

Chapitre II

Présentation des bancs de caractérisation expérimentaux

Au cours des travaux menés dans le cadre de cette thèse, nous avons utilisé plusieurs montages expérimentaux destinés à la caractérisation de divers mécanismes non linéaires. Appliqués à des expériences de limitation optique (chapitres III, IV, V et VII), à des expériences de Z-scan (chapitre IV) et à des expériences de pompe et sonde, ces montages sont cités de manière régulière tout au long du mémoire. L'usage de sources laser possédant des durées d'impulsions différentes (picoseconde et nanoseconde) et des longueurs d'onde différentes est nécessaire pour déterminer la nature des processus mis en jeu.

Nous avons donc voulu consacrer un chapitre pour décrire à la fois les sources laser et les montages optiques.

II.1. Caractéristiques des sources laser impulsionnelles.

Nous avons utilisé deux lasers commerciaux fabriqués par la société BMI. Dans le cadre de cette thèse, nous avons considéré ces sources comme des outils de travail servant à analyser les propriétés non linéaires des matériaux. Toutefois, des modifications ont été apportées dans chacune des cavités pour obtenir un profil de faisceau aussi proche que possible d'un mode TEM₀₀ (par filtrage spatial intra-cavité). Aussi, des réglages fins ont été nécessaires pour améliorer à la fois la qualité de faisceau et la stabilité des impulsions. Nous décrivons succinctement les lasers et présentons des mesures quantitatives des profils temporels et spatiaux des impulsions.

II.1.A. Caractérisation de la source laser impulsionnelle picoseconde.

Le laser est un Nd:Yag pompé par lampe, à verrouillage de modes délivrant des impulsions très brèves à la longueur d'onde de 1,064 μm . Le verrouillage de mode est obtenu par la combinaison d'un colorant à absorption saturable et d'un modulateur acousto-optique. L'oscillateur engendre une enveloppe (train) constituée d'une dizaine d'impulsions. Un sélecteur d'impulsions isole une impulsion parmi les plus grandes impulsions constituant le train. Cette impulsion est ensuite amplifiée dans un amplificateur à double passage. La fréquence des tirs est 10 Hz. Le constructeur fournit une durée d'impulsion d'une trentaine de picosecondes à la longueur d'onde de 1,064 μm . Le faisceau infrarouge est ensuite doublé en fréquence dans un cristal de KDP (KH₂PO₄) afin d'obtenir la seconde harmonique. Nous obtenons finalement des impulsions picoseconde à la longueur d'onde de 532 nm.

Nous décrivons brièvement l'expérience d'autocorrélation que nous avons développée afin de mesurer la véritable durée de notre impulsion laser à 532 nm. Le principe consiste à engendrer dans un cristal doubleur (forte non-linéarité $\chi^{(2)}$) un faisceau signal de fréquence double 2ω , à l'aide de deux faisceaux croisés cohérents temporellement et spatialement à la fréquence ω . Un des faisceaux est retardé temporellement par rapport à l'autre. Nous mesurons le flux du signal créé en fonction du décalage temporel $\Delta\tau$.

Nous avons utilisé un cristal de BBO (β BaB₂O₄). Le détecteur est un photomultiplicateur sensible dans la partie bleue du spectre visible.

La figure II.1 représente une courbe d'autocorrélation. La courbe est ajustée par une gaussienne, dont la demi-largeur $\Delta\tau$ à 1/e est égale à 52,5 picosecondes. La largeur à mi-hauteur $\Delta\tau_1$ de l'impulsion est liée à la largeur $\Delta\tau$, à mi-hauteur de la fonction d'autocorrélation par un coefficient correctif (expression (II.1))

$$\frac{\Delta\tau_1}{\Delta\tau} = \sqrt{2} \quad . \quad (\text{II.1})$$

Notre impulsion possède une demi-largeur temporelle à 1/e égale à environ 37 picosecondes. Nous avons fait cette mesure juste après avoir changé le colorant absorbant saturable. Après quelques semaines d'utilisation, nous avons reproduit l'expérience. Nous mesurons des valeurs avoisinant 30 picosecondes. C'est cette valeur que nous retiendrons dans la suite du mémoire : **durée d'impulsion τ_p (demi-largeur 1/e du maximum) = $30 \cdot 10^{-12}$ s.**

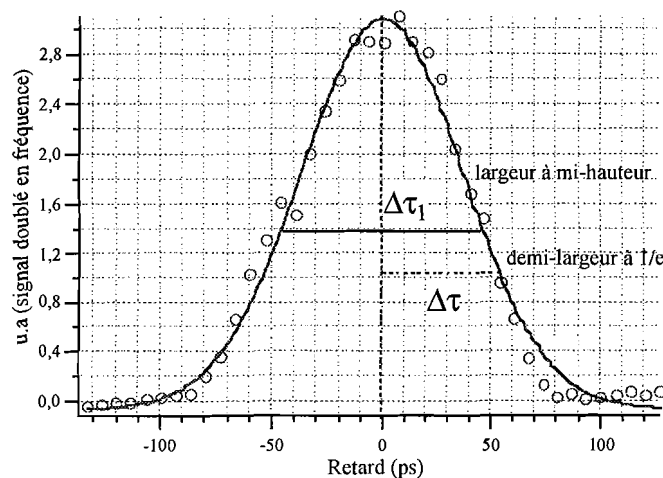


Figure II.1 : Courbe d'autocorrélation de l'impulsion picoseconde.

À l'aide d'une caméra CCD, nous avons enregistré le profil spatial du faisceau laser à 532 nm. Proche du mode fondamental TEM_{00} , nous pouvons ajuster le profil transverse du faisceau à l'aide d'une gaussienne (figure II.2).

