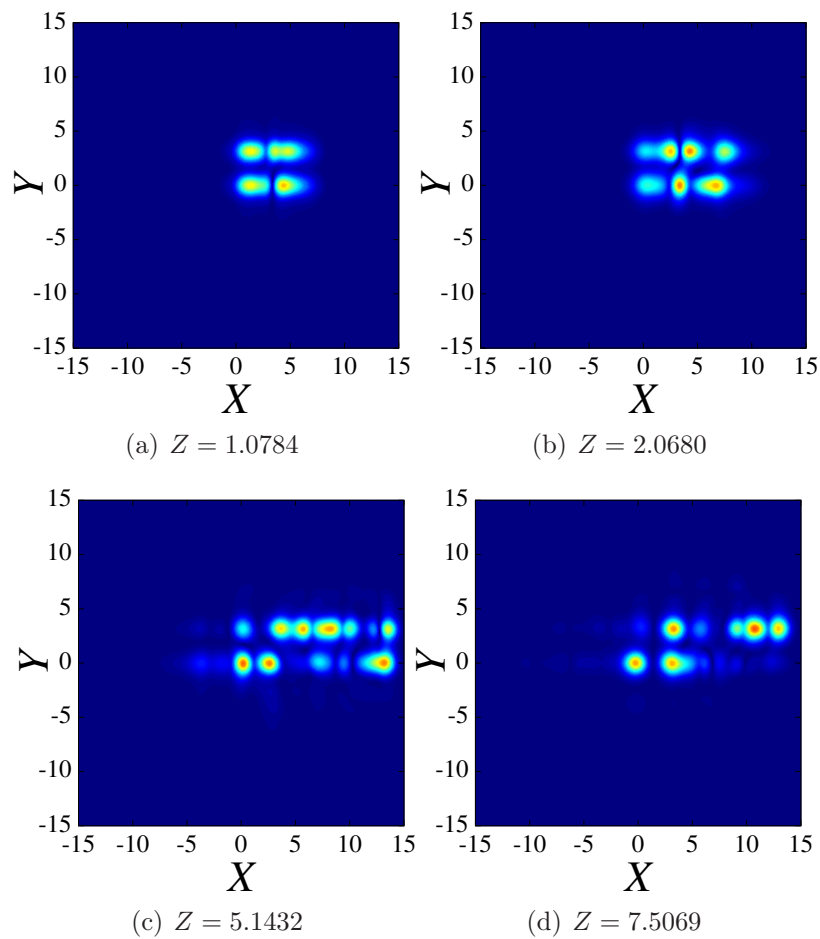


FIGURE 5.57 – Évolution de la configuration obtenue à partir du vortex carré pour  $k_0 = 2$ .

originels, tandis que pour  $k_0 = 3.0$  la grappe mobile est le seul mode émergeant. Bien que la grappe soit stable, elle ne porte pas de structure de phase.

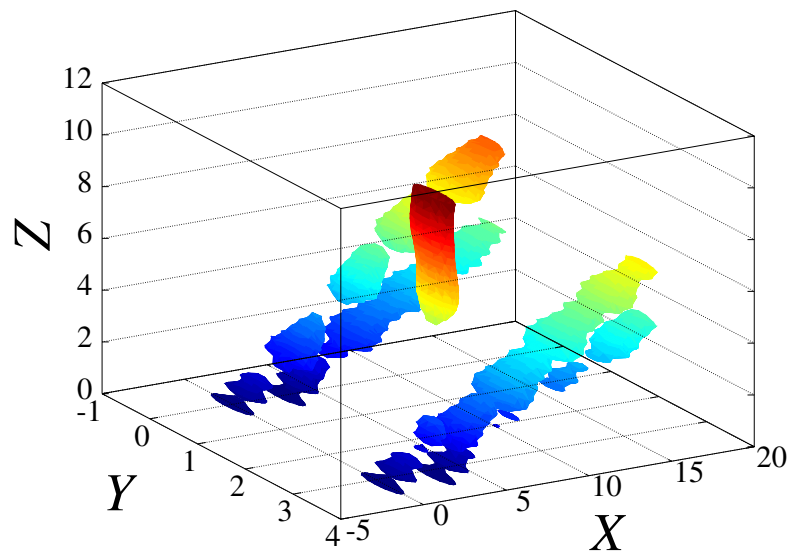


FIGURE 5.58 – Rendu tri-dimensionnel de l'évolution du vortex pour  $k_0 = 2.5$ , qui se transforme en une grappe mobile stable de 4 solitons. La progression chromatique indique la direction de propagation. Le tube verticale représente le soliton supplémentaire qui se forme dans le sillage du cluster mobile.

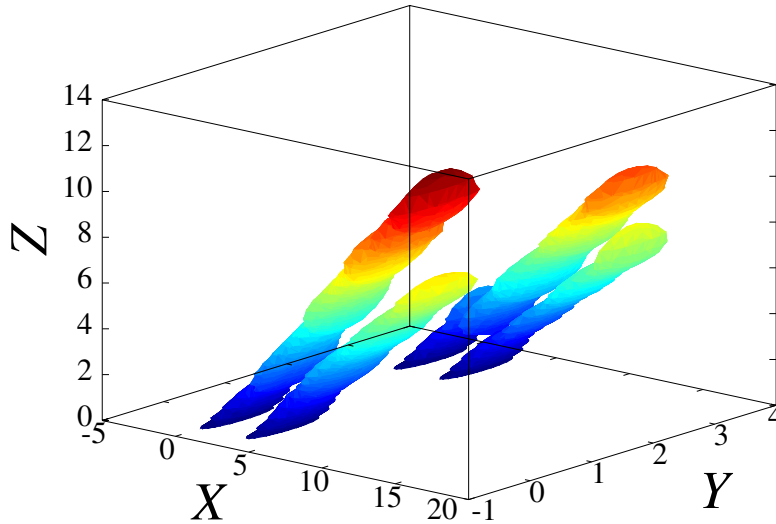


FIGURE 5.59 – Identique à la figure 5.58 mais pour  $k_0 = 3.0$ . Dans ce cas, le vortex se transforme entièrement en une grappe mobile.

Nous avons aussi étudié l'influence d'un vecteur d'onde transversale dirigés dans d'autres directions en faisant varier l'angle  $\theta$  (5.5). Tout d'abord, comme le montre la figure 5.60(a), pour  $\theta = \pi/8$  et  $k_0 = 1.5$ , on observe une brisure de la symétrie entre la ligne de solitons du haut et celle du bas. On obtient une flèche de nouveaux solitons suivant la ligne horizontale du bas. De plus, nous avons considéré les angles  $\theta = 5\pi/8$ ,  $9\pi/8$  et  $13\pi/8$ , afin de vérifier la symétrie globale de cette configuration. Les résultats montrent qu'il est possible de contrôler la direction d'émission de la flèche de solitons en contrôlant la direction du vecteur d'onde transverse (voir les figures 5.60(b), (c) et (d)).

En résolvant l'équation CGL-CQ pour différentes valeurs de  $\theta$  et de  $k_0$ , nous avons conclu qu'il existe un angle seuil  $\varepsilon$ , suivant lequel l'émission se fera le long d'un des axes  $X$  ou  $Y$  dès que l'angle entre le vecteur d'onde transverse de cet axe sera plus petit que  $\varepsilon$ . Plus précisément, si on repère la direction de l'émission par l'angle  $\phi$  qu'elle fait avec l'axe des  $X$ , à  $\phi = 0, \pi/2, \pi$  ou  $3\pi/2$ , il y a émission dès que  $(\phi - \pi/4 + \varepsilon) < \theta < (\phi + \pi/4 - \varepsilon)$ , avec  $\varepsilon = 0.059$ . Si l'angle  $\theta$  se situe dans les intervalles entre ces plages de valeurs,  $[\phi + \pi/4 - \varepsilon; \phi + \pi/4 + \varepsilon]$ , alors il n'y a pas de génération de flèche de soliton. Dans ce cas, le vortex carré devient un quadrupôle.

Ces résultats ne peuvent être expliqués que par la circulation de phase intrinsèque du vortex. Celle-ci est dirigée dans le sens trigonométrique (de  $X$  vers  $Y$ ). Ainsi, comme représenté on l'a schématiquement pour  $\theta = \pi/8$  sur la figure 5.61, la superposition du vecteurs d'onde transverses (vu comme un gradient de phase) et du flux de phase



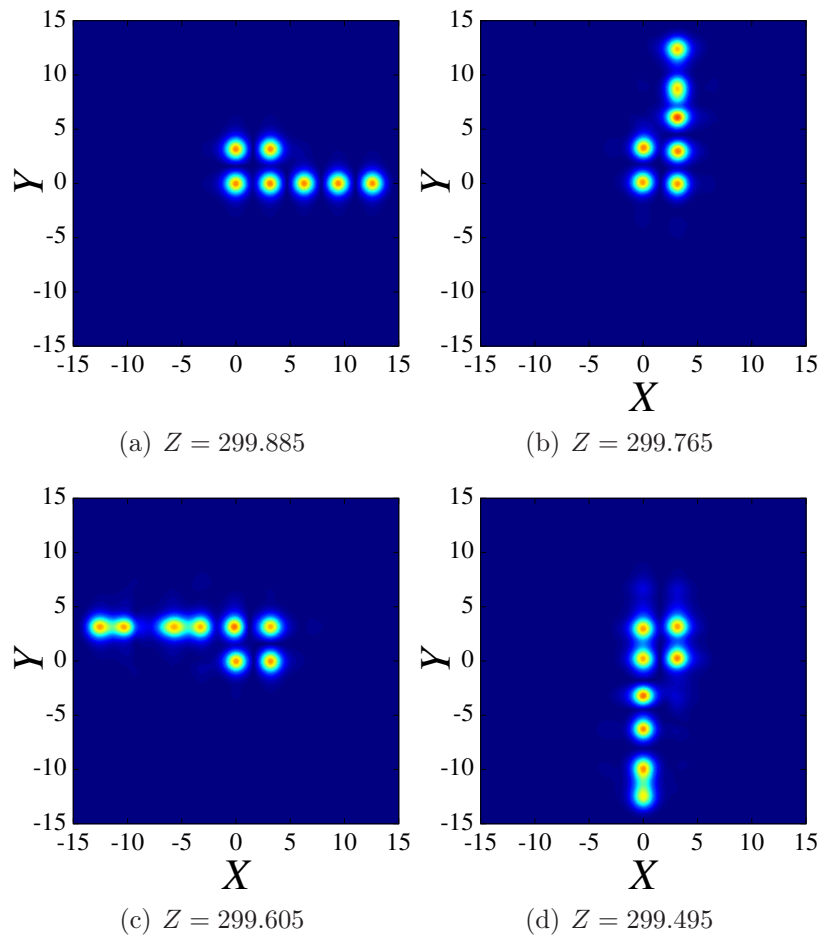


FIGURE 5.60 – Configurations obtenues à partir du vortex carré pour  $k_0 = 1.5$  mais suivant différentes directions : (a)  $\theta = \pi/8$ ; (b)  $\theta = 5\pi/8$ ; (c)  $\theta = 9\pi/8$ ; (d)  $\theta = 13\pi/8$

intrinsèque donne naissance à un gradient de phase qui est maximal sur le soliton en bas à droite, dans la directions des  $X$  croissants. Ceci conduit à l'émission d'une flèche de solitons en ce point et dans cette direction.

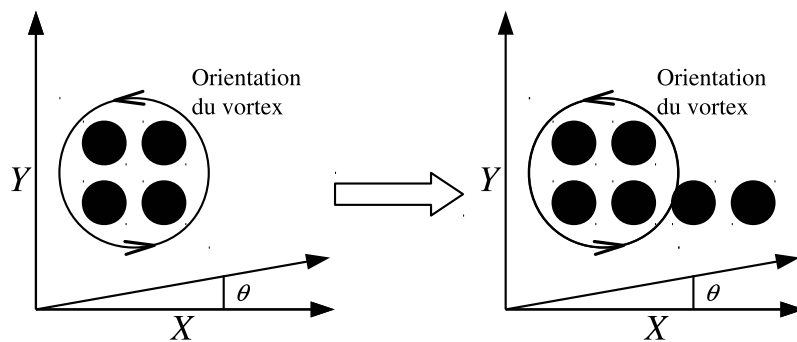


FIGURE 5.61 – Schéma explicatif de la direction dans laquelle est générée la flèche de soliton à partir de vortex carré.

Il est intéressant de considérer la situation des vortex de vorticité opposée ( $-1$  au lieu de  $+1$ ). Le renversement de symétrie (non illustré ici) aboutit à des résultats analogues

à ceux présentés précédemment. La direction du vecteur d'onde initial pour laquelle on obtient les mêmes résultats s'obtient par une symétrie par rapport à l'axe de coordonnées le plus proche. On notera que ces résultats sont valables à la fois pour des conditions aux limites périodiques que pour des conditions aux limites absorbantes.

## 5.7 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudiés la dynamique des solitons dissipatifs bi-dimensionnels dans différentes configurations : soliton fondamental, dipôle, quadrupôle, vortex carré, vortex rhombique. Pour ce faire nous avons utilisé l'équation complexe de Ginzburg-Landau cubique-quintique dans sa forme standard, et nous l'avons résolue numériquement à l'aide de la méthode de Runge-Kutta d'ordre 4 et de la méthode des différences finies à 5 points. Nous avons étudié la mobilité des structures vis-à-vis de l'application d'un vecteur d'onde transverse (5.5) sur la configuration initiale considérée [224]. Cela revient à incliner le faisceau incident dans le cas d'une cavité laser, c'est-à-dire que l'observation expérimentale de cette mobilité suppose la génération d'un faisceau laser oblique dans le milieu considéré.

Dans le cas de la dynamique du soliton fondamental, nous avons déterminé numériquement la norme seuil à franchir pour mettre celui-ci en mouvement. Cette valeur a été confrontée à une approximation analytique basée sur une estimation des conditions pour franchir une barrière de potentiel de Peierls-Nabarro. En dessous de cette valeur, le soliton oscille un temps dans son site puis relaxe. Diverses configurations de solitons ont été observées, notamment l'émergence d'une flèche de solitons avec un maximum de 6 solitons. Nous avons décrit la dynamique du déplacement et de la création de nouveaux solitons. Les solitons mobiles ainsi formés ont une vitesse qui tend vers deux valeurs discrètes, ce qui indique la coexistence de deux attracteurs dans le système dissipatif. Différents scénarios de collisions (élastiques et inélastiques) entre les structures immobiles et les solitons mobiles ont été étudiés. On a déterminé ainsi des régimes quasi-élastiques, comme celui du pendule de Newton, ainsi que des régimes d'absorptions du soliton mobile par la structure immobile, parfois après de nombreuses collisions élastiques. La mobilité du soliton fondamental peut être utilisée pour la création de nombreuses configurations différentes qui apparaissent dans le sillage du soliton se déplaçant entre les sites de la

modulation périodique d'indice. Enfin il a été établi que la puissance d'un soliton mobile est approximativement le double de celle du soliton immobile.

Nous avons ensuite étudié la mobilité des dipôles, c'est-à-dire des paires de solitons présentant une différence de phase verrouillée à  $\pi$ . Nous avons observé des structures proches de celles obtenues à partir des solitons fondamentaux, par exemple des flèches horizontales de 6 dipôles, au maximum, qui font écho à la flèche de 6 solitons, bien qu'elles soient obtenues à une valeur de  $k_0$  différente. Nous avons établi le seuil pour lequel les dipôles se mettent en mouvement. Nous avons observé la formation de configurations inédites de dipôles immobiles, mobiles et de solitons mobiles lors de l'application d'un vecteur d'onde transverse suivant l'angle  $\theta = \pi/2$ . Enfin, nous avons déterminé trois régimes de collisions entre un dipôle mobile et une structure immobile composée de différents dipôles : le régime de collisions élastiques périodiques, le régime transitoire et enfin le régime de "suppression de l'obstacle". Dans le dernier cas, il a même été possible d'observer la scission du dipôle en deux solitons mobiles se déplaçant à deux vitesses différentes.

Nous avons étudié la mobilité des quadrupôles, c'est-à-dire des groupes de 4 solitons disposés suivant un carré et occupant chacun un site adjacent, avec une différence de phase entre chaque soliton adjacent verrouillée à  $\pi$ . La mise en mouvement de cette structure nécessite une valeur minimale de  $k_0$  que nous avons déterminée numériquement. Puis nous avons décrit les différentes structures émergentes en fonction  $k_0$  pour  $\theta = 0$ . On obtient un maximum de 18 solitons. On a également décrit la séparation du quadrupôle en deux dipôles qui se déplacent à deux vitesses distinctes. On notera que chaque dipôle présente un verrouillage en phase entre les deux solitons qui le composent.

