



**HAL**  
open science

# Etude par génération de second harmonique des propriétés optiques non linéaires du tétraborate de lithium ( $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ )

Abderrahmane Sifi

► **To cite this version:**

Abderrahmane Sifi. Etude par génération de second harmonique des propriétés optiques non linéaires du tétraborate de lithium ( $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ ). Autre [cond-mat.other]. Université Paul Verlaine - Metz, 2002. Français. NNT : 2002METZ010S . tel-01749754

**HAL Id: tel-01749754**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01749754>**

Submitted on 29 Mar 2018

**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.



## AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : [ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr](mailto:ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr)

## LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

[http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg\\_droi.php](http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

**Ecole doctorale EMMA**

**THESE**

Pour l'obtention du grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE METZ**

**Discipline : Physique (Option Optoélectronique)**

Présentée par :

*Abderrahmane SIFI*

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE - METZ	
N° inv.	2002 0315
Cote	S/M7 02/10
Loc	

**Etude par génération de second harmonique des propriétés optiques non linéaires du tétraborate de lithium ( $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ ).**

Soutenue le 23 octobre 2002 devant la commission d'examen :

<b>François BREHAT</b>	Professeur à l'Université de Nancy I (Président)
<b>Jacques BOUILLOT</b>	Professeur à l'Université de Savoie (Rapporteur)
<b>Marcel TOUBOUL</b>	Professeur à l'Université de Picardie (Rapporteur)
<b>Jean-Jacques ZONDY</b>	Chercheur (CNRS) à l'Observatoire de Paris (Examineur)
<b>Daniel RYTZ</b>	Docteur d'État, Ingénieur à la Société FEE, Allemagne (Examineur)
<b>Régine MAILLARD</b>	Maître de Conférences à l'Université de Metz (Co-directeur de Thèse)
<b>Godefroy KUGEL</b>	Professeur à l'Université de Metz (Directeur de Thèse)

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE DE METZ



031 465856 6

## Ecole doctorale EMMA

### THESE

Pour l'obtention du grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE METZ**

**Discipline : Physique (Option Optoélectronique)**

Présentée par :

*Abderrahmane SIFI*

**Etude par génération de second harmonique des propriétés optiques non linéaires du tétraborate de lithium ( $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ ).**

Soutenue le 23 octobre 2002 devant la commission d'examen :

<b>François BREHAT</b>	Professeur à l'Université de Nancy I (Président)
<b>Jacques BOUILLOT</b>	Professeur à l'Université de Savoie (Rapporteur)
<b>Marcel TOUBOUL</b>	Professeur à l'Université de Picardie (Rapporteur)
<b>Jean-Jacques ZONDY</b>	Chercheur (CNRS) à l'Observatoire de Paris (Examineur)
<b>Daniel RYTZ</b>	Docteur d'État, Ingénieur à la Société FEE, Allemagne (Examineur)
<b>Régine MAILLARD</b>	Maître de Conférences à l'Université de Metz (Co-directeur de Thèse)
<b>Godefroy KUGEL</b>	Professeur à l'Université de Metz (Directeur de Thèse)



إهداء  
إلى أعز وأغلى ما لدي في الوجود،  
أمي وأبي،  
إلى إخوتي وأخواتي  
أهدي هذا العمل.

*A tous ceux qui me sont chers : Mes parents*

*Mes frères et soeurs*

## Remerciements

*Ce travail a été effectué au laboratoire Matériaux Optiques, Photonique et Systèmes (LMOPS CNRS FRE 2304), laboratoire commun à l'Université de Metz et à Supelec. Je tiens à remercier Monsieur Marc Fontana de m'avoir accepté au sein du laboratoire.*

*Merci à Messieurs Jacques Bouillot et Marcel Touboul qui m'ont fait l'honneur d'être rapporteurs de ce travail et qui y ont porté une attention toute particulière.*

*Je suis très reconnaissant envers Messieurs François Brehat, Jean Jacques Zondy et Daniel Rytz d'avoir accepté de considérer mon travail. Je tiens à les remercier également pour les discussions très enrichissantes que nous avons eu.*

*Toute ma gratitude va à Monsieur Godefroy Kugel d'avoir dirigé ce travail et pour sa disponibilité malgré ses diverses tâches administratives et scientifiques. Sa qualité scientifique et ses critiques constructives font du travail avec lui une chance et un privilège.*

*Bien entendu, mes plus sincères remerciements à Madame Régine Maillard qui a su diriger ce travail. Durant ces années, elle m'a initié au difficile travail expérimental et théorique.*

*J'exprime mes remerciements à Monsieur Alain Maillard pour les différents échantillons qu'il m'a fourni.*

*Je remercie Madame Katalin Polgar et Madame Agnes Peter, qui nous ont fournis les cristaux de  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ ,  $\text{BaB}_2\text{O}_4$  et  $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$  ainsi que pour les échanges fructueux que j'ai pu avoir avec elles.*

*Je tiens également à exprimer ma reconnaissance à mes neveux et nièces pour leur aide et leur soutien.*

*Bien entendu, je remercie Mesdames Jeannine Zayer et Frédérique Voltz ainsi que Mademoiselle Evelyne Doriat et Monsieur Jean Claude Petit qui participent pleinement au bon fonctionnement du laboratoire.*

*Mes remerciements seront également à l'ensemble des membres de laboratoire CLOES et particulièrement ceux de laboratoire MOPS.*

*Enfin, j'associe à ces remerciements tous mes amis en particulier ceux avec qui j'ai partagé tous les moments de ces années de thèse : Mustapha Abarkan, Aziz Ahaitouf, Saida Bahsine, Chakir Bakhouya, Mohamed Bensaleh, Abdelbaki Elbelrhiti-Elalaoui, Aziz Elmanfalouti, Abderrazek Elyadouni, Abdelouahed Essahlaoui, M'hamed Mostefa et Mouras Rabah en souhaitant bonne chance à ceux qui n'ont pas encore soutenu leur thèse et en espérant que notre amitié durera pour toujours.*

---

# TABLE DES MATIERES

---

<b>INTRODUCTION GENERALE</b> .....	<b>01</b>
------------------------------------	-----------

## CHAPITRE I

### *Présentation des Borates*

#### *et spécifiquement du Tétraborate du Lithium*

<b>I-1. Introduction</b> .....	<b>2</b>
<b>I-2. Propriétés structurales des borates</b> .....	<b>2</b>
I-2-a) Unités structurales de base .....	2
I-2-b) Structure de différents borates.....	4
✓ Métaborate de Baryum $BaB_2O_4$ (BBO).....	4
✓ Triborate de Lithium $LiB_3O_5$ (LBO).....	4
✓ Borate de Césium et de Lithium $CsLiB_6O_{10}$ (CLBO).....	5
✓ Borate de Césium $CsB_3O_5$ (CBO).....	6
✓ Tétraborate de Lithium $Li_2B_4O_7$ (LTB).....	6
I-2-c) Résumé des propriétés structurales des principaux borates.....	8
<b>I-3. Croissance de borates</b> .....	<b>8</b>
I-3-a) Métaborate de Baryum $\beta$ -BBO.....	9
I-3-b) Triborate de Lithium LBO.....	10
I-3-c) Borate de Césium CBO, Borate de Césium et de Lithium CLBO.....	12
I-3-d) Tétraborate de Lithium LTB.....	13
I-3-e) Autres borates .....	14
<b>I-4. Propriétés tensorielles des différents borates</b> .....	<b>16</b>
<b>I-5. Propriétés optiques linéaires des borates</b> .....	<b>19</b>
I-5-a) Transmission optique.....	19
I-5-b) Indices de réfraction.....	19
✓ $\beta$ -BBO.....	19
✓ LBO.....	20
✓ CLBO.....	21
✓ CBO.....	22
✓ LTB.....	23

I-5-c) Autres grandeurs caractéristiques.....	24
<b>I-6. Propriétés non linéaires des borates.....</b>	<b>25</b>
I-6-a) Seuil de dommage optique.....	25
I-6-b) Domaines d'application des borates.....	25
I-6-c) Propriétés de GSH.....	26
<b>I-7. Conclusion.....</b>	<b>29</b>

## CHAPITRE II

### *Théorie de la génération de second harmonique*

<b>II-1. Effets en optique non linéaire.....</b>	<b>31</b>
II-1-1) Introduction.....	31
II-1-2) Développement non linéaire de la polarisation diélectrique.....	31
II-1-2-a) Ecriture tensorielle simplifiée.....	31
II-1-2-b) Effets correspondants à ces différents termes.....	32
II-1-3) Cas de la génération de second harmonique (GSH).....	33
<b>II-2. Rendement de conversion dans le cas d'une onde plane.....</b>	<b>34</b>
II-2-1) Approximation de l'enveloppe lentement variable.....	35
II-2-2) Génération de second harmonique.....	36
<b>II-3. Etude de l'accord de phase dans les cristaux NL uniaxes.....</b>	<b>37</b>
II-3-1) Accord de phase colinéaire et non colinéaire.....	37
II-3-2) Différents types d'accord de phase.....	37
II-3-3) Condition sur les indices dans le cas de l'accord de phase colinéaire.....	38
II-3-4) Calcul de l'angle d'accord de phase.....	39
II-3-4-a) Cristal uniaxe.....	39
II-3-4-b) Cas de LTB.....	41
<b>II-4. Développement des coefficients non linéaires effectifs <math>d_{eff}</math> pour un cristal non linéaire en fonction des <math>d_{ij}</math>.....</b>	<b>41</b>
II-4-1) Cas d'un cristal uniaxe.....	41
II-4-2) Cas de LTB.....	45
<b>II-5. Notion de walk-off.....</b>	<b>46</b>
II-5-1) Direction de polarisation du vecteur de déplacement électrique.....	46
II-5-2) Angle walk-off.....	48
<b>II-6. Acceptance angulaire.....</b>	<b>49</b>

II-6-1) Cas d'un cristal uniaxe .....	49
II-6-2) Cas de LTB.....	51
<b>II-7. Efficacité de conversion de la GSH dans le cas d'un faisceau gaussien.....</b>	<b>51</b>
II-7-1) Configuration géométrique, paramètres du champ électrique dans le cas du faisceau gaussien.....	52
II-7-2) Polarisation induite.....	53
II-7-3) Champ harmonique.....	54
II-7-4) Puissance harmonique.....	57
II-7-5) Le cas du faisceau cylindrique ( $L \ll Z_R$ ).....	58
II-7-5-a) Optimisation de la puissance de SHG.....	58
II-7-5-b) L'expression limite pour le type I.....	58
II-7-5-b) L'expression limite pour le type II.....	59
II-7-6) Optimisation de rendement de conversion de GSH.....	59
II-7-6-a) Optimisation de la longueur de cristal .....	60
II-7-6-b) Optimisation de la position du col à l'intérieur du cristal.....	60
<b>II-8. Résumé et conclusion.....</b>	<b>61</b>

### CHAPITRE III

#### *Banc et technique de mesure des propriétés*

#### *optiques non linéaires par génération de second harmonique*

<b>III-1. Introduction.....</b>	<b>64</b>
<b>III-2. Banc de mesure de GSH.....</b>	<b>64</b>
III-2-1) Description du banc et des éléments optiques.....	64
III-2-1-a) Banc de mesure.....	65
III-2-1-b) Description de la source.....	67
III-2-1-c) Les éléments optiques.....	68
<b>III-3. Caractérisation du faisceau à l'entrée du cristal.....</b>	<b>70</b>
III-3-1) Considérations théoriques.....	70
III-3-1-a) Expression d'un faisceau gaussien.....	70
III-3-1-b) Transformation d'un faisceau gaussien.....	71
III-3-1-c) Application à notre cas.....	72
III-3-2) Principe de mesure du col et résultats.....	72
III-3-2-a) Principe.....	72
III-3-2-b) Résultats de mesure.....	73

III-3-3) Conclusion .....	80
<b>III-4. Technique de mesure d'angles d'accord de phase.....</b>	<b>80</b>
<b>III-5. Technique de mesure de <math>d_{eff}</math>.....</b>	<b>81</b>
III-5-1) Outils numériques utilisés dans la mesure .....	81
III-5-2) Technique de mesure .....	84
<b>III-6. Mesure de l'acceptance angulaire.....</b>	<b>84</b>
III-6-1) Faisceau gaussien .....	85
III-6-2) Comparaison entre les courbes de l'onde plane et du faisceau gaussien .....	85
III-6-3) Tableau récapitulatif .....	87
<b>III-7. Conclusion.....</b>	<b>87</b>

## CHAPITRE IV

### Résultats expérimentaux et interprétations

<b>IV-1. Introduction .....</b>	<b>89</b>
<b>IV-2. Mesure du coefficient <math>d_{eff}</math> .....</b>	<b>89</b>
IV-2-1) Mesures sur BBO .....	89
IV-2-1-a) Quelques rappels sur BBO et cristaux disponibles .....	89
IV-2-1-b) Résultats expérimentaux sur BBO .....	90
IV-2-1-c) Conclusion .....	90
IV-2-2) Mesures sur LTB .....	91
IV-2-2-a) Mesure de l'angle d'accord de phase de type I .....	91
IV-2-2-b) Mesure de $d_{eff}$ .....	91
IV-2-3) Mesure de $d_{eff}$ sur LTB dopé MgO .....	94
IV-2-4) Mesures sur CLBO .....	95
IV-2-4-a) Échantillons disponibles .....	96
IV-2-4-b) Mesure de $d_{eff}$ .....	97
<b>IV-3. Mesure de l'acceptance angulaire .....</b>	<b>99</b>
IV-3-1) Acceptance angulaire pour BBO .....	99
IV-3-2) Acceptance angulaire pour LTB .....	103
IV-3-3) Acceptance angulaire pour CLBO .....	106
IV-3-3-a) Résultats expérimentaux .....	106
IV-3-3-b) Extrapolation de l'acceptance angulaire .....	110
IV-3-4) Conclusion .....	111
<b>IV-4. Conclusion .....</b>	<b>111</b>

CONCLUSION GENERALE.....	113
PERSPECTIVES .....	115
REFERENCES.....	117

## ANNEXE A

### *Croissance et préparation de LTB*

<i>A-1. Introduction.....</i>	<i>A-2</i>
<i>A-2. Dispositif de croissance mis au point au laboratoire MOPS .....</i>	<i>A-2</i>
<i>A-3. Présentation schématique du four.....</i>	<i>A-3</i>
<i>A-4. Présentation de la méthode Czochralski .....</i>	<i>A-3</i>
<i>A-5. Difficultés rencontrées et qualité cristalline .....</i>	<i>A-5</i>
<i>A-6. Différentes origines donnant lieu au phénomène Twist- Tilt.....</i>	<i>A-6</i>
<i>A-7. Polissage et coupe .....</i>	<i>A-7</i>

## ANNEXE B

### *Cristaux biaxes*

<i>B-1. Calcul de l'angle d'accord de phase .....</i>	<i>B-2</i>
<i>B-1-a) Dépendance spatiale des indices de réfraction .....</i>	<i>B-2</i>
<i>B-1-b) Recherche de l'accord de phase .....</i>	<i>B-2</i>
<i>B-1-c) Direction d'accord de phase.....</i>	<i>B-3</i>
<i>B-1-d) Calcul numérique de la direction d'accord de phase.....</i>	<i>B-6</i>
<i>B-2. Développement des coefficients non linéaires effectifs <math>d_{eff}</math> pour un cristal biaxe en fonction des <math>d_{ij}</math> .....</i>	<i>B-6</i>
<i>B-2-a) Polarisation induite .....</i>	<i>B-6</i>
<i>B-2-b) Composantes du champ électrique .....</i>	<i>B-6</i>
<i>B-2-c) Développement de <math>d_{eff}</math>.....</i>	<i>B-8</i>
<i>B-3. Acceptance angulaire .....</i>	<i>B-8</i>

## ANNEXE C

### *Programme de mesure expérimental de $d_{eff}$*

<i>C-1. Programme de mesure expérimental de <math>d_{eff}</math>.....</i>	<i>C-1</i>
---	------------

**ANNEXE D**

*Franges de Maker*

**D-1. Introduction.....D-2**

**D-2. Théorie des franges de Maker .....D-2**

    D-2-1) Description du phénomène ..... D-2

    D-2-2) Génération et propagation de l'onde harmonique ..... D-3

    D-2-3) Intensité et puissance en sortie du cristal..... D-5

**D-3. Mesure de coefficient  $d_{33}$  du cristal LTB.....D-7**

    D-3-1) Configuration géométrique..... D-7

    D-3-2) Résultats expérimentaux ..... D-8

    D-3-3) Commentaire ..... D-8

    D-3-4) Perspectives ..... D-9



# Introduction

Les propriétés de radiations laser sont largement utilisées dans de nombreuses applications; mais seules des parties limitées du spectre optique peuvent être produites directement. Grâce à l'optique non linéaire (ONL), le rayonnement optique peut être converti d'une fréquence en une autre, augmentant ainsi la plage des applications possibles.

En général, un bon matériau pour l'ONL doit être optiquement transparent au rayonnement laser incident et généré, posséder des coefficients non linéaires suffisamment élevés, permettre le mélange de phase, supporter les intensités laser sans être endommagé et être stable chimiquement.

Depuis 1961, date de la découverte de la génération de second harmonique (GSH) dans les cristaux [Franken 1961], plus d'une centaine de matériaux ONL ont été découverts comme par exemple les isomorphes de  $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{PO}_4$  (ADP) ( $\text{KH}_2\text{PO}_4$  (KDP),  $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{AsO}_4$  (ADA),  $\text{CsH}_2\text{AsO}_4$  (CDA)...), les ferroélectriques de type  $\text{ABO}_3$  ( $\text{KNbO}_3$ ,  $\text{LiNbO}_3$ , ...), le  $\text{KTiOPO}_4$  (KTP) et ses isomorphes ou encore les composés de la famille des borates et oxo-borate ( $\text{BaB}_2\text{O}_4$  (BBO),  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  (LBO),  $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$  (CLBO),  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  (LTB),  $\text{GdCa}_4(\text{BO}_3)\text{O}$  (GdCOB) ...).

Les borates sont en général des matériaux très intéressants pour l'optique non linéaire grâce à leurs excellentes propriétés telles que:

- coefficients de GSH relativement élevés.
- grande plage de transparence.
- seuil de dommage optique très élevé.
- bonne stabilité chimique et leurs cristaux sont de bonnes qualités et de grandes dimensions.

Le tétraborate de lithium LTB est connu depuis 1962 ; ses propriétés optiques n'ont été étudiées qu'à partir de 1982. Il est devenu, dans ces dernières décennies, l'un des matériaux prometteurs dans le domaine de l'optique. Grâce à son large domaine de transparence et son seuil d'endommagement optique élevé, il peut être employé en optique non linéaire pour générer des nouvelles sources lasers par la génération d'harmonique (GSH...) et est surtout utilisé pour d'autres applications : domaines industriels, médicaux ou encore militaires (onde

de surface acoustique (SAW) ) [Sugawara 1998]. Afin d'améliorer les propriétés ONL, l'effet de dopage sur les cristaux de LTB a été étudié [Kwon 1997].

Nous proposons ici une étude de cristaux borates et en particulier de LTB par GSH dont le principe repose sur la création d'une onde harmonique ( $2\omega$ ) sous l'effet d'une onde fondamentale ( $\omega$ ).

L'efficacité de conversion de l'onde à  $\omega$  en une onde à  $2\omega$  dépend des coefficients non linéaire NL. Les différentes valeurs de ces coefficients trouvées dans la littérature sont souvent relatives à un cristal du référence (quartz, KDP...), et les résultats rapportés par les différents auteurs sont parfois contradictoires, la valeur de référence étant elle même controversée. Cette diversité de valeurs trouvée pour un même composé dans la littérature, nous a conduit à privilégier une mesure absolue des coefficients par la technique d'accord de phase. C'est dans ce contexte que se déroule notre travail ayant pour titre *«Étude par génération de second harmonique des propriétés ONL du tétraborate de lithium LTB»*.

Notre étude se compose de quatre chapitres:

Le premier chapitre est consacré à la présentation des principaux résultats de la littérature sur les cristaux de la famille des borates tels que BBO, LBO, CBO, CLBO et LTB. Après avoir décrit leur structure et leurs caractéristiques de croissance, nous présentons leurs propriétés optiques linéaires et non linéaires. Nous donnons un rappel de la symétrie et de la structure cristallographique des différents borates et nous abordons les différentes techniques utilisées pour l'élaboration des cristaux. Ensuite, nous présentons les différentes propriétés linéaires

(domaine de transparence, indices de réfraction...) et non linéaires, et plus particulièrement celles de GSH.

Le deuxième chapitre est consacré à l'étude de la théorie de la GSH dans le cas d'une onde plane et d'un faisceau gaussien. Après avoir défini le phénomène d'optique non linéaire ainsi que les différents termes de susceptibilités, l'équation de rendement de conversion est démontrée dans le cas d'une onde plane. Les différents paramètres de la GSH tels que angle d'accord de phase, développement du coefficient non linéaire  $d_{\text{eff}}$ , walk-off, acceptance angulaire sont ensuite présentés. Enfin la conversion de fréquence dans le cas d'un faisceau gaussien, ainsi que l'optimisation des différents paramètres tels que longueur du cristal, col (waist)... sont étudiés.

Le troisième chapitre est consacré à la présentation du banc de mesure et à la caractérisation du faisceau Nd :YAG. Puis, la technique de mesure du coefficient optique non

linéaire effectif ainsi que celle de l'acceptance angulaire sont décrites. Une interprétation théorique de l'acceptance angulaire dans le cas de faisceaux gaussiens est proposée.

Dans le dernier chapitre, nous reportons les valeurs expérimentales obtenues pour l'angle d'accord de phase, les coefficients ONL effectifs et l'acceptance angulaire pour les différents échantillons de la famille borate étudiés surtout BBO, LTB et CLBO.

Notons que les échantillons utilisés lors de cette étude proviennent d'une collaboration avec *Research Laboratory for Crystal Physics* de l'Académie des sciences de Budapest, et ont été élaborés par Katalin Polgar et Ágnes Péter. Certains cristaux de LTB ont été également synthétisés au *laboratoire Matériaux Optiques Photonique et Système* (MOPS) à Metz par Alain Maillard.

Pour l'intérêt et la lisibilité de ce mémoire, certains aspects du travail de cette thèse sont traités en annexes.

**L'annexe A** présente en détail la technique de croissance par la méthode Czochralski utilisée dans notre laboratoire afin de développer des cristaux de LTB de bonne qualité et de grande taille, ainsi que les difficultés rencontrées pendant la croissance.

**L'annexe B** présente les différents paramètres de GSH dans le cas des cristaux biaxes tels que : angle d'accord de phase, développement des coefficients ONL effectifs et l'acceptance angulaire. Cette annexe constitue une suite du chapitre II où nous avons démontré ces paramètres mais pour le cas des cristaux uniaxes.

**L'annexe C** montre la relation entre le rendement de conversion mesuré expérimentalement et le rendement de conversion réel  $\Gamma_{SH\text{ réel}} - K \Gamma_{SH\text{ exp}}$ . Le coefficient K tient compte des coefficients de réflexion et de transmission de différents éléments optiques intermédiaires utilisés dans le montage.

**L'annexe D** Nous donnons les résultats expérimentaux trouvés par la technique de frange de Maker sur le cristal LTB.

# Chapitre I

## *Présentation des borates et spécifiquement du tétraborate de lithium*

<b>I-1. Introduction.....</b>	<b>2</b>
<b>I-2. Propriétés structurales des borates.....</b>	<b>2</b>
I-2-a) Unités structurales de base .....	2
I-2-b) Structures des différents borates .....	4
✓ Métaborate de Baryum $BaB_2O_4$ (BBO).....	4
✓ Triborate de Lithium $LiB_3O_5$ (LBO) .....	4
✓ Borate de Césium et de Lithium $CsLiB_6O_{10}$ (CLBO) .....	5
✓ Borate de Césium $CsB_3O_5$ (CBO) .....	6
✓ Tétraborate de Lithium $Li_2B_4O_7$ (LTB).....	6
I-2-c) Résumé des propriétés structurales des principaux borates .....	8
<b>I-3. Croissance des borates .....</b>	<b>8</b>
I-3-a) Métaborate de Baryum $\beta$ -BBO.....	9
I-3-b) Triborate de Lithium LBO .....	10
I-3-c) Borate de Césium CBO, Borate de Césium et de Lithium CLBO.....	12
I-3-d) Tétraborate de Lithium LTB.....	13
I-3-e) Autres borates.....	14
<b>I-4. Propriétés tensorielles des différents borates.....</b>	<b>16</b>
<b>I-5. Propriétés optiques linéaires des borates.....</b>	<b>19</b>
I-5-a) Transmission optique.....	19
I-5-b) Indices de réfraction.....	19
✓ $\beta$ -BBO.....	19
✓ LBO .....	20
✓ CLBO.....	21
✓ CBO .....	22
✓ LTB.....	23
I-5-c) Autres grandeurs caractéristiques.....	24
<b>I-6. Propriétés non linéaires des borates.....</b>	<b>25</b>
I-6-a) Seuil de dommage optique.....	25
I-6-b) Domaines d'application des borates .....	25
I-6-c) Propriétés de GSH.....	26
<b>I-7. Conclusion.....</b>	<b>29</b>

## I-1. Introduction

Dans les cristaux borates, le bore, pouvant avoir un indice de coordination de trois ou de quatre atomes d'oxygène et peut servir à la formation soit de groupes  $\text{BO}_3$  soit de groupes  $\text{BO}_4$ , voire d'autres groupes  $\text{B}_x\text{O}_y$  [Xue 2000].

Ces diverses possibilités structurales de l'atome de bore sont une des raisons des propriétés particulières observées dans les systèmes borates dans le domaine d'optique non-linéaire [Xue 2000].

Grâce à leur résistance relativement élevée aux dommages induits par le laser, leur large fenêtre de transparence s'étendant jusque dans la région de l'ultraviolet, leur grande biréfringence et leurs coefficients optiques non linéaires (ONL) relativement élevés, les borates sont souvent employés en optique non linéaire et notamment pour la conversion de fréquences telles que la génération de second harmonique (GSH), la génération de somme ou différence de fréquence (GSF ou GDF), l'Amplificateur ou l'Oscillateur Paramétrique de fréquence (OPA ou OPO).

Le premier borate utilisé pour la génération d'ultraviolet (UV) a été  $\text{KB}_5\text{O}_8 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  ( $\text{KB}_5$ ). Cependant les borates n'ont fait l'objet d'importantes études qu'après le développement du métaborate de baryum  $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$  ( $\beta\text{-BBO}$ ) [Sasaki 2000]. D'autres borates ont été étudiées par la suite tels que  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  (LBO),  $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$  (KBBF) et  $\text{Sr}_2\text{Be}_2\text{B}_2\text{O}_7$  (SBBO) [Sasaki 2000].

De nouveaux borates tels que  $\text{CsB}_3\text{O}_5$  (CBO),  $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$  (CLBO),  $\text{YCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  (YCOB),  $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  et  $\text{K}_2\text{Al}_2\text{B}_2\text{O}_7$  (KAB) sont aussi utilisés pour la conversion de fréquence, voire plus spécifiquement pour l'auto-doublage de fréquence [Sasaki 2000].

Dans cette thèse nous nous intéressons plus particulièrement à l'étude des propriétés optiques non linéaires de tétraborate du lithium  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  (LTB), et à ses potentialités pour la génération d'harmoniques [Kwon 1994].

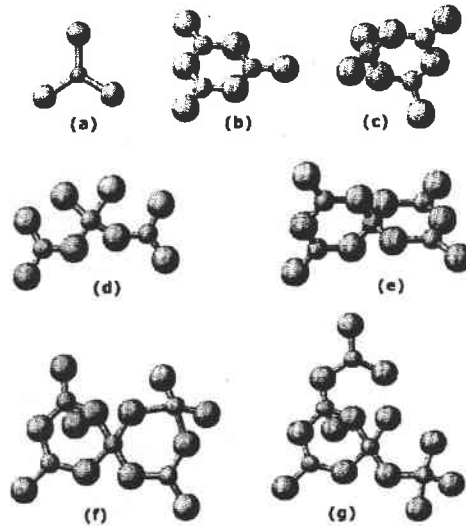
## I-2. Propriétés structurales des borates

### I-2-a) Unités structurales de base

Les propriétés optiques des borates sont étroitement reliées à la structure des groupes anioniques contenant le bore. Les unités structurales de base peuvent contenir plusieurs types de groupes  $\text{B}_x\text{O}_y$ , tels que le  $\text{BO}_3$  dans  $\text{NdAl}_3(\text{BO}_3)_4$  (NAB) et  $\text{LnCa}_4(\text{BO}_3)_3$  (LnCOB avec  $\text{Ln} = \text{Y}, \text{Gd}, \text{Sm}$ ), le groupe  $\text{B}_3\text{O}_6$  comportant trois  $\text{BO}_3$  dans  $\text{BaB}_2\text{O}_4$  (BBO) ; il y a aussi de nombreuses combinaisons des groupes  $\text{BO}_3$  et  $\text{BO}_4$  comme, par exemple, le groupe  $\text{B}_3\text{O}_7$  dans

$\text{LiB}_3\text{O}_5$  (LBO), le groupe  $\text{B}_5\text{O}_{10}$  dans  $\text{KB}_5\text{O}_8 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  (KB5), le groupe  $\text{B}_5\text{O}_{12}$  dans  $\text{Eu}_2\text{B}_5\text{O}_9\text{Cl}$  (EBOCl) et le groupe  $\text{B}_5\text{O}_{13}$  dans  $\text{Ca}_2\text{B}_5\text{O}_9\text{Br}$  (CBOBr) [Xue 2000].

La structure des différents groupes est représentée dans la figure.1 :



**Figure 1 :** Structures géométriques pour chaque groupe  $\text{B}_x\text{O}_y$  (petite sphère : bore, grande sphère : oxygène) : (a) : groupe  $\text{BO}_3$ ; (b) : groupe  $\text{B}_3\text{O}_6$ ; (c) : groupe  $\text{B}_3\text{O}_7$ ; (d) : groupe  $\text{B}_3\text{O}_8$ ; (e) : groupe  $\text{B}_5\text{O}_{10}$ ; (f) : groupe  $\text{B}_5\text{O}_{12}$  et (g) : groupe  $\text{B}_5\text{O}_{13}$

L'introduction du tétraèdre  $\text{BO}_4$  dans une structure de borate conduit aux anneaux  $\text{B}_3\text{O}_7$  ou  $\text{B}_4\text{O}_9$  et conduit aux cristaux LBO, CBO, CLBO ou LTB [Becker 1998].

Dans ce qui suit, nous allons nous intéresser plus spécifiquement à l'étude structurale des cristaux BBO, LBO, CLBO, CBO et LTB à partir des unités structurales de base : groupes anioniques  $(\text{B}_3\text{O}_6)^{3-}$ ,  $(\text{B}_3\text{O}_7)^{5-}$ ,  $(\text{BO}_3)^{3-}$  et  $(\text{B}_4\text{O}_7)^{2-}$ . En accord avec la théorie des groupes anioniques, ces unités déterminent les coefficients ONL des cristaux borates [Sasaki 2000].

Cette théorie, développée dans les années 1970 par un groupe de chercheurs chinois dirigé par le professeur C.T. Chen [Chen 1985], permet le calcul de propriétés macroscopiques (ex: susceptibilité optique non linéaire ONL) à partir des propriétés microscopiques des molécules ou de groupes constituants.

Cette étude avait mis en évidence que les borates ont des propriétés intéressantes. Aussi, de 1979 à 1984, une centaine de cristaux à base de bore et d'oxygène ont été synthétisés en fonction de leurs structures internes. Ils sont classés en une dizaine de sous-familles [Chen 1993].



## I-2-b) Structures des différents borates

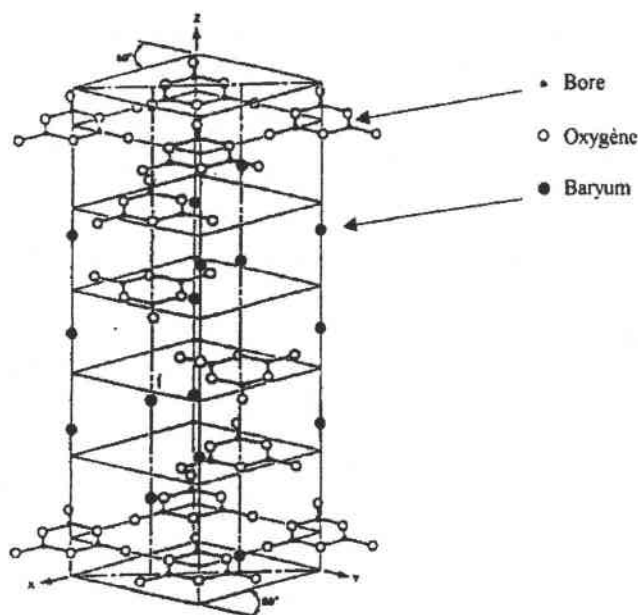
✓ Métaborate de Baryum  $\text{BaB}_2\text{O}_4$  (BBO)

Le métaborate de baryum existe sous deux phases cristallines. La phase haute température ( $\alpha$ -BBO) est centrosymétrique et ne présente donc pas de propriétés non linéaires.

La phase basse température ( $\beta$ -BBO) de symétrie hexagonale possède une structure caractérisée par des groupes annulaires quasi plans  $(\text{B}_3\text{O}_6)^{3-}$ . La température de transition de phase  $\alpha - \beta$  est égale à  $(925 \pm 25)^\circ\text{C}$ .

$\beta$ -BBO cristallise dans le groupe d'espace  $R3c$  ( $3m, C_{3v}^6$ ) et possède une structure rhomboédrique. Chaque maille élémentaire contient 6 unités  $\text{BaB}_2\text{O}_4$ , soit 4 groupes anioniques  $(\text{B}_3\text{O}_6)^{3-}$  ou encore 42 atomes par maille [Mighell 1966]. Les paramètres du réseau cristallin sont  $a = b = 12,532 \text{ \AA}$  et  $c = 12,717 \text{ \AA}$  [Chen 1991].

Les anneaux, construits à partir de 3 triangles coplanaires  $(\text{BO}_3)$ , sont empilés perpendiculairement à l'axe d'ordre 3 et reliés d'une manière ionique par les cations  $\text{Ba}^{2+}$  (figure 2).



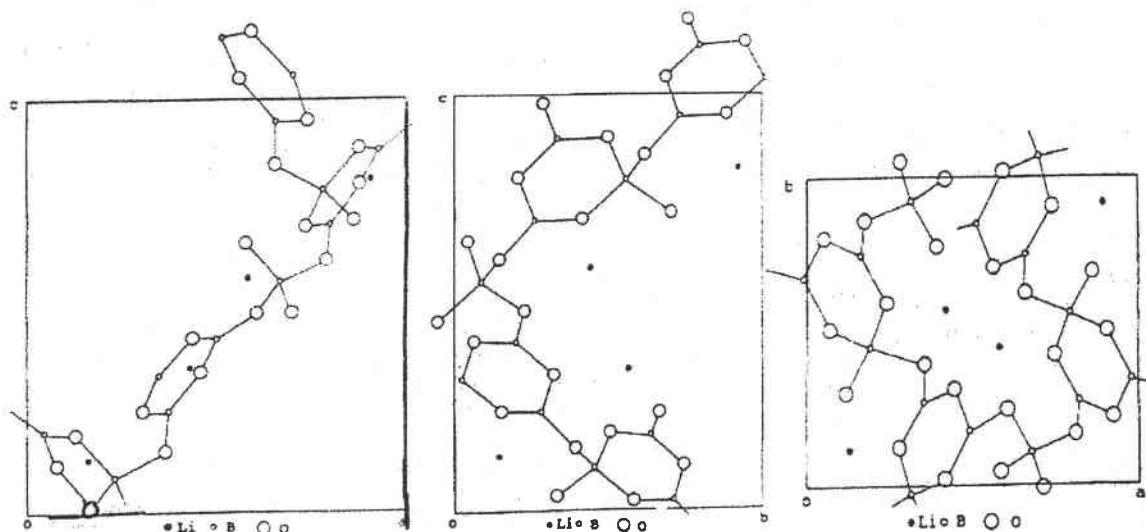
**Figure 2 :** Arrangement des anneaux  $(\text{B}_3\text{O}_6)^{3-}$  dans la maille élémentaire de  $\beta$ -BBO [Feigelson 89]

✓ Triborate de Lithium  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  (LBO)

LBO est un cristal orthorhombique appartenant au groupe d'espace  $\text{Pna}2_1$  ( $\text{mm}2, C_{2v}$ ) et ne possède pas une transition de phase [Zhao 1990]. Les paramètres du réseau cristallin sont

$a = 8,447 \text{ \AA}$   $b = 7,379 \text{ \AA}$  et  $c = 5,1408 \text{ \AA}$  [Chen 1991]. Il est construit comme un réseau de groupes  $(B_3O_7)^{5-}$  et de cations  $Li^+$  logés dans des sites interstitiels de symétrie  $C_1$ .

Le groupe anionique  $(B_3O_7)^{5-}$  est dérivé de celui de  $(B_3O_6)^{3-}$  par substitution d'un des trois trièdres  $BO_3$  par un trièdre  $BO_4$ .



**Figure 3 :** Arrangement des groupes  $(B_3O_7)^{5-}$  et des cations  $Li^+$  dans la maille élémentaire de LBO [Zhao 1990]. Les figures représentées de gauche à droite correspondent aux projections respectivement dans le plan (100), (010) et (001)

La maille élémentaire de LBO est composée de quatre unités  $LiB_3O_5$  soit 36 atomes. Le long de l'axe c, les groupes anioniques  $(B_3O_7)^{5-}$  sont reliés entre eux par des liaisons bore-oxygène qui forment une structure en spirale (figure 3).

#### ✓ Borate de Césium et de Lithium $CsLiB_6O_{10}$ (CLBO)

Le borate de césium et de lithium,  $CsLiB_6O_{10}$ , est un composé récemment découvert [Mori 1995] de structure quadratique  $\bar{1}42d$  ( $\bar{4}2m$ ,  $D_{2d}$ ). Les paramètres du réseau cristallin sont  $a = b = 10,494 \text{ \AA}$  et  $c = 8,939 \text{ \AA}$  [Mori 1995], et CLBO ne présente pas de transition de phase [Bai 1998, Mori 1995]. La structure de CLBO est constituée de huit atomes de Cs et quatre atomes de Li à l'intérieur du réseau borate. L'unité structurale de base de ce réseau est le groupe anionique  $(B_3O_7)^{5-}$  identique à celui décrit plus haut. La géométrie des liaisons des atomes de Li dans chaque réseau anionique de borate est représentée dans la figure 4 [Sasaki 2000].



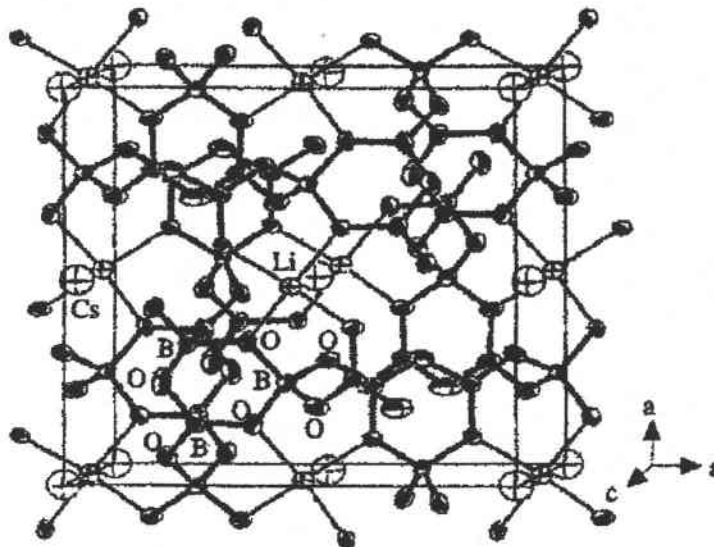


Figure 4 : Représentation du réseau anionique de CLBO

✓ Borate de Césium  $\text{CsB}_3\text{O}_5$  (CBO)

Le borate de césium  $\text{CsB}_3\text{O}_5$  est orthorhombique, de groupe d'espace  $P2_12_12_1$  ( $222, D_2$ ) avec pour paramètres cristallins  $a = 6,213 \text{ \AA}$ ,  $b = 8,521 \text{ \AA}$ ,  $c = 9,170 \text{ \AA}$ , et  $Z = 4$ . Ce cristal est composé de groupes anioniques  $(\text{B}_3\text{O}_7)^{5-}$  comme LBO et CLBO avec des cations  $\text{Cs}^+$  [Sasaki 2000].