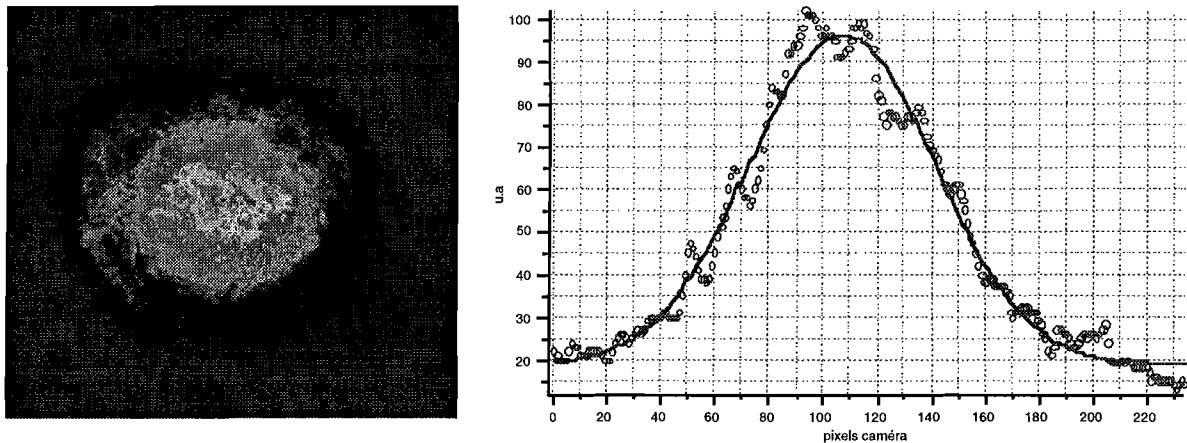


Figure II.2 : Profil spatial qualitatif du faisceau laser. Image CCD et coupe transverse. Le capteur CCD possède une dimension 6,6 mm x 8,8 mm.

II.1.B. Caractérisation de la source laser impulsionnelle nanoseconde.

Ce laser est également un laser commercial de la marque BMI. Il s'agit d'un Nd :Yag à modes verrouillés pompé par flash et doublé à 532 nm. Le verrouillage des modes est ici beaucoup plus simple et nécessite peu d'entretien, puisqu'il est réalisé à l'aide d'une cellule de Pockels. La mesure de la durée de l'impulsion est effectuée à l'aide d'une photodiode rapide (temps de montée 1 nanoseconde), et d'un oscilloscope large bande. **La demi-largeur temporelle τ_p de l'impulsion (demi-largeur 1/e du maximum) est estimée à 5 nanosecondes.**

La figure II.3 est une copie d'écran de l'oscilloscope donnée par la photodiode rapide. La figure II.4 est composée de l'image représentant le profil spatial enregistrés par une caméra CCD et d'une vue en coupe du profil spatial transverse.

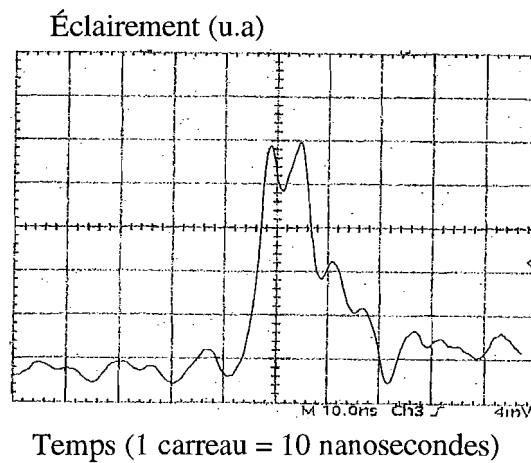


Figure II.3 : Profil temporel de l'impulsion nanoseconde.

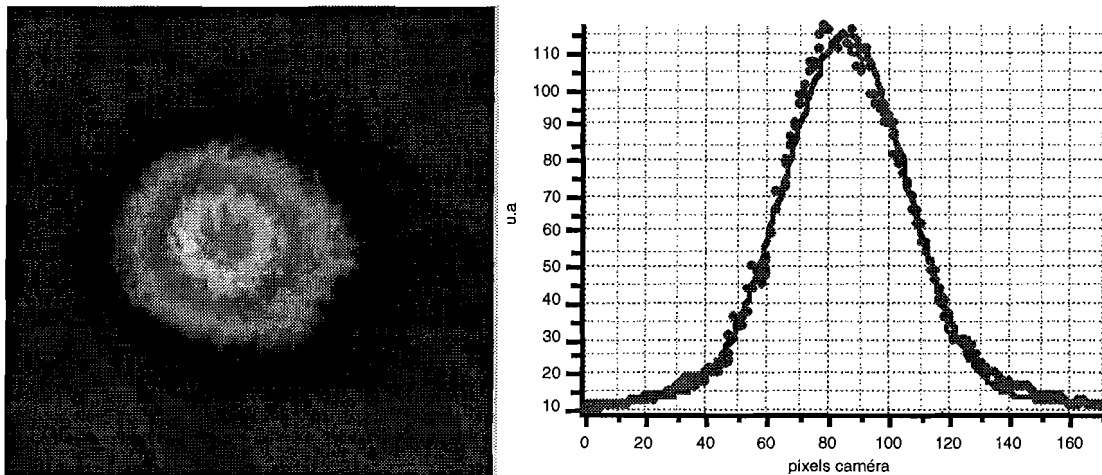


Figure II.4 : Profil spatial qualitatif du faisceau laser.

II.2. Montages appliqués aux expériences de limitation optique.

D'une manière générale, nous avons utilisé deux systèmes optiques d'ouvertures différentes. Le premier (ouvert à F/5) est orienté « système ». La géométrie du faisceau (spot de focalisation de très faible dimension, limité par diffraction) est typique d'une géométrie que l'on obtiendrait avec un véritable système opérationnel embarqué, illuminé par un laser situé à très grande distance. Vis à vis d'une menace laser ce banc ouvert à F/5 est donc plus réaliste que celui ouvert à F/34. Le second banc (ouvert à F/34) nous a permis de caractériser nos matériaux dans une géométrie différente (les spots de focalisation sont plus larges). Ces montages sont employés avec deux sources laser impulsives (nanoseconde et picoseconde). Nous présentons donc les caractéristiques de chaque montage.