Enfin nous avons étudié deux types de vortex. Tout d'abord le vortex rhombique qui est stable. La vorticit  de cette structure se maintient pour de tr s faibles valeurs de  $k_0$ . Au del , elle se perd et on ne conserve que 4 solitons isol s. Si l'on met en mouvement le vortex, on observe l' mergence de nombreux solitons, dans une disposition chaotique. L'autre type de vortex est le vortex carr , instable. En effet ce dernier perd la vorticit  apr s une propagation sur une tr s longue distance, et devient alors un quadrup le. Pour  $k_0 \geq 2$ , la structure se s pare en un complexe form  de trois solitons stables accompagn  d'un dip le mobile. Au del  de  $k_0 = 2.5$ , on voit la disparition du vortex au profit de la formation d'une grappe de 4 solitons mobiles. Il est int ressant de noter que pour une

valeur modérée de  $k_0$  ( $= 1.5$ ), on voit apparaître une flèche horizontale de solitons qui part du soliton situé en bas à droite du vortex. En changeant la direction du vecteur d'onde transverse, c'est-à-dire en changeant la valeur de  $\theta$ , on peut modifier la position et la direction de la flèche de solitons. Il est ainsi possible de contrôler l'émergence de la flèche de soliton à partir du vortex en modifiant le paramètre  $\theta$ .

Il reste néanmoins de nombreuses autres structures à étudier dans le cas des systèmes dissipatifs : tripôles, paires de solitons obliques, super vortex . . . De plus il serait intéressant de modifier la forme de la modulation d'incide. Ainsi l'utilisation d'un réseau circulaire devrait permettre de naître un mouvement rotatoire. Enfin, il serait intéressant d'étudier la dynamique de structures à trois dimensions.



# Conclusion générale

Afin d'étudier la filamentation dans le disulfure de carbone, les travaux menés au cours de cette thèse ont tout d'abord concerné l'étude des caractéristiques non-linéaires du troisième et du cinquième ordres du disulfure de carbone aux longueurs d'onde de 532 nm et 1064 nm en régime picoseconde. Nous avons considéré le modèle de l'oscillateur anharmonique avec un potentiel quintique, cela revient à traiter le barycentre du nuage électronique de nos molécules de CS<sub>2</sub> comme une charge ponctuelle classique soumise à une force de Coulomb due à un champ extérieur ainsi qu'à un potentiel dû à la molécule. Nous avons déterminé les expressions de la polarisabilité et des hyperpolarisabilités du troisième et du cinquième ordres. Puis en faisant l'hypothèse que la troisième harmonique est résonante, ce qui est le cas du disulfure de carbone aux longueurs d'ondes que l'on considère, nous avons calculé les relations pour l'indice de réfraction du cinquième ordre  $n_4$  ainsi que pour l'absorption à trois photons  $\gamma$  en fonction de la polarisabilité et des hyperpolarisabilités. Nous avons alors déterminé les corrections dues au champ local et nous avons évalué, que dans le cas où la troisième harmonique est résonante, celles-ci étaient négligeables. Nos relations analytiques nous ont permis d'établir que le disulfure de carbone ne présentait pas d'absorption à deux photons aux longueurs d'ondes considérés et qu'il y avait une inversion de signe de  $n_4$  lorsque l'on franchissait un pic du spectre d'absorption. Afin de mettre à l'épreuve ces résultats théoriques, nous avons ensuite mesuré expérimentalement les indices de réfractifs non-linéaires du troisième et du cinquième ordres ainsi que les coefficients de l'absorption à deux et à trois photons du disulfure de carbone. Nous avons pour cela utilisé la méthode de mesure d'open-aperture Z-scan, pour la mesure de l'absorption non-linéaire, et la méthode de mesure D4 $\sigma$  pour la réfraction. Le montage expérimental était inclus dans un système d'imagerie cohérente 4f afin d'optimiser la sensibilité avec un rapport signal-sur-bruit maximum. Les résultats

de nos mesures nous ont permis d'affirmer que le coefficient d'absorption à deux photons à 532 nm et 1064 nm est négligeable. De même en comparant les valeurs de  $n_4$  que nous avons mesurées avec certaines valeurs déjà publiées, on observe un changement de signe de  $n_4$  lorsque l'on franchit un pic du spectre d'absorption. Il est toutefois possible d'améliorer encore la précision des méthodes de mesures. De plus, il serait intéressant de déterminer des expressions pour  $n_4$  et  $\gamma$  avec moins, ou voir pas, d'hypothèses.

Ensuite, nous avons étudié la propagation d'un faisceau picoseconde à  $\lambda = 532$  nm issu d'une source laser Nd :YAG dans une cuve, suffisamment épaisse devant la longueur de Rayleigh, remplie de disulfure de carbone. Nous avons observé un effet de filamentation du faisceau. Puisque nous avons mesuré expérimentalement un indice de réfraction non-linéaire du cinquième ordre positif à cette longueur d'onde, il était impossible d'établir un modèle de saturation de l'effet Kerr. Bien que théoriquement l'ajout des termes de réfraction non-linéaire d'ordres supérieurs puissent faire apparaître une saturation de l'effet Kerr, la mesure expérimentale de ces indices est impossible. Nous avons procédé à la mesure de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre à  $\lambda = 532$  nm et à  $\lambda = 1064$  nm. Nous avons pu mettre en évidence une saturation de l'effet Kerr grâce à la courbe d'évolution de  $n_{2,eff}$  en fonction de l'intensité pour ces deux longueurs. Devant l'impossibilité de décrire cette courbe par un développement en série de l'intensité suivant les ordres cubiques et quintiques de la réfraction non-linéaire, nous avons donc développé notre propre modèle. En nous basant sur l'équation de Schrödinger non-linéaire et en lui ajoutant la fonction utilisée pour ajuster les courbes d'évolution de  $n_{2,eff}$  en fonction de l'intensité, nous avons obtenu un modèle inédit. Nous avons résolu numériquement le modèle, en discrétisant les opérateurs différentiels grâce à la méthode des différences finies et la méthode de Runge-Kutta d'ordre 4, ce qui a permis d'observer la filamentation du faisceau. Nous avons présenté une brève étude expérimentale du contrôle de la filamentation utilisant la phase du faisceau incident. Bien que peu nombreux, les résultats sont encourageant et méritent d'être approfondis.

Enfin, nous avons étudié la dynamique des solitons dissipatifs bi-dimensionnels dans différentes configurations : soliton fondamental, dipôle, quadrupôle, vortex carré, vortex rhombique. Nous avons résolu numériquement l'équation complexe de Ginzburg-Landau cubique-quintique dans sa forme standard en ajoutant une modulation transverse péri-

dique de l'indice de réfraction. Nous avons étudié la mobilité de ces structures en appliquant un vecteur d'onde transverse sur la donnée initiale. Nous avons déterminé, pour chacune des configurations, la norme seuil à franchir pour mettre l'ensemble en mouvement. Nous avons présenté une approximation analytique de la norme seuil basée sur une estimation des conditions pour franchir une barrière de potentiel de Peierls-Nabarro. Nous avons décrit la dynamique de déplacement des solitons ainsi que la création de nouveaux solitons. Nous avons observé la création d'une flèche d'une longueur maximale de 6 solitons à partir de la mise en mouvement du soliton fondamental. Il en va de même pour le dipôle, qui mis en mouvement permet d'obtenir une flèche de 6 dipôles au maximum. Nous avons obtenu un maximum de 18 solitons à partir d'un quadrupôle stable mis en mouvement. Nous avons étudié les différents régimes de collisions entre un soliton libre en mouvement et une flèche de solitons piégés. Nous avons trouvé un régime de collisions quasi-élastiques comme pour le pendule de Newton, ainsi que des régimes d'absorptions du soliton mobile par la structure immobile, parfois après de nombreuses collisions élastiques. Nous avons déterminé un troisième régime de collision dans le cas de la collision d'un dipôle en mouvement avec une flèche de dipôles immobiles : le régime de "suppression de l'obstacle". Celui-ci correspond à l'absorption du dipôle immobile par le dipôle en mouvement. Il a même été possible d'observer la scission du dipôle en deux solitons mobiles se déplaçant à deux vitesses différentes. Les solitons mobiles ainsi formés ont une vitesse qui tend vers deux valeurs discrètes, ce qui indique la coexistence de deux attracteurs dans le système dissipatif. Nous avons étudié la stabilité du vortex rhombique en fonction du vecteur d'onde transverse. Ainsi la vorticit  de cette structure se maintient pour de tr s faibles valeurs de la norme mais au del , elle se perd et on ne conserve que quatre solitons isol s. La mise en mouvement du vortex rhombique conduit   l' mergence de nombreux solitons dans une disposition chaotique. La derni re structure que nous avons  tudi e est le vortex carr , instable. Ce dernier perd la vorticit  apr s une propagation sur une tr s longue distance, sans l'action du vecteur d'onde transverse, et devient alors un quadrup le. Sous l'action d'un vecteur d'onde avec une norme  lev e, on observe la s paration de la structure en un complexe form  de trois solitons stables accompagn s d'un dip le mobile. Au del , on voit la disparition du vortex au profit de la formation d'une grappe de 4 solitons mobiles. Pour une valeur mod r e de la norme, on voit appara tre une fl che horizontale



de solitons qui part du soliton située en bas à droite du vortex. En changeant la direction du vecteur d'onde transverse, il est possible de modifier la position et la direction de la flèche de solitons. Il est ainsi possible de contrôler l'émergence de la flèche de soliton à partir du vortex. Il serait intéressant d'étudier la dynamique d'autres structures comme par exemple les tripôles, les paires de solitons obliques, les supers vortex. De même, la modification de la forme de la modulation transverse de l'indice de réfraction pourrait conduire à une autre dynamique qu'il serait intéressant de considérer. Par exemple, quel peut-être la dynamique de mobilité d'un soliton fondamentale dans un réseau circulaire ? Nous avons déjà observé des comportements de quasi-particules, pourrions nous observer alors une vitesse d'extraction du soliton de ce type de réseau ? Pour terminer, il serait très intéressant de reproduire expérimentalement ce schéma numérique.

# Annexe A

## Solution $z(I)$ de l'équation (2.30)

Valeurs de chacun des coefficients	Solution de l'équation (2.30)
$\alpha, \beta, \gamma \neq 0$ et $\beta^2 > 4\alpha\gamma$	$L = - \left[ \frac{\ln\left(\frac{I_L}{I_0}\right)}{\gamma X_+ X_- I} + \frac{\ln\left(\frac{I_L - X_-}{I_0 - X_-}\right)}{\gamma X_- (X_- - X_+)} - \frac{\ln\left(\frac{I_L - X_+}{I_0 - X_+}\right)}{\gamma X_+ (X_- - X_+)} \right]$
$\alpha, \beta, \gamma \neq 0$ et $\beta^2 < 4\alpha\gamma$	$L = \frac{1}{\alpha} \left\{ \frac{\beta}{\sqrt{4\alpha\gamma - \beta^2}} \left[ \arctan\left(\frac{2\gamma I_L + \beta}{\sqrt{4\alpha\gamma - \beta^2}}\right) - \arctan\left(\frac{2\gamma I_0 + \beta}{\sqrt{4\alpha\gamma - \beta^2}}\right) \right] + \frac{1}{2} \ln \left[ \frac{I_0^2(\alpha + \beta I_L + \gamma I_L^2)}{I_L^2(\alpha + \beta I_0 + \gamma I_0^2)} \right] \right\}$
$\gamma = 0$ et $\alpha, \beta \neq 0$	$L = \frac{1}{\alpha} \ln \left[ \frac{I_0(\beta I_L + \alpha)}{I_L(\beta I_0 + \alpha)} \right]$
$\beta = 0, \alpha, \gamma \neq 0$	$L = \frac{1}{2\alpha} \ln \left[ \frac{I_0^2(\gamma I_L^2 + \alpha)}{I_L^2(\gamma I_0^2 + \alpha)} \right]$
$\alpha = 0, \beta, \gamma \neq 0$	$L = - \left\{ \frac{\gamma}{\beta^2} \ln \left[ \frac{I_0(\gamma I_L + \beta)}{I_L(\gamma I_0 + \beta)} \right] - \frac{I_0 - I_L}{\beta I_L I_0} \right\}$
$\alpha, \gamma = 0$ et $\beta \neq 0$	$L = \frac{I_0 - I_L}{\beta I_L I_0}$
$\alpha, \beta = 0$ et $\gamma \neq 0,$	$L = \frac{I_0^2 - I_L^2}{2\gamma I_0^2 I_L^2}$

TABLE A.1 – Solution de l'équation (2.30) en fonction de la présence ou non du coefficient de l'absorption linéaire, du coefficient de l'absorption à deux photons et du coefficient de l'absorption à trois photons. On notera que  $X_{\pm} = \left( \pm \sqrt{\beta^2 - 4\alpha\gamma} - \beta \right) / 2\gamma$  et  $\beta^2 > 4\alpha\gamma$ .



# Annexe B

## Solution $\Delta\varphi(I)$ de l'équation (2.31)

Valeurs de chacun des coefficients	Solution de l'équation (2.31)
$\alpha, \beta, \gamma \neq 0$ et $\beta^2 > 4\alpha\gamma$	$\Delta\varphi = \frac{k}{\gamma(X_+ - X_-)} \left[ (n_2 + n_4 X_-) \ln \left( \frac{I_L - X_-}{I_0 - X_-} \right) - (n_2 + n_4 X_+) \ln \left( \frac{I_L - X_+}{I_0 - X_+} \right) \right]$
$\alpha, \beta, \gamma \neq 0$ et $\beta^2 < 4\alpha\gamma$	$\Delta\varphi = \frac{k}{\gamma} \left\{ \frac{\beta n_4 - 2\gamma n_2}{\sqrt{4\alpha\gamma - \beta^2}} \left[ \arctan \left( \frac{2\gamma I_L + \beta}{\sqrt{4\alpha\gamma - \beta^2}} \right) - \arctan \left( \frac{2\gamma I_0 + \beta}{\sqrt{4\alpha\gamma - \beta^2}} \right) \right] + \frac{n_4}{2} \ln \left( \frac{\alpha + \beta I_L + \gamma I_L^2}{\alpha + \beta I_0 + \gamma I_0^2} \right) \right\}$
$\gamma = 0$ et $\alpha, \beta \neq 0$	$\Delta\varphi = -k \left[ \left( \frac{n_2}{\beta} - \frac{\alpha n_4}{\beta^2} \right) \ln \left( \frac{\beta I_L + \alpha}{\beta I_0 + \alpha} \right) + \frac{n_4}{\beta} (I_L - I_0) \right]$
$\beta = 0, \alpha, \gamma \neq 0$	$\Delta\varphi = -k \left\{ \frac{n_2}{\sqrt{\alpha\gamma}} \left[ \arctan \left( \sqrt{\frac{\gamma}{\alpha}} I_L \right) - \arctan \left( \sqrt{\frac{\gamma}{\alpha}} I_0 \right) \right] + \frac{n_4}{2\gamma} \ln \left( \frac{\gamma I_L^2 + \alpha}{\gamma I_0^2 + \alpha} \right) \right\}$
$\alpha = 0, \beta, \gamma \neq 0$	$\Delta\varphi = \frac{kn_2}{\beta} \ln \left( \frac{I_L}{I_0} \right) - \frac{\gamma n_2 - \beta n_4}{\gamma\beta} \ln \left( \frac{\gamma I_L + \beta}{\gamma I_0 + \beta} \right)$
$\alpha, \gamma = 0$ et $\beta \neq 0$	$\Delta\varphi = -\frac{k}{\beta} \left[ n_2 \ln \left( \frac{I_L}{I_0} \right) + n_4 (I_L - I_0) \right]$
$\alpha, \beta = 0$ et $\gamma \neq 0,$	$\Delta\varphi = -\frac{k}{\gamma} \left[ n_2 \frac{I_L - I_0}{I_L I_0} + n_4 \ln \left( \frac{I_L}{I_0} \right) \right]$

TABLE B.1 – Solution de l'équation (2.31) en fonction de la présence ou non du coefficient de l'absorption linéaire, du coefficient de l'absorption à deux photons et du coefficient de l'absorption à trois photons. On notera que  $X_{\pm} = (\pm\sqrt{\beta^2 - 4\alpha\gamma} - \beta) / 2\gamma$  et  $\beta^2 > 4\alpha\gamma$ .



## Annexe C

# Mesures des non-linéarités cubiques et quintique du disulfure de carbone

Nous répertorions ici différentes valeurs des mesures des indices de réfraction non-linéaire et/ou des indices de l'absorption non-linéaire dans le disulfure de carbone publiés. Nous avons classer les différentes valeurs suivant l'ordre chronologique des publications. Elles sont répertoriées dans les tableaux (C.1 et C.2).