✓ Tétraborate de Lithium  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  (LTB)

Le tétraborate du lithium de formule chimique  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  plus communément appelé LTB est connu depuis 1962, ses propriétés optiques n'ont été étudiées qu'à partir de 1982.

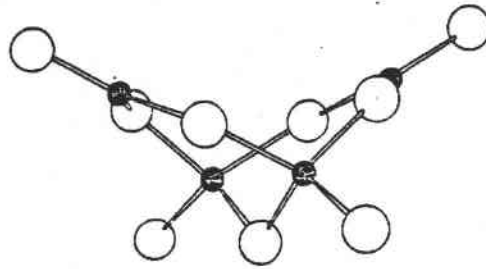
Le LTB appartient au réseau cristallin quadratique de groupe d'espace  $I4_1cd$  ( $4\text{mm}, C_{4v}^{12}$ ) [Maeda 1994]. Les paramètres de ce réseau sont  $a = b = 9,477 \text{ \AA}$  et  $c = 10,286 \text{ \AA}$  d'où un volume de maille voisin à  $0,92 \text{ nm}^3$ ; chaque cellule élémentaire contient 8 molécules soit 104 atomes [Krogh-Moe 1962].

Ses caractéristiques chimiques sont sa température de fusion élevée ( $917 \text{ }^\circ\text{C}$ ) et sa densité ( $2,44\text{g/cm}^3$ ) [Krogh-Moe 1962]. De plus LTB est soluble dans la plupart des acides comme HCL,  $\text{HNO}_3$  et  $\text{H}_2\text{SO}_4$  alors qu'il ne l'est pas dans l'acétone ni dans l'éthanol. Certains auteurs supposent l'existence d'une transition de phase [Furusawa 1991].

Dans le groupe d'espace  $I4_1cd$ , si l'atome de lithium, deux atomes de bore et trois atomes d'oxygènes sont placés dans différentes positions générales, un atome d'oxygène doit être placé dans une position particulière avec les coordonnées  $0, 0, z$ .

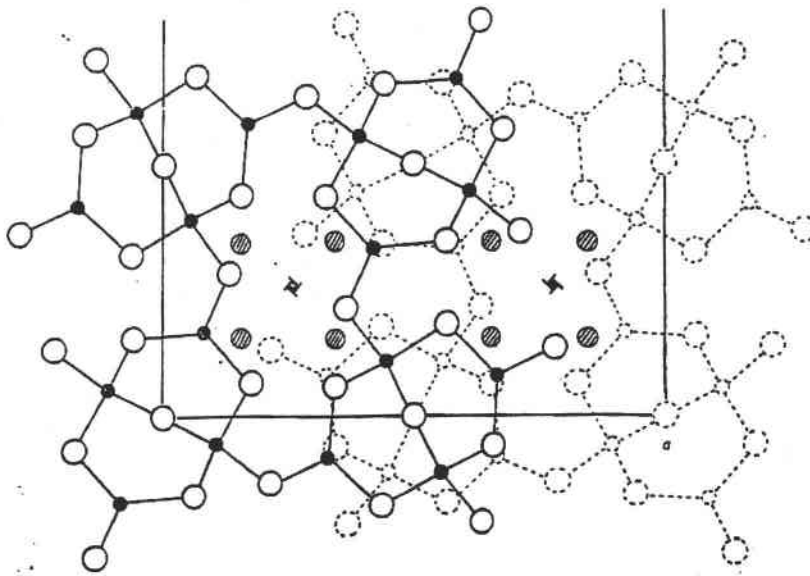
Basées sur la projection de Paterson le long de l'axe  $c$ , les positions non équivalentes proposées pour les quatre atomes d'oxygène ont été obtenues [Krogh-Moe 1962].

L'unité structurale de base du réseau borate de LTB, c'est à dire le groupe  $B_4O_7$ , est représentée le long de l'axe  $a$  dans la figure 5. Elle se compose de deux anneaux non planaires  $B_3O_3$ , deux atomes de bore et un atome d'oxygène appartenant simultanément aux deux anneaux.



**Figure 5 :** L'unité structurale de LTB,  $B_4O_7$ , vue le long de l'axe  $a$  (petite sphère noire : bore, grande sphère : oxygène)

Dans la structure de LTB, les quatre atomes d'oxygène agissent en tant que ponts entre les unités identiques, formant de ce fait un réseau tridimensionnel infini. L'arrangement de ce réseau est présenté dans la figure 6, qui montre une projection le long de l'axe  $c$ .



**Figure 6 :** Projection du réseau du tétraborate de lithium le long de l'axe  $c$

Le réseau LTB est donc constitué par le groupe  $B_4O_7$  comportant lui même le groupe  $B_2O_7$  formé de deux tétraèdres  $BO_4$  [Maeda 1994, Krogh-Moe 1962].

## I-2-c) Résumé des propriétés structurales des principaux borates

Les principales propriétés structurales à température ambiante des borates présentés sont résumées dans le tableau suivant:

	<b><math>\beta</math>-BBO</b>	<b>LBO</b>	<b>CBO</b>	<b>CLBO</b>	<b>LTB</b>
Groupe ponctuel	3m, $C_{3v}^6$ [Becker 98]	mm2, $C_{2v}^9$ [Becker 98]	222, $D_2$ [Becker 98]	$\bar{4}2m$ , $D_{2d}$ , [Becker 98]	4mm, $C_{4v}^{12}$ [Becker 98]
Groupe d'espace	R3c [Sasaki 00]	Pna2 <sub>1</sub> [Sasaki 00]	P2 <sub>1</sub> 2 <sub>1</sub> 2 <sub>1</sub> [Sasaki 00]	$I\bar{4}2d$ [Mori 95]	I4 <sub>1</sub> cd [Furusawa 91]
Paramètre de maille (Å)	a = b = 12,532 c = 12,717 Z = 6 [Chen 91]	a = 8,447 b = 7,379 c = 5,1408 Z = 2 [Chen 91]	a = 6,213 b = 8,521 c = 9,17 Z = 4 [Wu 93]	a = b = 10,494 c = 8,939 Z = 4 [Mori 95]	a = b = 9,477 c = 10,286 Z = 8 [Krogh 62]
Température de fusion (°C)	1095 ± 5 [Chen 85]	834 [Chen 89a]	821.4 [Sasaki 00]	848 [Sasaki 00]	917 [Krogh 62]
Densité (g/cm <sup>3</sup> )	$\rho$ = 3,83 [Guo 89]	$\rho$ = 2,47 [Radaev 92]	-	$\rho$ = 2,461 [Sasaki 97]	$\rho$ = 2,44 [Krogh 62]

**Tableau 1** : Comparaison des propriétés structurales de BBO, LBO, CBO, CLBO et LTB

## I-3. Croissance des borates

Nous présentons dans ce paragraphe quelques caractéristiques principales de la croissance de différents borates.

Dans la plupart des cas, les borates sont synthétisés dans un bain de mélange fondu, à l'exception de cristal  $KB_5O_8 \cdot 4H_2O$  (KB5) qui croît à partir d'une solution aqueuse.

Les cristaux BBO et LBO sont réalisés à partir d'une solution de mélange ce qui représente l'inconvénient majeur de ces matériaux. Cette technique, relativement longue, permet d'obtenir une faible quantité de matériau cristallisé par unité de volume de creuset, et comporte un risque d'inclusions du solvant [Becker 1998].

La croissance des cristaux CLBO, CBO et LTB est aussi traitée dans ce paragraphe.

### I-3-a) Métaborate de Baryum $\beta$ -BBO

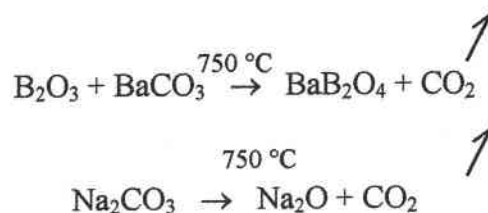
Les différentes techniques permettant la fabrication du métaborate de baryum sont la croissance en solution haute température et la méthode Czochralski [Feigelson 1989, Kouta 1991].

Une des difficultés de la croissance de  $\beta$ -BBO vient du fait que sa température de transition de phase, 925 °C, est proche de la température de fusion de la forme  $\alpha$ , 1095 °C.  $\beta$ -BBO peut croître par la méthode de flux mais il y a des risques d'inclusions.

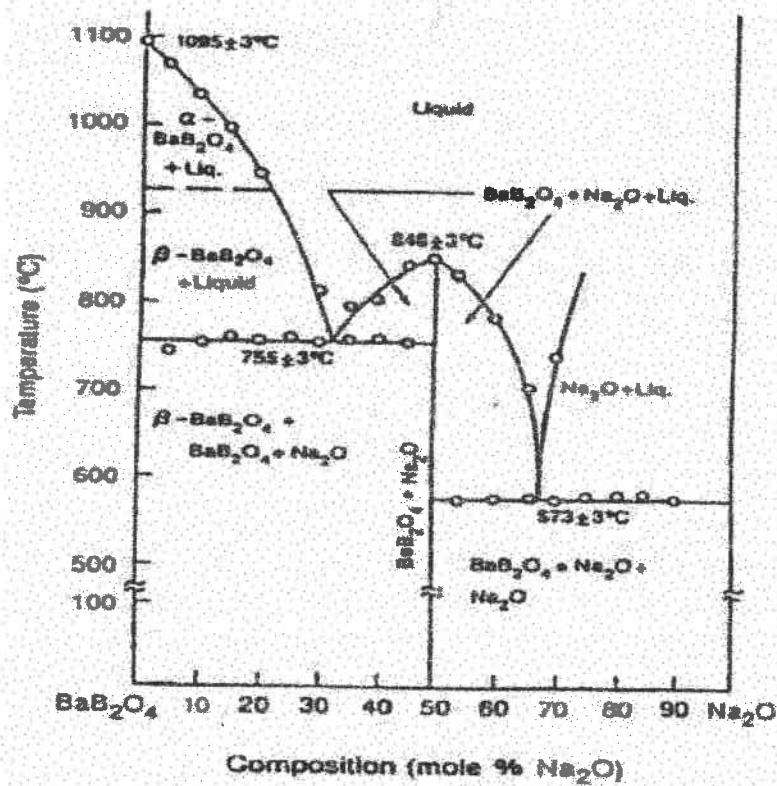
La croissance par la méthode Czochralski, qui utilise un mélange stœchiométrique, évite les inclusions mais nécessite un gradient de température élevé près de la surface de mélange [Sasaki 2000]. Cette technique très délicate, utilisée jusqu'à présent seulement par un groupe japonais [Kouta 1991], permet a priori d'obtenir des cristaux de taille importante et de meilleure qualité que ceux obtenus par les techniques habituelles en solution (Top Seeded Solution Growth : TSSG), avec une vitesse 10 à 20 fois supérieure. Une croissance de BBO par Czochralski a été entreprise au laboratoire MOPS (Thèse H. Moussambi). Actuellement, certains spécimens des cristaux BBO ont été obtenus dans leur phase  $\beta$ . L'étude des propriétés ONL de  $\beta$ -BBO tiré par Czochralski, est ainsi menée en comparaison avec celles de  $\beta$ -BBO tiré par TSSG, ce qui est une première en Europe.

La croissance en solution haute température utilise un bain fondu contenant un mélange de  $\text{BaB}_2\text{O}_4$  et de  $\text{BaB}_2\text{O}_4\text{-Na}_2\text{O}$  [Polgar 1991].

Les poudres de départ sont obtenues par synthèse en phase solide à partir des réactions suivantes :



La synthèse de la phase  $\beta$  de BBO commence à partir de la température 925 °C avec un mélange de  $\text{BaB}_2\text{O}_4$  et de  $\text{Na}_2\text{O}$ .  $\beta$ -BBO peut être cristallisé à partir d'une solution contenant de 22 à 31% de mole de  $\text{Na}_2\text{O}$ , à partir d'une température de 925 °C et jusqu'à une température supérieure à 755 °C. Pendant le tirage, l'augmentation de la concentration de solvant  $\text{Na}_2\text{O}$  dans le bain nous oblige à diminuer la température pour suivre la courbe du diagramme de phase (figure 7).

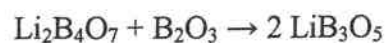


**Figure 7 :** Diagramme de phase utilisé lors de la fabrication de  $\beta$ -BBO la variation de composition du bain lors de la croissance de  $\beta$ -BBO est de 22 à 31% dans le cas de solvant  $\text{Na}_2\text{O}$

La croissance du cristal s'effectue à partir d'un germe de  $\beta$ -BBO déjà orienté suivant l'axe z.

### 1-3-b) Triborate de Lithium LBO

LBO a été synthétisé initialement en 1926 par Mazzetti puis par Rollet en 1955 [Zhao 1990]. La croissance en solution haute température étant celle donnant les meilleurs résultats. La synthèse en phase solide est effectuée à partir du tétraborate de lithium ( $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  ou LTB) et de  $\text{B}_2\text{O}_3$  suivant une réaction comptant quatre étapes à la température maximum de  $450^\circ\text{C}$  :



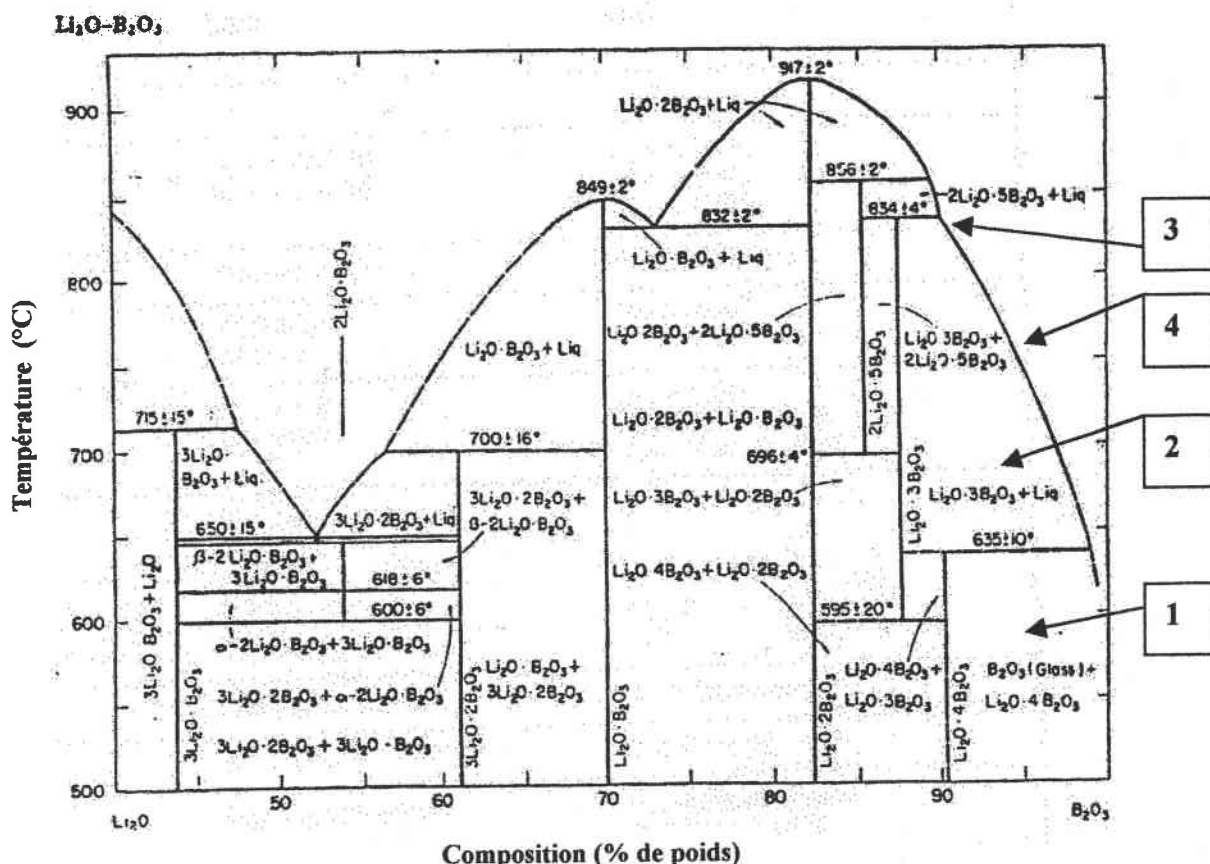


Figure 8 : Diagramme de phase utilisé lors de la fabrication de LBO

Les différentes étapes de la croissance de LBO sont les suivantes :

- 1) La poudre correspondant à la composition de départ  $\text{Li}_2\text{O} \cdot 4\text{B}_2\text{O}_3$  est chauffée jusqu'à atteindre la zone (2) pour donner LBO + liquide.
- 2) Le mélange est chauffé jusqu'à devenir totalement liquide vers  $834^\circ\text{C}$  (3).
- 3) Le tirage de cristal LBO débute en ce point (3).
- 4) Pendant le tirage, la composition du bain change suivant la ligne (4). Pour des raisons de temps et de pureté on choisit d'arrêter la croissance du LBO vers  $700^\circ\text{C}$ .

Lors de la croissance, la température appropriée pour obtenir un cristal de LBO est située entre  $834$  et  $750^\circ\text{C}$  [Zhao 1990] (figure 8)

La croissance peut s'effectuer suivant les axes  $[001]$ ,  $[100]$  ou  $[110]$  et peut durer jusqu'à 20 jours avec un tirage de  $0,1$  à  $0,2$  mm par jour et des rotations de 3 à 5 tours par minute.

Le taux de croissance et la qualité optique du LBO paraissent être dégradés par la viscosité élevée et le taux faible de diffusion du flux de solution.



## I-3-c) Borate de Césium CBO, Borate de Césium et de Lithium CLBO

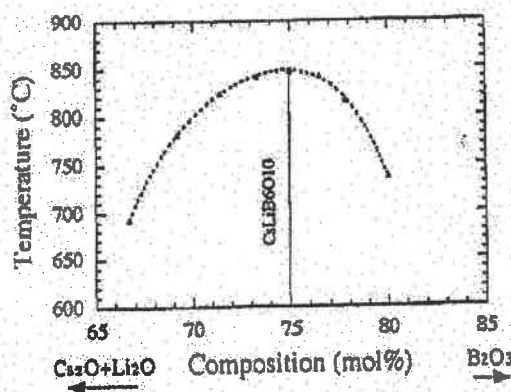
Le cristal CBO est un composé à fusion congruente ; ainsi, il peut croître à partir d'un mélange stœchiométrique liquide. Le premier cristal CBO a été fait à partir d'un mélange stœchiométrique à l'université d'OSAKA en 1992 [Sasaki 2000]. Wu en 1997 a synthétisé un cristal CBO à partir d'un mélange presque stœchiométrique. Le produit de départ est préparé à partir d'un mélange de  $\text{Cs}_2\text{CO}_3$  et  $\text{H}_3\text{BO}_3$  par la réaction chimique suivante :



Le mélange est légèrement riche en  $\text{Cs}_2\text{CO}_3$ , et le cristal obtenu atteint les dimensions  $40\text{mm} \times 25\text{mm} \times 25\text{mm}$  après deux semaines de croissance. De même, Kagebayashi et al en 1999 reportent la croissance de CBO à partir de mélange enrichi de  $\text{Cs}_2\text{O}$ . Les matériaux de départ sont des poudres. La composition du mélange est de 26,6 mol% de  $\text{Cs}_2\text{O}$  et de 73,3 mol% de  $\text{B}_2\text{O}_3$ . La température du mélange est de  $821,4^\circ\text{C}$  [Sasaki 2000].

Comme CBO, CLBO est un cristal relativement facile à croître. Il peut être obtenu à partir d'un mélange stœchiométrique et d'une solution par la technique TSSG. Le mélange de départ est constitué de  $\text{Cs}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  et  $\text{B}_2\text{O}_3$  [Sasaki 2000].

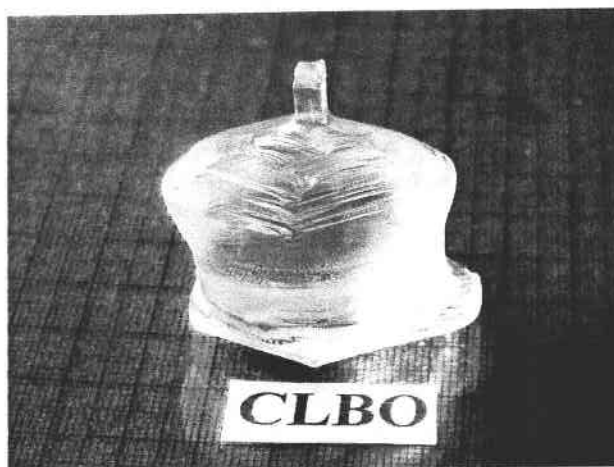
La phase de CLBO est obtenue pour les compositions de 66,7 ; 69,2 ; 71,4 ; 73,3 ; 75, 76,5, 77,8 et 80,0% de  $\text{B}_2\text{O}_3$ . Le diagramme de phase pour ces mélanges est présenté dans la figure 9 [Mori 1995].



**Figure 9** : Diagramme de phase du système  $(\text{Cs}_2\text{CO}_3+\text{Li}_2\text{CO}_3)-(\text{B}_2\text{O}_3)$

Deux types de cristaux CLBO peuvent être obtenus suivant la composition du mélange utilisé. Le premier type correspondant à  $\text{Cs}_2\text{O}:\text{Li}_2\text{O}:\text{B}_2\text{O}_3$  avec un rapport de 1:1:5,5, pauvre en  $\text{B}_2\text{O}_3$  et avec une faible viscosité. Sa température de fusion est estimée à  $845^\circ\text{C}$ . Pour la croissance, la température varie de  $845^\circ\text{C}$  à  $844^\circ\text{C}$  avec une diminution de  $0,1^\circ\text{C}$  par jour et la vitesse de rotation est de 15 tours par minute avec une inversion de la direction de rotation chaque 3 minutes. À partir de ces conditions, on obtient des échantillons de dimensions de

$50 \times 22 \times 27 \text{ mm}^3$  en huit jours de croissance [Mori 1995]. L'autre type est composé de  $\text{Cs}_2\text{O}:\text{Li}_2\text{O}:\text{B}_2\text{O}_3$  avec un rapport de 1:1:6, dans ce cas le mélange est stœchiométrique et sa température de fusion est  $848^\circ\text{C}$ . La croissance de ce composé s'effectue de la même manière que le premier type décrit précédemment. Par cette méthode, on obtient des cristaux de dimension de  $29 \times 20 \times 22 \text{ mm}^3$  en quatre jours de croissance [Mori 1995].



**Photo 1** : Photo d'un cristal CLBO obtenu par la croissance Czochralski au *Research Laboratory for Crystal Physics* à Budapest

#### *I-3-d) Tétraborate de Lithium LTB*

À la fin des années 1980, la croissance des cristaux de LTB était assurée par la technique TSSG, ce qui permettait d'obtenir des cristaux de grande taille (environ 35 mm de diamètre et 40 mm de longueur) et de bonne qualité.

Depuis les années 80, la méthode de Czochralski (voir annexe A) est plus utilisée compte tenu d'un ensemble d'améliorations apportées.

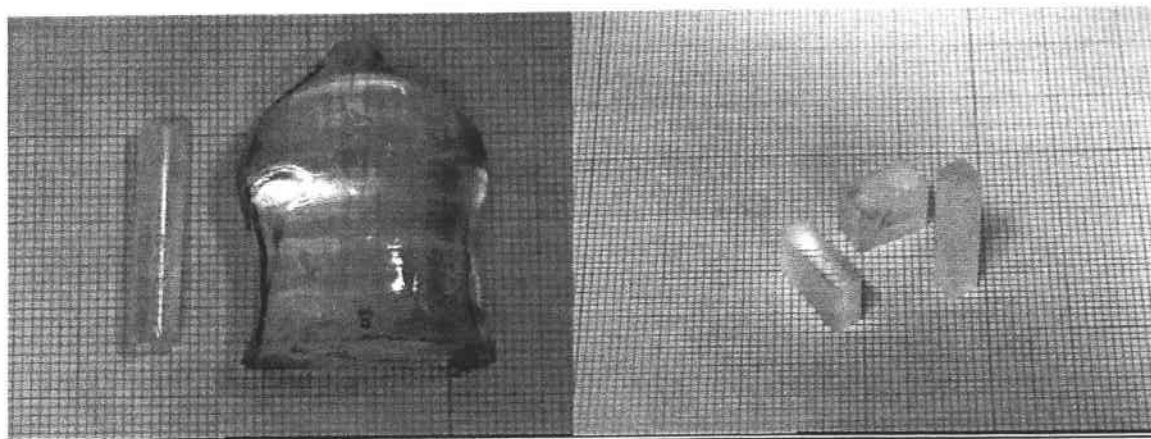
Les monocristaux de LTB sont obtenus par croissance à l'air libre à partir d'un bain de  $\text{Li}_2\text{O}$  et  $\text{B}_2\text{O}_3$  avec un rapport molaire 1/2.

Les différentes étapes de la croissance sont les suivantes :

- 1) On met le creuset à une température supérieure ou égale à la température de fusion  $917^\circ\text{C}$ .
- 2) On descend le germe jusqu'à avoir un léger contact avec la surface fondue.
- 3) Après une courte pause (de 1 à 3 min), on commence le tirage de germe avec une vitesse faible (la moitié de la valeur finale).
- 4) La vitesse de croissance et la vitesse de rotation augmente jusqu'à leurs valeurs finales.
- 5) Le cristal aura un diamètre constant jusqu'à ce qu'il atteigne la longueur désirée.
- 6) À la fin de la croissance, le cristal est mis à refroidir.

La croissance s'effectue à partir d'un germe de LTB déjà orienté suivant l'axe z.





*Photo 2 : Photo d'un cristal LTB obtenu par la croissance Czochralski dans notre Laboratoire MOPS*

Le diagramme de phase pseudo binaire du système  $\text{Li}_2\text{O}-\text{B}_2\text{O}_3$  autour de LTB est illustré dans la figure 8 [Uda 1997]. On peut constater que LTB peut être formé à partir d'une solution contenant de 75 à 90% mole de  $\text{B}_2\text{O}_3$  pour une température supérieure à  $856^\circ\text{C}$ .

### *I-3-e) Autres borates*

Des borates iso-structuraux tels que  $\text{SrB}_4\text{O}_7$  et  $\text{PbB}_4\text{O}_7$ , orthorhombiques, groupe d'espace  $\text{P2}_1\text{mm}$ , sont produits en petite taille par la fusion d'un mélange de poudres stœchiométriques. Des larges cristaux de  $\text{PbB}_4\text{O}_7$  sont obtenus par la technique Czochralski à partir d'un mélange avec un excès de  $\text{PbO}$  qui présente une faible viscosité [Becker 1998].

De la même manière, un grand cristal  $\text{SrB}_4\text{O}_7$  est obtenu à partir d'un mélange stœchiométrique à  $994^\circ\text{C}$ . L'orientation du cristal germe est parallèle à  $[001]$ ; Bohatý en 1985 a obtenu un cristal de 25 mm de diamètre et de 20 mm de longueur avec une vitesse de tirage de 2mm par jour et une rotation de 20 tours par minute [Becker 1998].

Une autre famille de borates de symétrie monoclinique ( $\text{Cm}$ ) :  $\text{RECa}_4(\text{BO}_3)\text{O}$  où  $\text{RE} = \text{La}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Er}, \text{Y}$  a été synthétisée initialement en tant que petits cristaux par Norretam et al en 1992. Ces composés sont notés oxo-borates car les atomes d'oxygène ne sont pas tous liés à des atomes de bore. Le premier composé étudié dans cette série est  $\text{SmCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)$  par Khamagonova et al en 1994 [Becker 1998].

Le point de fusion de  $\text{GdCa}_4(\text{BO}_3)\text{O}$  (GdCOB) étant de  $1480^\circ\text{C}$ , ce matériau peut croître par la technique Czochralski avec une vitesse de croissance d'environ 1mm par heure et une rotation de cristal de 30-40 tours par minute. La taille de cristal peut dépasser 20-30 mm en diamètre et 70 mm en longueur [Becker 1998].

La croissance de YCOB dont le point de fusion est de 1510 °C se fait de la même manière que le GdCOB en donnant un cristal sans fissure, avec des dimensions de 25 mm de diamètre et 25 mm de longueur [Becker 1998].

Des nouveaux borates pour des applications ONL tels que BaCaBO<sub>3</sub>F ont été présentés par Keszler et al en 1994. Le dopage du site Ca par Yb conduit à l'émission de laser infrarouge (IR) et le matériel est ainsi proposé comme un auto doubleur de fréquence.

Un cristal de grande taille de Yb :BaCaBO<sub>3</sub>F a été synthétisé par la technique Czochralski à partir d'un mélange BaF<sub>2</sub> et YbF<sub>3</sub> avec un taux de tirage de 2,5 mm par jour et une rotation de 4-7 tours par minute et atteint des dimensions de 25 mm en diamètre et 30 mm en longueur [Becker 1998].

Le cristal K<sub>2</sub>Al<sub>2</sub>B<sub>2</sub>O<sub>7</sub> (KAB) possède un arrangement similaire à SBBO. KAB est obtenu à partir de SBBO en remplaçant (B<sub>e</sub>O<sub>4</sub>)<sup>6-</sup> avec (AlO<sub>4</sub>)<sup>5-</sup> et Sr<sup>2+</sup> avec K<sup>+</sup> en accord avec la compensation ionique (Al<sup>3+</sup> + K<sup>+</sup> → Be<sup>2+</sup> + Sr<sup>2+</sup>) [Sasaki 2000].

#### I-4. Propriétés tensorielles des différents borates

Les tenseurs traduisant les différents effets physiques sont exprimés dans des systèmes d'axes (x, y, z) qui sont déduits à partir des axes cristallographiques (a, b, c).

Pour  $\beta$ -BBO, la maille hexagonale est décrite par  $x \parallel a$ ,  $z \parallel c$  alors que y est dans le plan miroir perpendiculaire à x [Thèse Ney 1998].

Pour LBO, la convention de cristal utilisée est celle d'un biaxe, à savoir  $x \parallel a$  (indice de réfraction le plus petit),  $z \parallel b$  (indice de réfraction le plus élevé) et  $y \parallel c$  [Lin 1990, Kato 1990].

Pour CLBO et LTB, la maille tétragonale est décrite par x et y  $\parallel$  a et z  $\parallel$  c.

Pour CBO, la maille orthorhombique est décrite par la convention de cristal biaxe, comme LBO.

Le tableau 2 rappelle les formes des tenseurs électrooptiques, piézoélectriques, GSH et Raman correspondant aux classes de symétrie  $3m$  ( $\beta$ -BBO),  $mm2$  (LBO),  $222$  (CBO),  $\bar{4}2m$  (CLBO) et  $4mm$  (LTB).

Ces tenseurs sont habituellement représentés par des matrices dans lesquelles les couples d'indices ij se contractent suivant la convention suivante (notation de Voigt).

$$\begin{pmatrix} 11 = xx = 1 & 12 = xy = yx = 6 & 13 = xz = zx = 5 \\ & 22 = yy = 2 & 23 = yz = zy = 4 \\ & & 33 = zz = 3 \end{pmatrix}$$

##### ➤ Tenseur électro-optique

On considère un milieu transparent caractérisé par le tenseur réel d'indice  $\left(\frac{1}{n^2}\right)_{ij}$ .

L'application d'un champ  $E$  induit une variation d'indices de réfraction, c'est l'effet électro-optique. Comme les variations attendues sont relativement faibles, on peut développer

$\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_{ij}$  en fonction de  $E$  en gardant les termes d'ordre inférieur. Les effets importants

proviennent des deux termes linéaire et quadratique. Donc on peut écrire :

$$\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_{ij} = r_{ijk} E_k + f_{ijkl} E_k E_l \dots$$

La partie linéaire détermine l'effet *Pockels* qui représente l'effet électro-optique qui est présent dans les cristaux non centro-symétriques. Il est décrit par un tenseur d'ordre 3 des coefficients électro-optiques  $r_{ijk}$ . La partie quadratique correspond à l'effet *Kerr*.

### ➤ Tenseur piézoélectrique

Dans les milieux piézoélectriques apparaissent des constantes de contraintes  $\Delta T_{ij}$  ainsi qu'une polarisation  $\Delta P$  supplémentaires qui s'expriment par les relations :

$$\Delta T_{ij} = - d_{ijk} E_k$$

$$\Delta P_i = d_{ikl} S_{kl}$$

où  $S$  représente la déformation et  $d_{ikl}$  représente les composantes du tenseur de piézoélectricité de rang 3.

Ainsi les contraintes, aussi bien que le déplacement électrique sont fonction à la fois des déformations et du champ électrique, et les équations constitutives de la piézoélectricité s'écrivent [Sapriel 1976]:

$$T_{ij} = c_{ijkl}^E S_{kl} - d_{kij} E_k$$

$$D_i = d_{ikl} S_{kl} + \epsilon_{ik}^S E_k$$

où  $c_{ijkl}^E$  est le tenseur d'élasticité à champ électrique nul et  $\epsilon_{ik}^S$  est le tenseur des permittivités à déformations nulles. En passant aux composantes matricielles, les équations précédentes s'écrivent :

$$T_m = c_{mn}^E S_n - d_{km} E_k$$

$$D_i = d_{in} S_n + \epsilon_{in}^S E_k$$

Pour la GSH, la présentation matricielle sera présentée dans le chapitre II.

### ➤ Diffusion Raman

La spectroscopie de diffusion Raman est une technique permettant l'observation des états vibrationnels des réseaux cristallins (ions, molécules) provoquant des variations de la polarisabilité électronique.

L'analyse des modes vibrations de LTB par exemple peut être simplifiée en tenant compte de ses propriétés de symétrie. LTB est un uniaxe appartenant au groupe d'espace  $C_{4v}^{12}$  et au groupe de symétrie 4mm. Les représentations irréductibles pour les modes de vibrations optiques au centre de la zone de Brillouin  $q \approx 0$ , sont données par [Paul 1982]:

$$\Gamma = 18A_1 + 19B_1 + 19B_2 + 39E$$

TENSEURS	3m	mm2	222	$\bar{4}2m$	4mm
Electro-optique ( $r_{ij,k}$ )	$\begin{pmatrix} 0 & -r_{22} & r_{13} \\ 0 & r_{22} & r_{13} \\ 0 & 0 & r_{33} \\ 0 & r_{51} & 0 \\ r_{51} & 0 & 0 \\ -r_{22} & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & r_{13} \\ 0 & 0 & r_{23} \\ 0 & 0 & r_{33} \\ 0 & r_{42} & 0 \\ r_{51} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ r_{41} & 0 & 0 \\ 0 & r_{52} & 0 \\ 0 & 0 & r_{63} \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ r_{41} & 0 & 0 \\ 0 & r_{41} & 0 \\ 0 & 0 & r_{63} \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & r_{13} \\ 0 & 0 & r_{13} \\ 0 & 0 & r_{33} \\ 0 & r_{42} & 0 \\ r_{42} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
Piézoélectrique et de GSH ( $d_{ijk}$ )	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{25} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
Raman	$A_1(z) = \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & a & 0 \\ 0 & 0 & b \end{pmatrix}$ $E(x) = \begin{pmatrix} 0 & c & d \\ c & 0 & 0 \\ d & 0 & 0 \end{pmatrix}$ $E(y) = \begin{pmatrix} c & 0 & 0 \\ 0 & -c & d \\ 0 & d & 0 \end{pmatrix}$	$A_1(z) = \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & b & 0 \\ 0 & 0 & c \end{pmatrix}$ $A_2 = \begin{pmatrix} 0 & d & 0 \\ d & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$ $B_1(x) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & e \\ 0 & 0 & 0 \\ e & 0 & 0 \end{pmatrix}$ $B_2(y) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & f \\ 0 & f & 0 \end{pmatrix}$	$A = \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & b & 0 \\ 0 & 0 & c \end{pmatrix}$ $B_1(z) = \begin{pmatrix} 0 & d & 0 \\ d & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$ $B_2(y) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & e \\ 0 & 0 & 0 \\ e & 0 & 0 \end{pmatrix}$ $B_3(x) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & f \\ 0 & f & 0 \end{pmatrix}$	$A_1 = \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & a & 0 \\ 0 & 0 & b \end{pmatrix}$ $B_1 = \begin{pmatrix} c & 0 & 0 \\ 0 & -c & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$ $B_2 = \begin{pmatrix} 0 & d & 0 \\ d & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$ $E(x) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e \\ 0 & e & 0 \end{pmatrix}$ $E(y) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & e \\ 0 & 0 & 0 \\ e & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$A_1(z) = \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & a & 0 \\ 0 & 0 & b \end{pmatrix}$ $B_1 = \begin{pmatrix} c & 0 & 0 \\ 0 & -c & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$ $B_2 = \begin{pmatrix} 0 & d & 0 \\ d & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$ $E(x) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & e \\ 0 & 0 & 0 \\ e & 0 & 0 \end{pmatrix}$ $E(y) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e \\ 0 & e & 0 \end{pmatrix}$

Tableau 2 : Expressions des différents tenseurs relatifs au groupe ponctuel de  $\beta$ -BBO, LBO, CBO, CLBO et LTB.

### I-5. Propriétés optiques linéaires des borates

#### I-5-a) Transmission optique

Les cristaux borates possèdent des domaines de transparence qui s'étendent aux basses longueurs d'ondes du domaine de l'UV : ces longueurs d'ondes maximales sont plus faibles que celles d'autres cristaux couramment utilisés dans des applications ONL (tableau 3). C'est ce qui fait un des intérêts technologiques essentiels de ces cristaux.

Cristaux	Domaine de transparence (nm)	Références
$\beta$ -BBO	165 – 3200	[Zhao 1990]
LBO	189 – 3500	[Chen 1991]
CBO	170 – 3000	[Wu 1993]
CLBO	180 – 2750	[Mori 1995]
LTB	170 – 3500	[Kown 1994]
LiNbO <sub>3</sub> (Congruent)	330 – 5500	[Dmitriev 1991]
KNbO <sub>3</sub>	400 – 4500	
KTiPO <sub>4</sub> (KTP)	350 – 4500	
KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> (KDP)	175 – 1700	

**Tableau 3:** Comparaison des domaines de transparences de  $\beta$ -BBO, LBO, CBO, CLBO et LTB avec ceux des différents matériaux ONL

#### I-5-b) Indices de réfraction

##### ✓ $\beta$ -BBO

BBO est un cristal uniaxe négatif ( $n_e < n_o$ ) avec  $n_o = 1,6551$  et  $n_e = 1,5425$  pour la longueur d'onde  $\lambda$  de 1064 nm et  $n_o = 1,6749$  et  $n_e = 1,5555$  pour  $\lambda = 532$  nm.

Où

$n_o$  est l'indice ordinaire et  $n_e$  est l'indice extraordinaire.

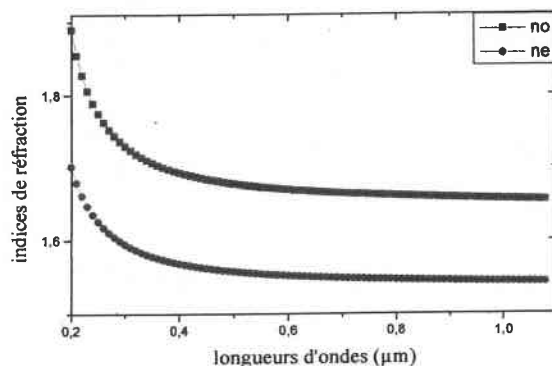
Les équations de Sellmeier de BBO dans le domaine [212,8 nm – 1064 nm] pour  $n_o$  et  $n_e$  ont été établies par Eimerl [Eimerl 1987]:

$$n_o^2 = 2,7405 + \frac{0,0184}{\lambda^2 - 0,0179} - 0,0155\lambda^2$$

$$n_e^2 = 2,373 + \frac{0,0128}{\lambda^2 - 0,0156} - 0,0044\lambda^2$$

où  $\lambda$  est en  $\mu\text{m}$ .

Dans la figure 10, nous présentons les courbes de dispersion de  $n_o$  et de  $n_e$  à partir de ces équations :



**Figure 10:** Indices de réfraction ordinaire et extraordinaire en fonction de la longueur d'onde pour BBO

✓ LBO

LBO est un cristal biaxe négatif ( $n_x < n_y < n_z$ ) avec  $n_x = 1,5656$ ,  $n_y = 1,5905$  et  $n_z = 1,6055$  pour la longueur d'onde de 1064 nm et  $n_x = 1,5785$ ,  $n_y = 1,6065$  et  $n_z = 1,6212$  pour la longueur d'onde de 532 nm.