II.2.A. Caractérisation du système ouvert à F/5

Le système complet (figure II.5) est composé de trois lentilles dont la première (L_1) est un doublet achromatique de focale 100 mm et de diamètre utile 20 mm. La lentille de reprise (L_2) possède une focale de 40 mm et est plus ouverte que L_1 (environ F/4). Derrière la lentille L_2 , nous plaçons une lentille L_3 de très longue focale (1 mètre). La pupille de sortie située devant L_3 est l'image conjuguée de la pupille d'entrée confondue en L_1 , de sorte que tous les rayons parallèles à l'axe optique entrant dans L_1 ressortent par L_3 sans être obturés. Afin d'illuminer uniformément la pupille d'entrée L_1 , il a été nécessaire d'étendre le faisceau laser d'excitation à l'aide d'un système afocal.

Une partie des expériences a été réalisée avec ce banc (étude des absorbants saturables inverses dans le chapitre III et de l'absorption à deux photons dans le chapitre V) pour les caractérisations orientées systèmes intégrés.

Nous nous sommes rendus compte dans les expériences de limitation optique, qu'à très fort flux, une partie de l'énergie était obturée par l'iris de la lentille L_3 . Ces pertes par diffusion ou par réfraction non linéaire représentent une gêne pour l'étude des mécanismes d'absorption non linéaire. C'est pourquoi nous avons volontairement retiré les lentilles L_2 et L_3 dans le cas où nous ne souhaitons nous intéresser uniquement qu'aux propriétés d'absorption non linéaires. Ces deux lentilles sont alors remplacées par d'autres lentilles plus ouvertes. Tout le flux est alors collecté sur le détecteur.

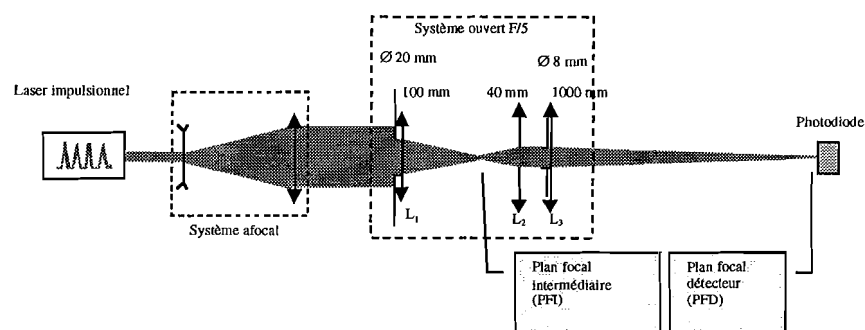


Figure II.5 : Schéma expérimental pour l'utilisation du système ouvert à F/5. Le grandissement entre le plan focal détecteur et le plan focal intermédiaire est $\times 25$.

II.2.A.1. Étude du banc en régime impulsionnel picoseconde

L'énergie délivrée par le laser à la longueur d'onde 532 nm avoisine 6,5 mJ. Une fois le faisceau étendu avec l'afocal, l'énergie disponible est réduite à 1,5 mJ.

Il nous reste à mesurer le diamètre du spot laser dans le plan focal intermédiaire, puisque l'échantillon limiteur est placé précisément dans cette position. On s'attend à une dimension avoisinant quelques micromètres. Nous disposons d'une caméra CCD de résolution spatiale $27\ \mu\text{m}$. En plaçant le capteur dans le plan focal intermédiaire, un seul pixel est éclairé. Nous effectuons alors une mesure indirecte en positionnant le capteur CCD dans le plan focal détecteur. Compte tenu du grandissement de 25 entre ces deux plans, nous pouvons en déduire la taille du spot dans le plan intermédiaire.

La figure II.6 est une vue en coupe du profil spatial mesuré dans le plan focal détecteur. Bien que nous devrions mesurer une tache d'Airy correspondant à la réponse percussive de la lentille L_1 , nous ajustons les points expérimentaux avec une gaussienne. Le waist (rayon du spot laser au plan focal intermédiaire) est approximativement égal à $2,5 \pm 0,2\ \mu\text{m}$ (demi-largeur à $1/e^2$ du maximum). **La longueur de Rayleigh ($Z_R = \pi w^2/\lambda$) associée au waist est égale à environ $37\ \mu\text{m}$.**

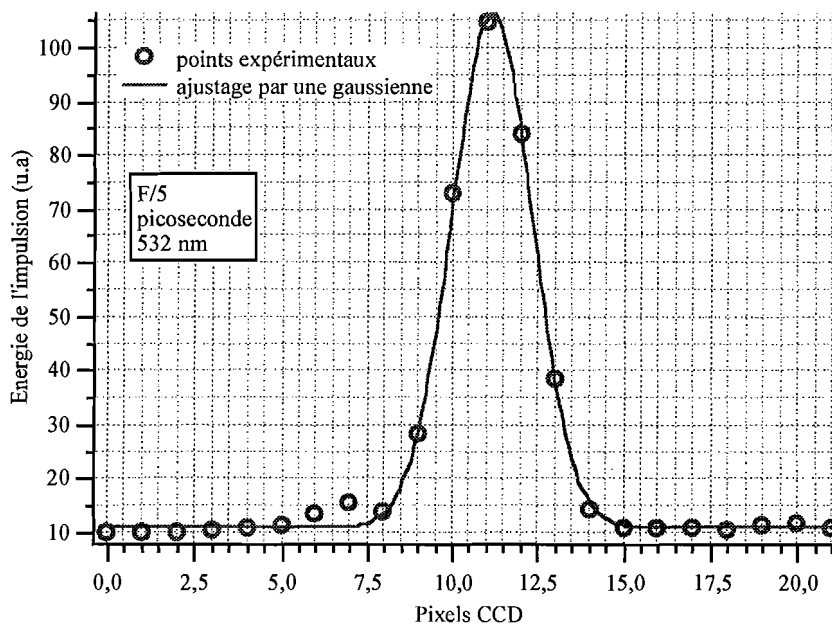


Figure II.6 : Vue en coupe du profil spatial du faisceau dans le plan focal détecteur (correspondant à l'image du plan focal intermédiaire agrandie vingt-cinq fois).