Méthode	Année	Paramètres expérimentaux			Coefficients non-linéaires				Référence
		$\lambda$ (nm)	$\tau$ (ps)	$I_0$ (GW/cm <sup>2</sup> )	$n_2$ (m <sup>2</sup> /W)	$n_4$ (m <sup>4</sup> /W <sup>2</sup> )	$\beta$ (m/W)	$\gamma$ (m <sup>3</sup> /W <sup>2</sup> )	
Optical Kerr Gate	1979	1064	9-10	2	$51.5 \times 10^{-19}$				[126]
Degenerate Four-Wave Mixing	1988	632.8	0.4	N.C.	$4 \times 10^{-19}$				[127]
Z-scan	1990	10600 1064 532	27	2.6	$(4.2 \pm 1.6) \times 10^{-18}$ $(3.4 \pm 0.8) \times 10^{-18}$ $(3.1 \pm 0.5) \times 10^{-18}$				[23]
Time resolved interferometry	1991	630	0.1	200 $\mu$ J	$7.7 \times 10^{-19}$				[128]
Optical Kerr Gate	1993	620	0.06	N.C.	$7.7 \times 10^{-19}$				[129]
Ultrafast Beam-Deflection	1993	616	0.075	53	$4.89 \times 10^{-19}$		Négligeable		[130]
Degenerate Four-Wave Mixing	1996	497	0.5	N.C.	$(0.51 \pm 0.13) \times 10^{-19}$				[131]
Z-scan	1999	775	0.1	7.5	$1.2 \times 10^{-18}$				[132]
Z-scan	1999	770	0.13	12.5	$2.3 \times 10^{-19}$		$(4.5 \pm 1.0) \times 10^{-19}$		[133]

TABLE C.1 – Référencement bibliographique de résultats de mesures des non-linéarités cubiques et quintiques du disulfure de carbone (N.M. : Non-Mesuré, N.C. : Non-Communiqué). Page 1/2

Z-scan	2000	1064	45	0.16 – 4.4	$2.8 \times 10^{-18}$				[134]
Mach-Zehnder Interférométrie	2001	1064	17	0.1 – 1	$(3.2 \pm 0.3) \times 10^{-18}$		0		[135]
Z-scan	2001	1064	17	1.3	$3.0 \times 10^{-18}$		0		[135]
Z-scan	2003	800	0.11	1.9 – 4.2	$(3.0 \pm 1.0) \times 10^{-19}$				[136]
Spectral Shear Interferometry	2003	800	0.11	8.5 – 33	$(2.5 \pm 0.3) \times 10^{-19}$				[136]
Z-scan	2004	1054 795	0.475 0.11	N.C. N.C			$5 \times 10^{-13}$	$2.8 \times 10^{-29}$	[138]
Z-scan	2006	1054 795 795	0.475 0.11 75000	100 – 7000 6 N.C	$(3.5 \pm 0.7) \times 10^{-19}$ $(3 \pm 0.6) \times 10^{-19}$ $(3.5 \pm 0.7) \times 10^{-18}$		$(5 \pm 1.5) \times 10^{-13}$	$(2.8 \pm 0.8) \times 10^{-29}$	[139]
Single-shot	2006	1064	16	120 $\mu$ J	$3.8 \times 10^{-19}$				[140]
Z-scan	2009	1064 532	17 12	5.5 23	$(8 \pm 1.7) \times 10^{-19}$ $(4 \pm 0.6) \times 10^{-19}$		$< 17 \times 10^{-13}$ $< 0.7 \times 10^{-13}$		[37]
Z-scan	2009	800	120	135	$2.1 \times 10^{-19}$	$-2 \times 10^{-35}$		$1.4 \times 10^{-27}$	[141]
Z-scan	2011	800	0.12	55	$2.9 \times 10^{-19}$				[142]
Accord entre l'expérience et la résolution numérique	2013	920	0.1	50 – 380	$3.1 \times 10^{-19}$	$-5.2 \times 10^{-35}$		$5.8 \times 10^{-29}$	[11]

TABLE C.2 – Référencement bibliographique de résultats de mesures des non-linéarités cubiques et quintiques du disulfure de carbone (N.M. : Non-Mesuré, N.C. : Non-Communiqué). Page 2/2





# Annexe D

## Publications personnelles

### D.1 Articles dans des journaux à comité de lecture

Ne sont répertoriés ici que les articles publiés ou acceptés pour publication.

#### 2012

- Valentin BESSE, Christophe CASSAGNE et Georges BOUDEBS : "Spatially resolved phase objects using Mach-Zehnder interferometry", *Journal of Modern Optics* 59, 10, 887-892 (2012) [225].

#### 2013

- Valentin BESSE, Hervé LEBLOND, Dumitru MIHALACHE et Boris A. MALOMED : "Pattern formation by kicked solitons in the two-dimensional Ginzburg-Landau medium with a transverse grating", *Physical Review E*, 87, 1, 012916 (2013) [226].
- Georges BOUDEBS, Valentin BESSE, Christophe CASSAGNE, Hervé LEBLOND et Cid B. DE ARAÚJO : "Nonlinear characterization of materials using the  $D4\sigma$  method inside a Z-scan 4f-system", *Optics Letters*, 38, 13, 2206-2208 (2013) [122].

#### 2014

- Valentin BESSE, Georges BOUDEBS et Hervé LEBLOND : "Determination of the third-and fifth-order optical nonlinearities : the general case", *Applied Physics B*, 116, 4, 911-917 (2014) [143].

- Melinda OLIVIER, Joël Cabrel TCHAHAME, Petr NEMEC, Mathieu CHAUVET, Valentin BESSE, Christophe CASSAGNE, Georges BOUDEBS, Gilles RENVERSEZ, Remi BOIDIN, Emeline BAUDET et Virginie NAZABAL : "Structure, nonlinear properties, and photosensitivity of  $(\text{GeSe}_2)_{100-x}(\text{Sb}_2\text{Se}_3)_x$  glasses", *Optical Materials Express*, 4, 3, 525-540 (2014) [121].
- Valentin BESSE, Hervé LEBLOND et Georges BOUDEBS : "Filamentation of light in carbon disulfide", *Physical Review A*, 89, 4, 043840 (2014) [151].
- Valentin BESSE, Hervé LEBLOND, Dumitru MIHALACHE et Boris A. MALOMED : "Building patterns by traveling dipôles and vortices in two-dimensional periodic dissipative media", *Optics Communications*, 332, 279-291 (2014) [227].
- Valentin BESSE, Alexandre FORTIN, Georges BOUDEBS, Paula S. VALLE, Marcelo NALIN et Cid B. DE ARAÛJO : "Picosecond nonlinearity of  $\text{GeO}_2 - \text{Bi}_2\text{O}_3 - \text{PbO} - \text{TiO}_2$  glasses at 532 and 1,064 nm", *Applied Physics B*, 117, pp. 891-895 (2014) [115].
- : Danilo MANZANI, Valin BESSE, Mariana NAPOLI, Georges BOUDEBS, Sidney J.L. RIBEIRO et Cid B. DE ARAÛJO : "Third-order nonlinearities and other properties of molybdenum lead-pyrophosphate glass", *Optical Materials*, In press [120].

## D.2 Conférences internationales

L'orateur est distingué des autres auteurs par une mise en gras du nom et du prénom.

### 2012

- **Valentin BESSE**, Christophe CASSAGNE, Georges BOUDEBS et Hervé LEBLOND : "Study of the evolution of different dissipative solitons and phase measurement by Mach-Zehnder interferometry", *Transparent Optical Networks (ICTON)*, 2012 14th International Conference on, 1-4 (2012) [228].

### 2013

- **Georges BOUDEBS**, Valentin BESSE, Christophe CASSAGNE, Hervé LEBLOND et François SANCHEZ : "Why optical nonlinear characterization using imaging technique is a better choice?", Transparent Optical Networks (ICTON), 2013 15th International Conference on, 1-4 (2013) [155].
- **Georges BOUDEBS**, Valentin BESSE, Christophe CASSAGNE, Hervé LEBLOND et Cid B. DE ARAÚJO : "D4 $\sigma$  nonlinear measurement inside a 4f-Z-scan system", Nonlinear Optics, NTu1B.5 (2013) [154].

**2014**

- **Valentin BESSE**, Christophe CASSAGNE, Hervé LEBLOND et Georges BOUDEBS : "Third-and fifth-order optical nonlinearities characterization using the D4 $\sigma$ -Z-scan method", Transparent Optical Networks (ICTON), 2014 16th International Conference on, 1-4 (2014) [156].
- **Georges BOUDEBS**, Valentin BESSE et Hervé LEBLOND : "Saturation of the Kerr effect in carbon disulfide", Nonlinear Photonics, NTh1A. 1 (2014) [229].



# Table des figures

1.1	Profil de propagation du faisceau Gaussien. . . . .	8
1.2	Coupe transversale du faisceau Gaussien. . . . .	9
1.3	Illustration de la courbure du front d'onde induite par effet Kerr lors de la propagation d'une onde d'intensité $I(x, y)$ et de largeur $2w_0$ au travers d'un milieu d'épaisseur $L$ . Le point F correspond au point où l'onde se focalise (centre du front d'onde). . . . .	18
2.1	Montage expérimental original pour ma méthode du Z-scan. BS désigne la lame séparatrice, $L_1$ correspond à la lentille convergente, $P_1$ et $P_2$ indiquent les photodétecteurs, MNL représente le milieu non-linéaire et A désigne l'ouverture finie.. . . .	28
2.2	Courbe de transmission mesurée par la méthode Z-scan pour un milieu présentant une indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre $n_2$ positif. 29	29
2.3	Courbes de transmission obtenue par la méthode Z-scan en présence d'absorption à deux photons. La courbe en trait plein correspond à la mesure de closed-aperture Z-scan et la courbe en pointillée représente la mesure par open-aperture Z-scan. La courbe en tiret est la division de la courbe en trait plein par celle en pointillé. . . . .	34
2.4	Schéma du système imageur 4f. $L_1$ et $L_2$ correspondent aux lentilles de distance focale $f_1$ et $f_2$ . MNL désigne le milieu non-linéaire placé à $z = 0$ . $O(x, y)$ est un objet situé dans le plan focal objet de la lentille $L_1$ et $U(x, y)$ est l'amplitude du champ dans le plan focal image de $L_2$ . . . . .	35

2.5	Courbe de variation relative du rayon du faisceau (BWRV) en fonction de la position $z$ de l'échantillon avec les paramètres $\varphi_{NLO}^{eff} = 0.8$ et $q_0 = 0.58$ . $\Delta w_{pv}$ correspond à la variation entre le maximum (pic) et le minimum (vallée) de la courbe. . . . .	39
2.6	Courbe de $\Delta w_{pv}$ obtenue numériquement en fonction du déphasage effectif à la focale $\varphi_{NLO}^{eff}$ pour $q_0 = 0.58$ . . . . .	40
2.7	Schéma du système 4f utilisé pour les mesures Z-scan et D4 $\sigma$ . L'échantillon est scanné suivant l'axe des $z$ autour du plan focal de la lentille $L_1$ . $L_2$ désigne une lentille, $BS_1$ et $BS_2$ désignent les lames séparatrices, $M_1$ et $M_2$ désignent les miroirs. . . . .	43
2.8	Courbes expérimentales obtenues pour la caractérisation du $As_2Se_3$ à 1064 nm. La courbe de carrés noirs correspond à la variation relative du rayon du faisceau (méthode D4 $\sigma$ ). La courbe en étoiles vertes correspond à la transmission normalisée obtenue par la méthode de closed-aperture Z-scan. L'encadré en haut à droite montre la courbe de transmission normalisée obtenue par la méthode d'open-aperture Z-scan. . . . .	47
3.1	Spectre d'absorption, de l'éthanol pur (ligne rouge continue), de 50 $\mu$ l de $CS_2$ dans 2 ml d'éthanol (ligne verte en tirets) et de 5 $\mu$ l de $CS_2$ dans 2 ml d'éthanol (ligne bleue en pointillées). Les liquides sont contenus dans une cuve de 1 cm. Le graphique provient de l'article de E.L. FALCÃO-FILHO [11].	50
3.2	Les 6 premières lignes du triangle de PASCAL. On a illustré l'algorithme pour calculer les coefficients. En vert, rouge ou bleu correspondent les coefficients dans le triangle de Pascal et leur écriture mathématique. L'illustration a été publiée par Drini sur Wikimedia.org avec la licence Copyleft à l'adresse : <a href="http://commons.wikimedia.org/wiki/File:PascalSimetria.svg">http://commons.wikimedia.org/wiki/File:PascalSimetria.svg</a> . .	58
3.3	Illustration de la méthode développée par LORENTZ pour calculer le champ local [152]. La figure provient du livre de BOYD : "Nonlinear Optics" [98]. .	67
3.4	Courbe d'évolution de $Na(\omega)$ en fonction $n_0$ suivant la relation (3.125). . .	83

- 3.5 Schéma de montage Z-scan utilisé pour faire les mesures des non-linéarités du troisième et du cinquième ordre de la cuve remplie de CS<sub>2</sub>. Il est composé de : BS<sub>1</sub> et BS<sub>2</sub>, deux séparatrices ; M<sub>1</sub> et M<sub>2</sub>, deux miroirs ; L<sub>1</sub> jusqu'à L<sub>3</sub>, trois lentilles avec des distances focales de l<sub>1</sub> à l<sub>3</sub> ; et une caméra CCD pour caractériser le signal en sortie. L'application de filtre numérique permet de passer d'une méthode de mesure à l'autre : open-aperture Z-scan (OA), closed-aperture Z-scan (CA) ou D4σ-Z-scan (D4σ). . . . . 85
- 3.6 Schéma explicatif de l'impulsion laser. L'amplitude est donnée en unité de l'amplitude moyenne. La distance de propagation est donnée en unité de largeur de l'enveloppe, c'est-à-dire le produit de la largeur temporelle et de la vitesse de la lumière. L'enveloppe de notre impulsion a une durée temporelle de  $\tau = 12$  ps, soit une largeur de  $c\tau = 3.6$  mm ( $c$  est la célérité de la lumière). Elle est représentée par la ligne pointillée horizontale avec des flèches aux extrémités. En comparaison, la longueur d'onde de la modulation est de  $\lambda = 532$  nm, l'impulsion contient environ 6760 modulations. La distance d'une longueur d'onde est représentée par la ligne avec deux flèches aux extrémités dans l'encadrée en haut à droite. Il est évident que ce schéma n'est pas à l'échelle . . . . . 90
- 3.7 Mesure par Open-aperture Z-scan de la transmission normalisée (cercle vide) d'une cellule d'épaisseur de 1 mm remplie avec du CS<sub>2</sub> à  $\lambda = 532$  nm avec une intensité à l'entrée de la cuve de  $I_0 = 25$  GW/cm<sup>2</sup>. La ligne rouge est l'ajustement de courbe suivant la fonction ne considérant que l'absorption à trois photons (3.131),  $\gamma = (9.3 \pm 1.9) \times 10^{-26}$  m<sup>3</sup>/W<sup>2</sup>. La ligne en pointillée bleue est l'ajustement de courbe suivant la fonction ne considérant que l'absorption à deux photons (3.130),  $\beta = (8.5 \pm 0.9) \times 10^{-12}$  m/W. 93



- 3.8 Mesure par open-aperture Z-scan de la transmission normalisée (cercle vide) d'une cellule d'épaisseur de 1 mm remplie avec du CS<sub>2</sub> à  $\lambda = 1064$  nm avec une intensité à l'entrée de la cuve de  $I_0 = 65 \text{ GW/cm}^2$ . La ligne rouge est l'ajustement de courbe suivant la fonction ne considérant que l'absorption à trois photons (3.131),  $\gamma = (4.6 \pm 0.9) \times 10^{-27} \text{ m}^3/\text{W}^2$ . La ligne en pointillée bleue est l'ajustement de courbe suivant la fonction ne considérant que l'absorption à deux photons (3.130),  $\beta = (1.7 \pm 0.2) \times 10^{-12} \text{ m/W}$ . 95
- 3.9 Variation relative du rayon du faisceau (cercles) en fonction de la position  $z$  de la cuve de 1 mm d'épaisseur remplie de CS<sub>2</sub> mesurée à  $\lambda = 532$  nm avec  $I_0 = 1.6 \text{ GW/cm}^2$ . La courbe rouge correspond à l'ajustement de la courbe avec la fonction (3.138) avec les paramètres  $\beta < 0.2 \text{ cm/GW}$  et  $n_2 = (1.5 \pm 0.3) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$  . . . . . 102
- 3.10 Variation relative du rayon du faisceau (cercles) en fonction de la position  $z$  de la cuve de 1 mm d'épaisseur remplie de CS<sub>2</sub> mesurée à  $\lambda = 532$  nm avec  $I_0 = 25 \text{ GW/cm}^2$ . La courbe de pointillées bleues correspond à l'ajustement de courbe en considérant seulement les effets liés à  $\chi^{(3)}$  (fonction (3.138)) avec les paramètres  $\beta = (8.5 \pm 0.9) \times 10^{-12} \text{ m/W}$  et  $n_2 = (2.7 \pm 0.3) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$ . La courbe rouge correspond à l'ajustement de courbe en utilisant la fonction (3.137) avec les paramètres  $\gamma = (9.3 \pm 1.9) \times 10^{-26} \text{ m}^3/\text{W}^2$ ,  $n_2 = (1.5 \pm 0.3) \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$  et  $n_4 = (1.2 \pm 0.3) \times 10^{-32} \text{ m}^4/\text{W}^2$  . . . . . 103
- 3.11 Variation relative du rayon du faisceau (cercles) en fonction de la position  $z$  de la cuve de 1 mm d'épaisseur remplie de CS<sub>2</sub> mesurée à  $\lambda = 1064$  nm avec  $I_0 = 4.5 \text{ GW/cm}^2$ . La courbe rouge correspond à l'ajustement de courbe en utilisant la fonction (3.138) avec les paramètres  $\beta < 0.05 \text{ cm/GW}$  et  $n_2 = (4.5 \pm 1.3) \times 10^{-19} \text{ m}^2/\text{W}$  . . . . . 104