Les équations de Sellmeier de LBO dans le domaine [253,7 nm – 1064 nm] pour  $n_x$ ,  $n_y$  et  $n_z$  d'après Chen [Chen 1989] sont:

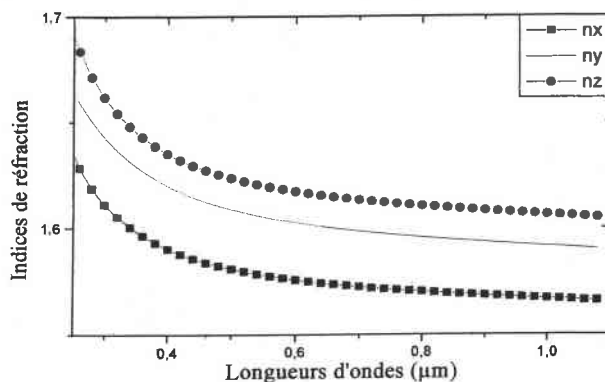
$$n_x^2 = 2,4517 + \frac{0,01177}{0,00921 + \lambda^2} - 0,00960 \lambda^2$$

$$n_y^2 = 2,5279 + \frac{0,01652}{\lambda^2 + 0,005459} - 0,01137 \lambda^2$$

$$n_z^2 = 2,5818 - \frac{0,01414}{0,01186 - \lambda^2} - 0,01457 \lambda^2$$

$\lambda$  est en  $\mu\text{m}$ .

Dans la figure 11, nous présentons les courbes de dispersion de  $n_x$ ,  $n_y$  et de  $n_z$  à partir de ces équations :



**Figure 11:** Indices de réfraction  $n_x$ ,  $n_y$  et  $n_z$  en fonction de la longueur d'onde pour LBO

## ✓ CLBO

CLBO est un cristal uniaxe négatif ( $n_e < n_o$ ) et il existe sous deux types dépendant de la composition du mélange. Le premier type est composé de  $\text{Cs}_2\text{O}:\text{Li}_2\text{O}:\text{B}_2\text{O}_3$  avec un rapport de 1:1:5,5, pauvre en  $\text{B}_2\text{O}_3$ , c'est un mélange non-stœchiométrique (ns). L'autre type est composé de  $\text{Cs}_2\text{O}:\text{Li}_2\text{O}:\text{B}_2\text{O}_3$  avec un rapport de 1:1:6, dans ce cas le mélange est stœchiométrique (s).

Pour le stœchiométrique, les indices de réfractons sont pris de la référence de Ryu [Ryu 1998] avec  $n_o = 1,4838$  et  $n_e = 1,4344$  pour la longueur d'onde 1064 nm et  $n_o = 1,4972$  et  $n_e = 1,4445$  pour la longueur d'onde de 532 nm.

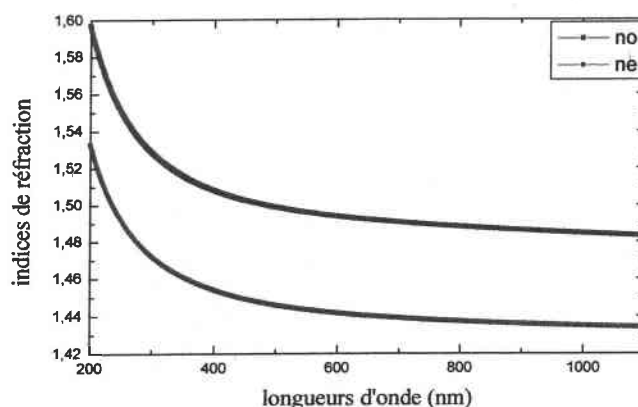
Les équations de Sellmeier dans le domaine [180nm – 1600nm] de CLBO pour  $n_o$  et  $n_e$  d'après Ryu sont :

$$n_o^2 = 1 + \frac{1,205718\lambda^2}{\lambda^2 - 8930,67} - 12,01 \times 10^{-9} \lambda^2$$

$$n_e^2 = 1 + \frac{1,053768\lambda^2}{\lambda^2 - 8823,34} - 3,96 \times 10^{-9} \lambda^2$$

$\lambda$  est exprimé en nm.

Dans la figure 12, nous présentons les courbes de dispersion de  $n_o$  et de  $n_e$  à partir de ces équations :



**Figure 12:** Indices de réfraction ordinaire et extraordinaire en fonction de la longueur d'onde pour CLBO [Ryu 1998]

Pour le non-stœchiométrique, les indices de réfractons sont pris de la référence de Umemura [Umemura 1999] avec  $n_o = 1,4850$  et  $n_e = 1,4351$  pour la longueur d'onde de 1064 nm et  $n_o = 1,4982$  et  $n_e = 1,4450$  pour la longueur d'onde de 532 nm.

Les équations de Sellmeier dans le domaine [191,4nm – 2090nm] de CLBO pour  $n_o$  et  $n_e$  d'après Umemura sont :

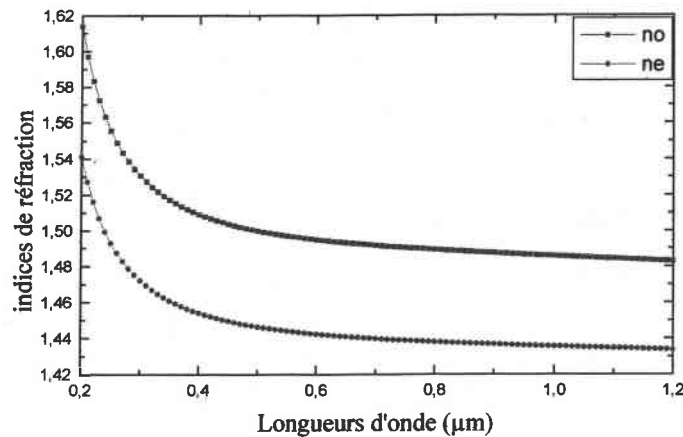


$$n_o^2 = 2,2104 + \frac{0,01018}{\lambda^2 - 0,01424} - 0,01258\lambda^2$$

$$n_e^2 = 2,0588 + \frac{0,00838}{\lambda^2 - 0,01363} - 0,00607\lambda^2$$

$\lambda$  est en  $\mu\text{m}$ .

Dans la figure 13, nous présentons les courbes de dispersion de  $n_o$  et de  $n_e$  obtenus à partir de ces équations :



**Figure 13:** Indices de réfraction ordinaire et extraordinaire en fonction de la longueur d'onde pour CLBO [Umemura 1999]

#### ✓ CBO

CBO est un cristal biaxe négatif ( $n_x < n_y < n_z$ ) avec  $n_x = 1,5194$ ,  $n_y = 1,5505$  et  $n_z = 1,5781$  pour la longueur d'onde de 1064 nm et  $n_x = 1,5328$ ,  $n_y = 1,5662$  et  $n_z = 1,5936$  pour la longueur d'onde de 532 nm.

Les équations de Sellmeier de CBO dans le domaine [354,2 nm – 1064 nm] pour  $n_x$ ,  $n_y$  et  $n_z$  d'après Wu [Wu 1993] sont :

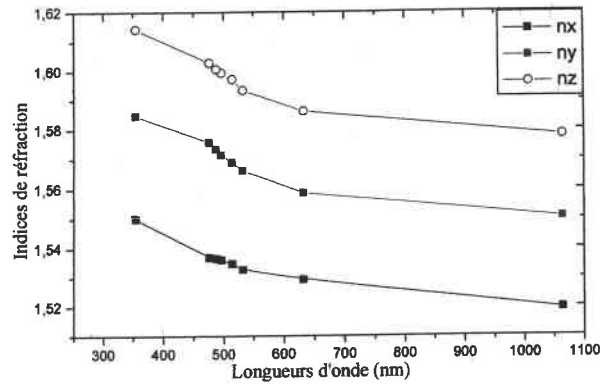
$$n_x^2 = 2,2916 + \frac{0,02105}{\lambda^2 + 0,06525} - 3,1848 \times 10^{-5} \lambda^2$$

$$n_y^2 = 2,3731 + \frac{0,03437}{\lambda^2 + 0,0116} - 7,2632 \times 10^{-5} \lambda^2$$

$$n_z^2 = 2,4607 + \frac{0,03202}{\lambda^2 + 0,08961} - 5,6332 \times 10^{-5} \lambda^2$$

$\lambda$  est exprimé en  $\mu\text{m}$ .

Dans la figure 14, nous présentons la variation des indices de  $n_x$ ,  $n_y$  et de  $n_z$  déterminés expérimentalement par Wu :



**Figure 14:** Indices de réfraction  $n_x$ ,  $n_y$  et  $n_z$  en fonction de la longueur d'onde pour CBO [Wu 1993]

✓ LTB

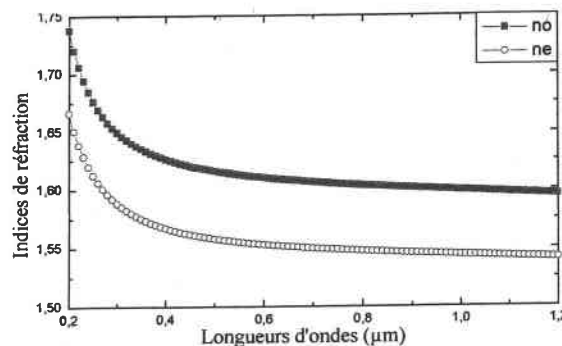
LTB est un cristal uniaxe négatif ( $n_e < n_o$ ) avec  $n_o = 1,59804$  et  $n_e = 1,54322$  pour la longueur d'onde 1064 nm,  $n_o = 1,61388$  et  $n_e = 1,55639$  pour la longueur d'onde 532 nm et  $n_o = 1,66642$  et  $n_e = 1,60308$  pour la longueur d'onde 266 nm.

Les équations de Sellmeier de LTB dans le domaine [184 nm – 2325 nm] pour  $n_o$  et  $n_e$  ont été établies par Sugawara [Sugawara 1998]:

$$n_o^2 = 2,56431 + \frac{0,012337}{\lambda^2 - 0,0131026} - 0,0019075\lambda^2$$

$$n_e^2 = 2,38651 + \frac{0,010664}{\lambda^2 - 0,01287839} - 0,012813\lambda^2$$

Dans la figure 15, nous présentons les courbes de dispersion de  $n_o$  et de  $n_e$  à partir de ces équations:



**Figure 15 :** Indices de réfraction ordinaire et extraordinaire en fonction de la longueur d'onde pour LTB

## I-5-c) Autres grandeurs caractéristiques

Nous résumons dans le tableau suivant les valeurs des constantes diélectriques et piézoélectriques ainsi que des coefficients électro-optiques pour les trois borates  $\beta$ -BBO, LBO et LTB:

	$\beta$ -BBO	LBO	LTB
Constantes diélectriques	$f=1$ kHz $\epsilon_{11}=6,5$ $\epsilon_{33}=8,2$ $f=1$ MHz $\epsilon_{11}=5,8$ $\epsilon_{33}=6,6$ [Guo 89]	$f=100$ kHz $\epsilon_{11}=7,5$ $\epsilon_{22}=5,9$ $\epsilon_{33}=9,8$ [Guo 89]	$f=10$ kHz $\epsilon_{11}=7,81$ $\epsilon_{33}=10,25$ $f=100$ kHz $\epsilon_{11}=7,46$ $\epsilon_{33}=9,97$ [Bohatý 1989]
Coefficients électrooptiques (pm/V)	$r_{13}=0,27$ $r_{33}=0,29$ $r_{22}=-2,41$ $r_{51}=1,7$ [Bohatý 1990]	$r_{13}^{el}=-0,85$ $r_{23}^{el}=-0,04$ $r_{33}^{el}=0,6$ $r_{51}^{el}=-0,55$ [Thèse Ney 1998]	$r_{15}=3,74$ $r_{33}=3,67$ $r_{31}=-0,11$ [Bohatý 1989]
Constantes piézoélectriques (pm/V)	$d_{31}=-0,85$ $d_{33}=4$ $d_{22}=0,3$ $d_{15}=1,26$ [Guo 89]	$d_{31}=\pm 4,2$ $d_{32}=\pm 1,9$ $d_{33}=9,4$ $d_{24}=1$ $d_{15}=14$ [Lin 89]	$d_{31}=-3,2$ $d_{15}=3,2$ $d_{33}=19,8$ [Bohatý 1989]

**Tableau 4:** Constantes diélectriques, coefficient EO et constantes piézoélectrique de  $\beta$ -BBO, LBO et LTB

*el* : Contribution électronique.

**Remarque :** Les constantes piézoélectriques sont notées ici  $d_{ij}$  comme cela est souvent l'usage dans la littérature. Nous précisons que ces valeurs sont sans rapport avec celles des coefficients ONL, qui sont eux aussi notés  $d_{ij}$ .

## I-6. Propriétés non linéaires des borates

### I-6-a) Seuil de dommage optique

En général les borates ont un seuil de dommage optique élevé. Cette propriété est souvent attribuée au fait qu'ils possèdent des gaps très profonds et que le déplacement des ions et des électrons est rendu très difficile par la compacité du réseau [Thèse Ney 1998].

En effet, les seuils de dommage de  $\beta$ -BBO, LBO, CBO, LTB et CLBO sont parmi les plus élevés de tous les cristaux ONL (tableau 5):

Cristaux	Seuil de dommage optique ( $\text{GW}/\text{cm}^2$ )	Durée d'impulsion $\tau_p$ (ns) ( $\lambda = 1064 \text{ nm}$ )
$\beta$ -BBO	13,5 <sup>a</sup>	1
LBO	25 <sup>a</sup>	0,1
CBO	26 <sup>b</sup>	1
CLBO	24-26 <sup>b</sup>	1,1
LTB	40 <sup>b</sup>	10
KDP	>10 <sup>a</sup>	1
$\text{KNbO}_3$	$12 \cdot 10^{-3}$ <sup>a</sup>	10
KTP	0,4 <sup>a</sup>	10

**Tableau 5:** Comparaison des seuils de dommage optique de  $\beta$ -BBO, LBO, CBO, CLBO et LTB avec ceux de différents matériaux ONL.

[a] : Dmitriev 1991.

[b]: Becker 1998.

### I-6-b) Domaines d'application des borates

Grâce à la résistance relativement élevée des borates devant le dommage laser et à leur transparence dans la région UV, les borates sont souvent employés pour la génération de lumière UV de puissance élevée [Sasaki 2000]. Rappelons que parmi les applications de la lumière UV figurent la photolithographie, le traitement des matériaux et le traitement médical [Sugawara 1998].

Le BBO est un cristal NL hautement efficace pour créer un rayonnement UV par conversion de fréquence ; il est largement utilisé pour générer les harmoniques d'ordre 2 (GSH) et d'ordre 3 (GTH) ainsi que les sommes de fréquences (GSF) des lasers à colorants.

Le grand domaine de transmission et la forte biréfringence du BBO permettent de réaliser l'accord de phase pour doubler en fréquence dans un très grand domaine allant de  $0,165 \mu\text{m}$  à

3,5  $\mu\text{m}$ . La plus courte longueur d'onde (189 nm) a été obtenue par génération de somme de fréquence (GSF) [Chen 1991].

L'oscillateur paramétrique optique (OPO) et l'amplificateur paramétrique optique (OPA) sont aussi des applications importantes de BBO qui permettent d'obtenir un large domaine de lumière cohérente accordable depuis l'UV jusqu'à l'IR.

Le cristal LBO a été étudié initialement pour ses applications dans le doublage des lasers Nd : YAG. Le balayage en fonction de la température (accord de phase non critique NCPM) et le balayage en fonction d'angle (d'accord de phase critique CPM) font apparaître, pour LBO, de nombreuses propriétés à explorer en GSH, GTH, GSF, OPO, OPA et bien d'autres applications [Chen 1991].

Le cristal CLBO a des propriétés intéressantes dans la région UV, telles que la faible valeur de la limite d'absorption de 180 nm, une capacité élevée pour la génération de quatrième harmonique (266 nm) et cinquième harmonique (213 nm) de laser Nd : YAG ceci étant associé à une grande résistance au dommage optique [Takei 1997]. La limite d'accord de phase pour CLBO est la longueur d'onde 477 nm [Zhou 1996, Mori 1995].

Les propriétés physiques du LTB sont largement étudiées pour son application potentielle au mécanisme SAW (Surface Acoustic Wave), sa conduction super-ionique et son seuil de dommage optique élevé malgré ses faibles coefficients non linéaires [Kown 1994, Furusawa 1991].

LTB est également un cristal prometteur pour les applications en optique non linéaire telle que la génération de second harmonique et quatrième harmonique ; la conversion de fréquence dans le domaine d'UV est intéressante grâce à son seuil de dommage très élevé et à son large domaine de transparence qui s'étend jusqu'au 170 nm [Komatsu 1997]. La longueur d'onde la plus courte réalisable par conversion de fréquence est 243.8 nm [Sugawara 1998]

#### *I-6-c) Propriétés de GSH*

Les processus optiques non linéaires dépendent de la potentialité de certains matériaux d'acquies sous l'effet d'un champ lumineux une polarisation dépendant de façon non linéaire de l'amplitude de champ. L'origine physique de cette propriété se situe au niveau microscopique du matériau.

Nous nous intéressons ici plus spécifiquement à la génération de second harmonique et nous présentons ses caractéristiques pour une longueur d'onde fondamentale de 1064 nm .

Les différents paramètres reportés dans le tableau 6, angle d'accord de phase  $\theta_{PM}$ , walk-off  $\rho$ , développement de  $d_{eff}$  en fonction des  $d_{ij}$  et acceptance angulaire ( $\Delta\theta \times L$ ) seront définis et explicités dans le chapitre II. Précisons néanmoins que :

$\theta$  : représente l'angle entre l'axe optique et la direction de propagation.

$\varphi$  : est l'angle entre la projection du vecteur d'onde  $\vec{k}$  dans le plan x-y et l'axe x.

	$\beta$ -BBO	LBO	CBO	CLBO	LTB
Coefficients optiques NL en (pm/V)	$d_{22}= 2,2$ $d_{31}= 0,16$ [Nikogosyan 91]	$d_{32}= 1,4$ ; $d_{31}= 1,05$ $d_{33}= 0,07$ [Chen 91]	$d_{14}= 1,08$ [Becker00]	$d_{36}=0,95$ [Mori 95]	$d_{31}= 0,073$ $d_{33}=0,55$ [Kwon 97]
Développement de $d_{\text{eff}}$ en fonction de $d_{ij}$ pour le type I et II	$d_{\text{eff}}^{\text{I}}=d_{31} \sin\theta-d_{22} \sin 3\varphi \cos\theta$ $d_{\text{eff}}^{\text{II}}=d_{22} \cos^2\theta \cos 3\varphi$	$d_{\text{eff}}^{\text{I}}=d_{32} \cos\varphi$ $d_{\text{eff}}^{\text{II}}=d_{31} \sin\theta$ [Kato 90]	$d_{\text{eff}}^{\text{I}}=d_{14} \sin 2\theta$ [Sasaki 00]	$d_{\text{eff}}^{\text{I}}=d_{36} \sin\theta \sin 2\varphi$ $d_{\text{eff}}^{\text{II}}=d_{36} \sin 2\theta \cos 2\varphi$	$d_{\text{eff}}^{\text{I}}= d_{31} \sin\theta$ $d_{\text{eff}}^{\text{II}}=0$ [Dmitriev 91]
Angle d'accord de phase de type I et II en ( $^{\circ}$ )	$\theta^{\text{I}} = 22,8$ $\theta^{\text{II}} = 32,9$ [Nikogosyan 91]	$\theta^{\text{I}}=90, \varphi=11,6$ $\theta^{\text{II}}=20,5, \varphi=90$ [Nikogosyan 94]	$\theta^{\text{I}}= 63$ $\theta^{\text{II}}=15$ [Wu 93]	$\theta^{\text{I}}=30, \varphi=45$ $\theta^{\text{II}}=43, \varphi=0$ [Mori 95, Zhou 97]	$\theta^{\text{I}}= 32$ $\theta^{\text{II}}= 45,2$ [Kwon 94]
Walkoff pour le type I et II en ( $^{\circ}$ )	$\rho^{\text{I}}= 3,2$ $\rho^{\text{II}}= 3,95$	$\rho^{\text{I}}= 0,42$ $\rho^{\text{II}}= 0,99$	$\rho^{\text{I}}= 1,79$ $\rho^{\text{II}}= 1,1$	$\rho^{\text{I}}= 1.79$ $\rho^{\text{II}}= 2.06$	$\rho^{\text{I}}= 1,88$ $\rho^{\text{II}}= 2,1$
$d_{\text{eff}}$ pour le type I et II en (pm/V)	$d_{\text{eff}}^{\text{I}} = 2,1$ $d_{\text{eff}}^{\text{II}} = 1,57$ [Nikogosyan 91]	$d_{\text{eff}}^{\text{I}}=1,37$ $d_{\text{eff}}^{\text{II}} = 0,98$ [Chen 91]	$d_{\text{eff}}^{\text{I}} = 0.87$	$d_{\text{eff}}^{\text{I}} = 0,47$ $d_{\text{eff}}^{\text{II}} = 0,95$ [Mori 95]	$d_{\text{eff}}^{\text{I}} = 0,038$ $d_{\text{eff}}^{\text{II}} = 0$ [Kwon 97]
Acceptance angulaire $\Delta\theta \times L$ pour le type I et II (mradcm)	Type I : 0,52 Type II : 0,79 [Eimerl 87]	$\Delta\theta \times L = 8,2$ $\Delta\varphi \times L = 0,27$ [Becker 98]	Type I:1,12 [Wu 93]	Type I : 1,02 [Mori 95] Type II: 1,7 [Sasaki 97]	Type I :0.87 [Becker 98]

**Tableau 6:** Propriétés de GSH (1064 nm  $\rightarrow$  532 nm) de  $\beta$ -BBO, LBO, CBO, CLBO et LTB.



### I-7. Conclusion

$\beta$ -BBO est un cristal limité par sa faible valeur d'acceptance angulaire et un walk-off relativement grand ( $> 3^\circ$ ); par contre il a un fort coefficient optique non linéaire, une forte biréfringence et un large domaine de transparence; ceci fait du BBO un cristal largement utilisé pour la conversion de fréquence.

LBO a un seuil de dommage élevé, une faible absorption optique, de forts coefficients NL, une valeur d'acceptance angulaire relativement grande et un faible walk-off; ceci fait de LBO un excellent cristal NL d'une grande efficacité et stabilité.

CLBO possède un faible walk-off, une large valeur d'acceptance angulaire, une valeur moyenne de  $d_{\text{eff}}$  et un seuil de dommage élevé, ce qui fait de lui un bon matériel pour la conversion de fréquence.

CBO est un cristal transparent dans le région UV, a un coefficient NLO moyen et un seuil de dommage élevé.

On peut noter aussi que  $\beta$ -BBO et LBO sont également faiblement solubles dans l'eau, chimiquement stables et possèdent de bonnes propriétés mécaniques facilitant la découpe et le polissage. Par contre CLBO est fortement hygroscopique (néanmoins moins que KDP).

LTB, par sa transparence dans l'ultraviolet, sa faible dispersion et son seuil de dommage optique très élevé, notamment en comparaison avec d'autres cristaux non linéaires connus, est un matériau prometteur pour les applications en optique non linéaire telles que la génération d'harmoniques bien que présentant des coefficients NL parmi les plus faibles de la famille des borates.

Nous pouvons conclure que les borates sont des matériaux très intéressants pour l'optique non linéaire puisqu'ils satisfont aux points suivants :

- Des coefficients de GSH relativement élevés.
- Une grande plage de transparence.
- Un seuil de dommage optique très élevé.
- Une bonne stabilité chimique.
- Des cristaux de bonnes qualités et de grandes dimensions.

Les borates sont déjà largement utilisés dans de nombreuses applications comme par exemple l'OPA et l'OPO, ils permettent aussi la génération d'harmoniques de nouveaux lasers (Dy, Ti saphir, UV...) dans les domaines industriels, médicaux ou encore militaire.

# Chapitre II

## *Théorie de la génération de second harmonique*

<b>II-1. Effets en optique non linéaire.....</b>	<b>31</b>
II-1-1) Introduction.....	31
II-1-2) Développement non linéaire de polarisation diélectrique.....	31
II-1-2-a) Écriture tensorielle simplifiée.....	31
II-1-2-b) Effets correspondants à ces différents termes .....	32
II-1-3) Cas de la génération de second harmonique (GSH).....	33
<b>II-2. Rendement de conversion dans le cas d'une onde plane.....</b>	<b>34</b>
II-2-1) Approximation de l'enveloppe lentement variable .....	34
II-2-2) Génération de second harmonique .....	35
<b>II-3. Etude de l'accord de phase dans les cristaux NL uniaxes.....</b>	<b>36</b>
II-3-1) Accord de phase colinéaire et non colinéaire.....	37
II-3-2) Différents types d'accord de phase.....	37
II-3-3) Condition sur les indices dans le cas de l'accord de phase colinéaire .....	37
II-3-4) Calcul de l'angle d'accord de phase .....	39
II-3-4-a) Cristal uniaxe .....	39
II-3-4-b) Cas de LTB.....	41
<b>II-4. Développement des coefficients non linéaires effectifs <math>d_{\text{eff}}</math> pour un cristal non linéaire en fonction des <math>d_{ij}</math>.....</b>	<b>41</b>
II-4-1) Cas d'un cristal uniaxe .....	41
II-4-2) Cas de LTB.....	45
<b>II-5. Notion de walk-off .....</b>	<b>46</b>
II-5-1) Direction de polarisation du vecteur de déplacement électrique .....	46
II-5-2) Angle walk-off.....	48
<b>II-6. Acceptance angulaire .....</b>	<b>49</b>
II-6-1) Cas d'un cristal uniaxe .....	49
II-6-2) Cas de LTB.....	51
<b>II-7. Efficacité de conversion de la GSH dans le cas d'un faisceau gaussien .....</b>	<b>52</b>
II-7-1) Configuration géométrique, paramètres du champ électrique dans le cas du faisceau gaussien .....	52
II-7-2) Polarisation induite.....	53
II-7-3) Champ harmonique.....	54
II-7-4) Puissance harmonique.....	57
II-7-5) Le cas du faisceau cylindrique ( $L \ll Z_R$ ).....	58
II-7-5-a) Optimisation de la puissance de SHG .....	58
II-7-5-b) L'expression limite pour le type I .....	58
II-7-5-c) L'expression limite pour le type II .....	59
II-7-6) Optimisation de rendement de conversion de GSH .....	59
II-7-6-a) Optimisation de la longueur de cristal.....	60
II-7-6-b) Optimisation de la position du col à l'intérieur du cristal .....	60
<b>II-8. Résumé et conclusion .....</b>	<b>61</b>

## II-1. Effets en optique non linéaire

### II-1-1) Introduction

La polarisation électrique linéaire induite dans un milieu diélectrique par un champ électrique extérieur  $E_j$  s'écrit :

$$\vec{P}_i = \epsilon_0 \chi_{ij} \vec{E}_j \quad (\text{II-1})$$

avec  $\chi_{ij}$  la susceptibilité électrique,  $\vec{P}_i$  le vecteur de la polarisation électrique linéaire et  $\epsilon_0 = 8,85 \cdot 10^{-12}$  F/m la permittivité du vide.

Des phénomènes optiques non-linéaires NL peuvent se produire lorsque la réponse d'un matériau à une excitation électromagnétique dépend de l'intensité de la lumière s'y propageant. Tous les matériaux sont susceptibles de présenter des non-linéarités; mais cet effet est souvent très faible et ne se produit que pour des intensités lumineuses très importantes. Des fréquences de lumière différentes de celle de la source incidente peuvent être générées soit par conservation de l'énergie, comme c'est le cas pour la génération d'harmoniques, soit par absorption ou gain d'énergie, comme en Raman stimulé ou en dispersion de Brillouin.

### II-1-2) Développement non linéaire de polarisation diélectrique

La polarisation diélectrique NL n'existe que si le champ électromagnétique de la source excitatrice n'est plus négligeable devant le champ liant les électrons à leur atome.

#### II-1-2-a) Écriture tensorielle simplifiée

Quand plusieurs champs électrique  $E_i(\omega_i)$  interagissent, l'équation (II-1) s'écrit :

$$P_i = \epsilon_0 \left( \sum_j \chi_{ij}^{(1)}(\omega) E_j(\omega) + \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) + \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_4, \omega_1, \omega_2, \omega_3) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l(\omega_3) + \dots \right) \quad (\text{II-2})$$

où l'indice  $i = x, y, z$ .

$\omega, \omega_1, \omega_2, \omega_3$  sont les pulsations des ondes électromagnétiques.

$\chi_{ij}^{(1)}(\omega)$  est le terme linéaire de la susceptibilité diélectrique.

$\chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2)$  est la susceptibilité diélectrique non linéaire d'ordre 2.

$\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_4, \omega_1, \omega_2, \omega_3)$  est la susceptibilité diélectrique non linéaire d'ordre 3.

## II-1-2-b) Effets correspondants à ces différents termes

Le terme  $\chi_{ij}^{(1)}(\omega)E_j(\omega)$  correspond aux propriétés optiques linéaires telles que la réfraction et l'absorption.

Le terme  $\chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2)E_j(\omega_1)E_k(\omega_2)$  est le coefficient NL d'ordre 2 qui peut être à la source de phénomènes comme la conversion de fréquences laser par génération de sommes de fréquences (GSF), ou de différence de fréquences (GDF) et l'effet Pockel (tableau 1).

Pulsation des champs	Pulsation de la polarisation	processus
$\omega_1, \omega_2$	$\omega_1 + \omega_2$	Génération de somme de fréquences (GSF)
	$\omega_1 - \omega_2$	Génération de différence de fréquences (GDF)
$\omega_1$	$2\omega_1$	Génération de second harmonique (GSH)
$\omega_1, 0$	$\sim \omega_1$	Effet Pockels (effet électro-optique linéaire).
$\omega_1$	$\omega_1 - \omega_1$	Rectification optique

*Tableau 1 : Processus d'optique non-linéaire d'ordre 2*

Le terme  $\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_4, \omega_1, \omega_2, \omega_3)E_j(\omega_1)E_k(\omega_2)E_l(\omega_3)$  est le coefficient NL d'ordre 3. Il peut être à l'origine de la génération de troisième harmonique (par une seule onde fondamentale), du Raman stimulé, de la dispersion de Brillouin et de l'effet Kerr (tableau 2).

Pulsation des champs	Pulsation de la polarisation	processus
$\omega_1$	$3\omega_1$	Génération harmonique de troisième ordre (GTH)
$\omega_1, \omega_2$	$\omega_1 + \omega_2 - \omega_2$	Effet Raman
$\omega_1$	$\omega_1 + \omega_1 - \omega_1$	Effet Kerr optique (effet EO quadratique)
$\omega_1, \omega_2, \omega_3$	$\omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3$	Mélange d'onde
$\omega_1, 0$	$\omega_1$	Effet Kerr

*Tableau 2 : Processus d'optique non-linéaire d'ordre 3*

## II-1-3) Cas de la génération de second harmonique (GSH)

La génération de second harmonique, représentée dans l'équation (II-2) par la susceptibilité d'ordre 2  $\chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2)$ , est due au transfert d'une partie de l'énergie de l'onde se propageant dans le milieu en énergie d'une fréquence double.

Pour que des effets non linéaires de second ordre puissent avoir lieu dans un matériau, il faut que celui-ci soit non-centro-symétrique.

L'onde de deuxième harmonique n'est générée que lorsque les longueurs d'onde de GSH se combinent constructivement selon le chemin de propagation de l'onde incidente, c'est à dire lorsque l'onde fondamentale à  $\omega$  et l'onde harmonique à  $2\omega$  sont en phase.

Le tenseur des coefficients optiques non linéaires communément utilisé dans la littérature pour caractériser les propriétés de GSH est défini par :  $d_{ijk} = \chi_{ijk}/2$  [Yariv 1984].

Ce tenseur  $d_{ijk}$  d'ordre 3 peut comporter 27 composantes mais leur nombre peut être réduit dans le cas de la GSH. En effet, les deux champs intervenant dans le deuxième terme de l'équation (II-2) sont équivalents, ce qui permet de réduire le nombre de composantes indépendantes à 18.

En utilisant la notation contractée définie par :  $xx = 1, yy = 2, zz = 3, yz = 4, xz = 5, xy = 6$ , la polarisation non linéaire d'ordre 2 s'exprime sous la forme suivante :

$$\vec{P}_{NL}(2\omega) = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^\omega E_x^\omega \\ E_y^\omega E_y^\omega \\ E_z^\omega E_z^\omega \\ 2E_y^\omega E_z^\omega \\ 2E_x^\omega E_z^\omega \\ 2E_x^\omega E_y^\omega \end{pmatrix}$$

De plus, dans le cas de matériaux transparents, les relations de Kleinman [Dmitriev 1991] montrent que les coefficients NL sont invariants par permutation de tous les indices ce qui réduit le nombre de coefficients indépendants à 10 dans le cas le plus général en effet :

$$d_{21} = d_{16}, d_{24} = d_{32};$$

$$d_{31} = d_{15}, d_{13} = d_{35}, d_{14} = d_{36} = d_{25}$$

$$d_{12} = d_{26}, d_{32} = d_{24}$$

Les valeurs des coefficients  $d_{ij}$  de GSH des différents borates étudiés ont été données au tableau 6 du chapitre I.

## II-2. Rendement de conversion dans le cas d'une onde plane

Afin d'étudier le phénomène de GSH, le champ électrique de l'onde lumineuse et plus précisément sa propagation à travers le matériau NL doivent être étudiés. Pour cela, il est nécessaire de prendre en compte le couplage entre les ondes lumineuses et la polarisation qu'elles induisent. Ce couplage est décrit au moyen d'une équation d'onde NL issue des équations de Maxwell, où la polarisation non linéaire joue le rôle d'un terme source.

Dans le cas d'ondes planes, le champ électrique de l'onde peut s'écrire:

$$\vec{E}_i(\vec{r}, t) = \vec{E}_i(r) \exp(j\omega_i t - j\vec{k}_i \cdot \vec{r}) \quad (\text{II-3})$$

l'indice  $i = (1, 2, 3)$  correspond aux différentes ondes en interaction.

L'équation de propagation non linéaire, qui exprime l'évolution du champ électrique d'une onde monochromatique en fonction de la polarisation dans le milieu considéré comme non magnétique est :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{\nabla} \wedge \vec{E} - \mu_0 \varepsilon \omega^2 \vec{E} = \mu_0 \omega^2 \vec{P}_{NL} \quad (\text{II-4})$$

$\mu_0$  : permittivité diélectrique du vide et  $\varepsilon$  est perméabilité magnétique du milieu.

Pour résoudre l'équation de propagation non linéaire, nous nous plaçons dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable ce qui permet de simplifier les calculs. D'autre part, dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable les dérivées secondes de l'amplitude sont négligeables devant ses dérivées premières. Cela revient à considérer que l'amplitude de l'onde varie peu à l'échelle de la longueur d'onde.

### II-2-1) Approximation de l'enveloppe lentement variable

Nous supposons que les ondes planes incidentes sur le cristal NL ont un vecteur d'onde dirigé suivant un axe Oz considéré perpendiculaire à la surface d'entrée.

Nous limitons à trois le nombre d'ondes en interaction et nous supposons qu'elles prennent la forme d'ondes planes progressives d'amplitudes complexes se propageant le long de l'axe Oz:

$$\vec{E}_i(z, t) = \vec{E}_i(z) e^{j(\omega_i t - k_i z)} \quad (\text{II-5})$$

La relation entre les fréquences des différentes ondes est, dans le cas d'une génération de l'onde 3 à partir des ondes 1 et 2,  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ .

L'équation d'évolution du champ électrique de l'onde 3 s'écrit:



$$-\begin{pmatrix} \frac{\partial^2 E_{3x}}{\partial z^2} \\ \frac{\partial^2 E_{3y}}{\partial z^2} \\ 0 \end{pmatrix} + 2jk_3 \begin{pmatrix} \frac{\partial E_{3x}}{\partial z} \\ \frac{\partial E_{3y}}{\partial z} \\ 0 \end{pmatrix} + \left[ k_3^2 \begin{pmatrix} E_{3x} \\ E_{3y} \\ 0 \end{pmatrix} - \mu_0 \omega_3^2 \varepsilon(\omega_3) \begin{pmatrix} E_{3x} \\ E_{3y} \\ 0 \end{pmatrix} \right] = \mu_0 \omega_3^2 d_{eff} \bar{E}_1 \bar{E}_2 e^{j(k_3 - k_1 - k_2)z} \quad (\text{II-6})$$

$d_{eff}$  est le coefficient effectif non linéaire qui dépend des angles d'accord de phase et des coefficients non linéaires  $d_{ijk}$ .

Le terme entre crochets correspondant à l'équation de propagation linéaire s'annule. D'autre part, on néglige les dérivées secondes de l'amplitude variable devant ses dérivées premières. Cela revient à considérer que l'amplitude de l'onde varie peu à l'échelle de la longueur d'onde. Le champ électrique de chacune des trois ondes vérifie un système d'équation analogue à (II-6). Pour simplifier l'écriture de ce système, on pose :

$$A_{ix} = \sqrt{\frac{n_i}{\omega_i}} E_{ix} \text{ et } \kappa = \sqrt{\frac{\mu_0 \cdot \omega_1 \cdot \omega_2 \cdot \omega_3}{\varepsilon_0 \cdot n_1 \cdot n_2 \cdot n_3}} \quad (\text{II-7})$$

$$\Rightarrow \begin{cases} \frac{\partial A_{1i}}{\partial z} = -j \frac{\kappa}{2} d_{eff} A_{2j}^* A_{3k} e^{-j\Delta K \cdot z} \\ \frac{\partial A_{2i}}{\partial z} = -j \frac{\kappa}{2} d_{eff} A_{1j}^* A_{3k} e^{-j\Delta K \cdot z} \\ \frac{\partial A_{3i}}{\partial z} = -j \frac{\kappa}{2} d_{eff} A_{1j} A_{2k} e^{j\Delta K \cdot z} \end{cases} \quad (\text{II-8})$$

Ces équations permettent de décrire tous les processus de somme de fréquence.

Le facteur  $\Delta K = k_3 - k_1 - k_2$  caractérise le désaccord de phase entre les différentes ondes en interaction. Si  $\Delta K = 0$ , les ondes sont accordées en phase; elles peuvent échanger de l'énergie de manière optimale. Si ce terme est non nul, l'amplitude des différentes ondes va osciller à l'intérieur du cristal : cela correspond à des interférences entre des ondes libres et des ondes liées. On définit la longueur de cohérence par  $l_c = \pi/\Delta K$  : c'est la distance entre deux franges d'interférence à l'intérieur du cristal.

### II-2-2) Génération de second harmonique

Les équations de propagation dans le cas de la génération de second harmonique GSH par un seul faisceau incident correspondent à  $\omega_1 = \omega_2 = \omega$  pour le type I s'écrivent :



$$\begin{cases} \frac{\partial A^{2\omega}}{\partial z} = -j \frac{\kappa}{2} d_{eff} (A^\omega)^2 e^{j\Delta K \cdot z} \\ \frac{\partial A^\omega}{\partial z} = -j \frac{\kappa}{2} d_{eff} A^{2\omega} A^{\omega*} e^{-j\Delta K \cdot z} \end{cases} \quad (\text{II-9})$$

Pour résoudre ces équations, on peut supposer le cas de non déplétion d'onde. Dans ce cas, la première équation du système (II-9) s'intègre directement et on obtient, en supposant qu'il n'y a pas d'onde harmonique incidente:

$$\text{Si } \Delta K=0 : A^{2\omega} = -j \frac{\kappa}{2} d_{eff} (A^\omega)^2 L \quad (\text{II-10})$$

$$(\text{Sinon : } A^{2\omega} = \kappa d_{eff} (A^\omega)^2 \frac{1 - e^{j\Delta K L}}{2}) \quad (\text{II-11})$$

L : longueur du cristal.

L'amplitude de l'onde harmonique augmente de façon linéaire en fonction de la distance de propagation lorsque l'accord de phase est réalisé. Hors de l'accord de phase, elle oscille et s'annule périodiquement.

La puissance de l'onde harmonique générée par unité de surface est calculée à partir du vecteur de Poynting :

$$P^{2\omega} = \frac{c}{n_{2\omega}} \|\mathbf{E}\| \|\mathbf{D}\| \cong n_{2\omega} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} E^2 \quad (\text{II-12})$$

On trouve alors :

$$P^{2\omega} = \frac{4\omega^2}{s} \left( \frac{\epsilon_0}{\mu_0} \right)^{3/2} \left( \frac{d_{eff}^2}{n_{2\omega} n_\omega^2} \right) \text{sinc}^2 \left( \frac{\Delta K L}{2} \right) L^2 (P^\omega)^2 \quad (\text{II-13})$$

$d_{eff}$ : coefficient effectif NL.