II.2.A.2. Étude du banc en régime impulsionnel nanoseconde

L'énergie disponible en entrée de pupille est également 1,5 mJ. Nous mesurons de la même manière le profil spatial du faisceau laser dans le plan focal détecteur (figure II.7).

Nous déduisons de cette mesure une valeur de $2,8 \pm 0,2 \mu\text{m}$ dans le plan focal intermédiaire. **La longueur de Rayleigh est ici égale à $46,3 \mu\text{m}$.**

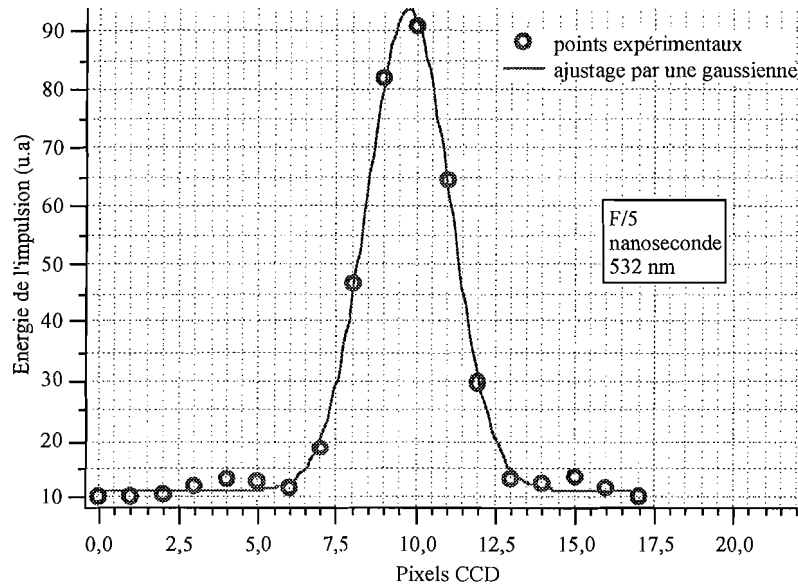


Figure II.7 : Vue en coupe du profil spatial du faisceau laser dans le plan focal détecteur.

II.2.B. Caractérisation du système ouvert à F/34

Nous avons développé ce banc afin d'obtenir un spot de focalisation plus large que dans le banc ouvert à F/5. Ce banc nous a permis d'étudier plus précisément l'aspect « propriétés matériau » des échantillons non linéaires.

II.2.B.1. Caractéristiques du montage en régime picoseconde

Le schéma expérimental est représenté sur la figure II.8. La voie de référence permet de contrôler en temps réel l'énergie de sortie du laser. Dans la voie de mesure, tout le flux est collecté par une lentille de grande ouverture (F/5). Le flux sortant est alors refocalisé sur la photodiode de mesure D_2 .

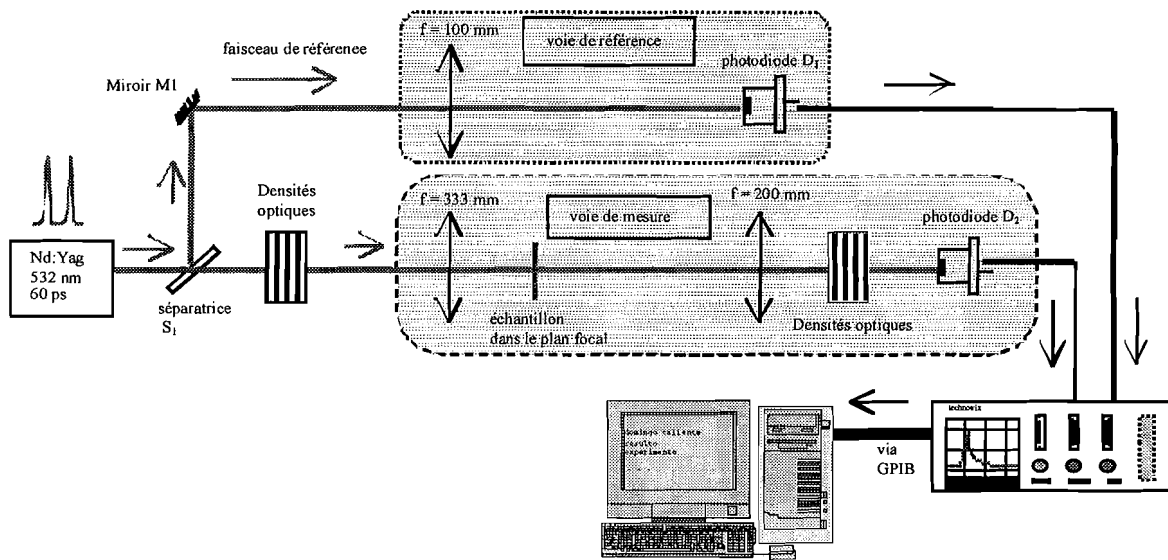


Figure II.8 : Représentation du banc expérimental.

Pour mesurer la taille du faisceau au foyer, nous mesurons la divergence totale θ du faisceau à l'aide d'une caméra CCD. Nous procédons de la manière suivante : connaissant la position exacte du foyer, nous éloignons la caméra d'une distance z et mesurons le diamètre $2w(z)$ du spot laser à $1/e^2$ du maximum à l'aide de notre logiciel d'acquisition vidéo. Nous répétons cette mesure pour plusieurs distances z (figure II.9).