3.12 Variation relative du rayon du faisceau (cercles) en fonction de la position  $z$  de la cuve de 1 mm d'épaisseur remplie de CS<sub>2</sub> mesurée à  $\lambda = 1064$  nm avec  $I_0 = 65$  GW/cm<sup>2</sup>. La courbe en pointillée bleue correspond à l'ajustement de courbe en considérant seulement les effets liés à  $\chi^{(3)}$  (fonction (3.138)) avec les paramètres  $\beta = (1.7 \pm 0.2) \times 10^{-12}$  m/W et  $n_2 = (1.4 \pm 0.2) \times 10^{-18}$  m<sup>2</sup>/W. La courbe rouge correspond à l'ajustement de courbe en utilisant la fonction (3.137) avec les paramètres  $\gamma = (4.6 \pm 1.9) \times 10^{-27}$  m<sup>3</sup>/W<sup>2</sup>,  $n_2 = (4.5 \pm 1.3) \times 10^{-19}$  m<sup>2</sup>/W et  $n_4 = (2.2 \pm 0.4) \times 10^{-33}$  m<sup>4</sup>/W<sup>2</sup> . . . . . 105

4.1 Schéma du montage expérimental utilisé pour produire la filamentation et l'observer en sortie de la cuve de CS<sub>2</sub> d'épaisseur L. L<sub>1</sub> et L<sub>2</sub> sont des lentilles. La focale de la lentille L<sub>1</sub> est  $f_1$ .  $i$  indique la distance de l'image et  $o$  la distance de l'objet. La boîte en pointillé correspond au système imageur qui peut se déplacer suivant l'axe  $z$  afin de former l'image de la sortie de cuve sur la caméra avec un grossissement de  $\times 10$ . . . . . 113

4.2 Image de la sortie de cuve sur la caméra CCD. L'énergie relevée au joulemètre est de 44 GW/cm<sup>2</sup>. . . . . 114

4.3 Image de la sortie de cuve sur la caméra CCD. On peut observer la filamentation multiple du faisceau laser. L'énergie relevée au joulemètre est de 85 GW/cm<sup>2</sup>. . . . . 115

4.4 Image de la sortie de cuve sur la caméra CCD. On peut observer la filamentation multiple du faisceau laser. L'énergie relevée au joulemètre est de 440 GW/cm<sup>2</sup>. . . . . 116

4.5 Schéma de montage expérimental utilisé pour faire les mesures de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre de la cuve remplie de disulfure de carbone. Il est composé de : BS<sub>1</sub> et BS<sub>2</sub>, deux séparatrices ; M<sub>1</sub> et M<sub>2</sub>, deux miroirs ; L<sub>1</sub> jusqu'à L<sub>3</sub>, trois lentilles avec des distances focales de  $f_1$  à  $f_3$  ; et une caméra CCD refroidie pour l'acquisition des images. Le filtre numérique permet de passer d'une méthode mesure à l'autre : Open-perture Z-scan (OA), Closed-aperture Z-scan (CA) ou D4 $\sigma$ -Z-scan (D4 $\sigma$ ). . 118

4.6 Mesure de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre ( $n_{2,eff}$ ) en fonction de l'intensité incidente  $I_0$  à  $\lambda = 532$  nm. Les barres verticales correspondent aux incertitudes sur la mesure. . . . . 124

4.7 Mesure de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre ( $n_{2,eff}$ ) en fonction de l'intensité incidente  $I_0$  à  $\lambda = 1064$  nm. Les barres verticales correspondent aux incertitudes sur la mesure. . . . . 126

4.8 La courbe bleue représente  $n_{2,eff}$  ( $m^2/W$ ) en fonction de l'intensité incidente  $I_0$  ( $W/m^2$ ) à  $\lambda = 532$  nm ajustée à l'aide de l'Ansatz (4.13) avec les données dans le tableau 4.3. Les barres verticales représentent les valeurs de  $n_{2,eff}$  mesurées, avec les incertitudes de mesures. Les courbes en pointillées correspondent à un ajustement des incertitudes de  $n_{2,eff}$ . . . . . 129

4.9 La courbe bleue représente  $n_{2,eff}$  ( $m^2/W$ ) en fonction de l'intensité incidente  $I_0$  ( $W/m^2$ ) à  $\lambda = 1064$  nm ajustée à l'aide de l'Ansatz (4.13) avec les données dans le tableau 4.3. Les barres verticales représentent les valeurs de  $n_{2,eff}$  mesurées, avec les incertitudes de mesures. Les courbes en pointillées correspondent à un ajustement des incertitudes de  $n_{2,eff}$ . . . . . 129

4.10 Tableau de variation et de signe de la fonction  $f(x)$  . . . . . 134

4.11 Représentation du maillage carré  $(X_i, Y_j)$  du domaine transverse  $(X, Y)$ .  $h_X$  et  $h_Y$  sont les pas spatiaux et  $u_{3,4}$  est la valeur du champ  $u(X, Y)$  aux coordonnées  $X_3$  et  $Y_4$ . . . . . 137

4.12 Représentation du changement de taille du maillage. Le carré central représente la taille initiale du domaine tandis que le carré extérieur représente la nouvelle taille du domaine après l'augmentation de 40%. Les bandes en bleu correspondent aux bandes d'une largeur égale à 16% de la taille du nouveau domaine. . . . . 139

4.13 Absorption linéaire  $\alpha$  en  $m^{-1}$ . La taille du domaine est augmentée de 40%. 139

4.14 Profil de l'absorption linéaire  $\alpha$  en  $m^{-1}$  suivant la dimension  $x$  en (mm).  
Le profil est établi au milieu de la dimension  $y$ . . . . . 140

4.15 Donnée initiale utilisée pour la résolution numérique. . . . . 144

4.16 Donnée initiale utilisée pour la résolution numérique, après recentrage. La taille du domaine est fixée à  $6w_0$ . . . . . 145

4.17 Saturation de l'effet Kerr  $n_{2,eff} \times I_0 = (kaI_0^2) / (1 + b^2I_0^2)$  en fonction de l'intensité incidente pic  $I_0$  en  $\text{GW}/\text{cm}^2$ . . . . . 146

4.18 Profil de l'intensité après une propagation de 10 mm (épaisseur de la cuve) obtenue grâce à la résolution numérique de l'équation (4.53) pour une intensité pic à l'entrée du milieu non-linéaire de  $I_0 = 5.53 \text{ GW}/\text{cm}^2$ . . . . . 147

4.19 Profil de l'intensité après une propagation de 10 mm (épaisseur de la cuve) obtenu grâce à la résolution numérique de l'équation (4.53) pour une intensité pic à l'entrée du milieu non-linéaire de  $I_0 = 139 \text{ GW}/\text{cm}^2$ . . . . . 147

4.20 Schéma du montage expérimental utilisé pour étudier l'influence de la phase du faisceau sur la filamentation dans la cuve de  $\text{CS}_2$  d'épaisseur  $L$ .  $L_1$  et  $L_2$  sont des lentilles convergentes. La focale de la lentille  $L_1$  est  $f_1$ .  $o$  est la distance entre le plan objet et la lentille  $L_2$ ,  $i$  la distance entre la lentille  $L_2$  et l'image formée sur la caméra. La boîte en pointillé correspond au système imageur qui peut se déplacer suivant l'axe  $z$  afin de former l'image du plan objet sur la caméra avec un grossissement de 10. SLM désigne au modulateur spatial de lumière. Il permet de modifier la phase du faisceau laser. . . . . 149

4.21 Amplitude du champ dans le plan objet de la lentille  $L_1$ . . . . . 153

4.22 Phase du champ dans le plan objet de la lentille  $L_1$ . La phase est donnée en part de  $\pi$ . . . . . 153

4.23 Profil numérique de l'intensité à l'entrée du milieu non-linéaire. . . . . 154

4.24 Profil de l'intensité à la sortie du milieu non-linéaire obtenue par résolution numérique de la propagation du faisceau. . . . . 154

4.25 Profil de l'intensité à la sortie du milieu non-linéaire. Le faisceau à l'entrée du milieu non-linéaire a une phase nulle. . . . . 155

4.26 Profil de l'intensité à la sortie du milieu non-linéaire. Le faisceau à l'entrée du milieu non-linéaire a une phase de type vortex. . . . . 156

5.1 Illustration de la formation du soliton spatial suivant le rapport entre la diffraction spatiale et l'effet Kerr. . . . . 162

5.2 Potentiel périodique  $V(x, y)$ . . . . . 166

5.3 Courbe de niveau de l'amplitude du soliton fondamental stable  $|u(X, Y)|$ . . . 172

5.4 Coupe transversale de l'amplitude du soliton stable  $|u(X)|$  à  $Y = 0$ . . . . . 172

5.5 Évolution de l'amplitude locale  $|u(X, Z)|$  de la section transverse  $Y = 0$  du soliton fondamental, soumis à un vecteur d'onde transverse de norme  $k_0 = 1.61$  et avec  $\theta = 0$ . . . . . 173

5.6 Évolution de la puissance totale d'un soliton incliné avec un vecteur d'onde de norme,  $k_0 = 1.61$  et avec  $\theta = 0$ . . . . . 173

5.7 Évolution de l'amplitude du champ local  $|u(X, Y)|$  correspondant au soliton incliné, obtenu pour  $k_0 = 1.6878$  et  $\theta = 0$ . La distribution du champ est montrée pour différentes distances de propagation  $Z$ . . . . . 174

5.8 Identique à la figure 5.7, mais pour  $k_0 = 1.6872$  et  $\theta = 0$ . . . . . 175

5.9 Évolution de la puissance totale pour la situation correspondant à la figure 5.7, avec  $k_0 = 1.6878$  et  $\theta = 0$ . Les lignes horizontales montrent la puissance qui correspondent à 1, 2, 3 ou 4 solitons fondamentaux au repos. . . . . 176

5.10 Identique aux figures 5.7 et 5.8, mais pour  $k_0 = 1.694$ . Ici, le soliton incliné crée une flèche de cinq solitons (l'image (f) montre le soliton libre supplémentaire, le sixième, qui frappe la flèche dans la direction opposée, finissant son tour du domaine). . . . . 177

5.11 Évolution de l'amplitude locale  $|u(X, Z)|$  dans dans le plan transverse  $Y = 0$ , dans la même situation que celle de la figure 5.10 ( $k_0 = 1.694$  et  $\theta = 0$ ). 178

5.12 Le nombre de solitons en fonction de la norme  $k_0$  du vecteur d'onde transverse pur  $\theta = 0$ . Dans les espaces étroits visibles entre les intervalles sur le graphiques, le nombre de soliton ne peut pas être définie exactement, puisque les saut de valeur pour le nombre de soliton est au minimum de 1. 179

5.13 Identique à la figure 5.10, mais pour  $k_0 = 1.705$ . Ici, le soliton libre se sépare de la flèche et vient la percuter par l'autre côté. La flèche absorbe le soliton libre. . . . . 179

5.14 Évolution de l'amplitude locale  $|u(X, Z)|$ , dans le plan transverse  $Y = 0$ , dans la même situation que pour la figure 5.13. . . . . 180

5.15 Coupe transversale de l'amplitude du champ  $|u(X, Z)|$ , suivant  $Y = 0$ , pour  $k_0 = 1.693$  et  $\theta = 0$ . On obtient une configuration à six solitons. . . . 181

5.16 Évolution de la puissance totale, pour  $k_0 = 1.693$  et  $\theta = 0$ , qui conduit à la création d'une configuration à six solitons. . . . . 181

5.17 Coupe transversale de l'amplitude  $|u(X, Z)|$  du champ, suivant  $Y = 0$ , pour  $k_0 = 2.1$  et  $\theta = 0$ . . . . . 182

5.18 Évolution de la vitesse du soliton fondamental incliné pour  $k_0 = 2.1$  et  $\theta = 0$ . 182

5.19 Distribution de l'amplitude  $|u(X, Y)|$  du champ dans le cas d'un soliton fondamental initial incliné suivant la diagonale ( $\theta = \pi/4$ ), pour  $k_0 = 100$ , à  $Z = 49.98$ . . . . . 184

5.20 Phase de la distribution  $u(X, Y)$  pour le soliton fondamental incliné suivant la diagonal ( $\theta = \pi/4$ ) pour  $k_0 = 100$  à  $Z = 49.98$ . . . . . 185

5.21 Amplitude  $|u(X, Z)|$  du champ en coupe transversale selon  $Y = 0$ , pour  $k_0 = 1.9743$  et  $\theta = \pi/8$ . . . . . 185

5.22 Exemples de trajectoires courbes pour les solitons pour  $\theta = \pi/8$  et pour deux valeurs de  $k_0$ , 6.05 et 10, dans le plan XY. On a tracé, pour référence, les trajectoires obtenues pour  $\theta = \pi/8$  et  $\theta = \pi/4$ . . . . . 186

5.23 Évolution de la vitesse du soliton en fonction de la distance de propagation  $Z$  pour différentes valeurs de  $k_0$  et de  $\theta$ . . . . . 188

5.24 Collision élastique entre un soliton en déplacement et une structure multi-solitonique stable, pour  $k_0 = 1.8$  et  $\theta = 0$ . . . . . 188

5.25 Absorption du soliton incident par la structure multi-solitonique stable lors d'une collision, pour  $k_0 = 1.765$  et  $\theta = 0$ . . . . . 189

5.26 Exemple de collisions élastiques périodiques comme dans le pendule de Newton, pour  $k_0 = 1.867$  et  $\theta = 0$ . . . . . 190

5.27 Exemple de l'interaction complexe entre le soliton incident et la structure immobile pour  $k_0 = 1.693$  et  $\theta = 0$ . La figure présente la distribution de l'amplitude du champ  $|u(X, Z)|$ , suivant la coupe transversale  $Y = 0$ . . . . 190

5.28 Courbe de la puissance totale en fonction de la distance de propagation  $Z$ . Les lignes horizontales correspondent à des multiples de la puissance totale du soliton fondamental stable. . . . . 191

5.29 Courbe de la vitesse de chaque soliton suivant la distance de propagation  $Z$ , pour une paire de solitons entrant périodiquement en collision. Ici  $k_0 = 1.974$  et  $\theta = 0$ . . . . . 192

5.30 Vitesse du centre de masse en fonction de  $Z$  pour une paire de solitons entrant périodiquement en collision. Ici  $k_0 = 1.974$  et  $\theta = 0$ . . . . . 192

5.31 Distribution en amplitude du dipôle stable. . . . . 193

5.32 Phase (en fractions de  $\pi$ ) du dipôle stable. . . . . 193

5.33 Amplitude  $|u(X, Y)|$  du champ obtenue en inclinant le dipôle initial pour  $k_0 = 1.665$  et  $\theta = 0$ , à la distance de propagation  $Z = 22.410$ . Le dipôle le plus à gauche est mouvement vers la droite. . . . . 194

5.34 Évolution de la structure produite par le dipôle, de la puissance totale du champ en fonction de la distance de propagation  $Z$ . Les lignes horizontales rouges indiquent la puissance totale correspondant à un nombre entier de dipôles stables. . . . . 194

5.35 Nombre des dipôles dans la structure finale, en fonction de la valeur  $k_0$  appliquée au dipôle ( $\theta = 0$ ). . . . . 195

5.36 Coupe transverse du champ  $|u(X, Y, Z)|$  pour  $Y = 0$ , dans le plan  $XZ$ , pour  $k_0 = 1.865$ . C'est une illustration du scénario des collisions élastiques périodiques, où le dipôle mobile répète les collisions élastiques avec le dipôle immobile. . . . . 198