$n_\omega$  : indice de réfraction à  $\omega$ .

$n_{2\omega}$  : indice de réfraction à  $2\omega$ .

s: surface du faisceau incident.

La puissance de l'onde harmonique générée à  $2\omega$  dépend donc de la puissance incidente à  $\omega$ , du coefficient effectif NL du matériau et des conditions de propagation de l'onde dans ce cristal.

### II-3. Etude de l'accord de phase dans les cristaux NL uniaxes

Le rendement de conversion en GSH dépend de la direction de propagation. Ce rendement est maximum lorsque  $\text{sinc}^2(\Delta K L/2) = 1$ , c'est à dire lorsque  $\Delta \vec{K} = \vec{0}$ , donc si l'accord de phase est réalisé.

## II-3-1) Accord de phase colinéaire et non colinéaire

Pour une longueur  $L$  de cristal traversée :

$$P(2\omega) \propto P^2(\omega) d_{\text{eff}}^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta K L}{2}\right) \quad (\text{II-14})$$

L'étude de la fonction  $\text{sinc}^2(\Delta K L/2)$  montre qu'elle présente des maxima secondaires et un maxima principal à  $\Delta K = 0$  correspondant à  $\text{sinc}^2(\Delta K L/2) = 1$ .

Cette condition pouvant être réalisée vectoriellement ou scalairement, deux accords de phase apparaissent dans les milieux biréfringents :

- L'accord de phase colinéaire où  $\Delta K = 0$  est réalisé scalairement.
- L'accord de phase non colinéaire, l'onde à  $2\omega$  n'est pas générée dans la même direction que l'onde à  $\omega$ . On a alors  $\Delta \vec{K} = \vec{0}$ .



Figure 1 : Accord de phase a) colinéaire et b) non colinéaire

Par la suite, notre étude portera uniquement sur l'accord de phase colinéaire.

## II-3-2) Différents types d'accord de phase

La condition  $\Delta K = 0$  impose une relation entre les indices de réfraction de l'onde fondamentale et ceux de l'onde harmonique.

Selon les valeurs des indices de réfraction à  $\omega$  et à  $2\omega$ , il existe deux types d'accord de phase dans ces milieux biréfringents :

- Type I : les deux ondes fondamentales ont la même polarisation et l'onde harmonique a une polarisation orthogonale à ces deux ondes.
- Type II : les deux ondes fondamentales ont des polarisations différentes (dans le cas de cristaux uniaxes il s'agit de l'interaction d'une onde ordinaire et d'une onde extraordinaire) et la troisième onde à  $2\omega$  a une polarisation parallèle à une des deux ondes à  $\omega$ .

## II-3-3) Condition sur les indices dans le cas de l'accord de phase colinéaire

La puissance harmonique  $P(2\omega)$  est maximale si  $\Delta K = 0 \Leftrightarrow k_3 = k_1 + k_2 \Leftrightarrow 2n_3 = n_1 + n_2$ .

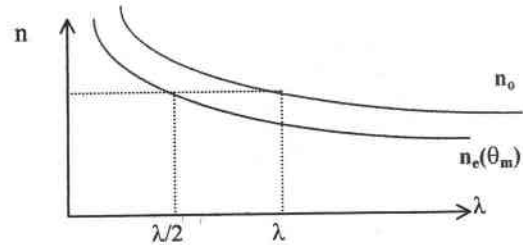
Pour réaliser cette condition, différentes relations peuvent s'établir selon que le cristal est uniaxe positif ou négatif et selon que la biréfringence est plus ou moins grande. Dans un cristal uniaxe, ces différents cas peuvent se présenter de la façon suivante :

Type I : Uniaxe négatif (ooe).

$$n_2(\omega, \theta) = n_1(\omega, \theta) = n_o(\omega)$$

$$n_3(2\omega, \theta) = n_e(2\omega, \theta)$$

$$n_e(2\omega, \theta_m) = n_o(\omega)$$

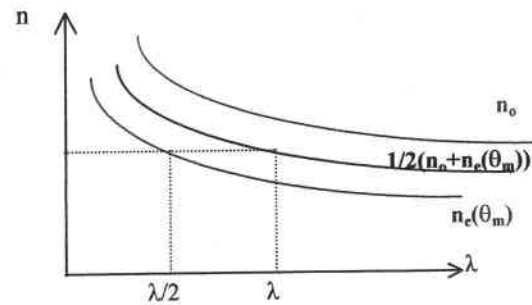


Type II : Uniaxe négatif (eoe).

$$n_2(\omega, \theta) = n_e(\omega, \theta), n_1(\omega, \theta) = n_o(\omega)$$

$$n_3(2\omega, \theta) = n_e(2\omega, \theta)$$

$$n_e(2\omega, \theta_m) = 1/2[n_o(\omega) + n_e(\omega, \theta_m)]$$

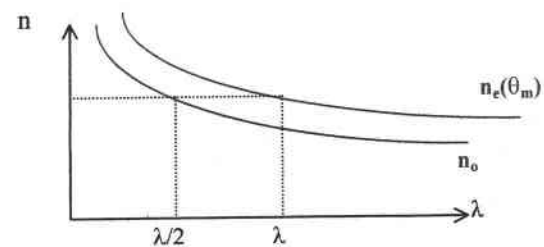


Type I : Uniaxe positif (eeo).

$$n_2(\omega, \theta) = n_1(\omega, \theta) = n_e(\omega, \theta)$$

$$n_3(2\omega, \theta) = n_o(2\omega)$$

$$n_o(2\omega) = n_e(\omega, \theta_m)$$

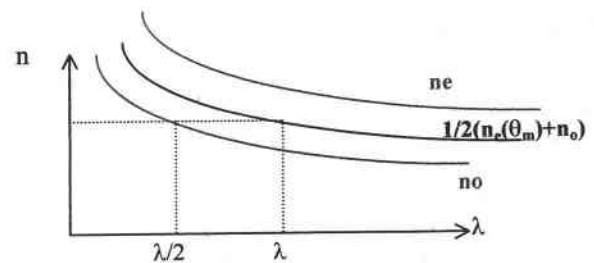


Type II : Uniaxe positif (oeo).

$$n_2(\omega, \theta) = n_o(\omega), n_1(\omega, \theta) = n_e(\omega, \theta)$$

$$n_3(2\omega, \theta) = n_o(2\omega)$$

$$n_o(2\omega) = 1/2[n_e(\omega, \theta_m) + n_o(\omega)]$$



où  $\theta$  représente l'angle entre l'axe optique et la direction de propagation.

Les relations obtenues pour les différents types d'accord de phase sont résumées dans le tableau suivant :

	Condition d'accord de phase		Type de cristal
Type I	$o + o \rightarrow e$	$n_o^{\omega} = n_e^{2\omega}(\theta, \varphi)$	Négatif ( $n_o > n_e$ )
	$e + e \rightarrow o$	$n_e^{\omega}(\theta) = n_o^{2\omega}$	Positif ( $n_o < n_e$ )
Type II	$e + o \rightarrow e$	$1/2(n_o^{\omega} + n_e^{\omega}(\theta)) = n_e^{2\omega}(\theta, \varphi)$	Négatif
	$e + o \rightarrow o$	$1/2(n_o^{\omega} + n_e^{\omega}(\theta)) = n_o^{2\omega}$	Positif

Tableau 3 : Tableau récapitulatif des types d'accord de phase

La connaissance précise des indices de réfraction du milieu à  $\omega$  et à  $2\omega$  permet donc de déterminer les différentes directions d'accord de phase.

II-3-4) Calcul de l'angle d'accord de phase

Dans notre étude nous nous intéressons surtout à l'accord de phase pour le cas d'un cristal uniaxe.

L'étude de l'accord de phase pour les cristaux biaxes sera présentée en annexe (annexe B). Dans ce cas, il n'y a pas de solution analytique ; un calcul numérique, développé sous Turbo Pascal, permet de trouver les directions  $(\theta, \varphi)$  de propagation à partir de l'équation d'indice des surface d'indices à  $\omega$  et  $2\omega$  [Hobden 1967].

II-3-4-a) Cristal uniaxe

Dans le cas des cristaux uniaxes, l'indice ordinaire est constant en fonction de la direction de propagation et l'indice extraordinaire vérifie la relation :

$$n_e(\theta) = \frac{n_o n_e}{\sqrt{(n_o \sin\theta)^2 + (n_e \cos\theta)^2}} \tag{II-15}$$

Les conditions d'accord de phase décrivent donc des courbes de révolution autour de l'axe optique, comme le montre la figure suivante :

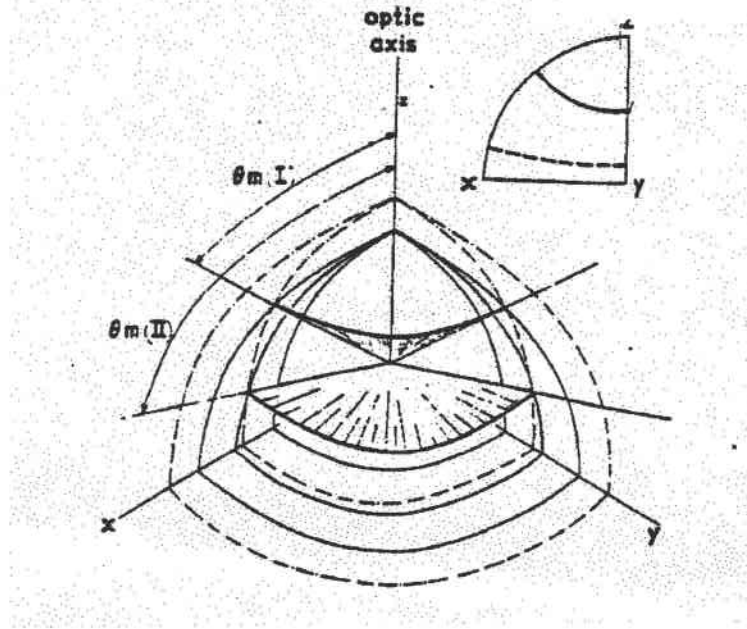


Figure 2 : Direction d'accord de phase de GSH dans un cristal uniaxe

Les surfaces des fréquences fondamentale et harmonique de la figure 2 illustrent l'accord de phase de la GSH dans un cristal uniaxe positif avec une biréfringence suffisante pour compenser la dispersion [Hobden 1967].

Le tableau ci-dessous résume les valeurs des angles d'accord de phase pour les cristaux uniaxes positifs et négatifs, et pour des accords de phase de type I et II :

Milieu uniaxe	Négatif	Positif
Type I	$\sin^2(\theta_m) = \frac{(n_o(\omega))^2 - (n_o(2\omega))^2}{(n_e(2\omega))^2 - (n_o(2\omega))^2}$	$\sin^2(\theta_m) = \frac{(n_o(2\omega))^2 - (n_o(\omega))^2}{(n_e(\omega))^2 - (n_o(\omega))^2}$
Type II	$\left[ \frac{\cos^2(\theta_m)}{(n_o(2\omega))^2} + \frac{\sin^2(\theta_m)}{(n_e(2\omega))^2} \right]^{\frac{1}{2}} = \frac{1}{2}$ $\left\{ n_o(\omega) + \left[ \frac{\cos^2(\theta_m)}{(n_o(\omega))^2} + \frac{\sin^2(\theta_m)}{(n_e(\omega))^2} \right]^{\frac{1}{2}} \right\}$	$\sin^2(\theta_m) = \frac{\left\{ \frac{n_o(\omega)}{[2n_o(2\omega) - n_o(\omega)]} \right\}^2 - 1}{\left[ \frac{n_o(\omega)}{n_e(\omega)} \right]^2 - 1}$

Tableau 4 : Tableau récapitulatif des angles d'accord de phase pour les cristaux uniaxes positifs et négatifs et pour des accords de phase de types I et II

L'accord de phase est réalisé indépendamment de l'angle azimutal  $\phi$ , c'est à dire dans la surface du cône avec un angle sommet  $2\theta_m$ . Néanmoins l'angle  $\phi$  intervient dans l'efficacité de conversion par l'intermédiaire du coefficient effectif NL  $d_{eff}$ .

Il est à noter que l'angle d'accord de phase de type I est toujours plus petit que celui du type II. Cela signifie que si l'accord de phase de type II est possible, alors nécessairement l'accord de phase de type I l'est aussi [Hobden 1967].

### II-3-4-b) Cas de LTB

Le tétraborate de lithium est un cristal uniaxe négatif ( $n_e < n_o$ ). La condition d'accord de phase de type I est  $n_o^\omega = n_e^{2\omega}(\theta_m)$  et d'après (II-15) on a :

$$n_o^\omega(\theta_m^I) = \frac{n_o^{2\omega} n_e^{2\omega}}{\sqrt{(n_o^{2\omega} \sin \theta)^2 + (n_e^{2\omega} \cos \theta)^2}} \Rightarrow \sin^2(\theta_m^I) = \frac{(n_o(\omega))^2 - (n_e(2\omega))^2}{(n_e(2\omega))^2 - (n_o(2\omega))^2}$$

En connaissant les indices de réfractions à  $\omega$  et à  $2\omega$  de LTB, on peut calculer l'angle d'accord de phase de type I.

La condition d'accord de phase pour le type II est :  $1/2(n_o^\omega + n_e^\omega(\theta)) = n_e^{2\omega}(\theta_m)$ .

$$\text{En utilisant (II-5) on aura } \left[ \frac{\cos^2(\theta_m)}{(n_e(2\omega))^2} + \frac{\sin^2(\theta_m)}{(n_o(2\omega))^2} \right]^{1/2} = \frac{1}{2} \left\{ n_o(\omega) + \left[ \frac{\cos^2(\theta_m)}{(n_o(\omega))^2} + \frac{\sin^2(\theta_m)}{(n_e(\omega))^2} \right]^{1/2} \right\}$$

## II-4. Développement des coefficients non linéaires effectifs $d_{eff}$ pour un cristal non linéaire en fonction des $d_{ij}$

Une fois la direction d'accord de phase localisée, la caractérisation physique du cristal non linéaire nécessite de mesurer le rendement de conversion afin d'en déduire le coefficient non linéaire effectif associé. Celui-ci varie d'une direction d'accord de phase à une autre.

Dans le cas général où la direction de propagation n'est pas le long des axes principaux du cristal, le coefficient est une combinaison linéaire de plusieurs coefficients optiques NL.

Dans ce qui suit, nous proposons la méthode de détermination de coefficient  $d_{eff}$  en fonction des  $d_{ij}$  et de l'angle d'accord de phase pour les cristaux uniaxes et pour LTB plus particulièrement. Celle des cristaux biaxes sera présentée en annexe (annexe B).

### II-4-1) Cas d'un cristal uniaxe

La polarisation du second ordre  $P_i(\omega_3)$  produite par l'interaction de deux champs électriques  $E_j(\omega_1)$  et  $E_k(\omega_2)$  dans un milieu optique non linéaire est donnée par la relation suivante [Midwinter 1965]:

$$P_i(\omega_3) = d_{ijk}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (\text{II-16})$$

où  $d_{ijk}(-\omega_3, \omega_2, \omega_1)$  est le tenseur de polarisabilité du second ordre.

Pour une onde ordinaire de pulsation  $\omega$  se propageant dans une direction repérée par  $(\theta, \varphi)$ , les composantes du champ électrique  $E_j^o(\omega)$  sont définies par (figure 3):

$$E_1^o(\omega) = \sin\varphi E^o(\omega), \quad E_2^o(\omega) = -\cos\varphi E^o(\omega), \quad E_3^o(\omega) = 0$$

Alors:

$$E_j^o(\omega) = (a_j) E^o(\omega) \quad \text{ou} \quad (a_j) = \begin{pmatrix} \sin\varphi \\ -\cos\varphi \\ 0 \end{pmatrix}$$

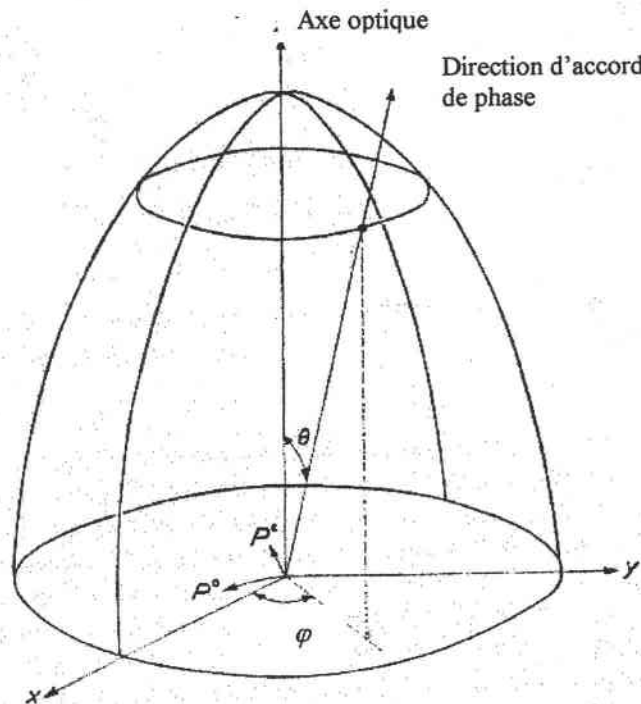
où  $E^o(\omega)$  est l'amplitude scalaire du champ ordinaire. De la même manière, pour l'onde extraordinaire :

$$E_1^e(\omega) = -\cos\theta \cos\varphi E^e(\omega), \quad E_2^e(\omega) = -\cos\theta \sin\varphi E^e(\omega), \quad E_3^e(\omega) = \sin\theta E^e(\omega)$$

Alors

$$E_j^e(\omega) = (b_j) E^e(\omega) \quad \text{ou} \quad (b_j) = \begin{pmatrix} -\cos\theta \cos\varphi \\ -\cos\theta \sin\varphi \\ \sin\theta \end{pmatrix}$$

où  $E^e(\omega)$  est l'amplitude scalaire du champ extraordinaire.



**Figure 3 :** Présentation d'angle d'accord de phase et les polarisations non linéaires ordinaires et extraordinaire dans un cristal uniaxe

La polarisation induite par l'interaction non linéaire pour produire une onde ordinaire ou extraordinaire selon le type d'accord de phase utilisé est

$$P^o(\omega) = (a_i)^* P_i(\omega) \tag{II-17}$$



où

$$P^e(\omega) = (b_i)^* P_i(\omega) \quad (\text{II-18})$$

$(a_i)^*$  et  $(b_i)^*$  sont les transposées des matrices  $(a_i)$  et  $(b_i)$  respectivement.

L'équation (II-16) peut s'écrire de quatre façons différentes selon la condition d'accord de phase et que le cristal est uniaxe négatif ou uniaxe positif.

✓ Pour le type I :

$$\text{i) cristal positif: } P_{ee}^o(\omega_3) = (a_i)^* d_{ijk}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) (b_j)(b_k) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (\text{II-19})$$

$$\text{ii) cristal négatif: } P_{oo}^e(\omega_3) = (b_i)^* d_{ijk}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) (a_j)(a_k) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (\text{II-20})$$

✓ Pour le type II :

$$\text{i) cristal positif: } P_{eo}^o(\omega_3) = (a_i)^* d_{ijk}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) (b_j)(a_k) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (\text{II-21})$$

$$\text{ii) cristal uniaxe: } P_{oe}^e(\omega_3) = (b_i)^* d_{ijk}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) (a_j)(b_k) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (\text{II-22})$$

En utilisant la symétrie de Kleinman pour les  $d_{ijk}$  ( $d_{ijk}(-\omega_3, \omega_2, \omega_1) = d_{ikj}(-\omega_3, \omega_2, \omega_1)$  pour la GSH), les équations de (II-19) à (II-22) peuvent s'écrire comme suit, en négligeant les fréquences:

$$P_{ee}^o = d_{ijk} (a_i)^* (b_j)(b_k) E_j E_k \quad (\text{II-23})$$

$$P_{oo}^e = d_{ijk} (b_i)^* (a_j)(a_k) E_j E_k \quad (\text{II-24})$$

$$P_{eo}^o = d_{ijk} (a_i)^* (b_j)(a_k) E_j E_k \quad (\text{II-25})$$

$$P_{oe}^e = d_{ijk} (b_i)^* (a_j)(b_k) E_j E_k \quad (\text{II-26})$$

Puisque l'ordre de multiplication de triple produit scalaire n'est pas important, nous pouvons constater que :

$$P_{ee}^o \equiv P_{oe}^e \quad \text{et} \quad P_{oo}^e \equiv P_{eo}^o$$

La polarisabilité du second ordre (II-16) peut s'écrire :

$$\begin{pmatrix} P_1 \\ P_2 \\ P_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & \dots & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & \dots & \\ d_{31} & d_{32} & \dots & d_{36} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Omega_{11} \\ \Omega_{22} \\ \Omega_{33} \\ \Omega_{23} + \Omega_{32} \\ \Omega_{31} + \Omega_{13} \\ \Omega_{12} + \Omega_{21} \end{pmatrix} \quad (\text{II-27})$$

où par exemple  $\Omega_{23} = E_2(\omega_1) E_3(\omega_2)$

alors l'équation (II-27) peut s'écrire comme :  $P_i = d_{im} \Psi_m$  (II-28)

Dans les quatre cas possibles d'accord de phase, il y a trois formes alternatives de la matrice de produit de champ électrique ( $\Psi_m$ ):

$$(\Psi_m^{ee}) = \begin{pmatrix} \cos^2\theta \cos^2\varphi \\ \cos^2\theta \sin^2\varphi \\ \sin^2\theta \\ -\sin 2\theta \sin\varphi \\ -\sin 2\theta \cos\varphi \\ \cos^2\theta \sin 2\varphi \end{pmatrix} \times E^e(\omega_2)E^e(\omega_1) \quad (\text{II-29})$$

$$(\Psi_m^{oo}) = \begin{pmatrix} \sin^2\varphi \\ \cos^2\varphi \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ -\sin 2\varphi \end{pmatrix} \times E^o(\omega_2)E^o(\omega_1) \quad (\text{II-30})$$

$$(\Psi_m^{eo}) = (\Psi_m^{oe}) = \begin{pmatrix} -\frac{1}{2} \cos\theta \sin 2\varphi \\ \frac{1}{2} \cos\theta \sin 2\varphi \\ 0 \\ -\sin\theta \cos\varphi \\ \sin\theta \sin\varphi \\ \cos\theta \cos 2\varphi \end{pmatrix} \times E^o(\omega_2)E^e(\omega_1) \quad (\text{II-31})$$

À partir des équations (II-23) à (II-26) nous pouvons déduire le coefficient non linéaire effectif  $d_{eff}$  pour chaque accord de phase et pour chaque classe de symétrie (voir tableau 5)

classe	$d_{eff}^{eoo}$ et $d_{eff}^{oeo}$	$d_{eff}^{ooo}$ et $d_{eff}^{oee}$
$\bar{6}2m$	$d_{22} \cos^2\theta \cos 3\varphi$	$-d_{22} \cos\theta \sin 3\varphi$
$\bar{6}$	$\cos^2\theta (d_{11} \sin 3\varphi + d_{22} \cos 3\varphi)$	$\cos\theta (d_{11} \cos 3\varphi - d_{22} \sin 3\varphi)$
6	0	$d_{15} \sin\theta$
3m	$d_{22} \cos^2\theta \cos 3\varphi$	$d_{15} \sin\theta - d_{22} \cos\theta \sin 3\varphi$
32	$d_{11} \cos^2\theta \sin 3\varphi$	$d_{11} \cos\theta \cos 3\varphi$
3	$\cos^2\theta (d_{11} \sin 3\varphi + d_{22} \cos 3\varphi)$	$d_{15} \sin\theta + \cos\theta (d_{11} \cos 3\varphi - d_{22} \sin 3\varphi)$
$\bar{4}2m$	$d_{14} \sin\theta \cos 2\varphi$	$-d_{14} \sin\theta \sin 2\varphi$
4mm	0	$d_{15} \sin\theta$
$\bar{4}$	$\sin 2\theta (d_{14} \cos 2\varphi - d_{15} \sin\varphi)$	$-\sin\theta (d_{14} \sin 2\varphi + d_{15} \cos 2\varphi)$
4	0	$d_{15} \sin\theta$

**Tableau 5:** Tableau récapitulatif du coefficient effectif non linéaire pour différentes classes de cristaux uniaxes [Midwinter 1965].

II-4-2) Cas de LTB

LTB est un cristal uniaxe négatif de groupe d'espace 4mm. Son tenseur des coefficients optiques non-linéaires est :

$$d_{ij} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{15} & d_{15} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

✓ Type I :

D'après l'équation (II-24), nous avons :

$$d_{eff}^{ooe} = d_{ijk} (a_j)^* (a_k) (b_i)$$

d'où

$$d_{eff}^{ooe} = (-\cos\theta \cos\varphi \quad -\cos\theta \sin\varphi \quad \sin\theta) \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ d_{21} & d_{22} & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ d_{31} & d_{32} & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \end{pmatrix} \begin{pmatrix} d_{16} \\ d_{36} \\ \sin^2\varphi \\ \cos^2\varphi \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ -\sin 2\varphi \end{pmatrix}$$

Le coefficient  $d_{eff}$  pour le type I est obtenu à partir de l'équation suivante :

$$d_{eff}^{ooe} = (-\cos\theta \cos\varphi \quad -\cos\theta \sin\varphi \quad \sin\theta) \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{15} & d_{15} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sin^2\varphi \\ \cos^2\varphi \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ -\sin 2\varphi \end{pmatrix}$$

$$= (-\cos\theta \cos\varphi \quad -\cos\theta \sin\varphi \quad \sin\theta) \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ d_{15} \underbrace{(\sin^2\varphi + \cos^2\varphi)}_1 \end{pmatrix} = d_{15} \sin\theta$$

✓ Type II :

De la même manière que pour le type I, à partir de l'équation (II-26) nous avons:

$$d_{eff}^{poe} = (-\cos\theta \cos\varphi \quad -\cos\theta \sin\varphi \quad \sin\theta) \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ d_{21} & d_{22} & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ d_{31} & d_{32} & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \end{pmatrix} \begin{pmatrix} d_{16} \\ d_{36} \\ -\frac{1}{2}\cos\theta \sin 2\varphi \\ \frac{1}{2}\cos\theta \sin 2\varphi \\ 0 \\ -\sin\theta \cos\varphi \\ \sin\theta \sin\varphi \\ \cos\theta \cos 2\varphi \end{pmatrix}$$

d'où

$$\begin{aligned}
 d_{eff}^{eoe} &= \begin{pmatrix} -\cos\theta \cos\varphi & -\cos\theta \sin\varphi & \sin\theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{15} & d_{15} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -\frac{1}{2} \cos\theta \sin 2\varphi \\ \frac{1}{2} \cos\theta \sin 2\varphi \\ 0 \\ -\sin\theta \cos\varphi \\ \sin\theta \sin\varphi \\ \cos\theta \cos 2\varphi \end{pmatrix} \\
 &= \begin{pmatrix} -\cos\theta \cos\varphi & -\cos\theta \sin\varphi & \sin\theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} d_{15} \sin\theta \sin\varphi \\ -d_{15} \sin\theta \cos\varphi \\ \frac{d_{15}}{2} \underbrace{(-\cos\theta \sin 2\varphi + \cos\theta \sin 2\varphi)}_0 \end{pmatrix} \\
 &= 0
 \end{aligned}$$

**II-5. Notion de walk-off [ Bréhat 1989, Wyncke 1989]**

Le phénomène de walk-off<sup>1</sup> correspond à une différence d'orientation entre les directions de propagation du flux énergétique et de l'onde elle-même.

Dans le cas d'un cristal uniaxe, il y a qu'une seule polarisation qui subit une déviation due à l'effet walk-off, c'est l'onde extraordinaire, l'onde ordinaire comme son nom l'indique ne présente pas de walk-off. Par contre, on rencontre cela pour les deux polarisations dans un cristal biaxe.

Il est primordial de connaître précisément l'amplitude du phénomène de walk-off pour évaluer l'aptitude d'un cristal à être utilisé comme doubleur de fréquence. Pour des cristaux de petite épaisseur, l'effet n'est pas trop gênant; mais la puissance de l'onde harmonique générée est très limitée dès que le cristal est trop long ou que le faisceau est de trop petite taille.

*II-5-1) Direction de polarisation du vecteur de déplacement électrique*

Dans un milieu anisotrope, nous considérons une onde plane de fréquence angulaire  $\omega$ , se propageant dans la direction de vecteur unitaire  $\vec{s}$ .

Dans les axes principaux du cristal x, y et z, on appelle  $\theta$  est l'angle entre la direction de propagation  $\vec{s}$  et l'axe z et  $\varphi$  l'angle entre la projection de  $\vec{s}$  dans le plan x-y et l'axe des x.

À partir des équations de Maxwell, nous avons une équation d'onde écrite de façon générale sous la forme suivante:

$$\vec{k} \wedge (\vec{k} \wedge \vec{E}) + \omega^2 \mu \epsilon \vec{E} = \vec{0} \tag{II-32}$$

où  $\vec{k} = \left(\frac{\omega}{c}\right) n \vec{s}$  est le vecteur d'onde,  $n$  est l'indice de réfraction dans la direction de propagation,  $\vec{E}$  est le champ électrique,  $\epsilon$  est le tenseur de permittivité diélectrique et  $\mu$  la perméabilité magnétiques (supposé scalaire).

En substituant  $\vec{D} = \epsilon \vec{E}$  dans l'équation (II-32), on obtient :

$$\vec{D} = \frac{n^2}{\mu c^2} \left( \frac{\vec{D}}{\epsilon} - \vec{s} (\vec{s} \cdot \vec{E}) \right) \quad (\text{II-33})$$

où  $\vec{D}$  est le vecteur déplacement électrique.

Les composantes de vecteur  $\vec{D}$  sont obtenues à partir de l'équation (II-33) en substituant

$$\mu = \mu_0 = 1/\epsilon_0 c^2 \text{ et } n_x^2 = \frac{\epsilon_x}{\epsilon_0}, n_y^2 = \frac{\epsilon_y}{\epsilon_0} \text{ et } n_z^2 = \frac{\epsilon_z}{\epsilon_0}.$$

La composante le long de l'axe  $x$  s'écrit :

$$D_x = \frac{s_x}{n_x^2 - n^2} \epsilon_0 (\vec{s} \cdot \vec{E}) \quad (\text{II-34})$$

$$\text{avec } \begin{pmatrix} s_x \\ s_y \\ s_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sin \theta \cos \varphi \\ \sin \theta \sin \varphi \\ \cos \theta \end{pmatrix}$$

$n_x$ ,  $n_y$  et  $n_z$  sont les indices de réfraction principaux et  $\epsilon_x$ ,  $\epsilon_y$  et  $\epsilon_z$  sont les éléments de tenseur diélectrique exprimés dans les axes principaux de cristal. Les deux autres composantes  $D_y$  et  $D_z$  sont obtenues de la même manière.

Les expressions des cosinus de vecteur déplacement électrique  $\vec{D}$  d'une onde plane monochromatique se propageant dans la direction  $\vec{s}$  d'un cristal sont dérivées de l'équation (II-34) et des deux autres  $D_y$  et  $D_z$

<sup>1</sup> La traduction française en un seul mot du mot walk-off est délicate. Pour cette raison, nous gardons le terme anglais dans tout le manuscrit.

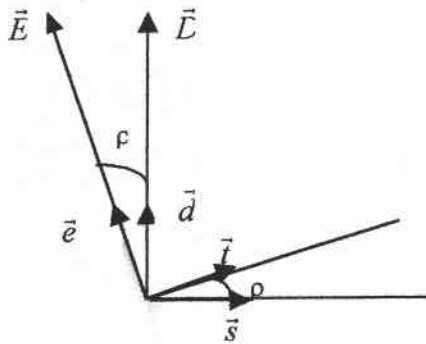
$$\begin{aligned}
 \cos \alpha &= \frac{s_x}{n_x^{-2} - n^{-2}} \left[ \left( \frac{s_x}{n_x^{-2} - n^{-2}} \right)^2 + \left( \frac{s_y}{n_y^{-2} - n^{-2}} \right)^2 + \left( \frac{s_z}{n_z^{-2} - n^{-2}} \right)^2 \right]^{-\frac{1}{2}} \\
 \cos \beta &= \frac{s_y}{n_y^{-2} - n^{-2}} \left[ \left( \frac{s_x}{n_x^{-2} - n^{-2}} \right)^2 + \left( \frac{s_y}{n_y^{-2} - n^{-2}} \right)^2 + \left( \frac{s_z}{n_z^{-2} - n^{-2}} \right)^2 \right]^{-\frac{1}{2}} \\
 \cos \gamma &= \frac{s_z}{n_z^{-2} - n^{-2}} \left[ \left( \frac{s_x}{n_x^{-2} - n^{-2}} \right)^2 + \left( \frac{s_y}{n_y^{-2} - n^{-2}} \right)^2 + \left( \frac{s_z}{n_z^{-2} - n^{-2}} \right)^2 \right]^{-\frac{1}{2}}
 \end{aligned} \tag{II-35}$$

### II-5-2) Angle walk-off

Le walk-off  $\rho$  est l'angle entre la direction de propagation et le flux d'énergie. À partir de la relation  $\vec{D} = \epsilon \vec{E}$ , nous pouvons constater que  $\vec{D}$  et  $\vec{E}$  ont des directions différentes dans un milieu anisotrope, à moins que  $\vec{s}$  ne coïncide avec un des axes principaux.

Les équations de Maxwell impliquent que pour une onde plane  $\vec{D}$ ,  $\vec{E}$  et  $\vec{s}$  sont perpendiculaires à un champ magnétique  $\vec{H}$ . Donc  $\vec{D}$ ,  $\vec{E}$  et  $\vec{s}$  doivent être coplanaires.

Le vecteur de Poynting  $\vec{S} = \vec{E} \wedge \vec{H}$ , qui représente la direction de flux d'énergie, appartient au même plan que  $\vec{D}$ ,  $\vec{E}$  et  $\vec{s}$ , mais n'est pas parallèle à  $\vec{s}$ . La figure 4 montre les directions de ces vecteurs.  $\vec{t}$  est le vecteur unité dans la direction de  $\vec{S}$ .



**Figure 4 :** Relation entre la direction de propagation  $\vec{s}$  et le flux d'énergie  $\vec{t}$  dans un milieu anisotrope.

À partir des relations géométriques de la figure 4, nous avons l'angle de walk-off  $\rho$  donné par :

$$\sin \rho = \vec{e} \cdot \vec{s} \quad \text{et} \quad \cos \rho = \vec{e} \cdot \vec{d} \tag{II-36}$$

$\vec{e}$  et  $\vec{d}$  les vecteurs unités de  $\vec{E}$  et  $\vec{D}$ .

Les composantes de  $\vec{d}$  sont données par l'équation (II-35) et ceux de  $\vec{e}$  sont d'après Wyncke 1989 :

$$\begin{aligned} \cos\alpha &= \frac{s_x}{n^2-n_x^2} \left[ \left( \frac{s_x}{n^2-n_x^2} \right)^2 + \left( \frac{s_y}{n^2-n_y^2} \right)^2 + \left( \frac{s_z}{n^2-n_z^2} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \\ \cos\beta &= \frac{s_y}{n^2-n_y^2} \left[ \left( \frac{s_x}{n^2-n_x^2} \right)^2 + \left( \frac{s_y}{n^2-n_y^2} \right)^2 + \left( \frac{s_z}{n^2-n_z^2} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \\ \cos\gamma &= \frac{s_z}{n^2-n_z^2} \left[ \left( \frac{s_x}{n^2-n_x^2} \right)^2 + \left( \frac{s_y}{n^2-n_y^2} \right)^2 + \left( \frac{s_z}{n^2-n_z^2} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \end{aligned} \quad (II-37)$$

alors nous pouvons déduire de la relation (II-36) la relation :

$$tg\rho = n^2 \left[ \left( \frac{s_x}{n^2-n_x^2} \right)^2 + \left( \frac{s_y}{n^2-n_y^2} \right)^2 + \left( \frac{s_z}{n^2-n_z^2} \right)^2 \right]^{-\frac{1}{2}} \quad (II-38)$$

### II-6. Acceptance angulaire

L'acceptance angulaire est définie comme la variation angulaire autour de l'angle d'accord de phase qui divise l'efficacité de conversion maximum par deux. Nous présentons dans ce qui suit les formules des équations de l'acceptance angulaire pour un cristal uniaxe dans le cas d'une onde plane et précisément pour LTB. Pour les cristaux biaxes, une étude complète sera donnée en annexe.

#### II-6-1) Cas d'un cristal uniaxe

La variation de désaccord de phase  $\Delta K$  avec  $\theta$  pour un cristal uniaxe s'écrit par [Hon 1979, Yao 1992]

$$\Delta K = (\Delta K)_{\theta=\theta_m} + \left. \frac{\partial(\Delta K)}{\partial\theta} \right|_{\theta=\theta_m} \cdot \Delta\theta + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2(\Delta K)}{\partial\theta^2} \right|_{\theta=\theta_m} (\Delta\theta)^2 + \dots \quad (II-39)$$

comme  $\Delta K = k_3 - k_2 - k_1$  avec  $k = \frac{\omega}{c} n(\omega)$  on a:

$$\left. \frac{\partial\Delta K}{\partial\theta} \right|_{\theta_m} = \left. \frac{\omega_3}{c} \frac{\partial n_3(\omega_3, \theta)}{\partial\theta} \right|_{\theta_m} - \left. \frac{\omega_2}{c} \frac{\partial n_2(\omega_2, \theta)}{\partial\theta} \right|_{\theta_m} - \left. \frac{\omega_1}{c} \frac{\partial n_1(\omega_1, \theta)}{\partial\theta} \right|_{\theta_m} \quad (II-40)$$

$$\left. \frac{\partial^2 \Delta K}{\partial \theta^2} \right)_{\theta_m} = \frac{\omega_3}{c} \left. \frac{\partial^2 n_3(\omega_3, \theta)}{\partial \theta^2} \right)_{\theta_m} - \frac{\omega_2}{c} \left. \frac{\partial^2 n_2(\omega_2, \theta)}{\partial \theta^2} \right)_{\theta_m} - \frac{\omega_1}{c} \left. \frac{\partial^2 n_1(\omega_1, \theta)}{\partial \theta^2} \right)_{\theta_m} \quad (\text{II-41})$$

or  $n_o(\omega, \theta)$  est indépendant de  $\theta$  alors :

$$\left. \frac{\partial n_o(\omega, \theta)}{\partial \theta} \right)_{\theta_m} = \left. \frac{\partial^2 n_o(\omega, \theta)}{\partial \theta^2} \right)_{\theta_m} = 0 \text{ pour tout } \omega. \quad (\text{II-42})$$

En utilisant la relation définissant  $n_e(\omega, \theta)$  ( II-15 ) on obtient :

$$\left. \frac{\partial n_e(\omega, \theta)}{\partial \theta} \right)_{\theta_m} = -\frac{1}{2} n_o^3(\omega, \theta_m) [n_e^{-2}(\omega) - n_o^{-2}(\omega)] \sin 2\theta_m \text{ pour tout } \omega \quad (\text{II-43})$$

Et

$$\left. \frac{\partial^2 n_e(\omega, \theta)}{\partial \theta^2} \right)_{\theta_m} = -n_e^3(\omega) [n_e^{-2}(\omega) - n_o^{-2}(\omega)] \text{ pour tout } \omega \quad (\text{II-44})$$

Pour l'angle d'accord de phase, le premier terme (linéaire) dans l'équation (II-39) domine :

$$\Delta K \approx \left. \frac{\partial \Delta K}{\partial \theta} \right)_{\theta_m} \Delta \theta \quad (\text{II-45})$$

En utilisant les équations de (II-39) à (II-44) et aussi le tableau 2 nous obtenons les résultats suivants pour le cristal uniaxe:

	Uniaxe négatif	Uniaxe positif
Type I	$\Delta K = -\frac{\omega}{c} n_o^3(\omega) [n_e^{-2}(2\omega) - n_o^{-2}(2\omega)] \sin 2\theta_m \cdot \Delta \theta$	$\Delta K = -\frac{\omega}{c} n_o^3(\omega, \theta_m) [n_e^{-2}(\omega) - n_o^{-2}(\omega)] \sin 2\theta_m \cdot \Delta \theta$
Type II	$\Delta K \approx -\frac{\omega}{2c} n_o^3(\omega) [n_e^{-2}(2\omega) - n_o^{-2}(2\omega)] \sin 2\theta_m \cdot \Delta \theta$	$\Delta K = -\frac{\omega}{2c} [2n_o(2\omega) - n_o(\omega)] \times [n_e^{-2}(\omega) - n_o^{-2}(\omega)] \sin 2\theta_m \cdot \Delta \theta$

**Tableau 6 :** Tableau récapitulatif du désaccord de phase pour différents types d'accord de phase [Hon 1979].

Le désaccord de phase varie linéairement en fonction de  $\Delta \theta$  et mène à une efficacité de conversion qui peut être calculée à partir de l'équation (II-13). À cause de la sensibilité angulaire, l'angle d'accord de phase est appelé accord de phase critique. Le premier minimum de l'équation (II-13) est atteint pour  $\Delta K = \pm 2\pi L$ . Donc l'acceptance angulaire  $\Delta \theta$  est définie dans les quatre cas en posant  $\Delta K = \pm 2\pi L$ .