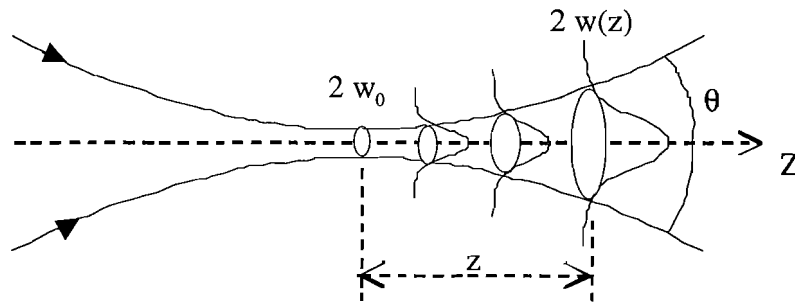


Figure II.9 : Mesure de la divergence du faisceau pour déterminer la valeur du waist w_0 au foyer.

Nous faisons l'hypothèse d'un spot spatial rigoureusement gaussien et dont la loi de propagation est gouvernée par l'équation (II.2) :

$$w(z)^2 = w_0^2 \left(1 + \left(\frac{z}{Z_r} \right)^2 \right) \tag{II.2}$$

avec w_0 le waist au foyer, et Z_r la longueur de Rayleigh.

La divergence totale θ du faisceau est reliée au waist w_0 , par l'équation (II.3) :

$$2w_0 = \frac{4\lambda}{\pi\theta} \quad . \quad (II.3)$$

Nous trouvons ainsi une valeur de w_0 égale à **$18 \pm 1 \mu\text{m}$** . **La longueur de Rayleigh associée est ici égale à $1,9 \text{ mm}$** .

II.2.B.2. Caractéristiques du montage en régime nanoseconde

Le montage est sur le principe identique au banc picoseconde. Toutefois, les sources laser ne possédant pas les mêmes dimensions caractéristiques, nous utilisons une lentille de focale 100 mm en amont de l'échantillon.

Nous pratiquons la même méthode que précédemment pour mesurer la taille du spot laser au foyer. En mesurant la divergence naturelle après la focalisation, nous trouvons une valeur de w_0 égale approximativement à **$17,5 \pm 1 \mu\text{m}$** . **La longueur de Rayleigh associée est ici égale à $1,8 \text{ mm}$** .

II.3. Montages expérimentaux appliqués aux expériences de pompe-sonde et de Z-scan.

II.3.A. L'autocorrélateur

L'autocorrélateur que nous avons développé pour la mesure de la durée d'impulsion de notre laser picoseconde est typiquement une expérience de pompe-sonde à une longueur d'onde. Le faisceau sonde et le faisceau pompe proviennent de la même source impulsionnelle et sont séparés en deux voies (figure II.10). Afin de couvrir un décalage temporel de 300 picosecondes, l'impulsion de sonde doit être translatée spatialement de 90 mm ($300 \cdot 10^{-12} \text{ s} \times 3 \cdot 10^8 \text{ m/s}$). Ce procédé est tout particulièrement intéressant pour la mesure des temps de vie transitoires dans les mécanismes d'absorption saturable inverse. Faute de temps, nous n'avons malheureusement pas développé une telle expérience pour étudier les caractéristiques spectroscopiques de nos échantillons. Pour satisfaire cette étude, il serait nécessaire d'obtenir un décalage temporel de quelques nanosecondes, et donc de translater le faisceau sonde de quelques dizaines de centimètres.

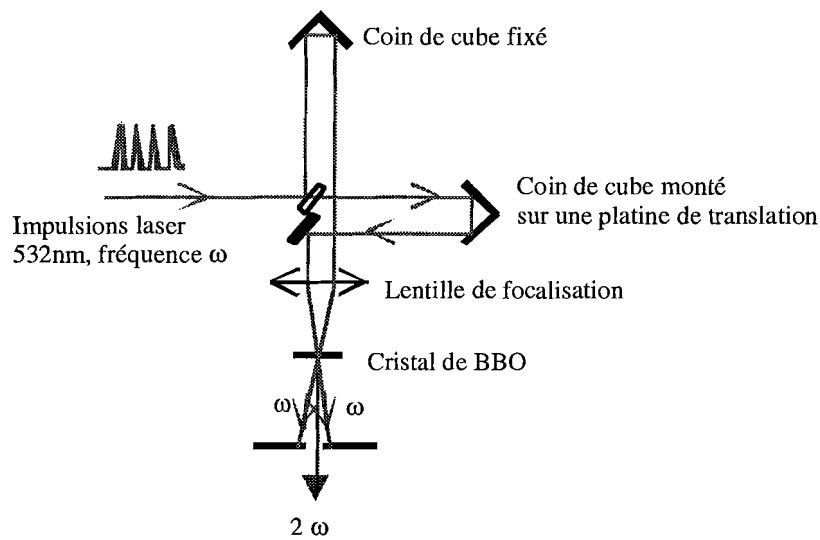


Figure II.10 : Expérience de pompe sonde à une longueur d'onde de 532 nm appliquée à l'autocorrélateur.

II.3.B. Pompe-sonde à deux faisceaux

Les expériences de pompe et sonde que nous avons développées font intervenir deux faisceaux indépendants. Le faisceau de pompe est le laser Nd :Yag impulsif à 532 nm, et le faisceau sonde est un laser HeNe continu à 633 nm (rouge) ou 547 nm (vert). Toutes ces expériences ont été appliquées dans le système ouvert à F/34 en régime impulsif nanoseconde (figure II.11). Bien que ce type de montage ne permette pas d'étudier les mécanismes moléculaires de temps de vie inférieur à la durée de l'impulsion, nous avons pu étudier les mécanismes d'origine thermique (cf chapitre IV). Le faisceau de référence permet de contrôler en temps réel l'énergie du laser de pompe. Sur la voie de mesure, le trajet du faisceau laser HeNe (faisceau sonde) est réglé pour passer à travers un iris désigné « iris Ø2 » sur la figure II.11. Le faisceau laser Nd : Yag peut être translaté par l'intermédiaire d'une lame épaisse S_2 . Dans le chapitre I, nous décrivons plus en détail la fonction de chaque élément du montage pour la mesure du temps de diffusion thermique et de la vitesse de propagation acoustique.