5.37 Vue rapprochée d'une des collisions de la figure 5.36. . . . . 199

5.38 Coupe transverse du champ  $|u(X, Y, Z)|$  pour  $Y = 0$ , dans le plan  $XZ$ , pour  $k_0 = 1.816$ . C'est une illustration du régime transitoire, dans lequel le dipôle mobile est absorbé par une paire de dipôles piégés, après un certain nombre de collisions élastiques. . . . . 199

5.39 Vue rapprochée de la collision absorbante de la figure 5.38. . . . . 200

5.40 Coupe transverse du champ  $|u(X, Y, Z)|$  pour  $Y = 0$ , dans le plan  $XZ$ , pour  $k_0 = 1.884$ . C'est une illustration du régime "suppression de l'obstacle", dans lequel le dipôle mobile absorbe le dipôle stationnaire, après un certain nombre de collisions entre eux. . . . . 200

5.41 Vue rapprochée de la collision absorbante de la figure 5.40. . . . . 201

5.42 Exemple de séparation de l'unique dipôle survivant, du régime "suppression de l'obstacle", en deux solitons fondamentaux non-corrélés, pour  $k_0 = 1.884$ . (a) Amplitude  $|u(X, Y)|$  du champ pour  $Z = 199.965$ . (b) Vitesse et (c) position de chacun des solitons en fonction de la distance de propagation  $Z$ . (d) Différence de phase entre les solitons en fonction de la distance de propagation  $Z$ , en fractions de  $\pi$ . La ligne horizontale rouge correspond à une différence de phase égale à  $\pi$ . Les flèches sur les figures (c) et (d) indiquent le début de la perte de cohérence de phase et de la séparation des deux solitons. . . . . 201

5.43 Distribution de l'amplitude du quadrupôle stable utilisé comme donnée initiale dans les résolutions numériques. . . . . 202

5.44 Phase (en fraction de  $\pi$ ) du quadrupôle stable utilisé comme donnée initiale pour les résolutions numériques. . . . . 202

5.45 Nombre total de solitons fondamentaux obtenu dans les structures en fonction de la norme  $k_0$  du vecteur d'onde transverse appliqué à un quadrupôle stable. Chaque dipôle compte comme 2 solitons. . . . . 203

5.46 Évolution du quadrupôle mobile pour  $k_0 = 2.339$ . (a) L'amplitude  $|u(X, Y, Z)|$  du champ suivant la coupe transversale  $Y = 0$ , avant la collision du dipôle mobile avec la structure immobile. (b) Puissance totale en fonction de  $Z$  (les flèches verticales montrent l'endroit où les collisions se produisent); les lignes horizontales rouges montrent la puissance correspondant à  $n$  solitons fondamentaux stables,  $n$  étant le nombre de solitons indiqué sur l'axe vertical de droite. (c) Amplitude  $|u(X, Y)|$  du champ à  $Z = 399.34$ . (d) Amplitude  $|u(X, Y, Z)|$  du champ suivant la coupe transversale  $Y = 0$ , après la collision. . . . . 205

5.47 Vitesse des deux dipôles issus de la scission du quadrupôle initial, pour  $k_0 = 3$ . . . . . 205

5.48 Distribution de l'amplitude dans le cas du vortex rhombique stable. Les lignes correspondent aux courbes de niveau du potentiel  $V$ . . . . . 206

5.49 Distribution de la phase (en fractions de  $\pi$ ) dans le cas du vortex rhombique stable. . . . . 207



5.50	Différence de phase entre les solitons adjacents du vortex (en fractions de $\pi$ ), en fonction de $Z$ , (a) pour $k_0 = 0$ , (b) pour $k_0 = 0.1$ et (c) pour $k_0 = 0.2$ .	207
5.51	Amplitude $ u(X, Y) $ du champ à $Z = 299.725$ , généré par un vortex rhombique suivant $k_0 = 1.0$ .	208
5.52	Identique à la figure 5.51, mais pour $k_0 = 1.5$ .	208
5.53	Distribution de l'amplitude du vortex carré instable. Les lignes correspondent aux courbes de niveaux du potentiel $V$ .	209
5.54	Distribution de la phase du vortex carré instable (en fractions de $\pi$ ).	210
5.55	Évolution du vortex carré après application du vecteur d'onde transverse pour ( $\theta = 0$ ) et $k_0 = 1.5$ .	211
5.56	Évolution de la puissance totale pour la configuration obtenue à partir du vortex carré pour $k_0 = 1.5$ . Les lignes horizontales rouges montrent la puissance équivalant à $n$ solitons stables.	211
5.57	Évolution de la configuration obtenue à partir du vortex carré pour $k_0 = 2$ .	212
5.58	Rendu tri-dimensionnel de l'évolution du vortex pour $k_0 = 2.5$ , qui se transforme en une grappe mobile stable de 4 solitons. La progression chromatique indique la direction de propagation. Le tube verticale représente le soliton supplémentaire qui se forme dans le sillage du cluster mobile.	212
5.59	Identique à la figure 5.58 mais pour $k_0 = 3.0$ . Dans ce cas, le vortex se transforme entièrement en une grappe mobile.	213
5.60	Configurations obtenues à partir du vortex carré pour $k_0 = 1.5$ mais suivant différentes directions : (a) $\theta = \pi/8$ ; (b) $\theta = 5\pi/8$ ; (c) $\theta = 9\pi/8$ ; (d) $\theta = 13\pi/8$ .	214
5.61	Schéma explicatif de la direction dans laquelle est générée la flèche de soliton à partir de vortex carré.	214

# Liste des tableaux

2.1	Indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre et coefficient de l'absorption à deux photons mesurés pour les verres $\text{GeO}_2\text{-Bi}_2\text{O}_3\text{-PbO-TiO}_2$ suivant la concentration en $\text{TiO}_2$ [115]. . . . .	44
2.2	Indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre et coefficient de l'absorption à deux photons mesurés pour les verres $\text{Pb}_2\text{P}_2\text{O}_7\text{-MoO}_3$ [120]. . . . .	45
2.3	Indice de réfraction non-linéaire du troisième ordre et coefficient de l'absorption à deux photons mesurés pour les verres $(\text{GeSe}_2)_{100-x}(\text{Sb}_2\text{Se}_3)_x$ [121]. . . . .	46
4.1	Mesure de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre ( $n_{2,eff}$ ) suivant l'intensité incidente $I_0$ à $\lambda = 532\text{ nm}$ suivant la méthode $D4\sigma$ . $\Delta n_{2,eff}$ correspond à l'incertitude sur la mesure de $n_{2,eff}$ . . . . .	124
4.2	Mesure de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre ( $n_{2,eff}$ ) suivant l'intensité incidente $I_0$ à $\lambda = 1064\text{ nm}$ suivant la méthode $D4\sigma$ . $\Delta n_{2,eff}$ correspond à l'incertitude sur la mesure de $n_{2,eff}$ . . . . .	125
4.3	Valeurs des paramètres de la fonction (4.13) pour l'ajustement des courbes expérimentales de $n_{2,eff}$ à $\lambda = 532\text{ nm}$ (voir figure 4.6) et à $\lambda = 1064\text{ nm}$ (voir figure 4.7). . . . .	128
5.1	Le nombre de soliton obtenus en fonction de $k_0$ pour $\theta = \pi/4$ . . . . .	183
5.2	Identique au tableau 5.1, mais pour un angle $\theta = \pi/8$ . . . . .	184
5.3	Nombre de solitons en fonction de $k_{0x}$ , pour les angles $\theta = 0$ et $\theta = \pi/8$ . . . . .	187
5.4	Type de collision en fonction la norme $k_0$ du vecteur d'onde transverse. . . . .	189

5.5 Le nombre de dipôles et de solitons fondamentaux établi en fonction de  $k_0$ , pour un vecteur d'onde transverse dans la direction de l'axe du dipôle ( $\theta = \pi/2$ ). Dans la colonne de droite, chaque nouveau dipôle est compté comme deux solitons. . . . . 196

A.1 Solution de l'équation (2.30) en fonction de la présence ou non du coefficient de l'absorption linéaire, du coefficient de l'absorption à deux photons et du coefficient de l'absorption à trois photons. On notera que  $X_{\pm} = \left(\pm\sqrt{\beta^2 - 4\alpha\gamma} - \beta\right) / 2\gamma$  et  $\beta^2 > 4\alpha\gamma$ . . . . . 223

B.1 Solution de l'équation (2.31) en fonction de la présence ou non du coefficient de l'absorption linéaire, du coefficient de l'absorption à deux photons et du coefficient de l'absorption à trois photons. On notera que  $X_{\pm} = \left(\pm\sqrt{\beta^2 - 4\alpha\gamma} - \beta\right) / 2\gamma$  et  $\beta^2 > 4\alpha\gamma$ . . . . . 225

C.1 Référencement bibliographique de résultats de mesures des non-linéarités cubiques et quintiques du disulfure de carbone (N.M. : Non-Mesuré, N.C. : Non-Communiqué). Page 1/2 . . . . . 228

C.2 Référencement bibliographique de résultats de mesures des non-linéarités cubiques et quintiques du disulfure de carbone (N.M. : Non-Mesuré, N.C. : Non-Communiqué). Page 2/2 . . . . . 229

# Bibliographie

- [1] T. H. Maiman, “Stimulated optical radiation in ruby,” *Nature*, vol. 187, pp. 493–494, Aug. 1960.
- [2] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, “Generation of optical harmonics,” *Physical Review Letters*, vol. 7, pp. 118–119, Aug. 1961.
- [3] G. L. Wood, W. W. Clark III, M. J. Miller, G. J. Salamo, and E. J. Sharp, “Evaluation of passive optical limiters and switches,” vol. 1105, pp. 154–180, 1989.
- [4] G. Lenz, J. Zimmermann, T. Katsufuji, M. E. Lines, H. Y. Hwang, S. Spälter, R. E. Slusher, S.-W. Cheong, J. Sanghera, and I. D. Aggarwal, “Large kerr effect in bulk se-based chalcogenide glasses,” *Optics Letters*, vol. 25, pp. 254–256, Feb. 2000.
- [5] H. Shim, M. Liu, C. Hwangbo, and G. I. Stegeman, “Four-photon absorption in the single-crystal polymer bis(paratoluene) sulfonate,” *Optics Letters*, vol. 23, pp. 430–432, Mar. 1998.
- [6] F. Smektala, C. Quemard, L. Leneindre, J. Lucas, A. Barthélémy, and C. De Angelis, “Chalcogenide glasses with large non-linear refractive indices,” *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 239, pp. 139–142, Oct. 1998.
- [7] M. Hercher, “Laser-induced damage in transparent media,” *Journal of the Optical Society of America*, vol. 54, no. 4, p. 563, 1964.
- [8] R. Y. Chiao, E. Garmire, and C. H. Townes, “Self-trapping of optical beams,” *Physical Review Letters*, vol. 13, pp. 479–482, Oct. 1964.

- [9] A. Barthelemy, S. Maneuf, and C. Froehly, "Propagation soliton et auto-confinement de faisceaux laser par non linearité optique de kerr," *Optics Communications*, vol. 55, pp. 201–206, Sept. 1985.
- [10] S. Maneuf and F. Reynaud, "Quasi-steady state self-trapping of first, second and third order subnanosecond soliton beams," *Optics Communications*, vol. 66, pp. 325–328, May 1988.
- [11] E. L. Falcão-Filho, C. B. de Araújo, G. Boudebs, H. Leblond, and V. Skarka, "Robust two-dimensional spatial solitons in liquid carbon disulfide," *Physical Review Letters*, vol. 110, p. 013901, Jan. 2013.
- [12] A. Hasegawa and F. Tappert, "Transmission of stationary nonlinear optical pulses in dispersive dielectric fibers. i. anomalous dispersion," *Applied Physics Letters*, vol. 23, pp. 142–144, Aug. 1973.
- [13] L. F. Mollenauer, R. H. Stolen, and J. P. Gordon, "Experimental observation of picosecond pulse narrowing and solitons in optical fibers," *Physical Review Letters*, vol. 45, pp. 1095–1098, Sept. 1980.
- [14] L. F. Mollenauer and K. Smith, "Demonstration of soliton transmission over more than 4000 km in fiber with loss periodically compensated by raman gain," *Optics Letters*, vol. 13, pp. 675–677, Aug. 1988.
- [15] V. Skarka, V. I. Berezhiani, and R. Miklaszewski, "Spatiotemporal soliton propagation in saturating nonlinear optical media," *Physical Review E*, vol. 56, pp. 1080–1087, July 1997.
- [16] W. H. Steel, *Interferometry*, vol. 1. New York : Cambridge University Press, 2nd ed. ed., 1983.
- [17] G. Boudebs, F. Sanchez, C. Duverger, and B. Boulard, "Improvement of mach–zehnder interferometry technique for third-order susceptibility measurement," *Optics Communications*, vol. 199, pp. 257–265, Nov. 2001.
- [18] E. L. Falcão-Filho, C. A. C. Bosco, G. S. Maciel, L. H. Acioli, C. B. de Araújo, A. A. Lipovskii, and D. K. Tagantsev, "Third-order optical nonlinearity of a transparent

- glass ceramic containing sodium niobate nanocrystals,” *Physical Review B*, vol. 69, p. 134204, Apr. 2004.
- [19] Y. R. Shen, “The principles of nonlinear optics,” *New York, Wiley-Interscience, 1984, 575 p.*, vol. -1, 1984.
- [20] R. Adair, L. L. Chase, and S. A. Payne, “Nonlinear refractive-index measurements of glasses using three-wave frequency mixing,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 4, pp. 875–881, June 1987.
- [21] F. P. Strohkendl, L. R. Dalton, R. W. Hellwarth, H. W. Sarkas, and Z. H. Kafafi, “Phase-mismatched degenerate four-wave mixing : complex third-order susceptibility tensor elements of c60 at 768 nm,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 14, pp. 92–98, Jan. 1997.
- [22] M. Sheik-bahae, A. A. Said, and E. W. Van Stryland, “High-sensitivity, single-beam  $n_2$  measurements,” *Optics Letters*, vol. 14, pp. 955–957, Sept. 1989.
- [23] M. Sheik-Bahae, A. Said, T.-H. Wei, D. Hagan, and E. W. Van Stryland, “Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 26, pp. 760–769, Apr. 1990.
- [24] W. Zhao and P. Palffy-Muhoray, “Z-scan technique using top-hat beams,” *Applied Physics Letters*, vol. 63, pp. 1613–1615, Sept. 1993.
- [25] B. K. Rhee, J. S. Byun, and E. W. V. Stryland, “Z scan using circularly symmetric beams,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 13, pp. 2720–2723, Dec. 1996.
- [26] B. Gu, J. Yan, Q. Wang, J.-L. He, and H.-T. Wang, “Z-scan technique for characterizing third-order optical nonlinearity by use of quasi-one-dimensional slit beams,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 21, pp. 968–972, May 2004.
- [27] J.-G. Tian, W.-P. Zang, and G. Zhang, “Two modified z-scan methods for determination of nonlinear-optical index with enhanced sensitivity,” *Optics Communications*, vol. 107, pp. 415–419, May 1994.

- [28] X.-Q. Yan, Z.-B. Liu, X.-L. Zhang, W.-Y. Zhou, and J.-G. Tian, "Polarization dependence of z-scan measurement : theory and experiment," *Optics Express*, vol. 17, pp. 6397–6406, Apr. 2009.
- [29] M. Sheik-Bahae, J. Wang, R. DeSalvo, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland, "Measurement of nondegenerate nonlinearities using a two-color z scan," *Optics Letters*, vol. 17, pp. 258–260, Feb. 1992.
- [30] A. Marcano O., H. Maillotte, D. Gindre, and D. Métin, "Picosecond nonlinear refraction measurement in single-beam open z scan by charge-coupled device image processing," *Optics Letters*, vol. 21, pp. 101–103, Jan. 1996.
- [31] F. E. Hernández, A. O. Marcano, and H. Maillotte, "Sensitivity of the total beam profile distortion z-scan for the measurement of nonlinear refraction," *Optics Communications*, vol. 134, pp. 529–536, Jan. 1997.
- [32] M. R. Ferdinandus, M. Reichert, T. R. Ensley, H. Hu, D. A. Fishman, S. Webster, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland, "Dual-arm z-scan technique to extract dilute solute nonlinearities from solution measurements," *Optical Materials Express*, vol. 2, pp. 1776–1790, Dec. 2012.
- [33] G. Boudebs, M. Chis, and J. P. Bourdin, "Third-order susceptibility measurements by nonlinear image processing," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 13, pp. 1450–1456, July 1996.
- [34] G. Boudebs, M. Chis, and A. Monteil, "Contrast increasing by third-order nonlinear image processing : a numerical study for microscopic rectangular objects," *Optics Communications*, vol. 150, pp. 287–296, May 1998.
- [35] G. Boudebs and K. Fedus, "Optimization of z-scan technique inside a 4f system," in *Nonlinear Optics*, OSA Technical Digest (CD), p. NWE21, Optical Society of America, July 2011.
- [36] K. Fedus, *Développement des méthodes de mesures des non linéarités optiques du troisième ordre*. PhD thesis, Angers, Jan. 2011.