Dans le cas où  $\theta_m = 90^\circ$ , les vecteurs  $\vec{E}$  et  $\vec{k}$  de tous les faisceaux sont colinéaires avec les axes du cristal.

Le premier terme dans le développement linéaire dans l'équation (II-39) de  $\Delta K$  disparaît, et le second terme quadratique sera utilisé, l'équation (II-39) devient :



$$\Delta K \approx \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \Delta K}{\partial \theta^2} \Big|_{\theta_m} \cdot (\Delta \theta)^2$$

En utilisant les équations (II-40), (II-41) et (II-42) nous obtenons le tableau suivant :

	Uniaxe négatif	Uniaxe positif
Type I	$\Delta K = -\frac{\omega}{c} n_e^3(\omega) [n_e^{-2}(2\omega) - n_o^{-2}(2\omega)] \cdot \Delta \theta^2$	$\Delta K = -\frac{\omega}{c} n_e(\omega) [n_e^{-2}(\omega) - n_o^{-2}(\omega)] \Delta \theta^2$
Type II	$\Delta K \approx -\frac{\omega}{2c} n_o^3(\omega) [n_e^{-2}(2\omega) - n_o^{-2}(2\omega)] \Delta \theta^2$	$\Delta K = -\frac{\omega}{2c} [2n_o(2\omega) - n_o(\omega)] \times [n_e^{-2}(\omega) - n_o^{-2}(\omega)] \cdot \Delta \theta^2$

**Tableau 7 :** Tableau récapitulatif de désaccord de phase pour différents types d'accord de phase dans le cas  $\theta_m = 90^\circ$  [Hon 1979].

II-6-2) Cas de LTB

LTB étant un cristal uniaxe négatif, le calcul de l'acceptance angulaire  $\Delta \theta$  de cristal LTB pour un laser de Nd :YAG donne, suite aux données précédentes, les résultats suivants:

- Le désaccord de phase  $\Delta K$  est donné:

$$\Delta K = -\frac{\omega}{c} n_o^3(\omega) [n_e^{-2}(2\omega) - n_o^{-2}(2\omega)] \sin 2\theta_m \cdot \Delta \theta$$

Le maximum de puissance de GSH pour une onde est obtenu pour une quantité de désaccord de phase  $\Delta K = \pm 2\pi/L$ , d'où :

$$\Delta \theta = \pm \frac{\lambda}{2L} \{ n_o^3(\omega) [n_e^{-2}(2\omega) - n_o^{-2}(2\omega)] \sin 2\theta_m \}^{-1}$$

Les indices de réfraction de LTB pour l'onde de second harmonique  $\lambda = 532$  nm et de laser Nd :YAG [Kwon 1994] sont données par:

	$\omega$	$2\omega$
$n_o$	1,5969	1,6137
$n_e$	1,5435	1,5561

L'angle d'accord de phase de LTB de type I est calculé à partir des équations du paragraphe (II-3-2-b), donne:  $\theta_m = 31,7^\circ$ .

L'application numérique de l'acceptance angulaire donne :

$$\Delta \theta \cdot L = 0,87 \text{ mradcm.}$$

**II-7. Efficacité de conversion de la GSH dans le cas d'un faisceau gaussien**

La théorie de la GSH pour un faisceau laser de structure gaussienne a été étudiée en détail par Kleinman et par Boyd [Kleinman 1962, Boyd 1965].

En 1962, Boyd et Kleiman ont développé une théorie permettant de calculer le rendement de conversion pour le type I dans le cas de faisceaux gaussiens et Zondy a poursuivi l'étude pour le type II [Zondy 1991].

*II-7-1) Configuration géométrique, paramètres du champ électrique dans le cas du faisceau gaussien*

On considère un cristal non linéaire de longueur  $L$  placé dans un repère  $x, y, z$  et soumis à une onde électromagnétique incidente de pulsation  $\omega$  se propageant le long de l'axe  $Oz$ .

Selon l'orientation du champ électrique de l'onde par rapport à l'axe optique de l'échantillon, l'onde incidente aura :

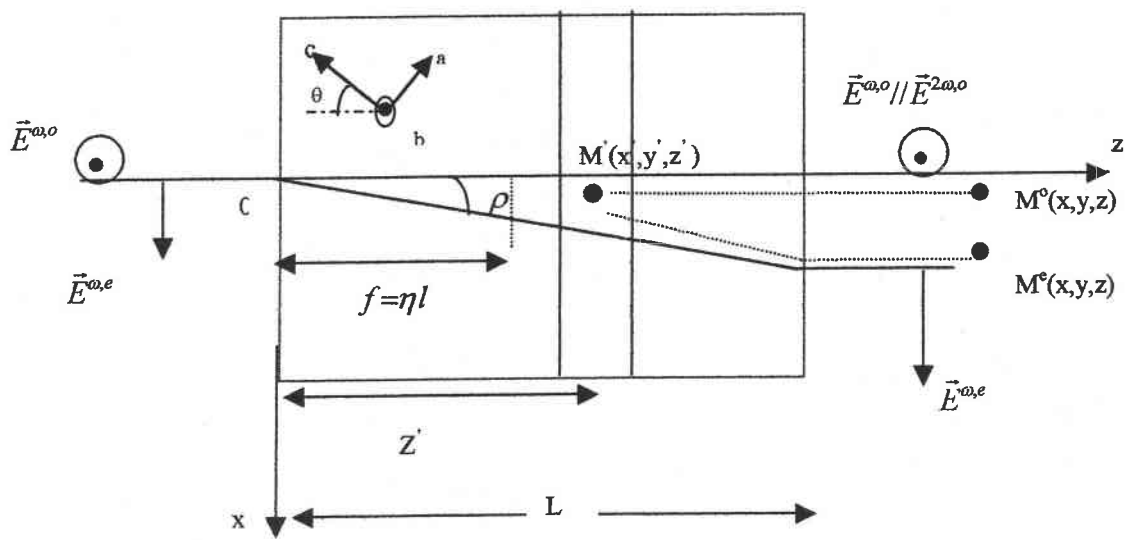
- Un caractère ordinaire (o) : on choisit l'orientation le long de l'axe  $Oy$ .
- Un caractère extraordinaire (e) : on choisit l'orientation le long de l'axe  $Ox$ .

L'axe optique de l'échantillon formant un angle  $\theta$  avec l'axe  $z$ .

On repère par  $M'(x', y', z')$  et  $M(x, y, z)$  deux points à l'intérieur et à l'extérieur du cristal respectivement.

Le faisceau de caractère extraordinaire subit lorsqu'il se propage dans le milieu, un walk-off caractérisé par l'angle  $\rho$ .

La figure 5 représente la structure géométrique de l'ensemble du système pour le cas d'accord de phase de type II et les polarisations des différents champs. Elle définit également un ensemble de paramètres utiles par la suite.



**Figure 5 :** Schéma géométrique pour l'interaction du type II pour la GSH.

Pour l'écriture des champs électriques donnée plus loin, est nécessaire de définir des variables d'espace suivantes :

- La constante Rayleigh  $Z_R$  avec  $Z_R = \frac{k_\omega \omega_0^2}{2}$ .

où  $k_\omega = 2k_{\omega,o}$  pour le type I et  $2k_\omega = k_{\omega,o} + k_{\omega,e}$  pour le type II.

$\omega_0$  est le waist du faisceau, appelé le col.

- Des grandeurs normalisées par rapport à  $Z_R$  :
  - ✓ Une longueur normalisée du cristal:  $l = L/Z_R$ .
  - ✓ Un vecteur d'onde  $k_{n\omega,i} = k_{n\omega,i} Z_R$ .
  - ✓ Une absorption  $a_{n\omega} = \alpha_{n\omega} Z_R$  où  $\alpha_{n\omega}$  est l'absorption des deux ondes.
  - ✓ Une divergence angulaire  $\delta_0 = \omega_0 / Z_R$ .

$n$ : présente l'onde fondamentale ( $\omega$ ) ou l'onde extraordinaire ( $2\omega$ ).

- Une grandeur  $f = \eta l$  où  $0 \leq \eta \leq l$  à partir de la face d'entrée ( $z = 0$ ), détermine la position du col à l'intérieur du cristal.

On a aussi

$$\tau' = z' - f$$

$$\beta = \rho / \delta_0 = \rho k_\omega \omega_0 / 2 \text{ où } \rho \text{ est le walk-off.}$$

Dans ce cas, les champs électriques à l'intérieur du cristal s'écrivent:

- Pour l'onde ordinaire:  $E_y^\omega = \bar{y} E^{\omega,o}(x', y', z') = \bar{y} \frac{A^{\omega,o}}{1+i\tau'} \exp\left(-\frac{x'^2+y'^2}{1+i\tau'}\right) \exp\left(\left(-a_\omega/2\right)z' + ik_{\omega,o}z'\right)$

- Pour l'onde

extraordinaire :  $E_x^\omega = \bar{x} E^{\omega,e}(x', y', z') = \bar{x} \frac{A^{\omega,e}}{1+i\tau'} \exp\left(-\frac{(x-\beta z')^2+y'^2}{1+i\tau'}\right) \exp\left(\left(-1/2\right)a_\omega z' + ik_{\omega,e}z'\right)$

$\bar{x}$  et  $\bar{y}$  sont deux vecteurs unitaires.

### II-7-2) Polarisation induite

La polarisation source pour le type II (eo o) est un produit tensoriel défini par:  $P(x', y', z') = \varepsilon d E_y^\omega \bar{y} E_x^\omega$  qui se réduit pour la géométrie de la figure 5 à :

$$P(x', y', z') = \bar{y} \varepsilon d_{\text{eff}}(\theta, \varphi) E^{\omega, o} E^{\omega, e}$$

Alors l'expression de la polarisation est la suivante :

$$P^{2\omega, o}(M') = \frac{\varepsilon_0 d_{\text{eff}} A^{\omega, o} A^{\omega, e}}{1+i\tau'} \exp\left[-\left(a_{\omega} z' + 1/2 \beta^2 z'^2\right)\right] \left\{ \frac{1}{1+i\tau'} \exp\left[-2 \frac{(x' - (\beta/2) z')^2 + y'^2}{1+i\tau'}\right] \exp(i2k_{\omega} z') \right\}$$

Pour le type I on a :

- Pour un cristal négatif (oo e) :

$$P^{2\omega, o}(M') = \frac{\varepsilon_0 d_{\text{eff}} A^{\omega, o^2}}{1+i\tau'} \exp[-a_{\omega} z' + i2k_{\omega, o} z'] \left\{ \frac{1}{1+i\tau'} \exp\left[-2 \frac{x'^2 + y'^2}{1+i\tau'}\right] \right\}$$

- Pour un cristal positif (ee o) :

$$P^{2\omega, e}(M') = \frac{\varepsilon_0 d_{\text{eff}} (A^{\omega, e})^2}{1+i\tau'} \exp[-a_{\omega} z' + i2k_{\omega, e} z'] \left\{ \frac{1}{1+i\tau'} \exp\left[-2 \frac{(x' - \beta z')^2 + y'^2}{1+i\tau'}\right] \right\}$$

À partir de la polarisation source, le champ harmonique :

$E_2(x, y, z) = A_2(x, y, z) e^{ik_2 z}$  peut être déterminé à partir des équations de Maxwell. Ce calcul est présenté dans le paragraphe suivant.

### II-7-3) Champ harmonique

La variation de l'amplitude harmonique sur un segment  $dz'$  est donnée par :

$$\frac{dA^{2\omega, o}}{dz'} = \frac{iZ_R \omega}{\varepsilon_0 c n_{2\omega, o}} \exp\left\{-\left[\left(\frac{1}{2}\right) a_{2\omega} (l-z') + ik_{2\omega, o} z'\right]\right\} P^{2\omega, o}(M')$$

Dans cette équation nous avons tenu compte de l'absorption de l'onde harmonique ( $a_{2\omega}$ ) de  $z' = 0$  à  $z' = L$ .

Chaque point dans le cristal  $M'(x', y', z')$  peut être considéré comme un dipôle de radiation d'onde à  $2\omega$  vers un point  $M(x, y, z)$  situé à l'extérieur du cristal, la relation entre les deux points dépend du type de l'interaction :

pour le type II

$$eo o \rightarrow x' = x, y' = y \quad \text{pour } z \leq l$$

$$eo e \rightarrow x' = x - \rho(1-z'), y' = y \quad \text{pour } z \geq l$$

pour le type I

$$oo e \rightarrow x' = x - \rho(z-z') \quad \text{pour } z < l$$

$$x' = x - \rho(1-z') \quad \text{pour } z > l$$

$$y' = y \quad \text{pour } 0 \leq z' \leq l$$

$$\text{ee o} \rightarrow x' = x, y' = y, 0 \leq z' \leq l$$

Pour eo e, nous supposons que l'onde harmonique extraordinaire générée a le même walk-off que celui de l'onde fondamentale.

En remplaçant (x, y, z) par (x', y', z') pour z ≥ l et en intégrant de z' = 0 à z' = l nous obtenons l'équation suivante :

$$A^{2\omega, o}(M)_{z \geq l} = \frac{iC \exp(-a_{2\omega} l/2)}{1+i\tau} \int_0^l dz' \frac{\exp[-a z' - i\Delta K z' - (\gamma z')^2]}{1+i\tau'} \exp\left(-\frac{2(x - \beta z'/2)^2 + 2y^2}{1+i\tau}\right) \quad (\text{II-46})$$

avec :

$$C = \frac{(2\omega d_{\text{eff}} k_{\omega} P^{\omega})}{[\pi \epsilon_0 c^2 (n_{\omega, o} n_{\omega, e})^{1/2} n_{2\omega, o}]}, \Delta K = (k_{2\omega} - 2k_{\omega}) Z_R,$$

$$a = \alpha Z_R, \alpha = \alpha_{\omega} - \alpha_{2\omega}/2, \alpha' = \alpha_{\omega} + \alpha_{2\omega}/2, \tau = z - f, \gamma = \beta/\sqrt{2},$$

$$P^{\omega} = P^{\omega, o} + P^{\omega, e} \text{ est la puissance fondamentale totale } \left( P^{\omega, i} = \pi \epsilon_0 c n_{\omega, i} \omega_0^2 (A^{\omega, i})^2 \frac{1}{4} \right)$$

Pour le champ harmonique extraordinaire,  $\left(x - \frac{\beta z'}{2}\right)$  est remplacé par  $(x - \beta l) + \frac{\beta z'}{2}$ . En supposant que la puissance de GSH est indépendante du signe du paramètre β et en posant  $\underline{x} = x - \beta l$  (translation de l'axe x par une quantité de β.l), la même expression que (II-46) pour le champ extraordinaire est obtenue. Par conséquent, les prochains résultats seront indépendants de la nature de l'onde harmonique.

À partir de l'équation (II-46), l'amplitude du champ harmonique électrique peut être obtenue directement pour l'interaction de type I en posant γ = 0, en remplaçant

$$\left(\frac{\beta}{2}\right)_{II} \leftrightarrow (\beta)_I \text{ et en posant } k_{\omega, o} = k_{\omega, e}:$$

Pour l'interaction oo e, l'amplitude du champ harmonique a la forme suivante :

$$A^{2\omega, e}(M)_{z \geq l} = \frac{iC \exp(-a_{2\omega} l/2)}{1+i\tau} \int_0^l dz' \frac{\exp[-a z' - i\Delta K z']}{1+i\tau'} \exp\left(-\frac{2(x - \beta(l - z'))^2 + 2y^2}{1+i\tau}\right) \quad (\text{II-47})$$

Et pour l'interaction (ee o), l'amplitude du champ harmonique est le suivant:

$$A^{2\omega, o}(M)_{z \geq l} = \frac{iC \exp(-a_{2\omega} l/2)}{1+i\tau} \int_0^l dz' \frac{\exp[-a z' - i\Delta K z']}{1+i\tau'} \exp\left(-\frac{2(x - \beta(z' - f))^2 + 2y^2}{1+i\tau}\right) \quad (\text{II-48})$$

En comparant (II-47) et (II-48) nous remarquons que  $A_{2\omega}^{eoo}(x, y, z) = A_{2\omega}^{ooe}(\bar{x}, y, z)$  où  $\bar{x} = \rho(l-f) - x$ .

Nous allons constater plus tard que la puissance de GSH n'est pas affectée par la transformation de  $x$  à  $\bar{x}$ . Pour cette raison, il n'y aura pas de différence entre la puissance de GSH d'un cristal négatif et positif pour le type I.

Comme cela a déjà été supposé pour le type II, les résultats seront indépendants de la nature de l'onde harmonique aussi pour le type I.

Afin de séparer les variables d'observateur aux variables de source, nous considérons qu'à l'extérieur du cristal, le champ est lointain ( $z \gg l$ ), dans la limite :  $\tau \rightarrow \infty$

Nous allons constater que dans cette limite  $A_2(x, y, z)$  se simplifie et l'expression de la puissance de GSH peut être obtenue facilement. Notons aussi que la condition ( $\tau \rightarrow \infty$ ) ne marque aucune condition sur l'épaisseur du cristal.

$$(1+i\tau)^{-1} = \frac{1-i\tau}{1+i\tau} = \left[ \frac{(1-i\tau)}{\tau^2} \right] (1-\tau^{-2} + \tau^{-4} + \dots) \\ \rightarrow \frac{1-i\tau}{\tau^2}$$

Les variables angulaires  $u, v$  sont définies à la place des variables transverses  $x, y$  tel que:

$$u = (x - \beta f/2) \frac{1}{\tau}, \quad \text{et} \quad v = \frac{y}{\tau}$$

alors

$$(x - z' \beta/2)^2 / (1+i\tau) \approx u^2 (1-i\tau) + i\beta u \tau' \quad \text{et} \quad \frac{y^2}{1+i\tau} \approx (1-i\tau) v^2 \quad \text{pour le premier ordre } \tau' / \tau.$$

Ces nouvelles variables mesurent la divergence du faisceau de SH par rapport à la divergence du faisceau laser.

En insérant ces nouveaux paramètres dans l'équation de  $A^{2\omega}(x, y, z)$  nous obtenons l'amplitude du champ lointain au premier ordre de  $\tau^{-1}$  est :

$$A^{2\omega\alpha}(u, v, \tau) = (C/\tau) \exp(-af + a_{2\omega} l/2) \exp[i\phi(u, v)] \exp[-2(u^2 + v^2)] H(a, l, f, \gamma, \sigma) \quad (\text{II-49})$$

avec :

$$H(a, l, f, \gamma, \sigma) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-f}^{l-f} \frac{d\tau'}{1+i\tau'} \exp(-a\tau' - \gamma^2(\tau' + f)^2 - i\sigma\tau')$$

$$\text{et } \phi(u, v) = 2\tau(u^2 + v^2), \quad \sigma = \Delta K + 2\beta u \quad \text{et} \quad \gamma = \frac{\beta}{\sqrt{2}} \quad \text{Pour le type II.}$$

L'expression de  $A_{2\omega}(x, y, z)$  est obtenue à partir de (II-49) pour le type I en annulant  $\gamma$  et en posant  $\sigma = \Delta K + 4\beta u$ .

La présence de  $\gamma$  dans (II-49) est l'origine fondamentale du changement de comportement de type II par rapport au type I.

II-7-4 Puissance harmonique

La puissance de GSH est obtenue à partir de l'équation (II-49) par intégration de la distribution d'intensité :  $I^{2\omega} = \epsilon_0 c n_{2\omega} |A^{2\omega,0}|^2$  par rapport à  $u$  et  $v$ .

L'efficacité de conversion s'écrit :

$$\Gamma_{SH} = \frac{P^{2\omega}}{(P^\omega)^2} = A l k_\omega \exp(-\alpha_{2\omega} l) h(a, l, f, \gamma, \sigma) \quad (II-50)$$

avec

$$h(a, l, f, \gamma, \sigma) = \frac{2\sqrt{\pi}}{l} \exp(-2af) \int_{-\infty}^{+\infty} du |H(a', l, f, \gamma, \sigma)|^2 \exp(-4u^2) \quad (II-51)$$

$h(a, l, f, \gamma, \sigma)$  est la correction de la double réfraction qui réduit le rendement de conversion.

$$\text{avec } A = \frac{2\omega^2 d_{eff}^2}{\pi \epsilon_0 c^3 n_\omega n_\omega n_{2\omega}}$$

Cette équation est identique à celle obtenue par Boyd et Kleinman pour le type I (oo e) si l'on pose  $\gamma = 0$ ,  $\sigma = \Delta K + 4\beta u$

Le fait que l'équation (II-51) est indépendante du signe de  $\beta$ , l'équation (II-49) est aussi valable pour le type II (oe e), la même remarque pouvant être faite pour les deux interactions du type I.

Les nouveaux paramètres suivants sont définis par:

$$t = \frac{\rho L}{\omega_0}, \quad \epsilon = \frac{\Delta K}{\beta} = \frac{\omega_0 \Delta K}{\rho}, \quad \lambda = \frac{a}{\beta} = \frac{\alpha \omega_0}{\rho}$$

Avec le changement de variable :  $y = \beta(\tau + f)$ ,  $y' = \beta(\tau' + f)$ , et après intégration par rapport à  $u$  de l'équation (II-51), on obtient :

$$\Gamma_{SH} = A \left( \frac{L^2}{\omega_0^2} \right) \exp(-\alpha_{2\omega} l) G(\lambda, t, f, \beta, \epsilon) \quad (II-52)$$

où:

$$G(\lambda, t, f, \beta, \epsilon) = t^{-2} \int_0^t \int_0^t dy dy' \frac{\exp[-\lambda(y+y') - b(y-y')^2 - c(y^2+y'^2)]}{[1+i(y/\beta-f)][1-i(y/\beta-f)]} \exp(-i\epsilon(y-y')) \quad (II-53)$$

avec :

( $b=1, c=0$ ) pour le type I.

et ( $b=1/4$ ,  $c=1/2$ ) pour le type II.

$b$  : peut être attribué au walk-off de l'onde harmonique en respectant l'onde fondamentale.

$c$  : est spécifiquement pour le type II et tient compte du walk-off des ondes fondamentales.

### II-7-5) Le cas du faisceau cylindrique ( $L \ll Z_R$ )

#### II-7-5-a) Optimisation de la puissance de SHG

Les paramètres  $Z_R$  et  $\delta_0$  étant définis par :  $Z_R = \frac{k_\omega \omega_0^2}{2}$ ,  $\delta_0 = \frac{\omega_0}{Z_R} = \frac{2}{k_\omega \omega_0}$

Il apparaît dans le cas ou  $L \ll Z_R$  que :

$$\beta = \frac{\rho}{\delta_0} \gg 1 \text{ et } f = \eta l \ll 1$$

Donc le dénominateur de la fonction  $G(\lambda, t, f, \beta, \varepsilon)$  tend vers 1 et le paramètre d'accord de phase  $\varepsilon$  tend vers 0.

En faisant les changements suivants  $x = y - y'$  et  $x' = y + y'$  le calcul de la double intégrale de la fonction  $G$  devient facile.

Pour le type II :

$$G_{II}(\lambda, t) = t^{-2} \exp(\lambda^2) \int dx \exp(-x^2) I(x, t)$$

ou

$$I(x, t) = \sqrt{\pi} \left[ \operatorname{erf}\left(t - \frac{x}{2} + \lambda\right) - \operatorname{erf}\left(\frac{x}{2} + \lambda\right) \right]$$

Pour le type I:

$$G_I(\lambda, t) = (2\lambda)^{-1} \exp\left(\frac{\lambda^2}{4}\right) \sqrt{\pi} t^{-2} \left\{ \operatorname{erf}\left(t + \lambda/2\right) - \operatorname{erf}\left(\frac{\lambda}{2}\right) [1 + e^{-2\lambda}] - \exp(-2\lambda) \operatorname{erf}\left(t - \lambda/2\right) \right\}$$

ou

$$\operatorname{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x \exp(-t^2) dt$$

$$\Rightarrow \Gamma_{SH}(i, t, \lambda) = \frac{A}{\rho^2} t^2 \exp(-\alpha_{2\omega} l) G_I(\lambda, t)$$

#### II-7-5-b) L'expression limite pour le type I

Pour une faible absorption, on étend le développement de la fonction  $G_I(\lambda, t)$  au premier ordre de  $\lambda/2$  et après on passe à la limite  $\lambda \rightarrow 0$  d'où la formule :

$$G_I(t, \lambda, 0) = \sqrt{\pi} t^{-1} \operatorname{erf}(t) - t^{-2} [1 - \exp(-t^2)]$$



Dans le cas  $t = \frac{\rho l}{\omega_0} \ll 1$  ; c'est à dire pour un cristal mince ou un walk-off faible.

$G_I(\lambda, t) \rightarrow 1 + \frac{\lambda^2}{4}$  ce qui conduit à une dépendance de  $L^2$  de la puissance de GSH sous la condition d'accord de phase. Dans le cas où  $\lambda = 0$  la fonction  $G$  tend vers 1, et le faisceau gaussien se comporte comme une onde plane.

Pour  $t$  large, et  $\lambda=0$  le terme dominant dans  $G_I(t,0)$  est  $\frac{t_a(I,0)}{t}$  ou  $t_a(I,0) = \sqrt{\pi}$  est la longueur d'ouverture normalisée définie comme une longueur en cristal au dessus de laquelle la puissance de GSH cesse d'augmenter en fonction de  $L^2$  et varie en fonction de  $L$ .

#### II-7-5-c) L'expression limite pour le type II

Pour  $t \ll 1$  et  $\lambda$  faible :  $G_{II}(t, \lambda) \rightarrow 1 + \lambda^2$

Pour  $t \gg 1$ , en plus d'une éventuelle saturation d'absorption induite par l'onde harmonique il y a une saturation de walk-off induite par l'onde fondamentale :

$$G_{II}(\lambda, t) \rightarrow \left[ \frac{t_a(II, \lambda)}{t} \right]^2$$

$$\text{avec } t_a(II, \lambda) = \left[ \sqrt{\pi} \exp(\lambda^2) \int_0^\infty dx \exp\left(-\frac{x^2}{2}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2} + \lambda\right) \right]^{\frac{1}{2}}$$

$$\text{pour } \lambda = 0 \quad t_a(II, 0) = \left[ \sqrt{2} \operatorname{arctg}(\sqrt{2}) \right]^{\frac{1}{2}} \approx 1.16$$

$t_a(II, 0)$  donne la longueur normalisée pour laquelle le coefficient de GSH commence la saturation dont la valeur maximale est  $\Gamma_{SH} = A \left[ \frac{t_a(II, 0)}{\rho} \right]^2$ .

#### II-7-6) Optimisation de rendement de conversion de GSH

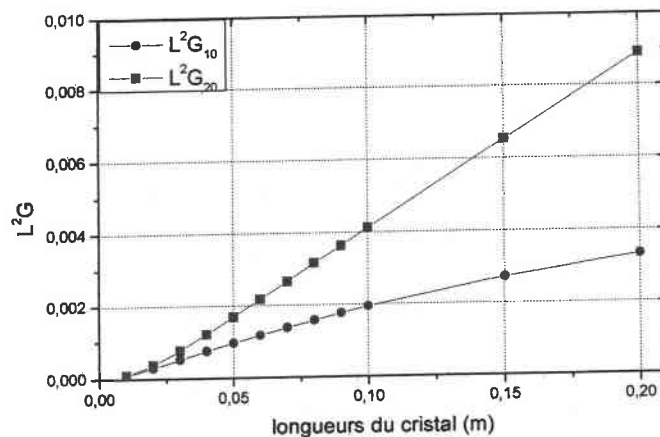
Comme nous venons de le montrer, le phénomène de GSH dans un cristal anisotrope est limité par le walk-off de l'onde extraordinaire.

Par ailleurs, la puissance de GSH est optimisée par les paramètres suivants : longueur du cristal  $L$ , position du col à l'intérieur du cristal et angle d'accord de phase. À partir de la fonction  $G$  (II-53), nous allons mener cette optimisation. Pour le type I, la position du col correspondant à une efficacité maximale est supposée exactement au centre du cristal alors que pour le type II, la position optimale du col dans ce cristal dépend de la longueur de cristal et de la taille de col [Kleinman 1962, Boyd 1965, Zondy 1991].

L'optimisation numérique de ces paramètres a été étudiée par Zondy [Zondy 1991], qui a présenté ces résultats sous forme de courbes dans le cas général. Dans ce qui suit, nous limiterons les calculs au cas du tétraborate de lithium utile pour nous par la suite.

#### II-7-6-a) Optimisation de la longueur de cristal

L'optimisation de ce paramètre s'effectue en calculant l'efficacité de conversion (II-52) qui dépend de  $L^2 G(\lambda, t, f, \beta, \varepsilon)$ . En fixant la longueur d'onde ( $\lambda = 1064$  nm), le walk-off et la taille du col (waist) ainsi que la position à l'intérieur du cristal, nous obtenons les courbes  $L^2 G$  en fonction de  $l$  dans le cas de LTB pour les focales 10 et 20 cm:



**Courbe 1 :** Efficacité de conversion en fonction de la longueur du cristal pour le type I.

Nous constatons que l'efficacité de conversion est d'autant plus grande que  $L$  augmente pour un col donné. Le même type de calcul peut être effectué en type II mais  $d_{\text{eff II}}$  étant nul compte tenu de la symétrie de LTB, nous nous limiterons au type I.

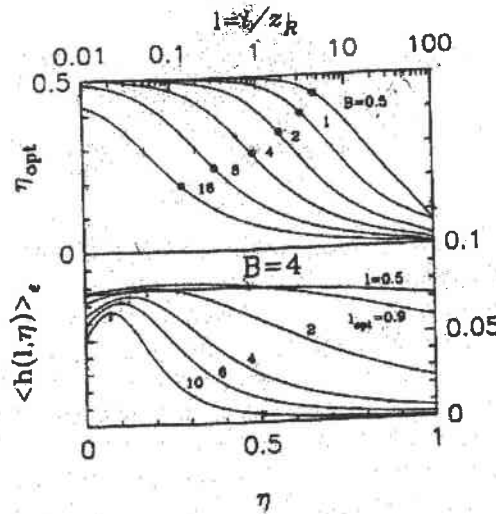
#### II-7-6-b) Optimisation de la position du col à l'intérieur du cristal

Dans un milieu de faible absorption, le centre du cristal a été démontré comme étant la position optimum du col.

En effet, le comportement de la puissance de GSH en fonction de la position du col pour différentes valeurs de désaccord de phase  $\Delta K$  a été étudié par Kleinman et Miller [Kleinman 1966]. Ils ont constaté que pour la valeur optimum de  $\Delta K$ , la position optimum de la focalisation est le centre du cristal  $\eta = 0,5$ .

Zondy [Zondy 1991] a confirmé ce résultat pour le type I, et il a mené une étude théorique pour le type II où il a présenté la position du col en fonction de paramètre de focalisation

$$l = \frac{L}{Z_R} \text{ pour différentes valeurs de paramètre } B = \rho \frac{(k_w l)^{1/2}}{2}$$



**Figure 6 :** 1) Position du col en fonction de la longueur du cristal  
 2) La puissance en fonction de la position du col pour différentes valeurs de B.

À partir de cette courbe, nous pouvons mener une étude pour déterminer la position du col pour des cristaux de type II pour une longueur du cristal déterminée, une longueur d'onde fixe et pour différentes focales sous la condition d'accord de phase ( $\Delta K = 0$ ).

Dans le cas de LTB, le seul type d'accord de phase efficace étant de type I, nous prenons systématiquement  $\eta = 0,5$ .

**II-8. Résumé et conclusion**

Dans le cas d'un faisceau gaussien focalisé à l'intérieur de cristal, l'efficacité de conversion définie par  $\Gamma_{SH} = \frac{P(2\omega)}{P^2(\omega)}$ , dépend d'une fonction  $G_i(\lambda, t, f, \beta, \varepsilon)$  qui tient compte des différents paramètres du cristal: indices de réfraction, walk-off et longueur de cristal et des paramètres de laser tel que le col et sa position à l'intérieur de cristal, où  $i = I$  ou  $II$  [Zondy 1991, Boyd 1962] comme le montre l'équation II-53.

L'efficacité:

$$\Gamma_{SH} = \frac{P(2\omega)}{P^2(\omega)} = \frac{2\omega^2 d_{eff}^2}{\pi \varepsilon_0 c^3 n_{\omega}^2 n_{2\omega}} \frac{L^2}{\omega_0^2} \exp(-\alpha_{2\omega} L) \cdot G_i(\lambda, t, f, \beta, \varepsilon)$$

avec

$$G_i(\lambda, t, f, \beta, \varepsilon) = i^{-2} \int_0^t \int_0^t dy dy' \frac{\exp[-\lambda(y+y') - b(y-y')^2 - c(y^2+y'^2)]}{[1+i(y/\beta-f)] [1-i(y'/\beta-f)]} \exp[-i\varepsilon(y-y')]$$

Où G est une double intégrale qui tient compte des paramètres de faisceau et de cristal.

Les différentes variables de la fonction G caractérisant le faisceau et le milieu cristallin sont :

❖  $\lambda = \frac{\alpha \omega_0}{\rho}$  avec  $\alpha = \alpha_\omega - \frac{\alpha_{2\omega}}{2}$  ( $\alpha_\omega$  absorption à  $\omega$ ,  $\alpha_{2\omega}$  absorption à  $2\omega$ ) et  $\omega_0$  est la taille du col du faisceau.

❖  $t = \frac{\rho L}{\omega_0}$  longueur normalisée de cristal avec L longueur de cristal.

❖  $f = \eta l$   $\eta$  caractérise la position du col dans le cristal ( $\eta = 0,5$  pour le type I et pour le

type II),  $l = \frac{L}{Z_R}$  avec  $Z_R = \frac{k \omega_0^2}{2}$ .

❖  $\beta = \frac{\rho \omega_0}{Z_R}$  walk-off par rapport à la divergence du faisceau.

❖  $\varepsilon = \frac{\Delta K}{\beta}$  désaccord de phase  $\Delta K$  normalisé par le paramètre de divergence.

avec  $b = 1$ ,  $c = 0$  pour l'accord de phase de type I et  $b = 1/4$ ,  $c = 1/2$  pour l'accord de phase de type II,  $y$  et  $y'$  représentent les variables transverses.

Dans l'approche que nous proposons ici, nous faisons le calcul de la fonction G sous sa forme la plus générale (II-53) pouvant être utilisée dans le cas de fortes et faibles focalisations.

Il est donc possible à partir de la détermination expérimentale de  $\Gamma_{SH}$  et du calcul de la fonction G d'obtenir la valeur du coefficient effectif  $d_{eff}$  NLO.

Dans ce chapitre, nous avons donné les différentes équations utilisées dans la génération de second harmonique soit dans le cas d'une onde plane ou dans le cas d'un faisceau gaussien.

Dans la théorie de l'onde plane, nous avons constaté que l'équation du rendement de conversion ne tient pas compte ni du walk-off ni de la position du col à l'intérieur du cristal ; par contre, la théorie développée par Boyd dans le cas le faisceau gaussien tient compte des paramètres du cristal et du faisceau incident à l'intérieur du cristal.

# Chapitre III

## *Banc et technique de mesure des propriétés optiques non linéaires par génération de second harmonique*

<b>III-1. Introduction.....</b>	<b>64</b>
<b>III-2. Banc de mesure de GSH.....</b>	<b>64</b>
III-2-1) Description du banc et des éléments optiques.....	64
III-2-1-a) Banc de mesure.....	65
III-2-1-b) Description de la source.....	67
III-2-1-c) Les éléments optiques.....	68
<b>III-3. Caractérisation du faisceau à l'entrée du cristal.....</b>	<b>70</b>
III-3-1) Considérations théoriques.....	70
III-3-1-a) Expression d'un faisceau gaussien.....	70
III-3-1-b) Transformation d'un faisceau gaussien.....	71
III-3-1-c) Application à notre cas.....	72
III-3-2) Principe de mesure du col et résultats.....	72
III-3-2-a) Principe.....	72
III-3-2-b) Résultats de mesure.....	73
III-3-3) Conclusion.....	80
<b>III-4. Technique de mesure d'angles d'accord de phase.....</b>	<b>80</b>
<b>III-5. Technique de mesure de <math>d_{\text{eff}}</math>.....</b>	<b>81</b>
III-5-1) Outils numériques utilisés dans la mesure:.....	81
III-5-2) Technique de mesure.....	84
<b>III-6. Mesure de l'acceptance angulaire.....</b>	<b>84</b>
III-6-1) Faisceau gaussien.....	85
III-6-2) Comparaison entre les courbes de l'onde plane et du faisceau gaussien.....	85
III-6-3) Tableau récapitulatif.....	87
<b>III-7. Conclusion.....</b>	<b>87</b>

### III-1. Introduction

Il existe de nombreuses techniques pour déterminer l'effet non linéaire du second ordre, soit par un mélange d'ondes incluant l'addition et la différence de fréquences (Oscillateur Paramétrique Optique OPO, Amplificateur Paramétrique Optique OPA), soit par génération de second harmonique, par la technique des franges de Maker ou par la mesure directe de l'harmonique générée (avec accord de phase).

Les franges de Maker sont un phénomène typique de la propagation de la lumière dans un milieu non linéaire. Elles furent mises en évidence en 1962 par Maker et al [Maker 1962], qui constatèrent qu'en faisant varier l'angle d'incidence d'un faisceau laser sur un cristal non linéaire (du quartz), l'intensité de l'onde de second harmonique générée variait de façon quasi-périodique. L'explication de ce phénomène est fournie par la nature de l'onde générée. Celle-ci peut être décomposée en deux ondes, l'une appelée onde liée et l'autre onde libre. La première théorie nécessaire pour interpréter ces mesures, fut développée par Jerphagnon et Kurtz [Jerphagnon 1970]. Cependant, les conditions trop restreintes et les approximations d'application ont contraint Herman et Hayden [Herman 1995], à revoir les formules et à les étendre à des cas plus généraux.

La complexité des formules obtenues montre qu'il est extrêmement compliqué d'envisager des mesures absolues par les franges de Maker, les mesures relatives ayant l'avantage de permettre de simplifier certains termes dans le calcul des coefficients ONL. Néanmoins, la diversité de valeurs qu'on trouve pour un même composé dans la littérature et y compris pour les cristaux dits de références, nous a conduit à privilégier une mesure directe et absolue des coefficients par la technique d'accord de phase.

Grâce d'une part aux théories de Boyd et Kleinman et de Zondy [Boyd 1968, Zondy 1991] (Voir chapitre II) permettant le calcul des différents termes de l'efficacité de conversion  $\Gamma$  et d'autre part à la mesure de cette efficacité, le coefficient effectif non linéaire absolu peut être déterminé. Les  $d_{ij}$  apparaissant dans le développement de  $d_{eff}$  sont déduits.

### III-2. Banc de mesure de GSH

#### III-2-1) Description du banc et des éléments optiques

Notre banc de mesure a été conçu de telle sorte qu'on puisse l'utiliser pour plusieurs applications :

- Il nous permet de mesurer l'angle d'accord de phase à partir d'un échantillon taillé selon les axes cristallographiques.

- Il est utilisable pour la mesure du coefficient optique non linéaire effectif ( $d_{eff}$ ) relatif par comparaison aux coefficients non linéaires d'un autre échantillon utilisé comme référence et qui a des propriétés optiques connues dans la littérature tels que le quartz ou le KDP.
- Il permet la mesure du coefficient NL de façon absolue compte tenu des spécificités du cristal étudié et des conditions de focalisations. Nous avons largement utilisé cette méthode.
- L'homogénéité des cristaux peut être testée en mesurant la puissance harmonique en différents points de l'échantillon.
- Il nous permet de mesurer la valeur de l'acceptance angulaire.
- Il est aussi utilisable pour la technique des franges de Maker en ajoutant deux polariseurs, l'un à l'entrée du cristal et l'autre à la sortie.

### III-2-1-a) Banc de mesure

Le banc de mesure comporte deux bras :

- Un bras principal sur lequel est placé l'échantillon à tester ainsi que les différents éléments optiques.
- Un bras de référence sur lequel la puissance infrarouge peut être mesurée simultanément à la puissance de second harmonique.