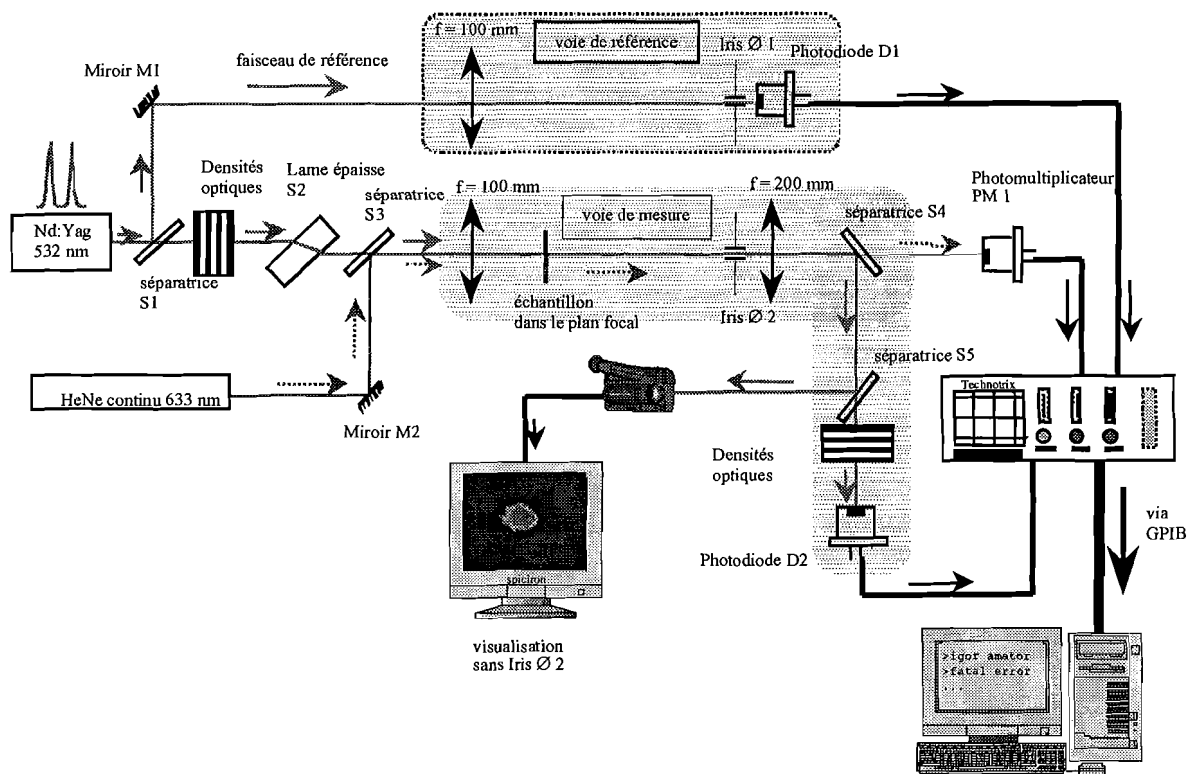


Figure II.11 : Montage expérimental de pompe et sonde à deux longueurs d'onde en régime nanoseconde.

II.3.C. Banc expérimental de Z-scan

Toutes les expériences liées à l'étude des mécanismes de réfraction non linéaires ont été pratiquées dans le système ouvert à $F/34$ (dans les deux régimes impulsions). Les expériences de Z-scan ont été effectuées à un seul faisceau (le faisceau impulsif à 532 nm). Le banc de référence (voir figure II.11) est identique au banc de mesure. Les deux iris (« iris Ø 1 » et « iris Ø 2 ») sont placés sur le centre du faisceau. Le diamètre de ces iris est 1 mm, et ils sont placés 40 cm derrière le plan de focalisation. Tenir compte d'une référence améliore le rapport signal à bruit des mesures. La caméra CCD permet de positionner avec précision les iris « iris Ø 1 et Ø 2 » sur le centre du faisceau laser. Le système d'acquisition est commun à toutes nos expériences. Un ordinateur récupère en temps réel les données affichées par l'oscilloscope numérique.

II.4. Caractéristiques de la source accordable à 620 nm en régime nanoseconde

La caractérisation de nos matériaux a été essentiellement menée à la longueur d'onde de 532 nm. Toutefois, dans le cadre de l'étude des matériaux limiteurs utilisant le mécanisme de l'absorption à deux photons, nous avons utilisé une source laser accordable dans le visible. Nous décrivons ici brièvement le montage expérimental (figure II.12).

Le laser à colorant est constitué d'un milieu amplificateur (colorant de sulforhodamine 640 dilué dans l'eau), de trois miroirs M1, M2 et M3 traités et d'un prisme. Le prisme permet d'accorder la longueur d'onde. Le colorant présente une émission maximale vers 620 nm. Le milieu est pompé par le laser impulsif Nd : Yag à 532 nm, de durée d'impulsion 10 nanosecondes délivrées à une cadence variable de 1 à 20 Hz. En sortie de cavité, le filtre élimine le faisceau vert et transmet le faisceau rouge.

L'usage d'un spectromètre nous a permis de vérifier la longueur d'onde d'émission laser. Nous avons donc travaillé à 620 nm. Le faisceau est ensuite étendu dans un système afocal puis nous avons caractérisé nos échantillons dans le système ouvert à F/5.