- [37] G. Boudebs and K. Fedus, “Absolute measurement of the nonlinear refractive indices of reference materials,” *Journal of Applied Physics*, vol. 105, p. 103106, May 2009.
- [38] N. F. Piliptetskii and A. R. Rustamov, “Observation of selffocusing of light in liquids,” *ZhETF Pisma Redaktsiiu*, vol. 2, p. 55, May 1965.
- [39] G. Fibich and B. Ilan, “Deterministic vectorial effects lead to multiple filamentation,” *Optics Letters*, vol. 26, pp. 840–842, June 2001.
- [40] A. Dubietis, G. Tamoliūnas, G. Fibich, and B. Ilan, “Multiple filamentation induced by input-beam ellipticity,” *Optics Letters*, vol. 29, pp. 1126–1128, May 2004.
- [41] L. Bergé, “Wave collapse in physics : principles and applications to light and plasma waves,” *Physics Reports*, vol. 303, pp. 259–370, Sept. 1998.
- [42] H. S. Eisenberg, R. Morandotti, Y. Silberberg, S. Bar-Ad, D. Ross, and J. S. Aitchison, “Kerr spatiotemporal self-focusing in a planar glass waveguide,” *Physical Review Letters*, vol. 87, p. 043902, July 2001.
- [43] P. L. Kelley, “Self-focusing of optical beams,” *Physical Review Letters*, vol. 15, pp. 1005–1008, Dec. 1965.
- [44] A. Couairon and A. Mysyrowicz, “Femtosecond filamentation in transparent media,” *Physics Reports*, vol. 441, pp. 47–189, Mar. 2007.
- [45] L. Bergé, S. Skupin, F. Lederer, G. Méjean, J. Yu, J. Kasparian, E. Salmon, J. P. Wolf, M. Rodriguez, L. Wöste, R. Bourayou, and R. Sauerbrey, “Multiple filamentation of terawatt laser pulses in air,” *Physical Review Letters*, vol. 92, p. 225002, June 2004.
- [46] G. N. Steinberg, “Filamentary tracks formed in transparent optical glass by laser beam self-focusing. i. experimental investigation,” *Physical Review A*, vol. 4, pp. 1182–1194, Sept. 1971.
- [47] K. M. Davis, K. Miura, N. Sugimoto, and K. Hirao, “Writing waveguides in glass with a femtosecond laser,” *Optics Letters*, vol. 21, pp. 1729–1731, Nov. 1996.



- [48] D. Homoelle, S. Wielandy, A. L. Gaeta, N. F. Borrelli, and C. Smith, “Infrared photosensitivity in silica glasses exposed to femtosecond laser pulses,” *Optics Letters*, vol. 24, pp. 1311–1313, Sept. 1999.
- [49] Y. Kondo, K. Nouchi, T. Mitsuyu, M. Watanabe, P. G. Kazansky, and K. Hirao, “Fabrication of long-period fiber gratings by focused irradiation of infrared femtosecond laser pulses,” *Optics Letters*, vol. 24, pp. 646–648, May 1999.
- [50] C. B. Schaffer, A. Brodeur, J. F. García, and E. Mazur, “Micromachining bulk glass by use of femtosecond laser pulses with nanojoule energy,” *Optics Letters*, vol. 26, pp. 93–95, Jan. 2001.
- [51] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrowicz, “Writing of permanent birefringent microlayers in bulk fused silica with femtosecond laser pulses,” *Optics Communications*, vol. 171, pp. 279–284, Dec. 1999.
- [52] K. Yamada, W. Watanabe, T. Toma, K. Itoh, and J. Nishii, “In situ observation of photoinduced refractive-index changes in filaments formed in glasses by femtosecond laser pulses,” *Optics Letters*, vol. 26, pp. 19–21, Jan. 2001.
- [53] O. G. Kosareva, T. Nguyen, N. A. Panov, W. Liu, A. Saliminia, V. P. Kandidov, N. Akozbek, M. Scalora, R. Vallee, and S. L. Chin, “Array of femtosecond plasma channels in fused silica,” *Optics Communications*, vol. 267, pp. 511–523, Nov. 2006.
- [54] G. Boudebs, S. Cherukulappurath, M. Guignard, J. Troles, F. Smektala, and F. Sanchez, “Experimental observation of higher order nonlinear absorption in tellurium based chalcogenide glasses,” *Optics Communications*, vol. 232, pp. 417–423, Mar. 2004.
- [55] S. Cherukulappurath, J. L. Godet, and G. Boudebs, “Higher order coefficient measurements in nonlinear absorption process,” *Journal of Nonlinear Optical Physics & Materials*, vol. 14, pp. 49–60, Mar. 2005.
- [56] G. Boudebs, S. Cherukulappurath, H. Leblond, J. Troles, F. Smektala, and F. Sanchez, “Experimental and theoretical study of higher-order nonlinearities in chalcogenide glasses,” *Optics Communications*, vol. 219, pp. 427–433, Apr. 2003.

- [57] V. Coda, *Kerr and photorefractive spatial optical solitons : fundamental studies and application to optical switching*. PhD thesis, Université de Franche-Comté, Dec. 2006.
- [58] V. I. Petviashvili and A. M. Sergeev, “Titre inconnu,” *Soviet Physics-Doklady*, vol. 29, no. 493, 1984.
- [59] O. Thual and S. Fauve, “Localized structures generated by subcritical instabilities,” *Journal de Physique*, vol. 49, no. 11, pp. 1829–1833, 1988.
- [60] S. Fauve and O. Thual, “Solitary waves generated by subcritical instabilities in dissipative systems,” *Physical Review Letters*, vol. 64, pp. 282–284, Jan. 1990.
- [61] W. van Saarloos and P. C. Hohenberg, “Pulses and fronts in the complex ginzburg-landau equation near a subcritical bifurcation,” *Physical Review Letters*, vol. 64, pp. 749–752, Feb. 1990.
- [62] V. Hakim, P. Jakobsen, and Y. Pomeau, “Fronts vs. solitary waves in nonequilibrium systems,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 11, p. 19, Jan. 1990.
- [63] B. A. Malomed and A. A. Nepomnyashchy, “Kinks and solitons in the generalized ginzburg-landau equation,” *Physical Review A*, vol. 42, pp. 6009–6014, Nov. 1990.
- [64] P. Marcq, H. Chaté, and R. Conte, “Exact solutions of the one-dimensional quintic complex ginzburg-landau equation,” *Physica D : Nonlinear Phenomena*, vol. 73, pp. 305–317, June 1994.
- [65] N. Akhmediev and V. V. Afanasjev, “Novel arbitrary-amplitude soliton solutions of the cubic-quintic complex ginzburg-landau equation,” *Physical Review Letters*, vol. 75, pp. 2320–2323, Sept. 1995.
- [66] H. R. Brand and R. J. Deissler, “Interaction of localized solutions for subcritical bifurcations,” *Physical Review Letters*, vol. 63, pp. 2801–2804, Dec. 1989.
- [67] V. V. Afanasjev, N. Akhmediev, and J. M. Soto-Crespo, “Three forms of localized solutions of the quintic complex ginzburg-landau equation,” *Physical Review E*, vol. 53, pp. 1931–1939, Feb. 1996.

- [68] J. M. Soto-Crespo, N. Akhmediev, and A. Ankiewicz, “Pulsating, creeping, and erupting solitons in dissipative systems,” *Physical Review Letters*, vol. 85, pp. 2937–2940, Oct. 2000.
- [69] H. Leblond, A. Komarov, M. Salhi, A. Haboucha, and F. Sanchez, “‘cis’ bound states of three localized pulses of the cubic–quintic CGL equation,” *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics*, vol. 8, p. 319, Mar. 2006.
- [70] W. H. Renninger, A. Chong, and F. W. Wise, “Dissipative solitons in normal-dispersion fiber lasers,” *Physical Review A*, vol. 77, p. 023814, Feb. 2008.
- [71] J. M. Soto-Crespo, N. Akhmediev, C. Mejia-Cortes, and N. Devine, “Dissipative ring solitons with vorticity,” *Optics Express*, vol. 17, pp. 4236–4250, Mar. 2009.
- [72] D. Mihalache, “Three-dimensional ginzburg-landau dissipative solitons supported by a two-dimensional transverse grating,” *Proceedings of the Romanian Academy Series A*, vol. 11, no. 2, pp. 244–253, 2010.
- [73] Y. He, B. A. Malomed, D. Mihalache, F. Ye, and B. Hu, “Generation of arrays of spatiotemporal dissipative solitons by the phase modulation of a broad beam,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 27, pp. 1266–1271, June 2010.
- [74] D. Mihalache, “Spiral solitons in two-dimensional complex cubic-quintic ginzburg-landau models,” *Romanian Reports In Physics*, vol. 63, no. 2, pp. 325–338, 2011.
- [75] C. Mejía-Cortés, J. M. Soto-Crespo, R. A. Vicencio, and M. I. Molina, “Vortex solitons of the discrete ginzburg-landau equation,” *Physical Review A*, vol. 83, p. 043837, Apr. 2011.
- [76] D. Mihalache, “Linear and nonlinear light bullets : recent theoretical and experimental studies,” *Romanian Journal of Physics*, vol. 57, pp. 352–371, Jan. 2012.
- [77] O. V. Borovkova, V. E. Lobanov, Y. V. Kartashov, and L. Torner, “Stable vortex-soliton tori with multiple nested phase singularities in dissipative media,” *Physical Review A*, vol. 85, p. 023814, Feb. 2012.

- [78] L.-C. Crasovan, B. A. Malomed, and D. Mihalache, “Stable vortex solitons in the two-dimensional ginzburg-landau equation,” *Physical Review E*, vol. 63, p. 016605, Dec. 2000.
- [79] L. C. Crasovan, B. A. Malomed, and D. Mihalache, “Erupting, flat-top, and composite spiral solitons in the two-dimensional ginzburg-landau equation,” *Physics Letters A*, vol. 289, pp. 59–65, Oct. 2001.
- [80] D. Mihalache, D. Mazilu, F. Lederer, Y. V. Kartashov, L.-C. Crasovan, L. Torner, and B. A. Malomed, “Stable vortex tori in the three-dimensional cubic-quintic ginzburg-landau equation,” *Physical Review Letters*, vol. 97, p. 073904, Aug. 2006.
- [81] D. Mihalache, D. Mazilu, F. Lederer, H. Leblond, and B. A. Malomed, “Stability limits for three-dimensional vortex solitons in the ginzburg-landau equation with the cubic-quintic nonlinearity,” *Physical Review A*, vol. 76, p. 045803, Oct. 2007.
- [82] D. Mihalache and D. Mazilu, “Ginzburg-landau spatiotemporal dissipative optical solitons,” *Romanian Reports In Physics*, vol. 60, pp. 749–761, Jan. 2008.
- [83] M. Tlidi, M. Haelterman, and P. Mandel, “3d patterns and pattern selection in optical bistability,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 42, p. 505, June 1998.
- [84] M. Tlidi and P. Mandel, “Three-dimensional optical crystals and localized structures in cavity second harmonic generation,” *Physical Review Letters*, vol. 83, pp. 4995–4998, Dec. 1999.
- [85] M. Tlidi, “Three-dimensional crystals and localized structures in diffractive and dispersive nonlinear ring cavities,” *Journal of Optics B : Quantum and Semiclassical Optics*, vol. 2, p. 438, June 2000.
- [86] V. Skarka and N. B. Aleksić, “Stability criterion for dissipative soliton solutions of the one-, two-, and three-dimensional complex cubic-quintic ginzburg-landau equations,” *Physical Review Letters*, vol. 96, p. 013903, Jan. 2006.
- [87] N. B. Aleksić, V. Skarka, D. V. Timotijević, and D. Gauthier, “Self-stabilized spatiotemporal dynamics of dissipative light bullets generated from inputs without spher-

- rical symmetry in three-dimensional ginzburg-landau systems,” *Physical Review A*, vol. 75, p. 061802, June 2007.
- [88] V. Skarka, D. V. Timotijević, and N. B. Aleksić, “Extension of the stability criterion for dissipative optical soliton solutions of a two-dimensional ginzburg–landau system generated from asymmetric inputs,” *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics*, vol. 10, p. 075102, July 2008.
- [89] V. Skarka, N. B. Aleksić, H. Leblond, B. A. Malomed, and D. Mihalache, “Varieties of stable vortical solitons in ginzburg-landau media with radially inhomogeneous losses,” *Physical Review Letters*, vol. 105, p. 213901, Nov. 2010.
- [90] H. Leblond, B. A. Malomed, and D. Mihalache, “Stable vortex solitons in the ginzburg-landau model of a two-dimensional lasing medium with a transverse grating,” *Physical Review A*, vol. 80, p. 033835, Sept. 2009.
- [91] P. a. M. Dirac, “The quantum theory of the emission and absorption of radiation,” *Proceedings of the Royal Society of London. Series A*, vol. 114, pp. 243–265, Jan. 1927.
- [92] R. L. Sutherland, *Handbook of Nonlinear Optics*. CRC Press, Apr. 2003.
- [93] J. d’Alembert, “Recherches sur la courbe que forme une corde tenduë mise en vibration,” *Histoire de l’Académie des Sciences et Belles-Lettres de Berlin année 1747*, pp. 214–249, 1749.
- [94] K. Williams and S. Caparrini, *Discovering the Principles of Mechanics 1600-1800 : Essays by David Speiser*. Birkhäuser, Sept. 2008.
- [95] J. C. Maxwell, “A dynamical theory of the electromagnetic field,” *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, vol. 155, pp. 459–512, Jan. 1865.
- [96] J. C. Maxwell, *A treatise on electricity and magnetism. Vol. 2 / by James Clerk Maxwell,...* Clarendon press (Oxford), 1873.
- [97] G. S. He and S. H. Liu, *Physics of nonlinear optics*, vol. 216. World Scientific, 1999.
- [98] R. W. Boyd, *Nonlinear optics*. San Diego (California) : Academic Press, 2008.

- [99] J. S. Russell, "Report on waves," vol. 311, p. 390, Sept. 1844.
- [100] M. Shalaby and A. Barthelemy, "Experimental spatial soliton trapping and switching," *Optics Letters*, vol. 16, pp. 1472–1474, Oct. 1991.
- [101] V. I. Bespalov and V. I. Talanov, "Filamentary structure of light beams in nonlinear liquids," *ZhETF Pisma Redaktsiiu*, vol. 3, p. 307, June 1966.
- [102] J. Marburger, "Self-focusing : Theory," *Progress in Quantum Electronics*, vol. 4, pp. 35–110, Apr. 1975.
- [103] S. Tzortzakis, L. Bergé, A. Couairon, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrowicz, "Breakup and fusion of self-guided femtosecond light pulses in air," *Physical Review Letters*, vol. 86, pp. 5470–5473, June 2001.
- [104] N. N. Akhmediev, V. V. Afanasjev, and J. M. Soto-Crespo, "Singularities and special soliton solutions of the cubic-quintic complex ginzburg-landau equation," *Physical Review E*, vol. 53, pp. 1190–1201, Jan. 1996.
- [105] J. M. Soto-Crespo, N. N. Akhmediev, V. V. Afanasjev, and S. Wabnitz, "Pulse solutions of the cubic-quintic complex ginzburg-landau equation in the case of normal dispersion," *Physical Review E*, vol. 55, pp. 4783–4796, Apr. 1997.
- [106] M. Göppert-Mayer, "Über elementarakte mit zwei quantensprüngen," *Annalen der Physik*, vol. 401, pp. 273–294, Jan. 1931.
- [107] W. Kaiser and C. G. B. Garrett, "Two-photon excitation in  $\text{CaF}_2 : \text{Eu}^{2+}$ ," *Physical Review Letters*, vol. 7, pp. 229–231, Sept. 1961.
- [108] J. W. Goodman, *Introduction To Fourier Optics*. Englewood, Colo : Roberts & Company Publishers, Édition : 3rd revised edition ed., Jan. 2005.
- [109] H. Kogelnik and T. Li, "Laser beams and resonators," *Applied Optics*, vol. 5, pp. 1550–1567, Oct. 1966.
- [110] D. Weaire, B. S. Wherrett, D. A. B. Miller, and S. D. Smith, "Effect of low-power nonlinear refraction on laser-beam propagation in InSb," *Optics Letters*, vol. 4, pp. 331–333, Oct. 1979.