La source de lumière utilisée dans ce banc est un laser Nd:YAG fonctionnant en mode continu ou en mode de déclenchement (Q-switch). Un laser Hélium Néon suivant le même trajet que le laser Nd :YAG permet d'aligner les différents éléments optiques.

Les différents éléments optiques constituant le montage sont la lame demi-onde permettant de régler la direction de la polarisation du faisceau incident, la lentille pour focaliser le faisceau, la séparatrice  $\omega/2\omega$  pour séparer le faisceau à  $\omega$  du faisceau généré à  $2\omega$ , une deuxième lentille pour collimater le faisceau, le filtre interférentiel qui ne laisse passer que l'onde à  $2\omega$  et la photodiode qui mesure la puissance de l'onde générée à  $2\omega$ .

La figure 1 montre le schéma général du banc de mesure de GSH.



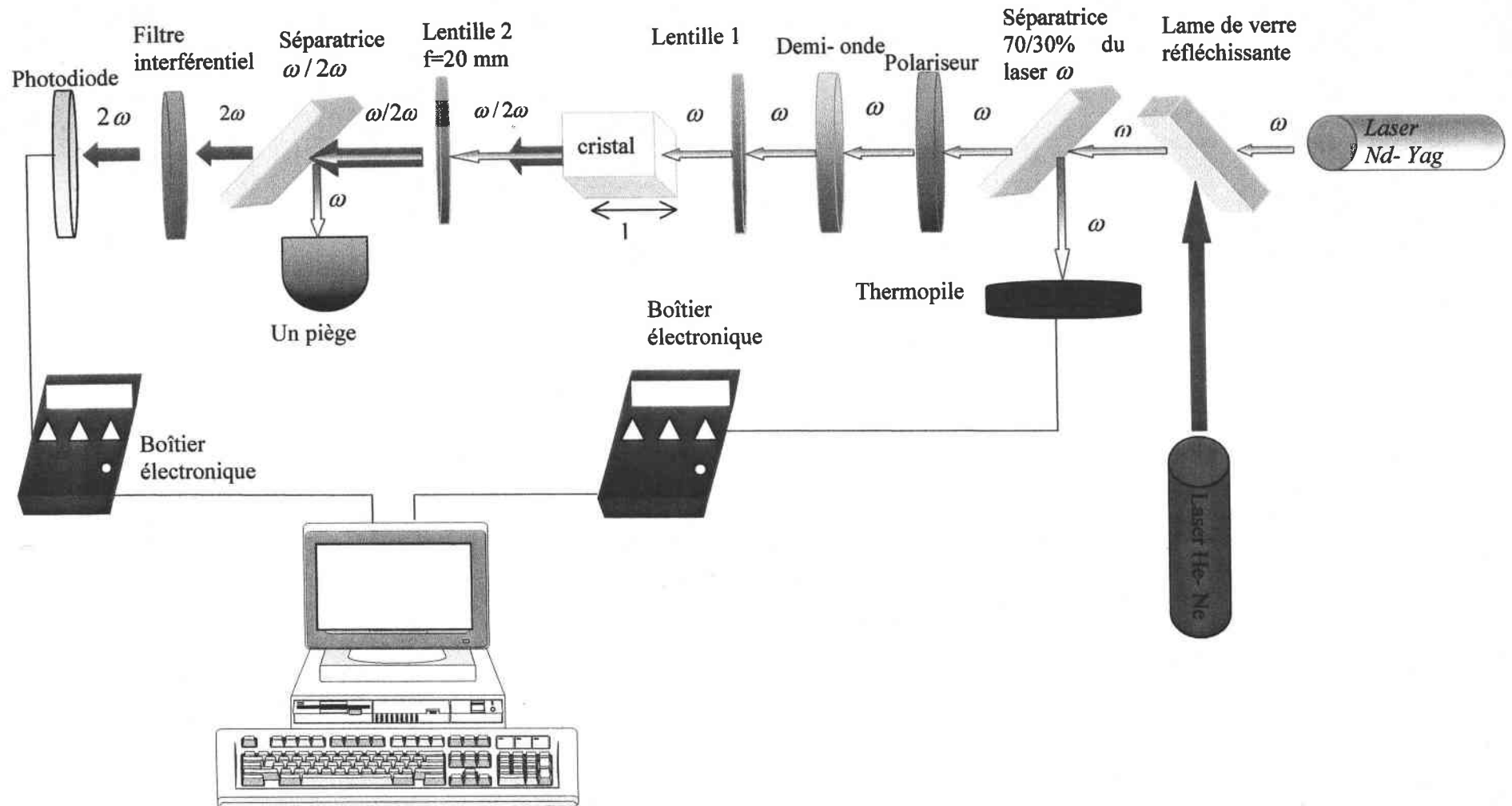


Figure 1: Schéma du banc de mesure du coefficient effectif non linéaire.



## III-2-1-b) Description de la source

➤ Caractéristiques du laser Nd :YAG

Le laser Nd :YAG dont nous disposons appartient à la série T de Spectra Physics.

Dans la référence de ce laser T40Y70106Q, chaque nombre et lettres ont une signification.

- T : désigne le système de gestion thermique incorporé à l'alimentation d'énergie.
- T40 : 40 Watt disponibles à partir des deux sources pompées à 20 W.
- Y70 : le chiffre indique la durée d'impulsion en ns à la sortie de laser YAG, ce laser est conçu pour les applications qui exigent des impulsions d'énergie élevée.
- 106Q : le dernier chiffre représente la longueur d'onde fondamentale d'émission du Nd :YAG à 1064 nm et Q indique que le laser est déclenché (Acousto-optique).
- Le mode du laser T40Y70106Q est TEM<sub>00</sub>. Il peut fonctionner en mode continu ou impulsionnel.

En mode continu, la puissance du laser varie en fonction de l'intensité de courant, ce mode étant utilisé pour la mesure de coefficient absolu  $d_{eff}$ . En mode impulsionnel, la puissance du laser est liée à l'intensité de courant et à la fréquence. Ce mode nous permet de mesurer l'angle d'accord de phase et de tester l'homogénéité des cristaux.

Les différentes caractéristiques du laser T40Y70106Q sont résumées dans le tableau suivant :

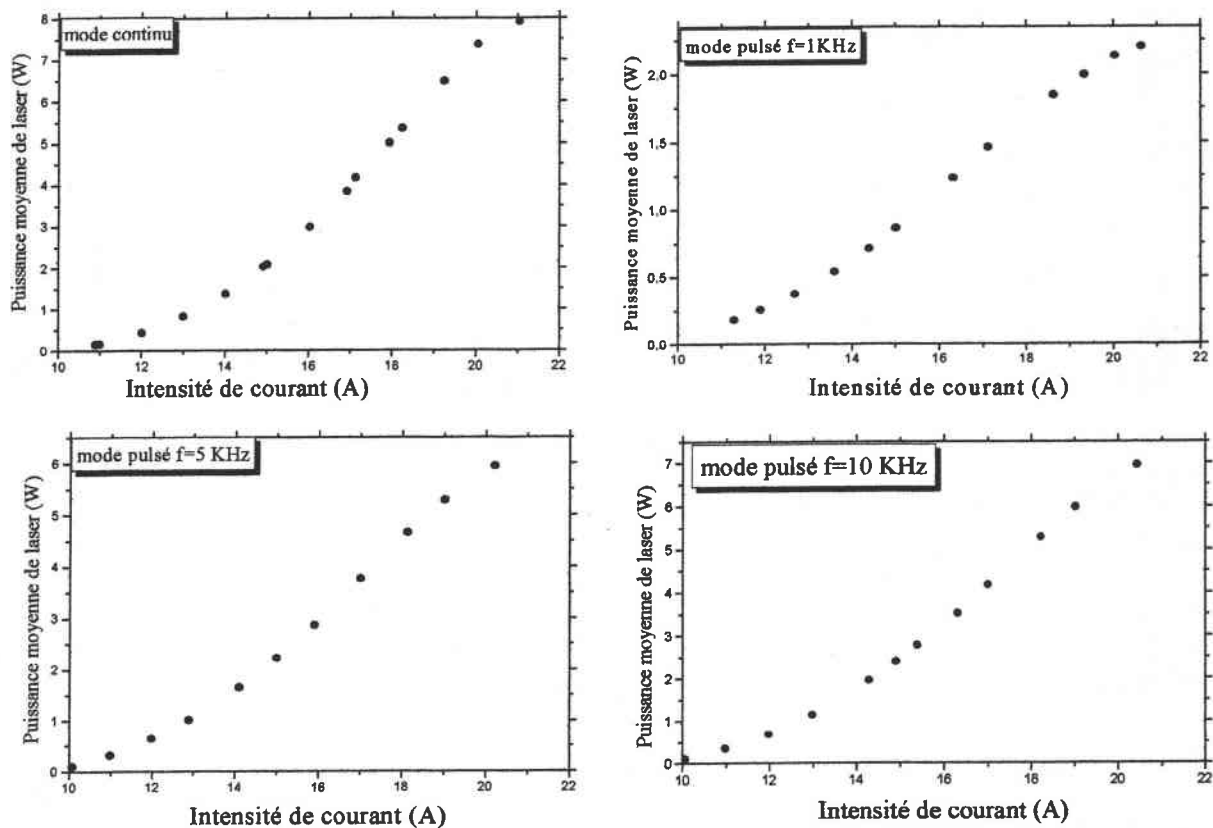
Caractéristiques générales	
Longueur d'onde	1064 nm
Energie d'impulsion, 1kHz	1,5 mJ
Durée d'impulsion, 1kHz	70 ns
Puissance moyenne, 10kHz	> 6,5 Watts
Mode spatial	TEM <sub>00</sub>

Caractéristiques du faisceau	
Polarisation	> 100 :1, verticale
Diamètre de faisceau	0,55 mm
Divergence de faisceau	0,831 mrad / à x   0,796 mrad / à y
Faisceau elliptique	< 10% de différence entre n'importe quels deux axes orthogonaux

**Tableau. 1 : Caractéristiques du laser T40Y70106Q**

### ➤ Calibration de laser

Afin d'analyser l'influence de l'intensité du courant  $I$  fourni aux diodes sur la puissance moyenne  $P$  obtenue à la sortie du laser, nous avons mesuré  $P = f(I)$  pour le mode continu et impulsionnel à différentes fréquences. Les résultats obtenus sont reportés dans la figure suivante :



*courbes 1: Puissance du laser en fonction de l'intensité de courant en mode continu et impulsionnel*

#### III-2-1-c) Les éléments optiques

Le calcul du coefficient effectif NL demande la connaissance précise de la puissance de l'onde fondamentale à l'entrée du cristal et de la puissance harmonique à la sortie du cristal. Pour cela, nous devons caractériser les différents éléments optiques et déterminer leur coefficient de transmission.

#### ✓ Séparatrice 30% / 70%

La séparatrice possède un coefficient de transmission et de réflexion qui dépendent de l'incidence du faisceau et de sa polarisation. Pour la direction de polarisation verticale du

laser, son coefficient de transmission est de 70% et celui de réflexion est de 30%. La face de sortie de la séparatrice est traitée antireflet à  $1,064 \mu\text{m}$  et n'occasionne que peu de pertes.

✓ Lame demi-onde

La demi-onde permet la modification de la direction de polarisation du faisceau incident, les pertes de la lame demi-onde, dues principalement à des réflexions parasites, sont de l'ordre de 2 %.

✓ Les lentilles

Une première lentille convergente placée avant l'échantillon est traitée antireflet dans l'IR de sorte que son coefficient de transmission est proche de 100 %. Les focales  $f_1$  utilisées sont de 10, 20 et 30 cm.

Outre les caractéristiques en transmission, il est nécessaire de connaître la géométrie du faisceau en sortie. Nous traiterons ce point en détail dans le paragraphe (III-3).

La deuxième lentille convergente de focale  $f_2$ , traitée antireflet dans l'IR et dans le vert, permet de rendre le faisceau parallèle après sa sortie de l'échantillon les deux lentilles étant distantes de  $f_1 + f_2$ . Son coefficient de transmission dans le vert est de 98 %.

✓ Séparatrice de faisceau fondamental et harmonique

Le séparateur  $\omega$ ,  $2\omega$  réfléchit le faisceau fondamental à  $\omega$  et transmet le faisceau harmonique à  $2\omega$ . Le coefficient de réflexion pour  $\omega$  est 100 % pour un angle de  $45^\circ$ , alors que pour  $2\omega$  il est de 2 %, soit un coefficient de transmission de 98 % dans le vert.

✓ Filtre interférentiel

Afin d'éviter d'éventuels rayonnements IR dus aux réflexions, et afin de protéger la photodiode, nous utilisons un filtre interférentiel. Il est placé avant la photodiode, de façon à ne laisser passer que l'onde harmonique à  $2\omega$ . Son coefficient de transmission est de 58 %.

✓ Photodiode

La photodiode a une ouverture de  $10 \times 10 \text{ mm}^2$ ; elle peut être utilisée pour des longueurs d'onde entre 350 et 1100 nm. La densité de puissance maximum tolérée est  $50 \text{ W/cm}^2$  et elle permet de détecter des puissances comprises entre 1 nW et 3 W.

✓ Thermopile

Elle est utilisée sur le bras de référence pour mesurer la puissance de faisceau infrarouge. Elle est constituée d'un absorbant en volume avec une ouverture de 16 mm. Son domaine de

longueur d'ondes est  $[0,19 \mu\text{m}, 6 \mu\text{m}]$ , et les puissances mesurables sont comprises entre  $[10 \text{ mW et } 10 \text{ W}]$ .

✓ Porte échantillon

Un porte échantillon nous permet de réaliser des rotations par rapport à un axe vertical et un axe horizontal ainsi qu'une translation verticale et deux autres translations, parallèle ou perpendiculaire à la direction de propagation de laser. La rotation par rapport à l'axe vertical est motorisée et commandée par un contrôleur, lui même piloté par ordinateur via le logiciel Labview.

### III-3. Caractérisation du faisceau à l'entrée du cristal

Comme nous l'avons signalé dans l'introduction, notre technique de mesure de  $d_{eff}$  tient compte des caractéristiques spatio-temporelles du faisceau fondamental. Il est donc primordial de déterminer avec précision la taille du col du faisceau ainsi que sa position dans l'échantillon.

#### III-3-1) Considérations théoriques

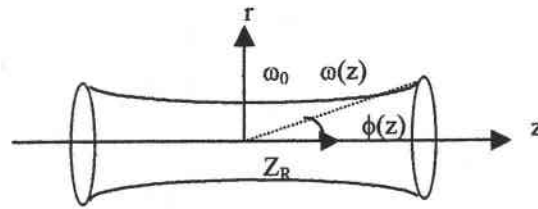
##### III-3-1-a) Expression d'un faisceau gaussien

En mode  $TEM_{00}$ , l'onde laser fondamentale du faisceau gaussien présente une structure spatiale pouvant s'écrire sous la forme :

$$E(x, y, z) = \left( \frac{E_0}{\omega(z)} \right) \times \exp - \left\{ i \left[ kz - \phi(z) + \frac{k(x^2 + y^2)}{2R(z)} \right] + \frac{(x^2 + y^2)}{\omega^2(z)} \right\}$$

où

- $\omega^2(z) = \omega_0^2 \left[ 1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi \omega_0^2} \right)^2 \right]$  représente le rayon du faisceau se propageant le long de l'axe z.
- $\phi(z) = \arctg \left[ \frac{\lambda z}{\pi \omega_0^2} \right]$  représente la divergence du faisceau.
- $R(z) = z \left[ 1 + \left( \frac{\pi \omega_0^2}{\lambda z} \right)^2 \right]$  représente les variations suivant z de la surface d'onde.



avec

$r$ : distance au cœur du faisceau dans le plan transversal.

$\omega_0$ : rayon du faisceau au point le plus étroit appelé le col ou le waist du faisceau et qui est en fait le point de convergence du faisceau.

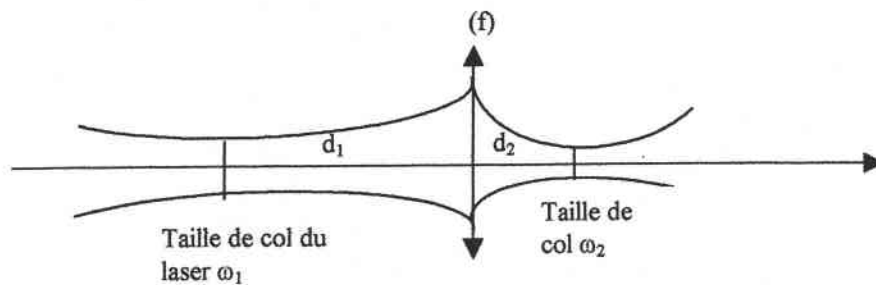
On appelle la longueur de Rayleigh  $Z_R$ . Elle caractérise le profil Lorentzien de l'intensité le long de l'axe  $z$ , et est définie par :

$$Z_R = \frac{\pi \omega_0^2}{\lambda} \cdot \frac{1}{M^2}$$

Le facteur  $M^2$  permet de caractériser la modalité d'un faisceau par rapport au modèle théorique monomode ; c'est une constante qui dépend du mode du faisceau. Dans notre cas  $M^2 \approx 1$ .

### III-3-1-b) Transformation d'un faisceau gaussien

Soit un faisceau gaussien de col  $\omega_1$ , traversant une lentille de focale  $f$  placée à une distance  $d_1$  du col. Le faisceau gaussien focalisé est caractérisé par un col  $\omega_2$  à une distance  $d_2$  de la lentille.



**Figure 2:** Transformation d'un faisceau gaussien par une lentille

Conformément à la loi dite ABCD basée sur une matrice de transfert  $\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix}$ , qui permet le calcul du diamètre et la position du col [Kogelnick 1968, Lalanne 1994], on peut déterminer

les paramètres du faisceau gaussien transformé à la traversée d'une lentille de focale  $f$ . Les équations suivantes sont utilisées:

$$d_2 - f = \frac{(d_1 - f)f^2}{\left[ (d_1 - f)^2 + \left( \frac{\pi \omega_1^2}{\lambda} \right)^2 \right]} \quad (III-1)$$

$$\omega_2^2 = \frac{\omega_1^2 f^2}{\left[ (d_1 - f)^2 + \left( \frac{\pi \omega_1^2}{\lambda} \right)^2 \right]}$$

### III-3-1-c) Application à notre cas

À partir des paramètres de laser que nous utilisons donnés au tableau 1 ( $\omega_1$ ,  $d_1$ ), nous avons calculé la taille du col  $\omega_2$  après la lentille de focale  $f$  et sa position  $d_2$  pour les différentes lentilles utilisées dans notre cas.

La lentille est placée à  $l = 81$  cm du laser et la taille du col de laser est 0.275 mm.

À partir des équations (III-1), nous avons obtenu les différentes tailles de col avec leurs positions  $d_2$  de la lentille.

Focale	100 mm	200 mm	300 mm
$\omega_2$ ( $\mu\text{m}$ )	37	84.67	148.2
$d_2$ (cm)	11.28	25.78	44.81

*Tableau 2 : Calcul théorique des différentes tailles de col ainsi que leurs positions pour les différentes lentilles*

### III-3-2) Principe de mesure du col et résultats

#### III-3-2-a) Principe

Afin de mesurer le col de notre laser Nd:YAG, nous avons utilisé une technique simple mais demandant beaucoup de temps : la méthode du couteau de Foucault.

Le montage expérimental utilisé est constitué d'un laser Nd:YAG, d'une lentille, d'une lame de rasoir et d'une thermopile pour mesurer la puissance.

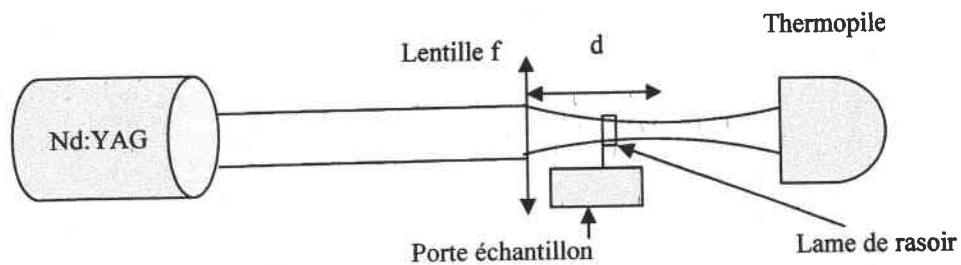


Figure 3: Dispositif expérimental de mesure du col

La lame de rasoir est mise sur le trajet du faisceau. Pour une focale donnée, nous effectuons une translation de la lame de rasoir perpendiculairement à la direction de polarisation à une distance  $d$  de la lentille ; et nous répétons la manipulation pour différentes distances  $d$ . À l'aide d'une thermopile, nous mesurons la puissance  $P$  du laser IR fonctionnant en mode continu en fonction de la position de la lame (translation perpendiculaire au faisceau) et ce pour différentes distances entre la lame et la lentille  $d$ .

Le profil du faisceau gaussien est défini par  $I(x) = I_0 \exp(-2x^2/\omega)$  ( $\omega$  étant le rayon du faisceau à une distance donnée que l'on obtient par  $I = I_0/e^2$  si  $x = \omega$ ).

La courbe  $P = f(\text{position})$  représente l'intégrale de cette fonction gaussienne. Grâce au logiciel Peak-Fit, il est possible d'ajuster cette courbe et d'obtenir la valeur de  $\omega$ . La fonction utilisée

$$\text{est : } \frac{a_0}{2} \left( 1 + \operatorname{erf} \left( \frac{x - a_1}{\sqrt{\frac{1}{2} a_2}} \right) \right) \quad \text{avec : } a_0: \text{l'amplitude, } a_1: \text{le centre et } a_2: \text{la largeur.}$$

$$\text{Où } \omega = 2 a_2 \quad \text{et} \quad \operatorname{erf}(y) = \int_0^y \exp(-x^2) dx$$

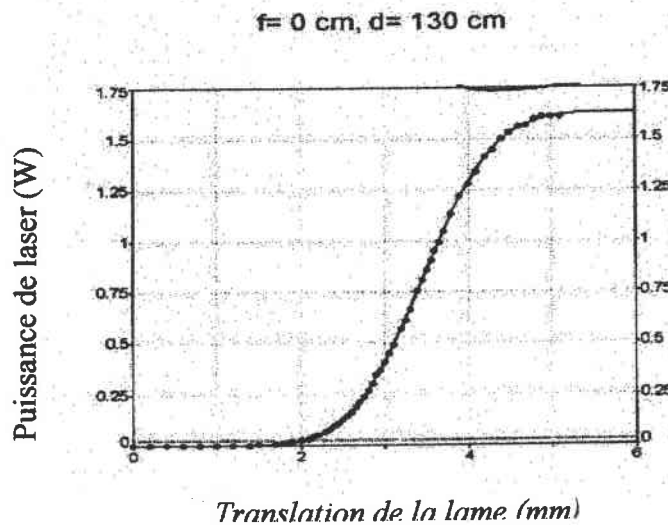
Nous reportons ensuite ces valeurs sur une courbe  $\omega$  (mm) en fonction de la distance lentille - lame (cm), et nous les ajustons avec la fonction :  $\omega(z) = \omega_0 \left[ 1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi \omega_0^2} \right)^2 \right]^{1/2}$ .

### III-3-2-b) Résultats de mesure

Dans ce qui suit, nous allons présenter les valeurs de col expérimentales avec et sans lentille de focalisation ainsi que son erreur expérimental.

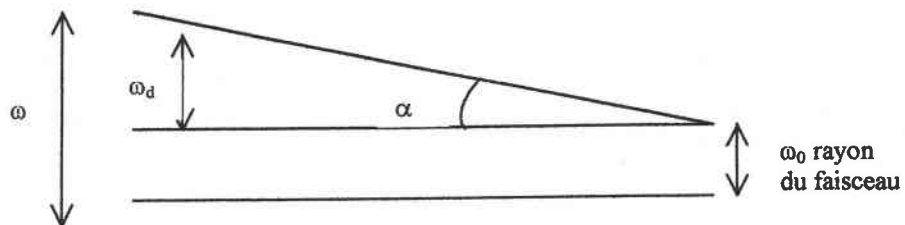
#### 1) Sans lentille de focalisation

Nous avons effectué une mesure de puissance en fonction de la translation verticale de la lame située à une distance  $d = 130$  cm du laser sans lentille.



**Courbe 2:** Puissance de laser YAG en fonction de la translation de la lame située à une distance  $d=130 \text{ cm}$  du laser sans lentille

Après l'ajustement de cette courbe, nous avons obtenu le rayon du faisceau à cette distance qui est la somme du rayon du faisceau à la sortie du laser et la divergence du faisceau (voir figure 2).



**Figure 2:** Rayon du faisceau à une distance  $d$

Le rayon trouvé est  $\omega = 1,35 \pm 0,05 \text{ mm}$ , ce qui nous permet de déduire l'angle de divergence  $\alpha$  qui vaut  $\alpha \approx 0,83 \text{ mrad}$ .

La valeur du divergence calculée est comparable à celle donnée dans la documentation qui est  $0,81 \text{ mrad}$ .

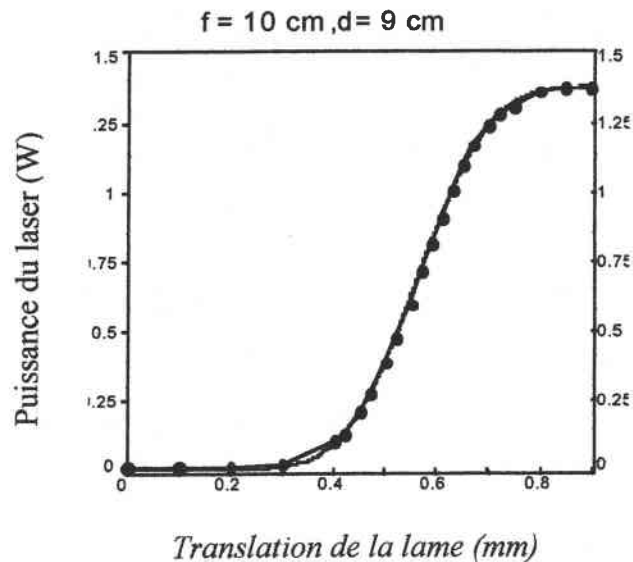
Les mesures du col pour différentes focales,  $10 \text{ cm}$ ,  $20 \text{ cm}$  et  $30 \text{ cm}$  pour déterminer le col ainsi que sa position ont donné les résultats suivants :



## 2) Focale 10 cm

La puissance du laser est mesurée en fonction de la translation verticale de la lame par rapport au faisceau pour une distance  $d$  lame-lentille. La distance  $d$  varie de 7 cm à 15 cm avec un pas de 1cm.

Nous présenterons un exemple de  $d = 9$  cm :



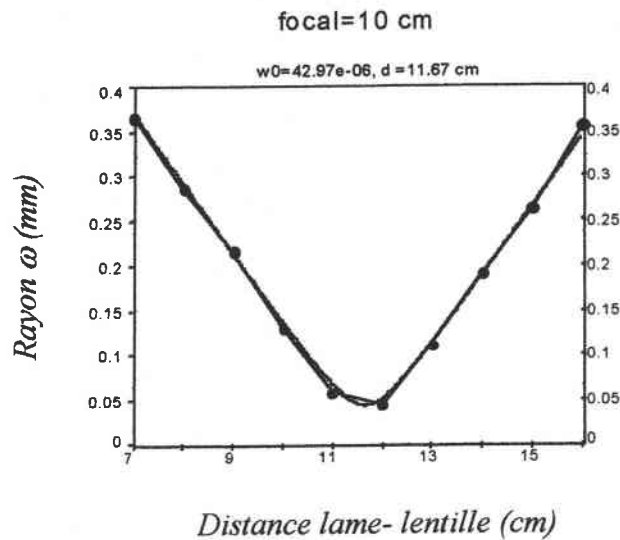
**Courbe 3:** Puissance de laser YAG en fonction de la translation de lame située à une distance  $d = 9$  cm de la lentille pour la focale de 10 cm.

L'ajustement de cette courbe nous a donné le rayon du faisceau à cette distance :  $\omega = 0,217$  mm. Les autres résultats sont présentés dans le tableau suivant :

$d$ (cm)	$\omega$ (mm)
7	0,366
8	0,287
9	0,217
10	0,131
11	0,03
12	0,045
13	0,111
14	0,91
15	0,263
16	0,365

**Tableau 2:** Rayon du faisceau à une distance  $d$  fixe pour la focale 10 cm

À partir de ces valeurs nous obtenons la courbe de rayon du col en fonction de la position de la lame qui après son ajustement, nous permet d'obtenir le col du faisceau à cette focale :



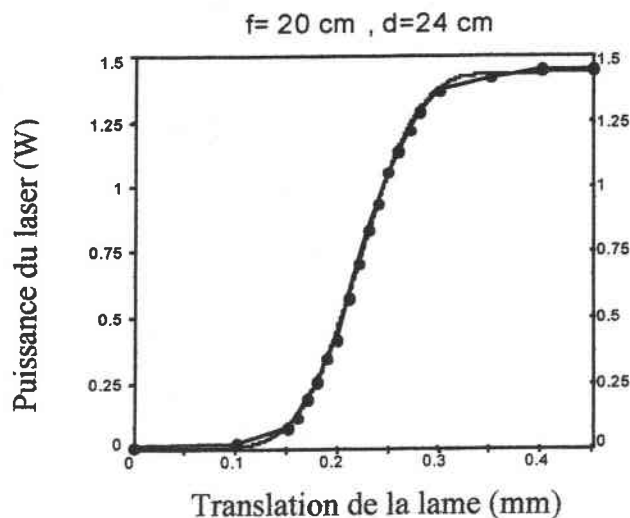
**Courbe 4:** Rayon du faisceau en fonction de  $d$  pour la focale de 10 cm

La valeur du col est  $\omega_0 = 42,97 \pm 1 \mu\text{m}$  et sa position par rapport à la lentille est  $l = 11,67 \text{ cm}$ .

### 3) Focale 20 cm

De la même manière, nous présentons la puissance de laser en fonction de la translation de la lame à une distance fixe  $d$  qui varie entre 18 cm et 30 cm avec un pas de 1 cm.

Nous présenterons un exemple de  $d = 24 \text{ cm}$  :



**Courbe 5:** Puissance du laser YAG en fonction de la translation de lame située à une distance  $d=24 \text{ cm}$  de la lentille avec une focale de 20 cm.

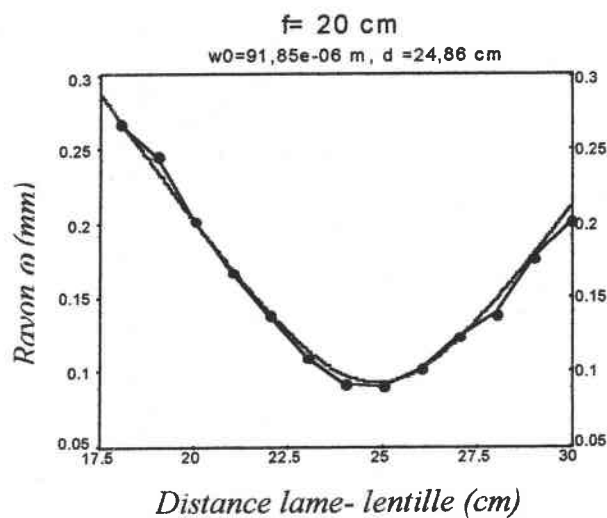
L'ajustement de cette courbe nous a donné le rayon du faisceau à cette distance :  
 $\omega = 0,091$  mm.

Les autres résultats sont présentés dans le tableau suivant :

d (cm)	$\omega$ (mm)
18	0,267
19	0,245
20	0,202
21	0,166
22	0,137
23	0,109
24	0,091
25	0,09
26	0,102
27	0,123
28	0,138
29	0,176
30	0,201

**Tableau 3:** Rayon du faisceau à une distance  $d$  fixe pour la focale 20 cm

À partir de ces valeurs nous avons la courbe de rayon du col en fonction de la position de la lame qui après son ajustement, nous permet d'obtenir le col du faisceau à cette focale :



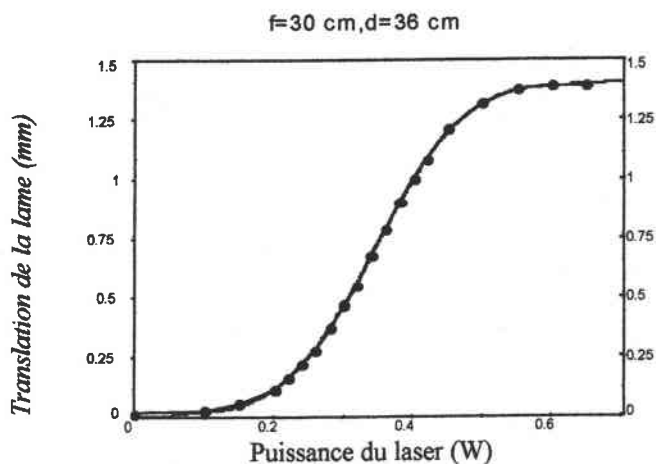
**Courbe 6:** Rayon du faisceau en fonction de  $d$  pour la focale de 20 cm

La valeur du col est  $\omega_0 = 91,85 \pm 2 \mu\text{m}$  et sa position par rapport à la lentille est  $l = 24,86 \text{ cm}$ .

#### 4) Focale 30 cm

De la même manière, nous présentons la puissance de laser en fonction de la translation de la lame à une distance fixe  $d$  qui varie entre 30 cm et 41 cm avec un pas de 1 cm.

Nous présenterons un exemple de  $d = 36 \text{ cm}$  :



**Courbe 7:** Puissance du laser YAG en fonction de la translation de lame située à une distance  $d=36 \text{ cm}$  de la lentille avec une focale de 30 cm

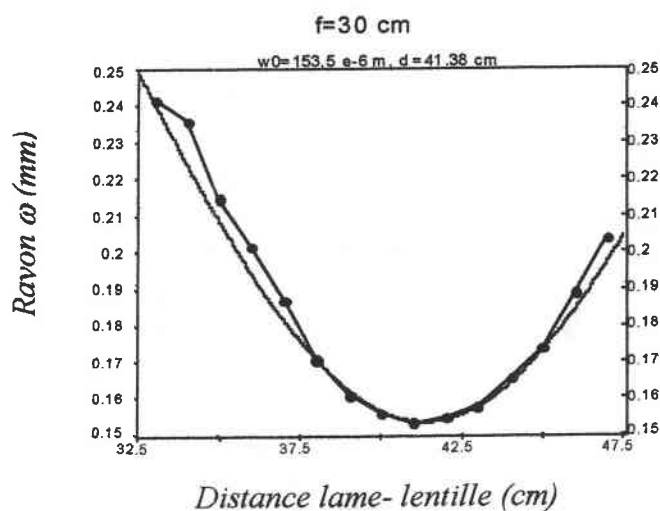
L'ajustement de cette courbe nous a donné le rayon du faisceau à cette distance :  $\omega = 0,201 \text{ mm}$ .

Les autres résultats sont présentés dans le tableau suivant :

d (cm)	$\omega$ (mm)
33	0,241
34	0,235
35	0,215
36	0,201
37	0,187
38	0,170
39	0,161
40	0,165
41	0,153
42	0,155
43	0,158
44	0,165
45	0,174
46	0,189
47	0,204

**Tableau 4:** Rayon du faisceau à une distance  $d$  fixe pour la focale 30 cm

À partir de ces valeurs nous avons la courbe du rayon du col en fonction de la position de la lame qui après son ajustement, nous permet d'obtenir le col du faisceau à cette focale :



**Courbe 8:** Rayon du faisceau en fonction de  $d$  pour la focale de 30 cm

La valeur du col est  $\omega_0 = 153,5 \pm 5 \mu\text{m}$  et sa position par rapport à la lentille est  $l = 41,38 \mu\text{m}$ .

*III-3-3) Conclusion*

Nous présentons ces différents résultats expérimentaux ainsi que les valeurs théoriques déjà calculées dans le tableau suivant :

Focale en cm	Col expérimental en $\mu\text{m}$	d expérimental en cm	Col théorique en $\mu\text{m}$	d théorique en cm
10	$43 \pm 1$	11,67	37	11,3
20	$92 \pm 2$	24,86	84,7	25,8
30	$153,5 \pm 5$	41,38	148,2	44,8

Nous remarquons un bon accord entre les valeurs théoriques et expérimentales pour la position des col des différentes lentilles. En revanche, les valeurs de la taille du col dans les deux cas sont quelques peu différentes. Cet écart ne peut être attribué aux erreurs expérimentales car les mesures effectuées plusieurs fois ont permis d'obtenir des valeurs très répétitives. En revanche, il peut être dû à la valeur théorique de la taille du col  $\omega_1$  utilisée dans nos calculs qui est celle fournie dans la documentation du laser (tableau 1). En effet, une faible variation de  $\omega_1$  entraîne une variation importante de la taille du col après la lentille comme montre la formule (III-1). En effet, si nous prenons  $\omega_1 = 0,3 \text{ mm}$  ou  $0,32 \text{ mm}$  au lieu de  $0,275 \text{ mm}$ , nous trouvons:

Focale en cm	Col $\omega_2$ en $\mu\text{m}$ $\omega_1 = 0,3 \text{ mm}$	$d_2$ théorique en cm	Col $\omega_2$ en $\mu\text{m}$ $\omega_1 = 0,32 \text{ mm}$	$d_2$ théorique en cm
10	39,6	11,23	41,5	11,2
20	90,2	25,6	98,7	25,5

La distance  $d_1$  la lentille et le laser est aussi un paramètre critique. Alors si nous prenons  $d_1 = 79 \text{ cm}$  ou  $d_1 = 81 \text{ cm}$  au lieu de  $83 \text{ cm}$  nous obtenons :

f cm	Col $\omega_2$ en $\mu\text{m}$ $d_1 = 79 \text{ cm}$	$d_2$ théorique en cm	Col $\omega_2$ en $\mu\text{m}$ $d_1 = 83 \text{ cm}$	$d_2$ théorique en cm
10	37,92	11,3	36,02	11,25
20	87,2	25,9	82,3	25,64

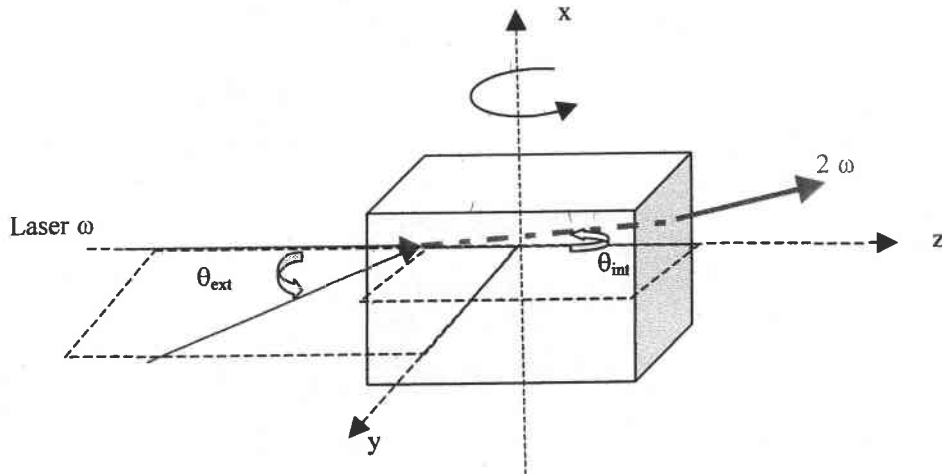
*III-4. Technique de mesure d'angles d'accord de phase*

Si nous étudions l'efficacité de conversion en fonction de la direction de propagation, nous remarquons que pour certaines directions, cette efficacité est beaucoup plus importante.

Dans le chapitre II, nous avons donné les formules théoriques pour le calcul d'angle d'accord de phase  $\theta$  de type I et II pour des cristaux uniaxe et biaxe. Ces valeurs sont calculées théoriquement à l'aide d'un programme développé sous Turbo Pascal utilisant des indices de réfraction à  $\omega$  et à  $2\omega$ .

Dans LTB , les valeurs théoriques obtenues avec  $n_o(\omega) = 1,5969$ ,  $n_e(\omega) = 1,5435$  et  $n_o(2\omega) = 1,6137$ ,  $n_e(2\omega) = 1,5561$  sont  $\theta^{PM}_I = 31,7^\circ$  et  $\theta^{PM}_{II} = 46,5^\circ$  [Kwon 1994].