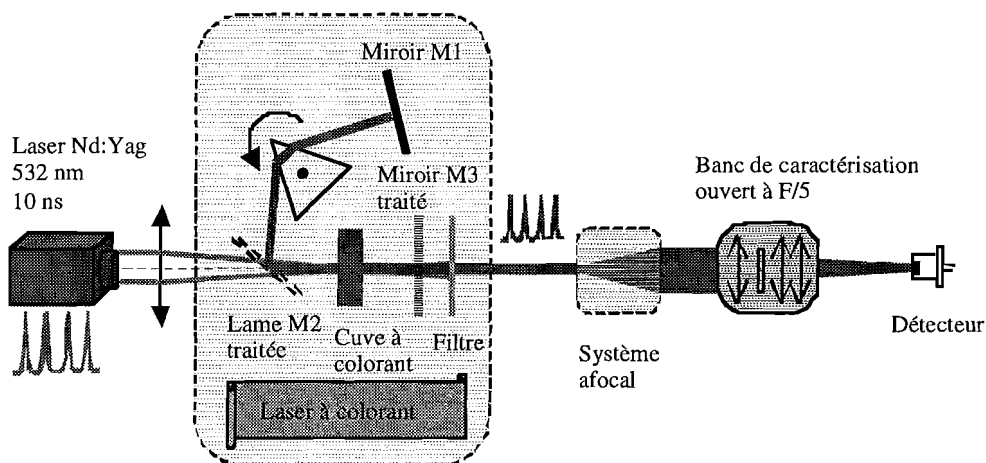


Figure II.12 : Schéma expérimental du banc de caractérisation nanoseconde à la longueur d'onde de 620 nm.

Le profil temporel du faisceau est comparable à celui de l'impulsion de pompe, la durée totale de l'impulsion est d'environ 10 nanosecondes (à 1/e du maximum). Bien que légèrement elliptique, le profil spatial (figure II.13) est proche d'un mode TEM₀₀. Une mesure avec la caméra donne **un rayon moyen de 6,2 μm** (les profils transverses du petit et grand axe donnent respectivement des waists de 4,6 μm et 7,7 μm), **la longueur de Rayleigh associée est égale à 195 μm**. Les dimensions obtenues ici ne sont pas aussi faibles que celles mesurées à 532 nm. L'énergie délivrée par le laser à colorant est d'environ **230 microjoules**. Le choix du grandissement du système afocal est un compromis entre une énergie suffisamment élevée et une

focalisation suffisamment forte dans le système ouvert à F/5. En étendant trop fortement le faisceau avec le système afocal, beaucoup d'énergie est perdue alors que la focalisation est peu améliorée dans le plan focal du système ouvert à F/5. Le système afocal n'est donc pas optimisé pour couvrir uniformément la pupille d'entrée du banc de caractérisation. C'est pourquoi le spot de focalisation n'est pas limité par diffraction.

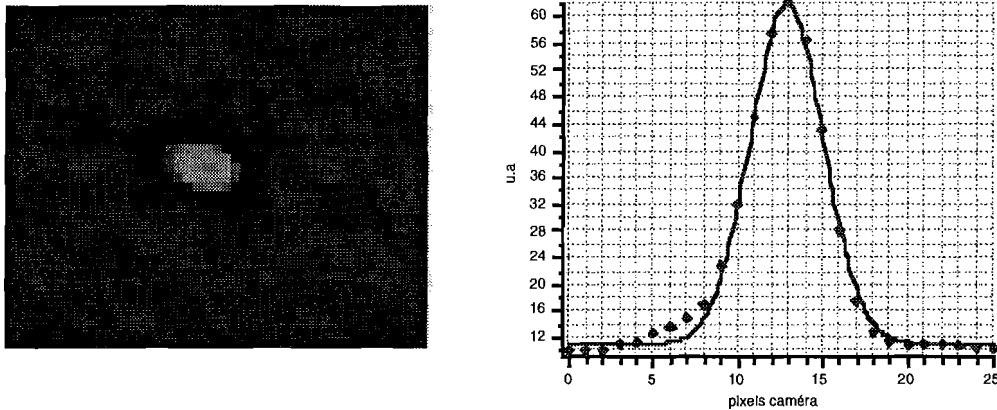


Figure II.13 : Profil spatial et vue en coupe. Ajustage par une gaussienne.

II.5. Résumé des caractéristiques des bancs expérimentaux

Nous résumons sur les deux figures suivantes les densités d'énergie (figure II.14) et éclairements (figure II.15) que l'on obtiendrait dans chacun des bancs expérimentaux en prenant comme énergie incidente l'énergie maximale délivrée par la source de caractérisation. Pour la longueur d'onde de 532 nm, l'énergie disponible dans chacun des bancs expérimentaux est environ 1,5 mJ. Elle ne vaut que 150 μJ pour la longueur d'onde de 620 nm (laser à colorant).

Ces figures montrent que l'on peut atteindre des densités d'énergie théoriques supérieures à 10^4 J/cm^2 , correspondant à des éclairements supérieurs à 10^{14} W/cm^2 . Dans la pratique, nous n'atteignons jamais ces valeurs car il apparaît un phénomène de claquage de l'air, créant de l'autodiffusion. Pour les spots les plus petits (2,5 et 2,8 μm), la densité d'énergie est divisée par mille lorsqu'on se déplace de 1,5 mm. Cela démontre qu'une très faible erreur de positionnement (quelques centaines de micromètres) peut avoir des conséquences dramatiques sur la tenue au flux des échantillons. Ces courbes sont à comparer avec les épaisseurs de nos échantillons. Les plus faibles font quelques dizaines de micromètres, puis 500 micromètres, 1, 2 et 10 millimètres. Les plus épais sont auto-protégés car la face avant de l'échantillon est éloignée du foyer. Les plus minces risquent de s'endommager plus rapidement.