- [111] K. Fedus and G. Boudebs, “Experimental techniques using 4f coherent imaging system for measuring nonlinear refraction,” *Optics Communications*, vol. 292, pp. 140–148, Apr. 2013.
- [112] J. A. Hermann, “Beam propagation and optical power limiting with nonlinear media,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 1, pp. 729–736, Oct. 1984.
- [113] G. Tsigaridas, M. Fakis, I. Polyzos, P. Persephonis, and V. Giannetas, “Z-scan technique through beam radius measurements,” *Applied Physics B*, vol. 76, pp. 83–86, Jan. 2003.
- [114] K. Fedus and G. Boudebs, “Sensitivity of z-scan using diffraction efficiency,” *Optics Communications*, vol. 284, pp. 1057–1061, Feb. 2011.
- [115] V. Besse, A. Fortin, G. Boudebs, P. S. Valle, M. Nalin, and C. B. d. Araújo, “Picosecond nonlinearity of GeO<sub>2</sub>–Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>–PbO–TiO<sub>2</sub> glasses at 532 and 1,064 nm,” *Applied Physics B*, pp. 1–5, Aug. 2014.
- [116] D. Milam, “Review and assessment of measured values of the nonlinear refractive-index coefficient of fused silica,” *Applied Optics*, vol. 37, pp. 546–550, Jan. 1998.
- [117] T. A. Oliveira, D. Manzani, E. L. Falcão-Filho, Y. Messaddeq, G. Boudebs, K. Fedus, and C. B. d. Araújo, “Near-infrared nonlinearity of a multicomponent tellurium oxide glass at 800 and 1,064 nm,” *Applied Physics B*, vol. 116, pp. 1–5, July 2014.
- [118] C. M. Cirloganu, L. A. Padilha, D. A. Fishman, S. Webster, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland, “Extremely nondegenerate two-photon absorption in direct-gap semiconductors [invited],” *Optics Express*, vol. 19, pp. 22951–22960, Nov. 2011.
- [119] X. Feng, A. Mairaj, D. Hewak, and T. Monro, “Nonsilica glasses for holey fibers,” *Journal of Lightwave Technology*, vol. 23, pp. 2046–2054, June 2005.
- [120] D. Manzani, V. Besse, M. Napoli, G. Boudebs, S. Ribeiro, and C. de Araujo, “Third-order nonlinearities and other properties of molybdenum lead-pyrophosphate glass,” *Optical Materials*, 2015. In Press.

- [121] M. Olivier, J. Tchahame, P. Němec, M. Chauvet, V. Besse, C. Cassagne, G. Boudebs, G. Renversez, R. Boidin, E. Baudet, and V. Nazabal, "Structure, nonlinear properties, and photosensitivity of  $(\text{GeSe}_{2-x}\text{Sb}_2\text{Se}_3)_x$  glasses," *Optical Materials Express*, vol. 4, p. 525, Mar. 2014.
- [122] G. Boudebs, V. Besse, C. Cassagne, H. Leblond, and C. B. de Araújo, "Nonlinear characterization of materials using the  $d_4$  method inside a z-scan 4f-system," *Optics Letters*, vol. 38, pp. 2206–2208, July 2013.
- [123] M. Moran, C.-Y. She, and R. Carman, "Interferometric measurements of the nonlinear refractive-index coefficient relative to CS<sub>2</sub> in laser-system-related materials," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 11, pp. 259–263, June 1975.
- [124] W. E. Williams, M. J. Soileau, and E. W. Van Stryland, "Optical switching and  $n_2$  measurements in CS<sub>2</sub>," *Optics Communications*, vol. 50, pp. 256–260, June 1984.
- [125] D. McMorrow, "Separation of nuclear and electronic contributions to femtosecond four-wave mixing data," *Optics Communications*, vol. 86, pp. 236–244, Nov. 1991.
- [126] P. P. Ho and R. R. Alfano, "Optical kerr effect in liquids," *Physical Review A*, vol. 20, pp. 2170–2187, Nov. 1979.
- [127] M.-T. Zhao, B. P. Singh, and P. N. Prasad, "A systematic study of polarizability and microscopic third-order optical nonlinearity in thiophene oligomers," *The Journal of Chemical Physics*, vol. 89, pp. 5535–5541, Nov. 1988.
- [128] K. Minoshima, M. Taiji, and T. Kobayashi, "Femtosecond time-resolved interferometry for the determination of complex nonlinear susceptibility," *Optics Letters*, vol. 16, pp. 1683–1685, Nov. 1991.
- [129] M. E. Orczyk, M. Samoc, J. Swiatkiewicz, and P. N. Prasad, "Dynamics of third-order nonlinearity of canthaxanthin carotenoid by the optically heterodyned phase-tuned femtosecond optical kerr gate," *The Journal of Chemical Physics*, vol. 98, pp. 2524–2533, Feb. 1993.



- [130] H.-S. Albrecht, P. Heist, J. Kleinschmidt, and D. V. Lap, “Ultrafast beam-deflection method and its application for measuring the transient refractive index of materials,” *Applied Physics B*, vol. 57, pp. 193–197, Sept. 1993.
- [131] S. Couris, E. Koudoumas, F. Dong, and S. Leach, “Sub-picosecond studies of the third-order optical nonlinearities of - toluene solutions,” *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 29, p. 5033, Nov. 1996.
- [132] T. Kawazoe, H. Kawaguchi, J. Inoue, O. Haba, and M. Ueda, “Measurement of non-linear refractive index by time-resolved z-scan technique,” *Optics Communications*, vol. 160, pp. 125–129, Feb. 1999.
- [133] M. Falconieri and G. Salvetti, “Simultaneous measurement of pure-optical and thermo-optical nonlinearities induced by high-repetition-rate, femtosecond laser pulses : application to CS<sub>2</sub>,” *Applied Physics B*, vol. 69, pp. 133–136, Aug. 1999.
- [134] F. Smektala, C. Quemard, V. Couderc, and A. Barthélémy, “Non-linear optical properties of chalcogenide glasses measured by z-scan,” *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 274, pp. 232–237, Sept. 2000.
- [135] G. Boudebs, F. Sanchez, J. Troles, and F. Smektala, “Nonlinear optical properties of chalcogenide glasses : comparison between mach–zehnder interferometry and z-scan techniques,” *Optics Communications*, vol. 199, pp. 425–433, Dec. 2001.
- [136] S. Couris, M. Renard, O. Faucher, B. Lavorel, R. Chaux, E. Koudoumas, and X. Michaut, “An experimental investigation of the nonlinear refractive index ( $n_2$ ) of carbon disulfide and toluene by spectral shearing interferometry and z-scan techniques,” *Chemical Physics Letters*, vol. 369, pp. 318–324, Feb. 2003.
- [137] S. Cherukulappurath, G. Boudebs, and A. Monteil, “4f coherent imager system and its application to nonlinear optical measurements,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 21, pp. 273–279, Feb. 2004.
- [138] R. A. Ganeev, A. I. Ryasnyansky, N. Ishizawa, M. Baba, M. Suzuki, M. Turu, S. Sakakibara, and H. Kuroda, “Two- and three-photon absorption in CS<sub>2</sub>,” *Optics Communications*, vol. 231, pp. 431–436, Feb. 2004.

- [139] R. A. Ganeev, A. I. Ryasnyanskiĭ, and H. Kuroda, “Nonlinear optical characteristics of carbon disulfide,” *Optics and Spectroscopy*, vol. 100, pp. 108–118, Jan. 2006.
- [140] J. Jayabalan, A. Singh, and S. M. Oak, “Single-shot measurement of nonlinear absorption and nonlinear refraction,” *Applied Optics*, vol. 45, pp. 3852–3858, June 2006.
- [141] D. G. Kong, Q. Chang, H. Ye, Y. C. Gao, Y. X. Wang, X. R. Zhang, K. Yang, W. Z. Wu, and Y. L. Song, “The fifth-order nonlinearity of CS<sub>2</sub>,” *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 42, p. 065401, Mar. 2009.
- [142] X.-Q. Yan, X.-L. Zhang, S. Shi, Z.-B. Liu, and J.-G. Tian, “Third-order nonlinear susceptibility tensor elements of CS<sub>2</sub> at femtosecond time scale,” *Optics Express*, vol. 19, pp. 5559–5564, Mar. 2011.
- [143] V. Besse, G. Boudebs, and H. Leblond, “Determination of the third- and fifth-order optical nonlinearities : the general case,” *Applied Physics B*, vol. 116, pp. 911–917, Sept. 2014.
- [144] T. R. Oliveira, L. de S. Menezes, C. B. de Araújo, and A. A. Lipovskii, “Nonlinear absorption of transparent glass ceramics containing sodium niobate nanocrystals,” *Physical Review B*, vol. 76, p. 134207, Oct. 2007.
- [145] D. McMorro, W. Lotshaw, and G. Kenney-Wallace, “Femtosecond optical kerr studies on the origin of the nonlinear responses in simple liquids,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 24, pp. 443–454, Feb. 1988.
- [146] H. A. Lorentz, “Ueber die beziehung zwischen der fortpflanzungsgeschwindigkeit des liches und der körperdichte,” *Annalen der Physik*, vol. 245, no. 4, pp. 641+665, 1880.
- [147] J. C. Maxwell Garnett, “Colours in metal glasses, in metallic films, and in metallic solutions. II,” *Philosophical Transactions of the Royal Society A*, vol. 205, pp. 237–288, Jan. 1906.

- [148] D. A. G. Bruggeman, “Berechnung verschiedener physikalischer konstanten von heterogenen substanzen. i. dielektrizitätskonstanten und leitfähigkeiten der mischkörper aus isotropen substanzen,” *Annalen der Physik*, vol. 416, no. 7, pp. 636–664, 1935.
- [149] R. Miles and S. Harris, “Optical third-harmonic generation in alkali metal vapors,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 9, pp. 470–484, Apr. 1973.
- [150] N. Bloembergen, *Nonlinear Optics*. Singapore; River Edge (N.J.); London etc. : World Scientific Pub Co Inc, 4 edition ed., June 1996.
- [151] V. Besse, H. Leblond, and G. Boudebs, “Filamentation of light in carbon disulfide,” *Physical Review A*, vol. 89, p. 043840, Apr. 2014.
- [152] H. A. Lorentz, *The Theory of Electrons*. New York : Dover Publications Inc., Édition : 2nd ed., Jan. 2004.
- [153] M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics : Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*. Cambridge University Press, Oct. 1999.
- [154] G. Boudebs, V. Besse, C. Cassagne, H. Leblond, and C. de Araujo, “D4\textsigma nonlinear measurement inside a 4f-z-scan system,” in *Nonlinear Optics* (S. K. M. a. K. W. B. Boulanger, Cundiff, ed.), OSA Technical Digest (online), p. NTu1B.5, Optical Society of America, July 2013.
- [155] G. Boudebs, V. Besse, C. Cassagne, H. Leblond, and F. Sanchez, “Why optical nonlinear characterization using imaging technique is a better choice?,” in *2013 15th International Conference on Transparent Optical Networks (ICTON)*, pp. 1–4, 2013.
- [156] V. Besse, C. Cassagne, H. Leblond, and G. Boudebs, “Third- and fifth-order optical nonlinearities characterization using the d4\textsigma;-z-scan method,” in *2014 16th International Conference on Transparent Optical Networks (ICTON)*, pp. 1–4, July 2014.
- [157] M. Grehn, T. Seuthe, W.-J. Tsai, M. Höfner, A. W. Achtstein, A. Mermillod-Blondin, M. Eberstein, H. J. Eichler, and J. Bonse, “Nonlinear absorption and re-

- fraction of binary and ternary alkaline and alkaline earth silicate glasses,” *Optical Materials Express*, vol. 3, pp. 2132–2140, Dec. 2013.
- [158] K. Levenberg, “A method for the solution of certain problems in least squares,” *Quarterly of Applied Mathematics*, vol. 2, pp. 164–168, 1944.
- [159] D. Marquardt, “An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters,” *Journal of the Society for Industrial and Applied Mathematics*, vol. 11, pp. 431–441, June 1963.
- [160] C. Runge, “Über empirische funktionen und die interpolation zwischen äquidistanten ordinaten,” *Zeitung der Math. und Phys.*, vol. 46, pp. 224–243, 1901.
- [161] P. G. Drazin and R. S. Johnson, *Solitons : An Introduction*. Cambridge University Press, Feb. 1989.
- [162] A. S. Davydov, *Solitons in molecular systems*. Dordrecht, Boston : Kluwer Academic Publishers, 2nd ed. ed., 1991.
- [163] T. Heimburg and A. D. Jackson, “On soliton propagation in biomembranes and nerves,” *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, vol. 102, pp. 9790–9795, Dec. 2005.
- [164] Z. Sinkala, “Soliton/exciton transport in proteins,” *Journal of Theoretical Biology*, vol. 241, pp. 919–927, Aug. 2006.
- [165] T. Heimburg and A. D. Jackson, “On the action potential as a propagating density pulse and the role of anesthetics,” *Biophysical Reviews and Letters*, vol. 02, pp. 57–78, Jan. 2007. arXiv : physics/0610117.
- [166] S. S. L. Andersen, A. D. Jackson, and T. Heimburg, “Towards a thermodynamic theory of nerve pulse propagation,” *Progress in Neurobiology*, vol. 88, pp. 104–113, June 2009.
- [167] J. Boussinesq, “Théorie de l’intumescence liquide, appelée onde solitaire ou de trans-  
lation, se propageant dans un canal rectangulaire,” in *Comptes rendus hebdoma-*

*daire des séances de l'Académie des sciences / publiés... par MM. les secrétaires perpétuels*, vol. 72, pp. 755–759, Paris : Gauthier-Villars, 1871.

- [168] J. Boussinesq, “Théorie des ondes et des remous qui se propagent le long d’un canal rectangulaire horizontal, en communiquant au liquide contenu dans ce canal des vitesses sensiblement pareilles de la surface au fond.,” *Journal de Mathématiques Pures et Appliquées*, pp. 55–108, 1872.
- [169] D. J. Korteweg and G. de Vries, “XLI. on the change of form of long waves advancing in a rectangular canal, and on a new type of long stationary waves,” *Philosophical Magazine Series 5*, vol. 39, pp. 422–443, May 1895.
- [170] N. J. Zabusky and M. D. Kruskal, “Interaction of "solitons" in a collisionless plasma and the recurrence of initial states,” *Physical Review Letters*, vol. 15, pp. 240–243, Aug. 1965.
- [171] C. S. Gardner, J. M. Greene, M. D. Kruskal, and R. M. Miura, “Method for solving the korteweg-deVries equation,” *Physical Review Letters*, vol. 19, pp. 1095–1097, Nov. 1967.
- [172] G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*. Academic Press, 2007.
- [173] N. Akhmediev and A. Ankiewicz, *Dissipative Solitons*, vol. 661. Springer, 2005.
- [174] N. Akhmediev and A. Ankiewicz, *Dissipative Solitons : From Optics to Biology and Medicine*, vol. 751. Springer, 2008.
- [175] N. N. Rosanov, *Spatial Hysteresis and Optical Patterns*. Springer, 2002.
- [176] Z. Bakonyi, D. Michaelis, U. Peschel, G. Onishchukov, and F. Lederer, “Dissipative solitons and their critical slowing down near a supercritical bifurcation,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 19, pp. 487–491, Mar. 2002.
- [177] S. Barland, J. R. Tredicce, M. Brambilla, L. A. Lugiato, S. Balle, M. Giudici, T. Maggipinto, L. Spinelli, G. Tissoni, T. Knödl, M. Miller, and R. Jäger, “Cavity solitons as pixels in semiconductor microcavities,” *Nature*, vol. 419, pp. 699–702, Oct. 2002.