### Principe



Dans un premier temps le cristal est réglé en incidence normale grâce à l'Hélium Néon. Puis le laser Nd :YAG étant envoyé sur le cristal, nous tournons le cristal par rapport à l'axe x jusqu'à obtenir une puissance maximum du faisceau harmonique à sa sortie. Le réglage de la direction de polarisation du faisceau (type I ou II) grâce à la lame demi-onde permet d'optimiser l'efficacité de conversion. Nous mesurons une variation d'angle à l'extérieur du cristal par rapport à l'incidence normale  $\theta_{ext}$ . Grâce à la loi de Descartes, nous pouvons déduire l'angle interne  $\theta_{int}$  qui correspond à l'angle d'accord de phase du cristal étudié.

### III-5. Technique de mesure de $d_{eff}$

#### III-5-1) Outils numériques utilisés dans la mesure:

Après la mesure de la taille du col du faisceau incident et de l'angle d'accord de phase du cristal, nous disposons des éléments principaux nécessaires à la mesure du coefficient effectif non linéaire  $d_{eff}$  de GSH. Néanmoins, des calculs préliminaires pour chaque matériau étudié sont encore nécessaires :

#### Walk-off $\rho$

Le walk-off est l'écart angulaire entre les directions de propagation du flux énergétique et de l'onde elle-même. Nous calculons théoriquement sa valeur avec un programme développé sous Turbo Pascal , à l'aide de l'équation (II-38) du chapitre II:

$$\text{tg } \rho = n^2 \left[ \left( \frac{s_x}{n^{-2} - n_x^2} \right)^2 + \left( \frac{s_y}{n^{-2} - n_y^2} \right)^2 + \left( \frac{s_z}{n^{-2} - n_z^2} \right)^2 \right]^{-\frac{1}{2}}$$

En connaissant les indices de réfraction, nous pouvons obtenir la valeur du walk-off dans LTB pour le type I et II pour la longueur d'onde 1064 nm :

	Type I	Type II
$\rho$ (°)	1,88	2,07

### Fonction G

La fonction G intervenant dans l'équation de l'efficacité de conversion tient compte des paramètres du faisceau et du cristal (voir équation II- 53).

Le calcul de sa valeur nécessite la connaissance des indices de réfraction du cristal, la longueur d'onde, la longueur de cristal, le walk-off, le col et le type d'accord de phase.

Grâce au Logiciel « Maple », nous effectuons le calcul de cette double intégrale pour une longueur de cristal, une longueur d'onde et une focale déterminées. Nous avons supposé dans notre calcul que le coefficient d'absorption est nul ( $\alpha \approx 0$ ) et que le désaccord de phase est nul ( $\varepsilon = 0$ ), la condition d'accord de phase étant réalisée.

Les différentes valeurs de la fonction G obtenues pour les différentes longueurs du cristal de LTB et pour différentes lentilles de focalisation utilisées sont reportées dans le tableau 5 (accord de phase de type I) :

	2,7 mm	5 mm	9,8 mm
10 cm	0,61445	0,38193	0,198642
20 cm	0,86705	0,67566	0,41991
30 cm	0,94683	0,84267	0,61376

**Tableau 5 :** Valeurs de la fonction G pour LTB taillé selon l'accord de phase de type I.

### Détermination de $d_{eff}$

Tous les termes intervenant dans l'efficacité de conversion  $\Gamma_{SH}$  étant connus, excepté le coefficient effectif non linéaire  $d_{eff}$ , la mesure des puissances harmoniques et fondamentales nous permet de déduire la valeur absolue de  $d_{eff}$  ainsi que son erreur expérimentale.

Les puissances harmonique  $P_{2\omega}$  et fondamentale  $P_{\omega}$  n'étant pas mesurées à la sortie et à l'entrée de cristal, il est nécessaire de calculer l'efficacité de conversion réelle à partir de l'efficacité de conversion mesurée soit  $(\Gamma_{SH})_{réel} = K \cdot (\Gamma_{SH})_{mesuré}$ , K étant un coefficient qui tient compte des coefficients de réflexions et de transmission des différentes optiques utilisées dans le montage (Voir annexe C).



La mesure de  $\Gamma_{SH}$  permet d'obtenir en temps réel la valeur de  $d_{eff}$  grâce à un programme développé sous LABVIEW (National Instrument), en rentrant les différents paramètres du cristal: l'angle d'accord de phase  $\theta_{PM}$ , les indices de réfraction  $\omega$  et  $2\omega$ , le type d'accord de phase (type I ou II), la taille du col, la valeur de la fonction G, le traitement antireflet ou non du cristal.

Le programme permet de tracer la courbe de  $\frac{P_{2\omega}}{P_{\omega}^2}$ , d'afficher la valeur instantanée de  $d_{eff}$  puis de déduire la valeur de  $\frac{P_{2\omega}}{P_{\omega}^2}$  moyen et de  $d_{eff}$  moyen ; il nous permet aussi d'obtenir l'erreur sur la mesure de  $d_{eff}$ . La valeur de  $\frac{P_{2\omega}}{P_{\omega}^2}$  étant systématiquement calculée sur au moins deux cent points de mesure, il est possible d'en déduire son écart type ainsi que l'écart correspondant pour  $d_{eff}$ .

#### ❖ Détermination de l'erreur sur $d_{eff}$ :

En plus de cette erreur expérimentale, il est nécessaire de considérer les erreurs dues aux différents termes intervenant dans  $d_{eff}$ . L'erreur sur la détermination des coefficients  $d_{eff}$  est calculée à l'aide de la relation (II-52) :

$$\frac{\delta d_{eff}}{d_{eff}} = \frac{1}{2} \left( \frac{\delta P_{2\omega}}{P_{2\omega}} + 2 \frac{\delta P_{\omega}}{P_{\omega}} + 3 \frac{\delta n}{n} + 2 \frac{\delta \omega_0}{\omega_0} + 2 \frac{\delta L}{L} \right)$$

✓ Le terme  $\delta P_{2\omega}$ , correspond à l'incertitude sur les valeurs mesurées par la photodiode, sa valeur est estimée à 5 % par le constructeur.

✓ Le terme  $\delta P_{\omega}$ , correspond à l'incertitude de la thermopile, sa valeur est estimée à 3 %.

✓ Le terme  $\delta \omega_0$ , correspond à l'incertitude sur le col, sa valeur dépend de la focale utilisée, elle est de 2,5% pour le col 43  $\mu\text{m}$ , 2,5% pour le col 92  $\mu\text{m}$  et 3,5% pour le col 153,5  $\mu\text{m}$ .

✓ Le terme  $\delta L$  correspond à l'incertitude de l'outil de mesure « Palmer » qui vaut 0,5%.

✓ Le terme  $\delta n$  est l'incertitude sur l'indice de réfraction, elle de l'ordre de 0,1%.

#### ❖ Tableau récapitulatif :

Les différentes incertitudes calculées du coefficient  $d_{eff}$  sont présentées dans le tableau suivant :

	43 $\mu\text{m}$	92 $\mu\text{m}$	153,5 $\mu\text{m}$
Type I	8,5%	8,5%	9,5%
Type II	8,5%	8,5%	9,5%

L'erreur totale de  $d_{\text{eff}}$  est la somme de l'erreur calculée plus l'erreur expérimentale.

### III-5-2) Technique de mesure

$P_{2\omega}$  est la puissance du faisceau harmonique obtenue à partir du cristal étudié, soit LTB dans notre cas. Pour avoir le maximum de puissance, nous sommes amenés à effectuer des réglages pour une focale déterminée avant la mesure de  $d_{\text{eff}}$ .

- Le cristal taillé selon l'angle d'accord de phase est placé en incidence normale sur le porte échantillon grâce au laser d'alignement He-Ne.
- Le laser Nd :YAG est ensuite envoyé sur le cristal. Au début, nous agissons sur la lame demi onde de façon à changer la direction de polarisation ( lorsque la puissance indiquée par la photodiode est maximale, cela signifie que la direction de polarisation est optimale pour le type d'accord de phase souhaité ).
- Nous optimisons ensuite la position de l'échantillon en utilisant la rotation de l'angle d'accord de phase.
- Enfin, nous effectuons une translation de l'échantillon le long de la direction de propagation du laser de façon à avoir un rendement de conversion maximum ; par exemple pour le type I, nous obtenons le maximum de puissance quand la position du col est au milieu du cristal.

### III-6. Mesure de l'acceptance angulaire

Comme nous l'avons mentionné au paragraphe II-6 du chapitre II, l'acceptance angulaire est la variation angulaire pour laquelle la puissance harmonique est égale à sa valeur maximale divisée par deux (Full Width Half Maximum of  $\Gamma$ ) : elle est notée  $\Delta\theta_{\text{FWHM}}$ . Nous avons donné les équations de cette variation pour un cristal uniaxe et biaxe et pour les deux types I et II dans le cas d'une onde plane au chapitre II (II-5) et annexe B (B-3).

Nous traitons dans ce paragraphe l'acceptance angulaire pour un faisceau Gaussien et nous donnons une comparaison entre les résultats obtenus avec ce faisceau et avec l'onde plane.

### III-6-1) Faisceau gaussien

Le calcul théorique de l'acceptance angulaire pour un faisceau gaussien est réalisable à partir de l'équation de rendement de conversion  $\Gamma_{SH}$  (II-52) ; la dépendance de l'efficacité de conversion avec la variation de l'angle autour de l'angle d'accord de phase se situe principalement dans la fonction  $G$  (II-53). En effet l'expression de  $d_{eff}$  dépend aussi de la direction de propagation ; mais cette variation due à des faibles variations d'angle peut être négligée par rapport à celle de la fonction  $G$ .

La fonction  $G$  est calculée dans ce cas de la même manière que celle utilisée pour le coefficient  $d_{eff}$ , à l'exception près que nous ne nous limitons plus au cas  $\varepsilon = 0$ . En effet, la variation  $\Delta\theta_{int}$  de l'angle autour de l'angle d'accord de phase  $\theta_{PM}$  influe dans la valeur de  $\varepsilon$  de la façon suivante :

$$\varepsilon = \Delta K(\theta) \omega_0 / \rho \text{ avec } \Delta K(\theta) = \Delta K(\theta_{PM} \pm \Delta\theta_{int}).$$

Les expressions de  $\Delta K$  dépendent du type d'accord de phase :

❖ Pour le type I

$$\Delta K = 4\pi(n_e^{2\omega}(\theta) - n_o^{(2\omega)}) / \lambda \text{ avec } \theta = \theta_{PM} \pm \Delta\theta_{int} \text{ et } \Delta\theta_{int} \text{ est la variable de calcul}$$

$$\text{avec } n_e^{2\omega}(\theta) = \left( \frac{\sin^2 \theta}{(n_e^{2\omega})^2} + \frac{\cos^2 \theta}{(n_o^{2\omega})^2} \right)^{-0.5}$$

En calculant la valeur de la fonction  $G$  pour chaque valeur de  $\varepsilon$ , nous pouvons tracer la courbe de la fonction  $G$  en fonction de la variation d'angle  $\Delta\theta_{int}$ . Nous obtenons  $\Delta\theta_{int}$  à  $G_{max}/2$ .

❖ Pour le type II

$$\Delta K = 2\pi(n_e^{2\omega}(\theta) - n_e^{(\omega)}(\theta) - n_o^{(\omega)}) / \lambda \text{ avec } \theta = \theta_{PM} \pm \Delta\theta_{int} \text{ et } \Delta\theta_{int} \text{ est la variable de calcul}$$

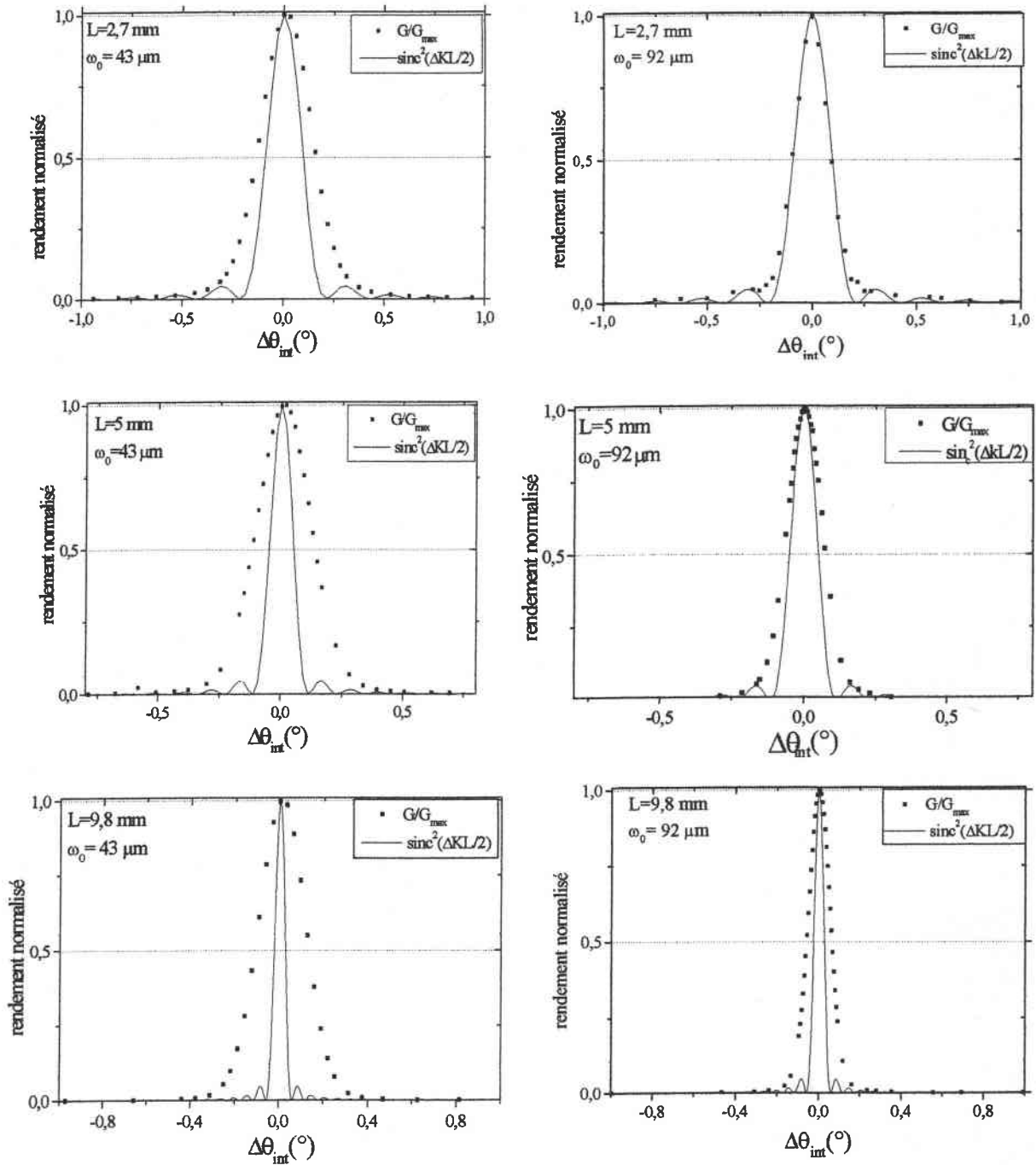
$$\text{avec } n_e^{2\omega}(\theta) = \left( \frac{\sin^2 \theta}{(n_e^{2\omega})^2} + \frac{\cos^2 \theta}{(n_o^{2\omega})^2} \right)^{-0.5} \text{ et } n_e^{(\omega)}(\theta) = \left( \frac{\sin^2 \theta}{(n_e^{(\omega)})^2} + \frac{\cos^2 \theta}{(n_o^{(\omega)})^2} \right)^{-0.5}$$

De la même manière, nous obtenons  $\Delta\theta_{int}$  à  $G_{max}/2$ .

### III-6-2) Comparaison entre les courbes de l'onde plane et du faisceau gaussien

Dans les courbes suivantes, nous présentons une comparaison entre les courbes d'acceptance angulaires calculées à l'aide de la fonction  $G$  avec celle calculées à partir du  $\text{sinc}^2$  intervenant dans le cas d'une onde plane. Pour faciliter la comparaison la courbe  $G = f(\Delta\theta)$  est normalisée par sa valeur maximale. Les résultats pour les différentes longueurs

de cristal de LTB dont on dispose et pour les lentilles de focales 10 et 20 cm sont représentés dans les figures suivantes :



*Courbes 8: Représentation théorique de la variation angulaire de l'efficacité de conversion dans le cas d'un faisceau gaussien et d'une onde plane*

- Pour  $L = 2,7 \text{ mm}$ , nous remarquons que pour une faible focalisation les deux courbes calculées à partir des formules correspondant au cas du faisceau gaussien et au cas de l'onde plane coïncident ce qui est normal car le produit  $\rho \times L$  est plus petit que le col  $\omega_0$ , par contre

pour une grande focalisation nous remarquons une différence entre les deux courbes puisque nous sommes dans le cas où  $\rho \times L > \omega_0$  (voir II-7-5 chapitre II).

- Pour  $L = 5 \text{ mm}$  et  $9,8 \text{ mm}$ , nous remarquons une différence entre les courbes obtenues par un faisceau gaussien et les courbes obtenues par l'onde plane dans le cas de faible et de forte focalisations puisque pour les deux longueurs nous avons  $\rho \times L > \omega_0$ .

### III-6-3) Tableau récapitulatif

Nous résumons les différents résultats dans le tableau suivant :

L (mm)	Col $\omega_0$ ( $\mu\text{m}$ )	$\Delta\theta_{\text{FWHM}}$ avec G	$\Delta\theta_{\text{FWHM}}$ avec $\text{sinc}^2(\Delta K L/2)$ ( $^\circ$ )	$\Delta\theta_{\text{FWHM}} \times L$ avec G (mradcm)	$\Delta\theta_{\text{FWHM}} \times L$ avec $\text{sinc}^2(\Delta K L/2)$ (mradcm)
2,7	43	0,3	0,19	1,41	0,87
	92	0,2	0,19	0,94	0,87
5	43	0,26	0,1	2,26	0,87
	92	0,15	0,1	1,31	0,87
9,8	43	0,24	0,05	4,1	0,87
	92	0,12	0,05	2,05	0,87

**Tableau 6:** Représentation de différents résultats théoriques de l'acceptance angulaire dans LTB

Dans le cas de l'approximation d'onde plane, le produit  $\Delta\theta_{\text{FWHM}} \times L$  est présenté comme une constante du matériau. Par contre dans le cas du faisceau Gaussien le produit  $\Delta\theta_{\text{FWHM}} \times L$  dépend de la longueur d'échantillon et des conditions de focalisation et n'est plus une constante.

À partir du tableau 6, nous remarquons aussi que les valeurs d'acceptance angulaire pour le faisceau gaussien et l'onde plane sont voisines pour des cristaux de petites longueurs et pour des faibles focalisations (c'est à dire pour une focale grande) et que cela dépend de la relation entre  $\rho \times L$  et  $\omega_0$ .

### III-7. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté la méthode expérimentale utilisée pour la mesure coefficient effectif non linéaire  $d_{\text{eff}}$  avec tous les calculs préliminaires nécessaires tels que le col et la fonction G. Aussi, nous avons présenté la technique utilisée pour la mesure de l'acceptance angulaire dans le cas d'un faisceau gaussien. Ensuite, nous avons donné une comparaison entre les valeurs de l'acceptance angulaire trouvées théoriquement par le faisceau gaussien avec celle trouvées par une onde plane.

L'étude, théorique et expérimentale, de la technique des franges de Maker sur le cristal LTB sera donnée dans l'annexe D.

# Chapitre IV

---

## *Résultats expérimentaux et interprétations*

<b>IV-1 Introduction</b> .....	<b>89</b>
<b>IV-2. Mesure du coefficient <math>d_{\text{eff}}</math></b> .....	<b>89</b>
IV-2-1) Mesures sur BBO .....	89
IV-2-1-a) Quelques rappels sur BBO et cristaux disponibles .....	89
IV-2-1-b) Résultats expérimentaux sur BBO .....	90
IV-2-1-c) Conclusion .....	90
IV-2-2) Mesures sur LTB .....	91
IV-2-2-a) Mesure de l'angle d'accord de phase de type I .....	91
IV-2-2-b) Mesure de $d_{\text{eff}}$ .....	91
IV-2-3) Mesure de $d_{\text{eff}}$ sur LTB dopé MgO .....	94
IV-2-4) Mesures sur CLBO .....	95
IV-2-4-a) Echantillons disponibles .....	96
IV-2-4-b) Mesure de $d_{\text{eff}}$ .....	97
<b>IV-3. Mesure de l'acceptance angulaire</b> .....	<b>99</b>
IV-3-1) Acceptance angulaire pour BBO .....	99
IV-3-2) Acceptance angulaire pour LTB .....	103
IV-3-3) Acceptance angulaire pour CLBO .....	106
IV-3-3-a) Résultats expérimentaux .....	106
IV-3-3-b) Extrapolation de l'acceptance angulaire .....	110
IV-3-4) Conclusion .....	111
<b>IV-4. Conclusion</b> .....	<b>111</b>

### IV-1 Introduction

Nous avons appliqué la technique de mesure absolue du coefficient effectif non linéaire  $d_{\text{eff}}$  qui, comme nous l'avons montré, tient compte des propriétés optiques non linéaires du cristal et des propriétés du laser à l'intérieur du cristal, à différents cristaux de la famille des borates et spécifiquement à LTB.

Dans un premier temps, nous avons mené une série de mesures sur les cristaux de BBO taillés selon l'accord de phase de type I et de type II. Cette étude a été menée dans un souci de validation de la technique, les coefficients ONL de BBO étant déjà connus dans la littérature, bien que ces valeurs soient controversées car souvent obtenues grâce à un cristal de référence. Les mesures d'acceptance angulaire de BBO nous ont également permis de valider son interprétation théorique en faisceau gaussien.

Puis, nous avons appliqué notre technique de mesure de façon approfondie à LTB pur et à LTB dopé MgO, dont les coefficients ONL n'ont fait jusqu'ici l'objet que de rares publications et dont l'acceptance angulaire n'a pas été étudiée.

Ensuite, nous donnons les valeurs des coefficients ONL et de l'acceptance angulaire obtenues pour CLBO avec deux compositions différentes.

### IV-2. Mesure du coefficient $d_{\text{eff}}$

#### IV-2-1) Mesures sur BBO

##### IV-2-1-a) Quelques rappels sur BBO et cristaux disponibles

BBO est un cristal uniaxe négatif, de groupe ponctuel  $3m$  et les développements de  $d_{\text{eff}}$  en fonction des coefficients  $d_{ij}$  et de l'angle  $\theta$  sont selon le type d'accord de phase:

$$\begin{aligned} d_{\text{eff I}} &= d_{31} \sin\theta - d_{22} \cos\theta \sin 3\varphi \\ d_{\text{eff II}} &= d_{22} \cos^2\theta \cos 3\varphi \end{aligned}$$

Pour le type I ( $\theta_{\text{PM I}} = 22,88^\circ \pm 0,1^\circ$ ), nous étudions deux configurations, une correspondant à une propagation selon le plan xz ( $\varphi = 0^\circ \pm 0,1^\circ$ ) et l'autre selon le plan yz ( $\varphi = 90^\circ \pm 0,1^\circ$ ). Les développements de  $d_{\text{eff}}$  correspondant à ces deux configurations sont respectivement:  $d_{\text{eff}}^{\text{xz}} = d_{31} \sin\theta_{\text{PM I}}$  et  $d_{\text{eff}}^{\text{yz}} = d_{31} \sin\theta_{\text{PM I}} + d_{22} \cos\theta_{\text{PM I}}$ . Nous disposons de deux cristaux de longueur  $L = 4,5\text{mm}$  et  $L = 7\text{mm}$  pour la configuration yz et d'un cristal de longueur  $L = 4\text{mm}$  pour la configuration xz.

Pour l'accord de phase de type II, nous disposons de trois échantillons de longueur  $L = 1,2\text{mm}$ ,  $L = 2,4\text{mm}$  et  $L = 4,5\text{mm}$  taillés selon l'angle d'accord de phase de type II avec



( $\theta_{PM II} = 32,56^\circ \pm 0,1^\circ$ ). Le plan de propagation de la lumière étant xz ( $\varphi = 0^\circ \pm 0,1^\circ$ ), le développement de  $d_{eff}$  correspondant est :  $d_{eff II} = d_{22} \cos^2 \theta_{PM II}$ .

#### IV-2-1-b) Résultats expérimentaux sur BBO

Les mesures effectuées sur les échantillons de BBO permettent d'obtenir une puissance de l'onde harmonique de l'ordre de la centaine de micro-watt pour une puissance de l'onde fondamentale d'environ 4 W.

Les résultats obtenus pour différentes conditions de focalisation et pour les différentes tailles d'échantillons ainsi que les valeurs de la fonction G correspondantes sont résumés dans le tableau suivant :

Type d'accord de phase	Plan de propagation	Longueur du cristal L (mm)	Col $\omega_0$ ( $\mu\text{m}$ )	G à $\varepsilon=0$	$d_{eff}$ (pm/V)
I	xz ( $d_{eff I}^{xz}$ )	4	92	0,3792	$0,1 \pm 0,01$
			153,5	0,5057	$0,105 \pm 0,01$
	yz ( $d_{eff I}^{yz}$ )	4,5	92	0,3442	$1,75 \pm 0,19$
			153,5	0,4636	$1,77 \pm 0,2$
		7	92	0,2293	$1,75 \pm 0,2$
			153,5	0,3219	$1,78 \pm 0,22$
II	xz ( $d_{eff II}$ )	1,2	92	0,4985	$1,48 \pm 0,15$
			153,5	0,6971	$1,51 \pm 0,2$
		2,4	92	0,1553	$1,48 \pm 0,15$
			153,5	0,3089	$1,53 \pm 0,2$
		4,5	92	0,0438	$1,45 \pm 0,15$
			153,5	0,0922	$1,54 \pm 0,18$

**Tableau 1 : Valeurs des coefficients  $d_{eff}$  en pm/V à l'accord de phase**

#### IV-2-1-c) Conclusion

La valeur moyenne de  $d_{eff}$  pour le type I est  $d_{eff}^{yz} = 1,76 \pm 0,2$  pm/V et  $d_{eff}^{xz} = 0,1 \pm 0,01$  pm/V et pour le type II est  $d_{eff II} = 1,50 \pm 0,16$  pm/V.



Les coefficients non linéaires  $d_{22}$  et  $d_{31}$  peuvent être déduits des valeurs de  $d_{\text{eff}}$ :

À partir de l'équation de  $d_{\text{eff}}^{\text{II}}$  nous avons déduit la valeur de  $d_{22} = 2,11 \pm 0,23$  pm/V qui est en bon accord avec les résultats trouvés par Fan  $d_{22} = 2,16 \pm 0,08$  pm/V [Fan 1989] et Roberts  $d_{22} = 2,3$  pm/V [Roberts 1992].

À partir de l'équation de  $d_{\text{eff}}^{\text{I}^{\text{XZ}}}$  nous avons obtenu la valeur de  $d_{31} = 0,26 \pm 0,028$  pm/V. Dans la littérature, les quelques valeurs mentionnées pour  $d_{31}$  sont comprises entre 0,16 et 0,08 pm/V [Eimerl 1987, Becker 1998].

En reportant, dans  $d_{\text{eff}}^{\text{I}^{\text{YZ}}}$  avec  $\varphi = 90^\circ$ , les valeurs trouvées de  $d_{31}$  et  $d_{22}$ , nous remarquons que leurs signes doivent être opposés pour que les résultats soient cohérents ( $d_{\text{eff}}^{\text{I}^{\text{YZ}}} = 2,04$  pm/V pour  $d_{31}$  et  $d_{22}$  de mêmes signes ;  $d_{\text{eff}}^{\text{I}^{\text{YZ}}} = 1,84$  pm/V avec  $d_{31}$  et  $d_{22}$  de signes opposés).

#### IV-2-2) Mesures sur LTB

##### IV-2-2-a) Mesure de l'angle d'accord de phase de type I

La mesure expérimentale de l'angle d'accord de phase de type I (oo e) pour LTB est faite pour un cristal taillé selon les axes cristallographiques (x, y, z) dont les dimensions sont 3,48 mm\*3,41mm\*3,55 mm (3,55 mm selon l'axe z). En tournant le cristal dans un plan contenant l'axe z, nous avons obtenu le maximum de puissance pour un angle externe, entre le faisceau incident et l'axe z,  $\theta_{\text{ext}} = 55,64^\circ \pm 0,1^\circ$  ceci équivalant à un angle à l'intérieur du cristal  $\theta_{\text{int}} = 31,13^\circ \pm 0,1^\circ$  calculé à partir de la loi de Descartes. Ce résultat est comparable à ceux trouvés dans les références de [Kwon 1994, Kwon 1996] ( $\theta = 32^\circ$ ) pour l'accord de phase de type I et à celui que nous avons calculé théoriquement en utilisant les indices donnés par Kwon [Kwon 1994]. Ceci nous conforte dans ce choix d'indices qui seront utilisés dans la suite de nos calculs.

##### IV-2-2-b) Mesure de $d_{\text{eff}}$

###### $\alpha$ ) Introduction

Les mesures de génération de second harmonique pour LTB existant dans la littérature reposent soit sur la technique des franges de Maker [Furusawa 1991, Kwon 1997] soit sur la technique d'accord de phase, mais relatives au quartz ce qui conduit à des coefficients de GSH à  $\lambda = 1064$  nm différents:

	Furusawa 91	Kwon 97
$\frac{d_{31}}{d_{11}(\alpha\text{-quartz})}$	$0,4 \pm 0,1$	$0,2 \pm 0,02$
$\frac{d_{33}}{d_{11}(\alpha\text{-quartz})}$	$3,1 \pm 0,1$	$1,5 \pm 0,1$

Plus récemment, Sugawara [Sugawara 1998] a présenté une courbe de  $d_{\text{eff}}$  en fonction de la longueur d'onde qui nous permet d'obtenir, après extrapolation  $d_{\text{eff}} = 0,079 \text{ pm/ V}$  pour 1064 nm, soit  $d_{31} = 0,15 \text{ pm/ V}$  ( $d_{\text{eff}} = d_{31} \sin\theta$ ).

	Furusawa 91	Kwon 97	Sugawara 98
$d_{31} \text{ (pm/ V)}$	0,145	0,073	0,15
$d_{33} \text{ (pm/ V)}$	1,128	0,55	-
$d_{\text{eff}} \text{ (pm/ V)}$	0,077	0,038	0,079

Avec  $d_{11}(\alpha\text{-quartz}) = (0,36 \pm 0,04) \text{ pm/ V}$  [Dmitriev 1991].

Nous remarquons bien que les valeurs données pour ce cristal dans la littérature sont controversées.

### β) Echantillons disponibles

Nous avons effectué des mesures de  $d_{\text{eff}}$  pour des échantillons taillés selon l'angle d'accord de phase de type I selon la procédure de mesure décrite au chapitre III.

Nous disposons de trois échantillons de longueurs différentes. Les échantillons de longueur 2,7 mm et 5 mm ( $\theta = 32^\circ \pm 0,1^\circ$ ) proviennent de l'Institut de Recherche «*Solid State Physics and Optics of Budapest (Hongrie)*», alors que celui de longueur 9,8 mm a été synthétisé dans notre laboratoire «*Matériaux Optiques Photonique Systèmes*» à Metz. En outre, nous disposons d'un cristal taillé selon l'angle d'accord de phase de type II de longueur  $L = 2,9$  mm ( $\theta = 47^\circ \pm 0,1^\circ$ ) préparé en Hongrie. Quelle que soit la provenance des échantillons, la technique de croissance utilisée est la méthode de tirage par Czochralski.

### γ) Mesure de $d_{\text{eff}}$

Pour le type II, la puissance harmonique obtenue à la sortie est nulle ce qui signifie que le coefficient  $d_{\text{eff II}}$  est nul. Le résultat est conforme au développement de  $d_{\text{eff}}$  donnant bien une valeur nulle pour  $d_{\text{eff II}}$  à cause de la symétrie cristallographique ( $d_{\text{eff II}} = 0$ ).

La mesure de l'efficacité de conversion nous permet de déduire la valeur de  $d_{\text{eff}}$  pour l'accord de phase de type I. Les différents résultats obtenus sont résumés dans le tableau suivant:

Type d'accord de phase	L (mm)	Col $\omega_0$ ( $\mu\text{m}$ )	G à $\varepsilon=0$	$d_{\text{eff}}$ (pm/V)
I	2,7	43	0,61445	$4,86 \cdot 10^{-2} \pm 4,5 \cdot 10^{-3}$
		92	0,86705	$4,82 \cdot 10^{-2} \pm 4,5 \cdot 10^{-3}$
	5	43	0,38193	$4,88 \cdot 10^{-2} \pm 4,5 \cdot 10^{-3}$
		92	0,67565	$4,84 \cdot 10^{-2} \pm 4,5 \cdot 10^{-3}$
	9,8	43	0,19864	$4,35 \cdot 10^{-2} \pm 4 \cdot 10^{-3}$
		92	0,41991	$4,32 \cdot 10^{-2} \pm 4,2 \cdot 10^{-3}$

**Tableau 2 :** Valeurs de la fonction G et de  $d_{\text{eff}}$  à  $\varepsilon = 0$  pour LTB

La puissance de faisceau harmonique ( $2\omega$ ) obtenue étant de l'ordre de la centaine de nanowatt, des précautions très particulières doivent être prises pour l'utilisation de la photodiode (noir total dans la pièce, cache autour de la photodiode...).

#### Remarque

Contrairement à ce que l'on observe avec les autres matériaux utilisés en GSH, la tache du faisceau générée à  $2\omega$  n'est pas ronde mais allongée, et ce uniquement dans la direction de l'axe c (axe optique). Ce même phénomène a été remarqué pour les différentes longueurs d'échantillons de LTB et pour les différentes focales utilisées. Notons que le faisceau fondamental Nd:YAG récupéré à la sortie du cristal ne subit pas de déformation, ce qui nous permet de conclure que le phénomène obtenu est lié au doublage de fréquence. Ce problème de tache allongée peut être lié aux défauts de croissance du cristal LTB et surtout au Twist (voir annexe A), torsion subie par le cristal pendant la croissance, qui causerait une répartition spatiale de l'angle d'accord de phase.

#### δ) Conclusion

Nous obtenons une valeur moyenne de  $d_{\text{eff}}$  pour le type I de  $4,68 \cdot 10^{-2} \pm 4,5 \cdot 10^{-3}$  pm/V soit à partir de développement de  $d_{\text{eff}}$  en fonction des  $d_{ij}$  et  $\theta$  ( $d_{\text{eff I}} = d_{31} \sin\theta$ ), une valeur de  $d_{31}$  :  $8,5 \cdot 10^{-2} \pm 8 \cdot 10^{-3}$  pm/V.

*IV-2-3) Mesure de  $d_{eff}$  sur LTB dopé MgO*

Les faibles valeurs du coefficient effectif non linéaire de ce cristal nous ont amené à étudier la possibilité de l'augmenter. Pour cela, nous nous sommes intéressés à l'effet du dopage. Les borates sont connus comme des matériaux très difficiles à doper. Plusieurs tentatives de dopage ont été effectuées par le Laboratoire «*Solid State Physic and Optics of Budapest (Hongrie)*» à partir de différents métaux de transition et de terres rares : malheureusement le dopant est souvent resté dans le bain.

Les concentrations maximales qui ont pu être détectées dans les cristaux obtenus sont de l'ordre des impuretés se trouvant dans les matières premières de  $10^{-5}$ ,  $10^{-6}$  mole/ mole :

Cr :  $1,7 \cdot 10^{-5}$ , Mn :  $1,7 \cdot 10^{-5}$

Cu :  $1,3 \cdot 10^{-5}$ , Fe :  $9 \cdot 10^{-6}$

Ces faibles concentrations ne peuvent pas être détectées par la GSH.

En revanche, un cristal de LTB dopé MgO avec une concentration  $3,610^{-4}$  mole /mole a pu être obtenu, à partir d'une concentration de  $10^{-2}$  mole de MgO dans le bain. L'analyse de Mg dans le cristal LTB est faite à l'aide de la technique d'absorption atomique par les collègues Hongrois.

Pour la mesure de GSH, nous disposons de deux cristaux taillés dans la direction d'accord de phase de type I de longueurs 4,5 mm et 7 mm, tirés par la méthode Czochralski en Hongrie.

Nous avons procédé à la mesure de l'angle d'accord de phase de LTB dopé MgO et nous avons obtenu un angle externe de  $55,5^{\circ} \pm 0,1^{\circ}$  pour un échantillon taillé selon les axes cristallographiques de dimensions  $5,2 \cdot 5,05 \cdot 4,5$  mm, soit un angle interne  $31^{\circ} \pm 0,1^{\circ}$ . Cet angle ne variant que de  $0,13^{\circ}$  par rapport à celui trouvé dans la LTB pur, il est tout à fait légitime de supposer que les indices de réfraction de LTB :MgO sont proches de ceux de LTB pur.

Nous avons effectué des mesures de  $d_{eff}$  pour ce cristal dans les mêmes conditions que pour le cristal pur. Les différents résultats obtenus sont reportés dans le tableau 3:

Type d'accord de phase	L (mm)	Col $\omega_0$ ( $\mu\text{m}$ )	G à $\varepsilon=0$	$d_{\text{eff I}}$ (pm/V)
I	4,5	43	0,41809	$5,03 \cdot 10^{-2} \pm 4,8 \cdot 10^{-3}$
		92	0,71506	$5,13 \cdot 10^{-2} \pm 4,5 \cdot 10^{-3}$
	7	43	0,28008	$5 \cdot 10^{-2} \pm 4,7 \cdot 10^{-3}$
		92	0,54373	$5,14 \cdot 10^{-2} \pm 4,5 \cdot 10^{-3}$

**Tableau 3:** Valeurs de G et de  $d_{\text{eff}}$  en fonction de la longueur du cristal et de la focalisation pour LTB dopé MgO avec une quantité de  $3,6 \cdot 10^{-4}$  mole/mole

La valeur moyenne de  $d_{\text{eff}}$  pour le type I est  $5,075 \cdot 10^{-2} \pm 4,5 \cdot 10^{-3}$  pm/V, soit  $d_{31} = 9,2 \cdot 10^{-2} \pm 8,5 \cdot 10^{-3}$  pm/V. Comme dans LTB pur, la tache de l'onde générée à  $2\omega$  présente une forme allongée.

Nous remarquons une augmentation systématique d'environ 9% du coefficient effectif non linéaire par rapport à LTB pur. Une augmentation a aussi été remarquée par Kwon en 1997 de 40% qui a fait des mesures relatives sur un LTB dopé MgO de concentration  $10^{-2}$  mole.

Le dopant Mg remplace naturellement le lithium (Li), or les propriétés NL dépendent plutôt des anions qui contiennent des électrons délocalisés conjugués. Dans notre cas l'anion étant le même, le changement est du peut être à la différence des caractéristiques entre  $\text{Li}^+$  et  $\text{Mg}^{2+}$ .

#### IV-2-4) Mesures sur CLBO

Parmi les borates, le borate de césium et de lithium (CLBO) est un matériau intéressant dans le domaine de l'optique non linéaire. Le domaine de transparence de CLBO s'étend de 180 nm jusqu'à 2750 nm et son seuil de dommage est très élevé :  $24 \text{ GW/cm}^2$  le long de la direction (100) et  $26 \text{ GW/cm}^2$  le long la direction (001) à  $1,064 \mu\text{m}$  avec une durée d'impulsion de 1,1 ns [Mori 1995]. De plus, CLBO a un walk-off pour l'accord de phase de type I faible ( $1,78^\circ$ ) par rapport à celui de BBO ( $3,2^\circ$ ) ainsi qu'une grande valeur d'acceptance angulaire ( $1,02 \text{ mradcm}$ ) comparé à celle de BBO ( $0,51 \text{ mradcm}$ ) [Mori 1995]. Enfin, CLBO peut être développé par un mélange stœchiométrique (s) ou non-stœchiométrique (ns).

Toutes ses propriétés font de CLBO un cristal très intéressant pour l'optique non linéaire et surtout pour la génération d'harmoniques. Néanmoins ce matériau a été, jusqu'ici, peu utilisé notamment en raison de son caractère fortement hygroscopique.

## IV-2-4-a) Echantillons disponibles

Nous disposons de deux sortes d'échantillons élaborés à partir de proportions différentes dans le bain : un dit stœchiométrique (s) ( $\text{Cs}_2\text{O}:\text{Li}_2\text{O}:\text{B}_2\text{O}_3$  dans un rapport 1:1:6) et l'autre dit non-stœchiométrique (ns) ( $\text{Cs}_2\text{O}:\text{Li}_2\text{O}:\text{B}_2\text{O}_3$  dans un rapport 1:1:5,5).

Tous ces échantillons proviennent de l'Institut de Recherche «*Solid State Physic and Optics of Budapest (Hongrie)*».