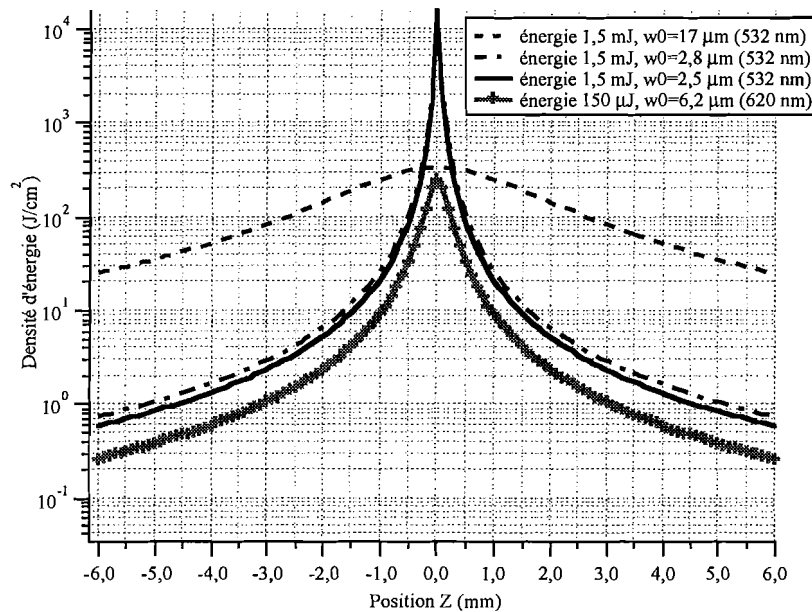


Figure II.14 : Répartitions de la densité d'énergie pour différentes positions de l'échantillon dans chacun des bancs expérimentaux. L'énergie maximale vaut 1,5 mJ (à 532 nm) et 150 μ J (à 620 nm).

Les pointillés désignent le système ouvert à F/34 (F/34 ps et ns), (532 nm, en régime nanoseconde et picoseconde avec un waist au foyer égal à $w_0=17 \mu\text{m}$). Les pointillés traits-points (F/5 ns) désignent le système ouvert à F/5, (532 nm, en régime nanoseconde avec un waist au foyer égal à $w_0=2,8 \mu\text{m}$).

Le trait plein (F/5 ps) désigne le système ouvert à F/5, (532 nm, en régime picoseconde avec un waist au foyer égal à $w_0=2,5 \mu\text{m}$). Le trait plein + croix (F/5 ns colorant) désigne le système ouvert à F/5, (620 nm, en régime nanoseconde avec un waist au foyer égal à $w_0=6,2 \mu\text{m}$).

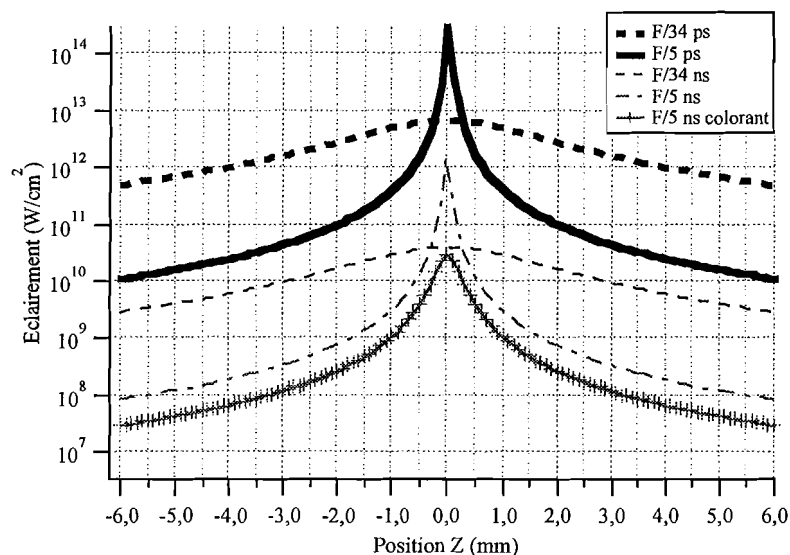


Figure II.15 : Répartitions de l'éclairement pour différentes positions de l'échantillon dans chacun des bancs expérimentaux. L'énergie maximale vaut 1,5 mJ (à 532 nm) et 150 μ J (à 620 nm). Les courbes en « gras » correspondent aux impulsions de durée 30 ps et les courbes « fines » aux impulsions de durée 5 ns. Les tirets gras (F/34 ps) désignent le système ouvert à F/34 à 532 nm en régime picoseconde avec un waist au foyer de 17 μm . Le trait plein gras (F/5 ps) désigne le système ouvert à F/5 à 532 nm en régime picoseconde avec un waist au foyer égal à 2,5 μm . Les tirets fins (F/34 ns) désignent le système ouvert à F/34 à 532 nm en régime nanoseconde avec un waist de 17 μm . Les pointillés traits-points (F/5 ns) désignent le système ouvert à F/5 à 532 nm en régime nanoseconde avec un waist de 2,8 μm . Le trait plein + croix (F/5 ns colorant) désigne le système ouvert à F/5, (620 nm, en régime nanoseconde avec un waist au foyer égal à $w_0=6,2 \mu\text{m}$).

II.6. Conclusion sur les bancs expérimentaux.

Les bancs expérimentaux ont été élaborés pour étudier des spécificités non linéaires des matériaux. Nous verrons dans le chapitre suivant que les performances d'un même matériau non linéaire dépendent de la géométrie de faisceau (banc ouvert à $F/5$ et $F/34$). C'est pourquoi, pour étudier par exemple uniquement l'influence de la durée d'impulsion, nous avons dû caractériser le matériau avec la même géométrie de faisceau. Les faisceaux laser picoseconde et nanoseconde possèdent en sortie de cavité des géométries assez différentes. Nous avons dû corriger ces différences pour obtenir dans la mesure du possible des caractéristiques géométriques assez semblables. Dans les chapitres suivants, pour chaque expérience, nous rappelons le type de banc (sans le décrire) en le désignant par « système ouvert à $F/5$ ou à $F/34$ », en rappelant quand même les caractéristiques essentielles.