- [178] P. Mandel and M. Tlidi, “Transverse dynamics in cavity nonlinear optics (2000–2003),” *Journal of Optics B : Quantum and Semiclassical Optics*, vol. 6, p. R60, Sept. 2004.
- [179] N. N. Rosanov, S. V. Fedorov, and A. N. Shatsev, “Two-dimensional laser soliton complexes with weak, strong, and mixed coupling,” *Applied Physics B*, vol. 81, pp. 937–943, Nov. 2005.
- [180] E. A. Ultanir, G. I. Stegeman, D. Michaelis, C. H. Lange, and F. Lederer, “Stable dissipative solitons in semiconductor optical amplifiers,” *Physical Review Letters*, vol. 90, p. 253903, June 2003.
- [181] N. Veretenov and M. Tlidi, “Dissipative light bullets in an optical parametric oscillator,” *Physical Review A*, vol. 80, p. 023822, Aug. 2009.
- [182] C. O. Weiss and Y. Larionova, “Pattern formation in optical resonators,” *Reports on Progress in Physics*, vol. 70, p. 255, Feb. 2007.
- [183] C. Fernandez-Oto, M. G. Clerc, D. Escaff, and M. Tlidi, “Strong nonlocal coupling stabilizes localized structures : An analysis based on front dynamics,” *Physical Review Letters*, vol. 110, p. 174101, Apr. 2013.
- [184] P. Genevet, S. Barland, M. Giudici, and J. R. Tredicce, “Bistable and addressable localized vortices in semiconductor lasers,” *Physical Review Letters*, vol. 104, p. 223902, June 2010.
- [185] P. Grelu and N. Akhmediev, “Dissipative solitons for mode-locked lasers,” *Nature Photonics*, vol. 6, pp. 84–92, Feb. 2012.
- [186] J. Jimenez, Y. Noblet, P. V. Paulau, D. Gomila, and T. Ackemann, “Observation of laser vortex solitons in a self-focusing semiconductor laser,” *Journal of Optics*, vol. 15, p. 044011, Apr. 2013.
- [187] M. Tlidi, A. G. Vladimirov, D. Pieroux, and D. Turaev, “Spontaneous motion of cavity solitons induced by a delayed feedback,” *Physical Review Letters*, vol. 103, p. 103904, Sept. 2009.

- [188] N. Lazarides and G. P. Tsironis, “Coupled nonlinear schrödinger field equations for electromagnetic wave propagation in nonlinear left-handed materials,” *Physical Review E*, vol. 71, p. 036614, Mar. 2005.
- [189] Y. Liu, G. Bartal, D. A. Genov, and X. Zhang, “Subwavelength discrete solitons in nonlinear metamaterials,” *Physical Review Letters*, vol. 99, p. 153901, Oct. 2007.
- [190] E. Feigenbaum and M. Orenstein, “Plasmon-soliton,” *Optics Letters*, vol. 32, pp. 674–676, Mar. 2007.
- [191] I. R. Gabitov, A. O. Korotkevich, A. I. Maimistov, and J. B. McMahon, “Solitary waves in plasmonic bragg gratings,” *Applied Physics A*, vol. 89, pp. 277–281, Nov. 2007.
- [192] A. R. Davoyan, I. V. Shadrivov, and Y. S. Kivshar, “Self-focusing and spatial plasmon-polariton solitons,” *Optics Express*, vol. 17, pp. 21732–21737, Nov. 2009.
- [193] K. Y. Bliokh, Y. P. Bliokh, and A. Ferrando, “Resonant plasmon-soliton interaction,” *Physical Review A*, vol. 79, p. 041803, Apr. 2009.
- [194] E. V. Kazantseva and A. I. Maimistov, “Polaritonic gap-soliton propagation through a wide defect in a resonantly absorbing bragg grating,” *Physical Review A*, vol. 79, p. 033812, Mar. 2009.
- [195] Y.-Y. Lin, R.-K. Lee, and Y. S. Kivshar, “Transverse instability of transverse-magnetic solitons and nonlinear surface plasmons,” *Optics Letters*, vol. 34, pp. 2982–2984, Oct. 2009.
- [196] A. Marini and D. V. Skryabin, “Ginzburg-landau equation bound to the metal-dielectric interface and transverse nonlinear optics with amplified plasmon polaritons,” *Physical Review A*, vol. 81, p. 033850, Mar. 2010.
- [197] A. Marini, D. V. Skryabin, and B. A. Malomed, “Stable spatial plasmon solitons in a dielectric-metal-dielectric geometry with gain and loss,” *Optics Express*, vol. 19, pp. 6616–6622, Mar. 2011.

- [198] J. Anglin, “Cold, dilute, trapped bosons as an open quantum system,” *Physical Review Letters*, vol. 79, pp. 6–9, July 1997.
- [199] F. T. Arecchi, J. Bragard, and L. M. Castellano, “Dissipative dynamics of an open bose einstein condensate,” *Optics Communications*, vol. 179, pp. 149–156, May 2000.
- [200] J. Keeling and N. G. Berloff, “Spontaneous rotating vortex lattices in a pumped decaying condensate,” *Physical Review Letters*, vol. 100, p. 250401, June 2008.
- [201] B. A. Malomed, O. Dzyapko, V. E. Demidov, and S. O. Demokritov, “Ginzburg-landau model of bose-einstein condensation of magnons,” *Physical Review B*, vol. 81, p. 024418, Jan. 2010.
- [202] H. Deng, H. Haug, and Y. Yamamoto, “Exciton-polariton bose-einstein condensation,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 82, pp. 1489–1537, May 2010.
- [203] B. Deveaud-Plédran, “On the condensation of polaritons,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 29, pp. A138–A145, Feb. 2012.
- [204] M. C. Cross and P. C. Hohenberg, “Pattern formation outside of equilibrium,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 65, pp. 851–1112, July 1993.
- [205] I. S. Aranson and L. Kramer, “The world of the complex ginzburg-landau equation,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 74, pp. 99–143, Feb. 2002.
- [206] B. A. Malomed, “Complex ginzburg-landau equation,” in *Encyclopedia of Nonlinear Science*, p. 157, Routledge, Nov. 2005.
- [207] A. Szameit, J. Burghoff, T. Pertsch, S. Nolte, A. Tünnermann, and F. Lederer, “Two-dimensional soliton in cubic fs laser written waveguide arrays in fused silica,” *Optics Express*, vol. 14, pp. 6055–6062, June 2006.
- [208] J. W. Fleischer, M. Segev, N. K. Efremidis, and D. N. Christodoulides, “Observation of two-dimensional discrete solitons in optically induced nonlinear photonic lattices,” *Nature*, vol. 422, pp. 147–150, Mar. 2003.



- [209] W. J. Firth and A. J. Scroggie, “Optical bullet holes : Robust controllable localized states of a nonlinear cavity,” *Physical Review Letters*, vol. 76, pp. 1623–1626, Mar. 1996.
- [210] L. A. Lugiato, M. Brambilla, and A. Gatti, “Optical pattern formation,” in *Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics* (Benjamin Bederson and Herbert Walther, ed.), vol. 40, pp. 229–306, Academic Press, 1999.
- [211] S. V. Fedorov, A. G. Vladimirov, G. V. Khodova, and N. N. Rosanov, “Effect of frequency detunings and finite relaxation rates on laser localized structures,” *Physical Review E*, vol. 61, pp. 5814–5824, May 2000.
- [212] D. Mihalache, D. Mazilu, V. Skarka, B. A. Malomed, H. Leblond, N. B. Aleksić, and F. Lederer, “Stable topological modes in two-dimensional ginzburg-landau models with trapping potentials,” *Physical Review A*, vol. 82, p. 023813, Aug. 2010.
- [213] D. Mihalache, D. Mazilu, F. Lederer, H. Leblond, and B. A. Malomed, “Spatio-temporal solitons in the ginzburg-landau model with a two-dimensional transverse grating,” *Physical Review A*, vol. 81, p. 025801, Feb. 2010.
- [214] M. Desaix, D. Anderson, and M. Lisak, “Variational approach to collapse of optical pulses,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 8, pp. 2082–2086, Oct. 1991.
- [215] B. A. Malomed, “Evolution of nonsoliton and “quasi-classical” wavetrains in nonlinear schrödinger and korteweg-de vries equations with dissipative perturbations,” *Physica D : Nonlinear Phenomena*, vol. 29, pp. 155–172, Nov. 1987.
- [216] H. Sakaguchi, “Motion of pulses and vortices in the cubic–quintic complex ginzburg–landau equation without viscosity,” *Physica D : Nonlinear Phenomena*, vol. 210, pp. 138–148, Oct. 2005.
- [217] Y. Kominis, S. Droulias, P. Papagiannis, and K. Hizanidis, “Gain-controlled dissipative soliton routing in optical lattices,” *Physical Review A*, vol. 85, p. 063801, June 2012.

- [218] A. V. Ustinov, ““supersoliton” excitations in inhomogeneous josephson junctions,” *Physics Letters A*, vol. 136, pp. 155–162, Mar. 1989.
- [219] D. Novoa, B. A. Malomed, H. Michinel, and V. M. Pérez-García, “Supersolitons : Solitonic excitations in atomic soliton chains,” *Physical Review Letters*, vol. 101, p. 144101, Sept. 2008.
- [220] B. B. Baizakov, B. A. Malomed, and M. Salerno, “Multidimensional solitons in periodic potentials,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 63, p. 642, Sept. 2003.
- [221] T. Mayteevarunyoo, B. A. Malomed, B. B. Baizakov, and M. Salerno, “Matter-wave vortices and solitons in anisotropic optical lattices,” *Physica D : Nonlinear Phenomena*, vol. 238, pp. 1439–1448, July 2009.
- [222] J. Yang, *Nonlinear Waves in Integrable and Nonintegrable Systems*. SIAM, 2010.
- [223] J. Yang and Z. H. Musslimani, “Fundamental and vortex solitons in a two-dimensional optical lattice,” *Optics Letters*, vol. 28, pp. 2094–2096, Nov. 2003.
- [224] A. G. Vladimirov, D. V. Skryabin, G. Kozyreff, P. Mandel, and M. Tlidi, “Bragg localized structures in a passive cavity with transverse modulation of the refractive index and the pump,” *Optics Express*, vol. 14, pp. 1–6, Jan. 2006.
- [225] V. Besse, C. Cassagne, and G. Boudebs, “Spatially resolved phase objects using mach-zehnder interferometry,” *Journal of Modern Optics*, vol. 59, no. 10, pp. 887–892, 2012.
- [226] V. Besse, H. Leblond, D. Mihalache, and B. A. Malomed, “Pattern formation by kicked solitons in the two-dimensional ginzburg-landau medium with a transverse grating,” *Physical Review E*, vol. 87, p. 012916, Jan. 2013.
- [227] V. Besse, H. Leblond, D. Mihalache, and B. A. Malomed, “Building patterns by traveling dipoles and vortices in two-dimensional periodic dissipative media,” *Optics Communications*, vol. 332, pp. 279–291, Dec. 2014.
- [228] V. Besse, C. Cassagne, G. Boudebs, and H. Leblond, “Study of the evolution of different dissipative solitons and phase measurement by mach-zehnder interferometry,”

in *2012 14th International Conference on Transparent Optical Networks (ICTON)*, pp. 1–4, 2012.

- [229] G. Boudebs, V. Besse, and H. Leblond, “Saturation of the kerr effect in carbon disulfide,” in *Advanced Photonics*, OSA Technical Digest (online), p. NTh1A.1, Optical Society of America, July 2014.

# Thèse de Doctorat

Valentin BESSE

## Dynamique spatiale de la lumière et saturation de l'effet Kerr

### Résumé

Nous présentons une étude de la dynamique de la lumière et des mesures des caractéristiques non-linéaires optiques dans le disulfure de carbone.

Dans la première partie, nous calculons dans le cadre d'un modèle classique des expressions des susceptibilités non-linéaires jusqu'au cinquième ordre, en tenant compte des corrections de champ local. Nous formulons différentes hypothèses que nous confirmons ou infirmons par la mesure des indices d'absorption et de réfraction non-linéaires. Celles-ci sont obtenues en combinant deux méthodes de caractérisation des non-linéarités au sein d'un système 4f d'imagerie. L'analyse des données expérimentales utilise une méthode nouvellement développée, qui consiste à inverser numériquement, par la méthode de Newton, les solutions analytiques des équations différentielles qui décrivent l'évolution du faisceau.

Dans la deuxième partie, nous observons la filamentation d'un faisceau laser à la longueur d'onde de 532 nm et en régime picoseconde. Puis nous procédons à la mesure de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre  $n_{2,\text{eff}}$  en fonction de l'intensité incidente. Par un ajustement de la courbe de saturation de l'effet Kerr, nous développons un nouveau modèle. La résolution numérique de celui-ci reproduit la filamentation observée.

La dernière partie est consacrée à l'étude de la dynamique des solitons dissipatifs au sein de milieux à gains et pertes non-linéaires. La résolution numérique de l'équation complexe de Ginzburg-Landau cubique-quintique est réalisée suivant différentes configurations : soliton fondamental, dipôle, quadripôle, vortex carré et rhombique.

### Mots clés

Optique non-linéaire, Susceptibilités non-linéaire, Caractérisation non-linéaire, Filamentation, Saturation de l'effet Kerr, Équation complexe de Ginzburg-Landau, Soliton dissipatif

### Abstract

We present a study of light dynamics and measurements of the nonlinear optical characteristics of carbon disulphide.

In the first part, we calculate using the classical model, the nonlinear susceptibilities up to the fifth order taking into account local field corrections. We express different assumptions that we confirm or refute by measuring the nonlinear absorption coefficient and the nonlinear refractive index. The measurements are performed by means of two nonlinear characterization methods combined with an imaging 4f system. We analyse the experimental data using a newly developed method which numerically inverts the analytical solutions of the differential equations which describe the evolution of the beam, using Newton's method.

In the second part, we observe light filamentation at wavelength 532 nm, in the picoseconds regime. Then we measure the effective third order nonlinear refractive index  $n_{2,\text{eff}}$  versus the incident intensity. By fitting the curve of the Kerr effect saturation, we develop a new model. Numerically solving this model, allows us to reproduce the experimentally observed filamentation.

The last part is dedicated to the study of dissipative solitons dynamics. The complex Ginzburg-Landau equation with cubic-quintic nonlinearities is numerically solved in various configurations : soliton fundamental dipole, quadripole, vortex and square rhombic.

### Key words

Nonlinear optics, Nonlinear susceptibilities, Nonlinear characterization, Filamentation, Kerr effect saturation, Complex Ginzburg-Landau equation, Dissipative soliton

# Thèse de Doctorat

**A study of light dynamics and measurements of the nonlinear optical characteristics of carbon disulphide.**

Valentin BESSE

## Dynamique spatiale de la lumière et saturation de l'effet Kerr

### Résumé

Nous présentons une étude de la dynamique de la lumière et des mesures des caractéristiques non-linéaires optiques dans le disulfure de carbone.

Dans la première partie, nous calculons dans le cadre d'un modèle classique des expressions des susceptibilités non-linéaires jusqu'au cinquième ordre, en tenant compte des corrections de champ local. Nous formulons différentes hypothèses que nous confirmons ou infirmons par la mesure des indices d'absorption et de réfraction non-linéaires. Celles-ci sont obtenues en combinant deux méthodes de caractérisation des non-linéarités au sein d'un système 4f d'imagerie. L'analyse des données expérimentales utilise une méthode nouvellement développée, qui consiste à inverser numériquement, par la méthode de Newton, les solutions analytiques des équations différentielles qui décrivent l'évolution du faisceau.

Dans la deuxième partie, nous observons la filamentation d'un faisceau laser à la longueur d'onde de 532 nm et en régime picoseconde. Puis nous procédons à la mesure de l'indice de réfraction non-linéaire effectif du troisième ordre  $n_{2,\text{eff}}$  en fonction de l'intensité incidente. Par un ajustement de la courbe de saturation de l'effet Kerr, nous développons un nouveau modèle. La résolution numérique de celui-ci reproduit la filamentation observée.

La dernière partie est consacrée à l'étude de la dynamique des solitons dissipatifs au sein de milieux à gains et pertes non-linéaires. La résolution numérique de l'équation complexe de Ginzburg-Landau cubique-quintique est réalisée suivant différentes configurations : soliton fondamental, dipôle, quadrupôle, vortex carré et rhombique.

### Mots clés

Optique non-linéaire, Susceptibilités non-linéaire, Caractérisation non-linéaire, Filamentation, Saturation de l'effet Kerr, Équation complexe de Ginzburg-Landau, Soliton dissipatif

### Abstract

We present a study of light dynamics and measurements of the nonlinear optical characteristics of carbon disulphide.

In the first part, we calculate using the classical model, the nonlinear susceptibilities up to the fifth order taking into account local field corrections. We express different assumptions that we confirm or refute by measuring the nonlinear absorption coefficient and the nonlinear refractive index. The measurements are performed by means of two nonlinear characterization methods combined with an imaging 4f system. We analyse the experimental data using a newly developed method which numerically inverts the analytical solutions of the differential equations which describe the evolution of the beam, using Newton's method.

In the second part, we observe light filamentation at wavelength 532 nm, in the picoseconds regime. Then we measure the effective third order nonlinear refractive index  $n_{2,\text{eff}}$  versus the incident intensity. By fitting the curve of the Kerr effect saturation, we develop a new model. Numerically solving this model, allows us to reproduce the experimentally observed filamentation.

The last part is dedicated to the study of dissipative solitons dynamics. The complex Ginzburg-Landau equation with cubic-quintic nonlinearities is numerically solved in various configurations : soliton fundamental dipole, quadrupole, vortex and square rhombic.

### Key words

Nonlinear optics, Nonlinear susceptibilities, Nonlinear characterization, Filamentation, Kerr effect saturation, Complex Ginzburg-Landau equation, Dissipative soliton