## ❖ Angle d'accord de phase et le walk-off

Compte tenu du fait que deux jeux différents de valeurs des indices de réfraction sont mentionnés dans la littérature [*Umemura 1999 et Ryu 1998*] pour chaque composition, nous avons calculé théoriquement les valeurs d'angles d'accord de phase et le walk-off pour chacun de ces cristaux et pour ces deux jeux d'indices.

$\alpha$ ) CLBO stœchiométrique:

À partir des indices de réfraction de [*Ryu 1998*]

	$n_o$	$n_e$
1064 nm	1,48382	1,43442
532 nm	1,4972	1,44449

nous avons trouvé les valeurs suivantes :

	$\theta_{PM}$ de type I (°)	$\theta_{PM}$ de type II (°)	Walk-off de type I (°)	Walk-off de type II (°)
GSH ( 1064 nm → 532 nm)	29,6	42,9	1,795	2,05

Les valeurs trouvées sont comparables avec celles trouvées dans la littérature [*Ryu 1998, Mori 1995*].

$\beta$ ) CLBO non-stœchiométrique

À partir des indices de réfraction de [*Umemura 1999*]

	$n_o$	$n_e$
1064 nm	1,48501	1,43507
532 nm	1,49824	1,44506

nous avons obtenu les valeurs suivantes d'angle d'accord de phase et du walk-off :

	$\theta_{PM}$ de type I (°)	$\theta_{PM}$ de type II (°)	Walk-off de type I (°)	Walk-off de type II (°)
GSH ( 1064 nm $\rightarrow$ 532 nm)	29,2	42,4	1,798	2,07

Les valeurs trouvées ici sont comparables avec celles trouvées dans la publication de [Umemura 1999].

#### ❖ Cristaux disponibles

À partir des calculs d'angles d'accord de phase, nous avons fait préparer les échantillons suivants :

- Pour le stœchiométrique, quatre échantillons, deux de type I ( $\theta = 29,5^\circ \pm 0,1^\circ$ ;  $\varphi = 45^\circ \pm 0,1^\circ$ ) et deux de type II ( $\theta = 43^\circ \pm 0,1^\circ$ ;  $\varphi = 0^\circ \pm 0,1^\circ$ ).
- Pour le non- stœchiométrique, nous avons eu quatre échantillons, deux de type I ( $\theta = 29,2^\circ \pm 0,1^\circ$ ;  $\varphi = 45^\circ \pm 0,1^\circ$ ) et deux de type II ( $\theta = 42,5^\circ \pm 0,1^\circ$ ;  $\varphi = 0^\circ \pm 0,1^\circ$ ).

(Notons que, compte tenu du caractère fortement hygroscopique de CLBO, il est nécessaire de le conserver sous cloche contenant une poudre de  $P_2O_5$ ).

#### ❖ Tableau récapitulatif

		1 : 1 : 5,5 (ns)		1 : 1 : 6 (s)	
		L = 4 mm	L = 7 mm	L = 4 mm	L = 7 mm
Type I	dimensions (mm <sup>3</sup> )	5*5*4	5*5*7	5*4*4	5*4*7
	taille (°)	$\theta = 29,2$ ; $\varphi = 45$	$\theta = 29,2$ ; $\varphi = 45$	$\theta = 29,5$ ; $\varphi = 45$	$\theta = 29,5$ ; $\varphi = 45$
Type II	dimensions (mm <sup>3</sup> )	6*6*4	6*6*7	6*5,5*4	6*5,5*7
	taille (°)	$\theta = 43$ ; $\varphi = 0$	$\theta = 29,5$ ; $\varphi = 0$	$\theta = 42,5$ ; $\varphi = 0$	$\theta = 42,5$ ; $\varphi = 0$

#### IV-2-4-b) Mesure de $d_{eff}$

Rappelons que les propriétés optiques linéaires et non linéaires pour les deux compositions de CLBO sont données au chapitre I. Seul deux coefficients ONL  $d_{36}$  et  $d_{14}$  sont non nuls dans ce cristal et ces deux coefficients sont égaux par symétrie de Kleinman.

Seul le coefficient ONL  $d_{36}$  est donc à déterminer. Les mesures trouvées dans la littérature sont soit relatives soit issues d'une autre référence, et indiquent :

- Pour le type I :  $d_{eff} = 0,47$  pm/V [Bai 1998, Yap 1998].



- Pour le type II :  $d_{\text{eff}} = 0,95 \text{ pm/V}$  [Yap 1998, Sasaki 1997, Ryu 1998] et  $d_{36} = 2,2 d_{36}(\text{KDP})$  avec  $d_{36}(\text{KDP}) = 0,435 \text{ pm/V}$  [Yap 1998].

### ❖ Résultats expérimentaux

#### α) CLBO stœchiométrique

La puissance maximale est obtenue en incidence normale, ce qui conforte notre choix d'indices de réfraction et d'angle d'accord de phase.

Pour cette composition du cristal, nous présentons dans le tableau 4 les coefficients  $d_{\text{eff}}$  absolus des échantillons dont nous disposons pour les deux types d'accord de phase et pour différentes focales ainsi que les valeurs calculées pour la fonction G.

Type PM	Longueurs de cristal (mm)	Col $\omega_0$ ( $\mu\text{m}$ )	G à $\varepsilon=0$	$d_{\text{eff}}$ (pm/V)
I	4	43	0,4797	$0,54 \pm 5,3 \cdot 10^{-2}$
		92	0,775	$0,55 \pm 5 \cdot 10^{-2}$
	7	43	0,2922	$0,56 \pm 5,3 \cdot 10^{-2}$
		92	0,5655	$0,49 \pm 4,7 \cdot 10^{-2}$
II	4	43	0,1204	$1,13 \pm 0,1$
		92	0,4626	$1,04 \pm 0,1$
	7	43	0,03393	$1,1 \pm 0,11$
		92	0,1809	$0,98 \pm 0,09$

**Tableau 4 :** Valeurs de la fonction G et de  $d_{\text{eff}}$  à  $\varepsilon = 0$  pour CLBO stœchiométrique

Les valeurs moyennes  $d_{\text{eff}}$  obtenues pour cette composition sont :

- Pour le type I :  $d_{\text{eff}}^{\text{I}} = 0,53 \pm 5 \cdot 10^{-2} \text{ pm/V}$  d'où  $d_{36} = 1,08 \pm 0,1 \text{ pm/V}$ .
- Pour le type II :  $d_{\text{eff}}^{\text{II}} = 1,06 \pm 0,1 \text{ pm/V}$  d'où  $d_{36} = 1,06 \pm 0,1 \text{ pm/V}$ .

#### β) CLBO non- stœchiométrique

Dans ce cas pour obtenir le maximum de puissance harmonique, nous avons été amené à tourner le cristal pour le type I d'un angle externe  $\Delta\theta_{\text{ext}} = 0,4^\circ$  soit  $\Delta\theta_{\text{int}} = 0,27^\circ$  et pour le type II d'un angle externe  $\Delta\theta_{\text{ext}} = 0,7^\circ$  soit  $\Delta\theta_{\text{int}} = 0,47^\circ$ . Cette variation correspond à celle que nous avons calculé théoriquement entre l'angle d'accord de phase de CLBO stœchiométrique et CLBO non- stœchiométrique. Ceci remet légèrement en question les



indices de réfraction que nous avons choisi pour nos calculs et nous mène à douter de cette variation d'indice entre le composé stœchiométrique et non- stœchiométrique.

Les résultats obtenus pour le cas non- stœchiométrique sont présentés dans le tableau 5 :

Type PM	Longueurs de cristal (mm)	Col $\omega_0$ ( $\mu\text{m}$ )	G à $\varepsilon=0$	$d_{\text{eff}}$ (pm/V)
I	4	43	0,4791	$0,56 \pm 5,4 \cdot 10^{-2}$
		92	0,7745	$0,505 \pm 5 \cdot 10^{-2}$
	7	43	0,2918	$0,53 \pm 5,2 \cdot 10^{-2}$
		92	0,5649	$0,49 \pm 4,9 \cdot 10^{-2}$
II	4	43	0,1185	$1,12 \pm 0,1$
		92	0,4577	$1,04 \pm 0,09$
	7	43	0,0389	$1,1 \pm 0,1$
		92	0,1781	$0,98 \pm 0,09$

**Tableau 5 :** Valeurs de la fonction G et de  $d_{\text{eff}}$  à  $\varepsilon = 0$  pour CLBO non- stœchiométrique

Les valeurs moyennes  $d_{\text{eff}}$  obtenues pour cette composition sont:

- Pour le type I :  $d_{\text{eff}}^{\text{I}} = (0,52 \pm 5 \cdot 10^{-2})$  pm/V d'où  $d_{36} = (1,06 \pm 0,1)$  pm/V.
- Pour le type II :  $d_{\text{eff}}^{\text{II}} = (1,05 \pm 0,09)$  pm/V d'où  $d_{36} = (1,05 \pm 0,1)$  pm/V.

#### ❖ Conclusions

Les valeurs de  $d_{36}$  obtenues pour CLBO stœchiométrique et CLBO non- stœchiométrique sont identiques. Ceci conforte l'hypothèse que nous avons émise à partir des mesures d'angle d'accord de phase, à savoir que les valeurs d'indices et par conséquent les propriétés ONL du cristal sont les mêmes pour les deux compositions.

Dans la littérature, une seule mesure relative de  $d_{36}$  est disponible [Mori 1995, Yap 1998, Bai 1998]. Nos résultats reposant à la fois sur  $d_{\text{eff I}}$  et  $d_{\text{eff II}}$  permettent de bien préciser cette valeur.

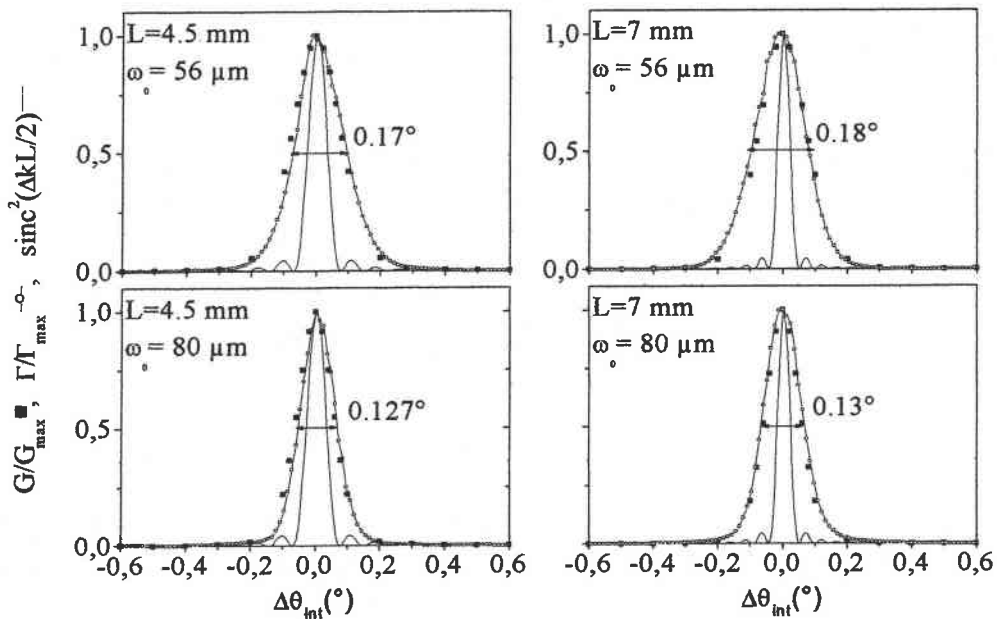
### IV-3. Mesure de l'acceptance angulaire

#### IV-3-1) Acceptance angulaire pour BBO

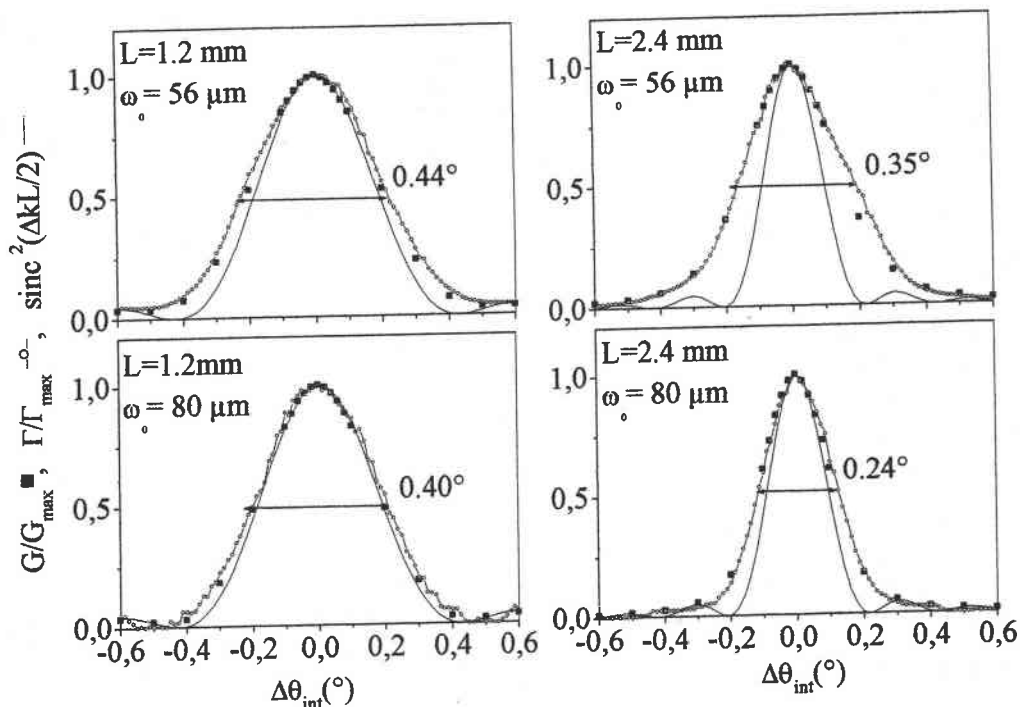
La valeur de l'acceptance angulaire de BBO trouvée dans la littérature est représentée par le produit ( $\Delta\theta \times L$ ), soit 0,52 mradcm pour le type I et 0,79 mradcm pour le type II [Eimerl 1987]. Nous allons montrer expérimentalement que ces valeurs ne sont valables que

dans l'approximation de l'onde plane et qu'elles doivent être considérées avec plus de prudence dans le cas des faisceaux gaussiens.

Les valeurs expérimentales de l'efficacité de conversion en fonction de la variation d'angle autour de l'angle d'accord de phase  $\Delta\theta_{int}$  sont reportées sur les courbes 1 et 2. La largeur à mi-hauteur de ces courbes donne la valeur de l'acceptance angulaire. Afin de comparer ces courbes expérimentales aux valeurs théoriques, nous présentons aussi les valeurs de la fonction  $G$  normalisées, qui représente la théorie du faisceau gaussien, et le  $\text{sinc}^2(\Delta k L/2)$  normalisé qui représente la théorie de l'onde plane en fonction de  $\Delta\theta_{int}$ . Notons que l'efficacité de conversion ainsi que la fonction  $G$  sont divisées par leur valeurs maximales afin de rendre les courbes comparables.



**Figure 1 :** Rendement de conversion théorique et expérimental de GSH en fonction de la variation d'angle interne autour de  $\theta_{PM}$  pour le type I.  $\Gamma/\Gamma_{max}$ ,  $G/G_{max}$  et  $\text{sinc}^2(\Delta k L/2)$  sont respectivement représentés par ( — ), ( ■ ) et ( —○— )



**Figure 2:** Rendement de conversion théorique et expérimental de GSH en fonction de la variation d'angle interne autour de  $\theta_{PM}$  pour le type II.  $\Gamma/\Gamma_{max}$ ,  $G/G_{max}$  et  $\text{sinc}^2(\Delta K L/2)$  sont respectivement représentés par ( — ), ( ■ ) et ( —○— )

Expérimentalement nous remarquons pour le type I que pour une taille de col donnée, la valeur de l'acceptance angulaire ( $\Delta\theta_{FWHM}$ ) ne varie pas beaucoup pour les deux échantillons ; par contre pour une longueur d'échantillon fixe la valeur de  $\Delta\theta_{FWHM}$  varie en fonction de la taille du col.

Pour le type II, l'acceptance angulaire  $\Delta\theta_{FWHM}$  dépend à la fois de la taille du col et de la longueur d'échantillon.

Nous remarquons aussi le bon accord entre les courbes théoriques  $G/G_{max} = f(\Delta\theta_{int})$  et expérimentales  $\Gamma/\Gamma_{max} = f(\Delta\theta_{int})$  quelques soient les conditions expérimentales. Alors que les courbes les courbes expérimentales ne convergent vers les courbes  $\text{sinc}^2(\Delta K L/2) = f(\Delta\theta_{int})$  que dans le cas des petites longueurs de cristal et des grandes tailles de col.

Nous résumons les différents résultats dans le tableau suivant (tableau 6):



Type d'accord de phase	L (mm)	Col $\omega_0$ ( $\mu\text{m}$ )	Acceptance avec la courbe expérimental et la fonction G		Acceptance avec $\text{sinc}^2(\Delta K L/2)$	
			$\Delta\theta_{\text{FWHM}}$ ( $^\circ$ )	$\Delta\theta_{\text{FWHM}} \times L$ (mradcm)	$\Delta\theta_{\text{FWHM}}$ ( $^\circ$ )	$\Delta\theta_{\text{FWHM}} \times L$ (mradcm)
I	4,5	56	0,17	1,35	0,066	0,52
	4,5	80	0,127	1	0,066	0,52
	7	56	0,18	2,2	0,042	0,51
	7	80	0,13	1,6	0,042	0,51
II	1,2	56	0,44	0,92	0,38	0,8
	1,2	80	0,4	0,84	0,38	0,8
	2,4	56	0,35	1,45	0,19	0,8
	2,4	80	0,24	1	0,19	0,8

**Tableau 6 :** Résultats théoriques et expérimentaux de l'acceptance angulaire pour différentes longueurs de cristal et différentes focalisations

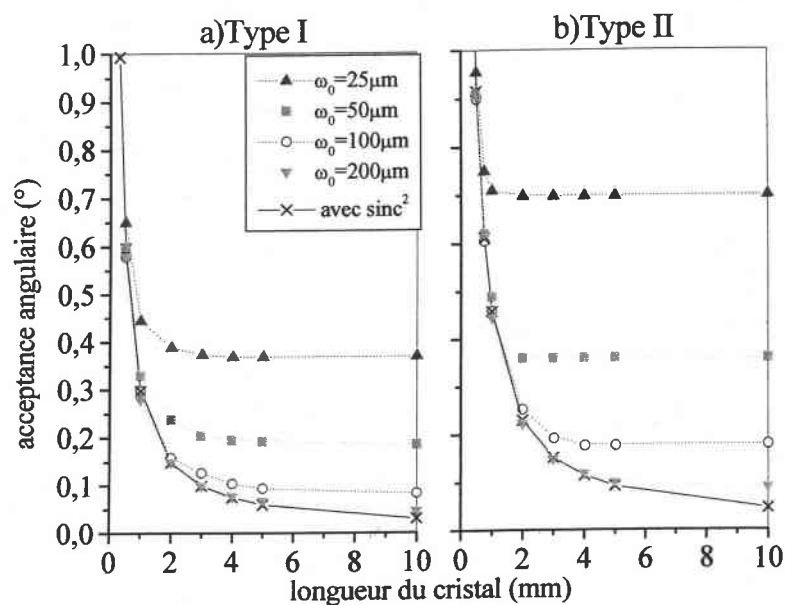
Remarque : Une même et seule valeur est reportée pour l'acceptance angulaire obtenue expérimentalement et pour celle calculée grâce à la fonction G tant que l'accord entre les deux courbes qui s'y rapportent est bon.

Contrairement à la valeur d'acceptance angulaire obtenue par une onde plane qui est représentée par une constante du cristal ( $\Delta\theta_{\text{FWHM}} \times L$ ), nous constatons que la valeur obtenue par un faisceau gaussien dépend de la longueur du cristal et de la focalisation.

Grâce au bon accord entre les courbes théoriques et expérimentales, nous pouvons alors prévoir la valeur de l'acceptance angulaire d'un échantillon de longueur L et pour un col  $\omega_0$  donné.

Nous avons calculé la valeur de la fonction G autour de l'angle d'accord de phase pour un large domaine de longueur de cristal de 0,5 mm à 10 mm et pour différentes tailles du col du faisceau incident et en avons déduit l'acceptance angulaire dans chaque cas.

Les résultats sont reportés dans la figure 3 :



**Figure 3:** Valeurs théoriques d'acceptance angulaire de BBO en fonction de  $L$  pour différentes tailles du col 25, 50, 100 et 200  $\mu\text{m}$

Nous constatons bien la convergence des valeurs d'acceptance angulaire obtenues par un faisceau gaussien vers celles obtenues par l'onde plane quand le col augmente à cause de la condition  $\rho \times L < \omega_0$ .

#### IV-3-2) Acceptance angulaire pour LTB

La valeur de l'acceptance angulaire de LTB 0,87 mradcm trouvée dans la littérature [Kwon 1996] est donnée à partir de la théorie de l'onde plane.

Comme pour BBO, nous avons enregistré l'efficacité de conversion en fonction de la variation autour de l'angle d'accord de phase, pour différentes longueurs d'échantillons et différentes tailles du col. Ces résultats expérimentaux sont comparés avec les calculs de  $G$  autour de l'angle  $\theta_{PM}$  et aussi de  $\text{sinc}^2(\Delta K L/2)$ .

Les résultats obtenus sont reportés dans la figure 4 :

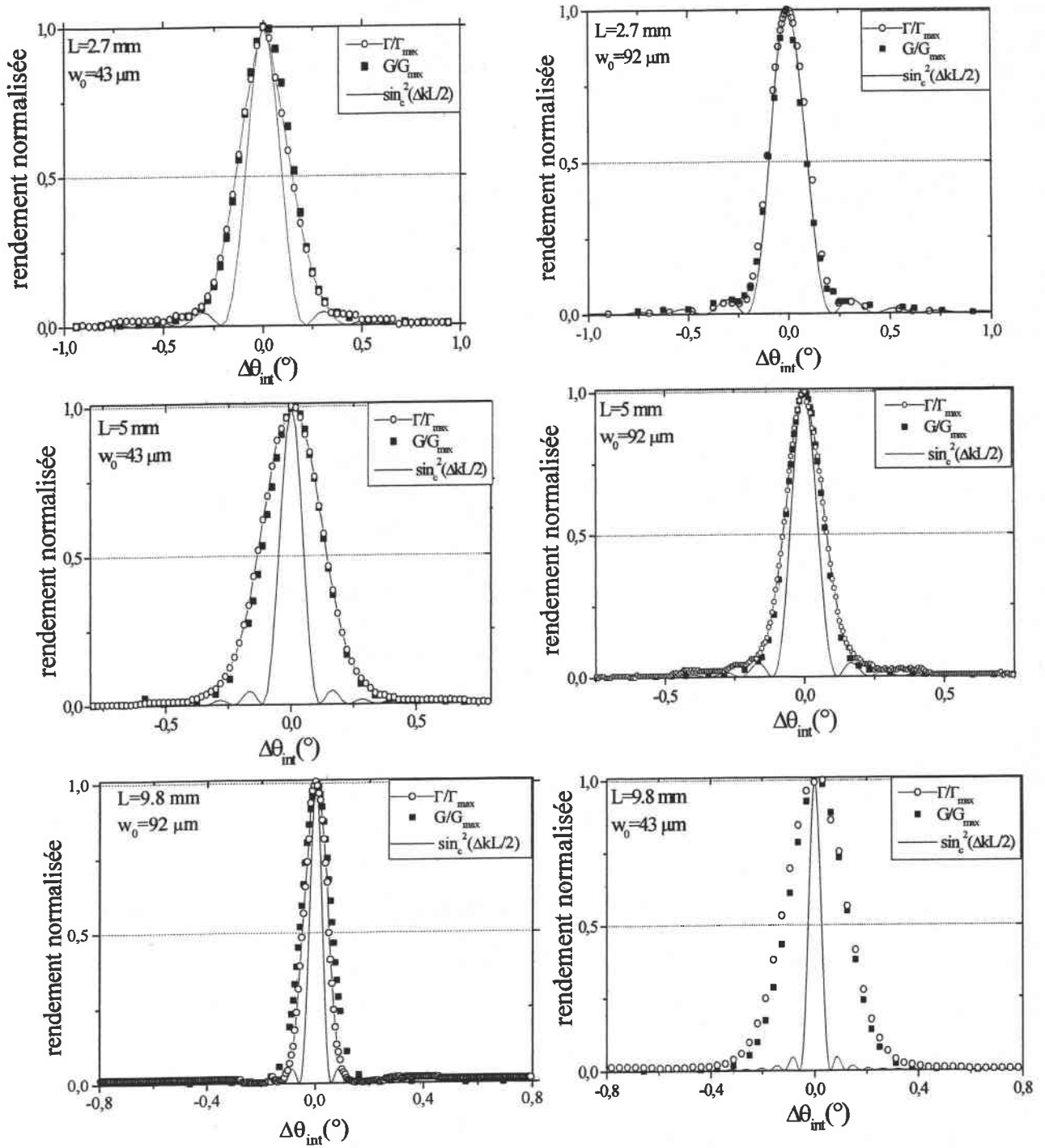


Figure 4: Comparaison entre les courbes d'acceptance angulaire expérimentales et théoriques pour un faisceau Gaussien et avec l'onde plane pour les différentes longueurs d'échantillons de LTB et pour les focales 10 cm et 20 cm

Nous remarquons le bon accord entre les valeurs théoriques et expérimentales pour un faisceau gaussien. Nous résumons les différents résultats dans le tableau 7:

L (mm)	Col $\omega_0$ ( $\mu\text{m}$ )	$\Delta\theta_{FWHM}$ avec G ( $^\circ$ ) et expérience	$\Delta\theta_{FWHM}$ avec $\text{sinc}^2(\Delta K L/2)$ ( $^\circ$ )	$\Delta\theta_{FWHM} \times L$ avec G (mradcm) et expérience	$\Delta\theta_{FWHM} \times L$ avec $\text{sinc}^2(\Delta K L/2)$ (mradcm)
2,7	43	0,3	0,19	1,41	0,87
	92	0,2	0,19	0,94	0,87
5	43	0,26	0,1	2,26	0,87
	92	0,15	0,1	1,31	0,87
9,8	43	0,24	0,05	4,1	0,87
	92	0,12	0,05	2,05	0,87

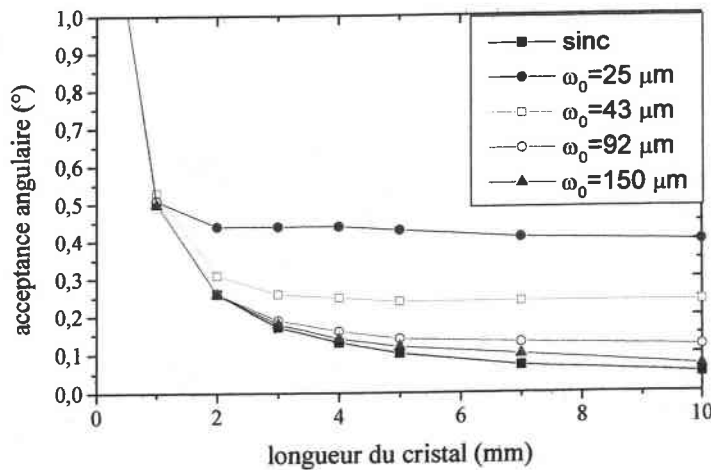
**Tableau 7 :** Valeurs expérimentales et théoriques  $\Delta\theta_{FWHM}$  pour différentes longueurs de cristaux, types d'accord de phase et conditions de focalisation

Remarque : Compte tenu du très bon accord entre les valeurs expérimentales et celles calculées avec la fonction G. les valeurs de l'acceptance angulaires obtenues par ces deux techniques sont à nouveau reportées dans une seule et même colonne.

Le produit  $\Delta\theta_{FWHM} \times L$  n'est pas toujours une constante du cristal mais dépend d'autres paramètres tels que la focalisation et la longueur d'échantillon.

Comme dans BBO, nous pouvons alors prévoir la valeur de l'acceptance angulaire d'un échantillon du longueur L et du col  $\omega_0$  bien déterminées.

Nous calculons pour LTB la valeur de la fonction G autour de l'angle d'accord de phase pour un large domaine de longueur du cristal de 0,5 mm à 10 mm et pour différentes taille du col du faisceau incident et nous avons obtenus les courbes suivantes (figure 5) :



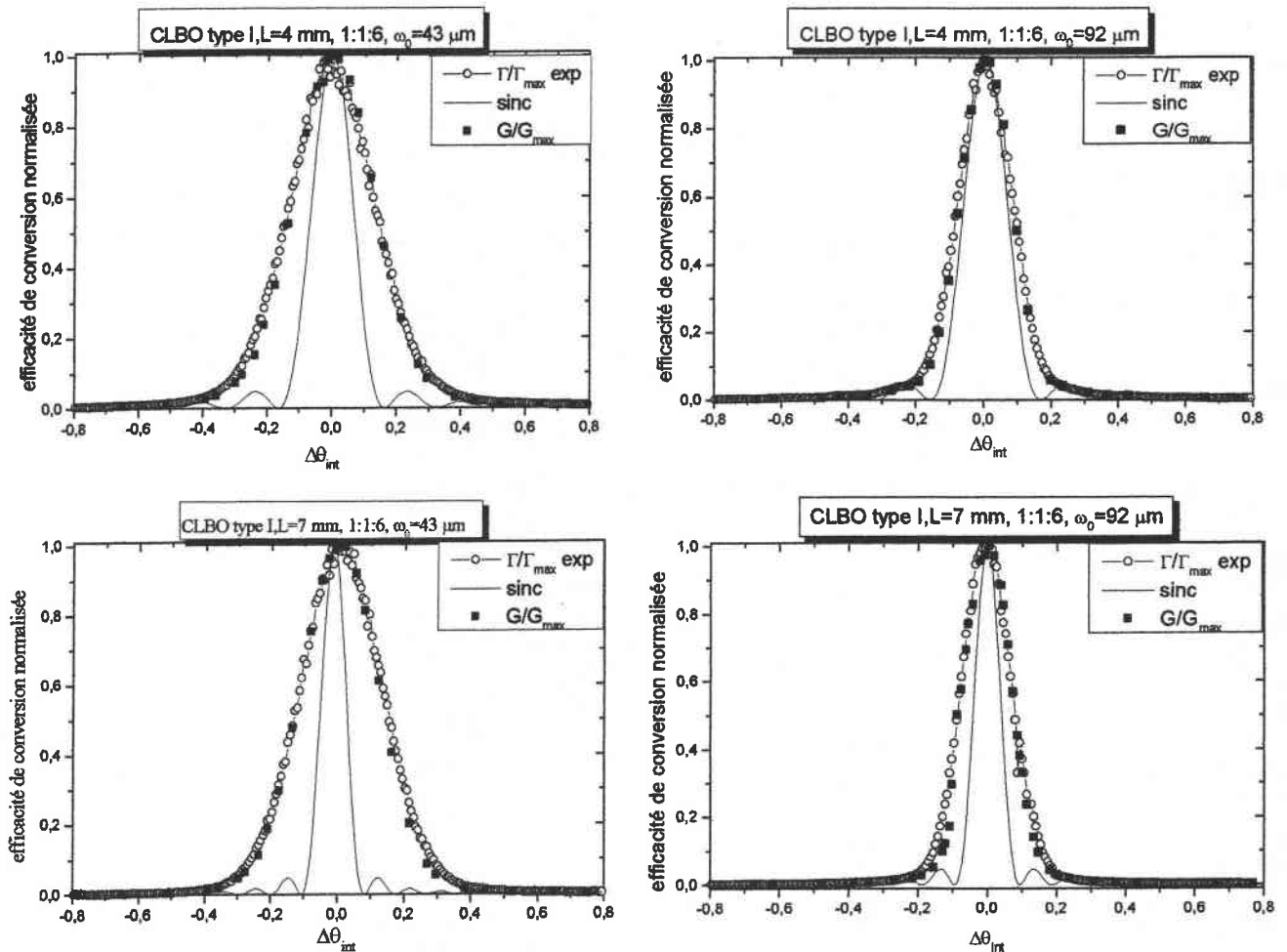
**Figure 5 :** Valeurs théoriques d'acceptance angulaire de LTB en fonction de L pour différentes tailles du col 25, 43, 92 et 150  $\mu\text{m}$

Pour un col fixe, la valeur de l'acceptance angulaire diminue avec la longueur du cristal et tend vers une valeur constante faible. Aussi nous remarquons que, plus la focale augmente, plus le faisceau gaussien se comporte comme une onde plane.

## IV-3-3) Acceptance angulaire pour CLBO

## IV-3-3-a) Résultats expérimentaux

Nous avons appliqué la même technique de mesure d'acceptance angulaire pour CLBO stœchiométrique (s) et non- stœchiométrique (ns):



**Figure 6:** Comparaison entre les courbes d'acceptance angulaire de CLBO stœchiométrique de type I expérimentales et théoriques pour un faisceau Gaussien et aussi avec l'onde plane pour les différentes longueurs d'échantillons et pour les focales 10 cm et 20 cm



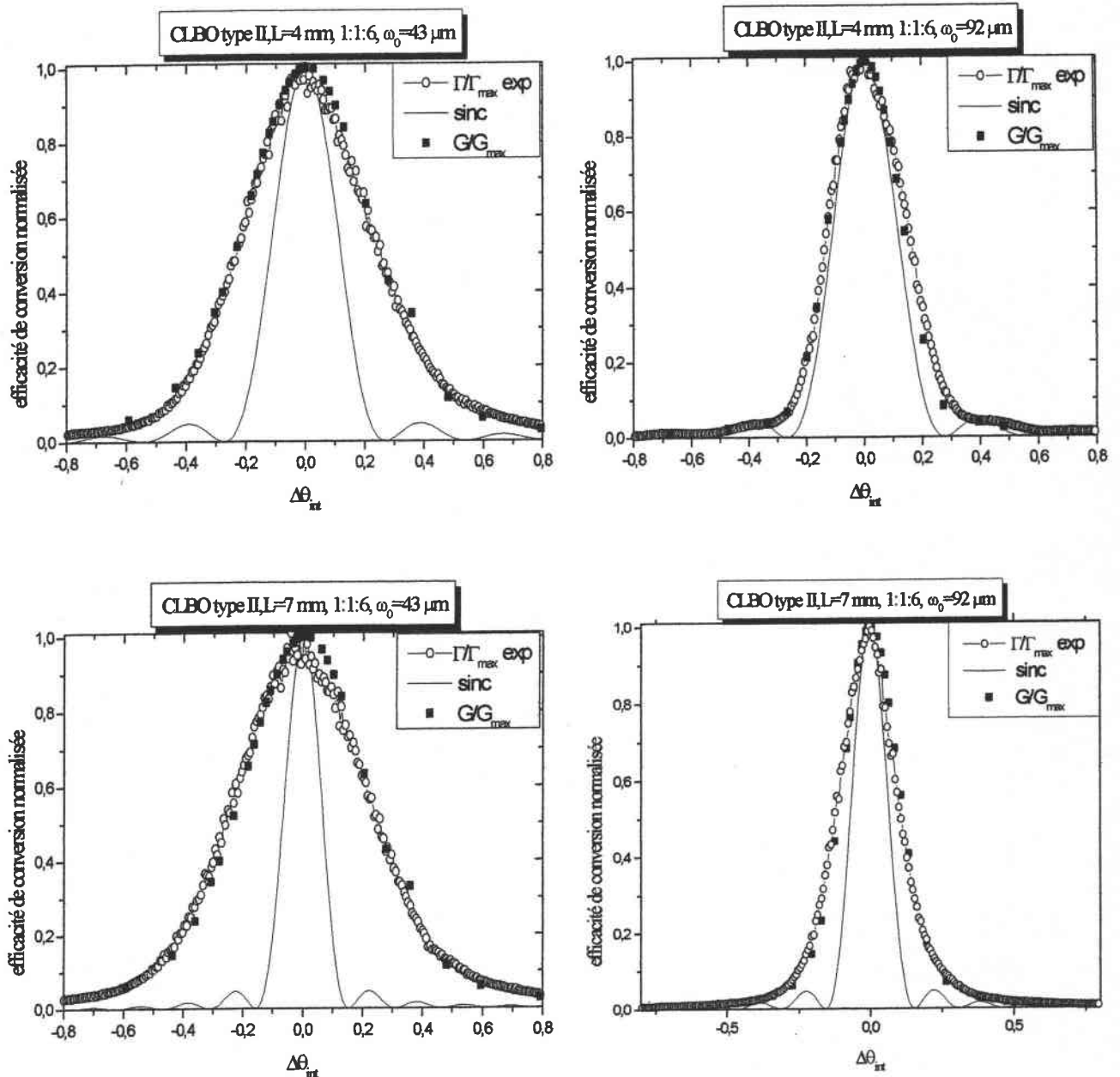
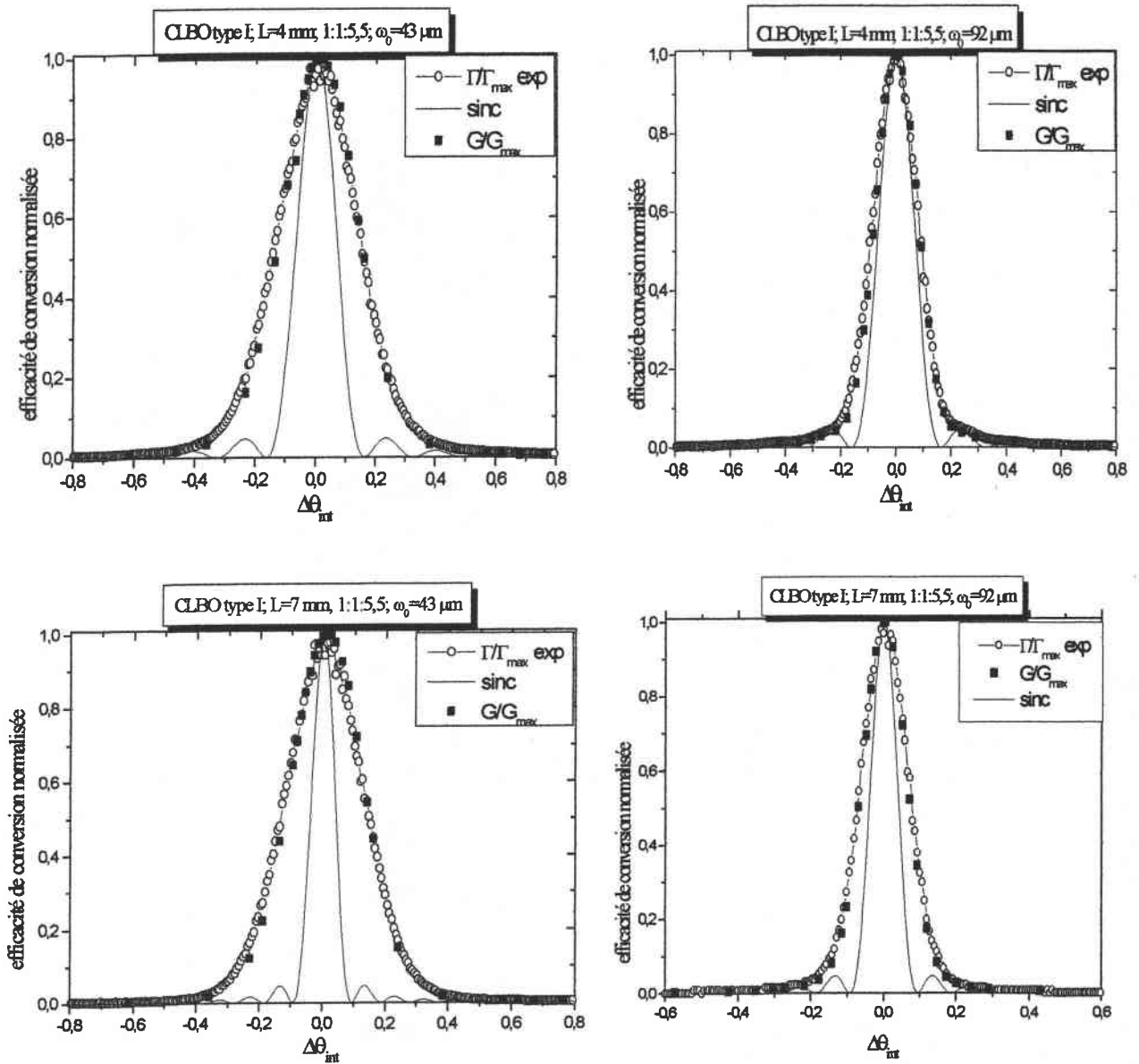
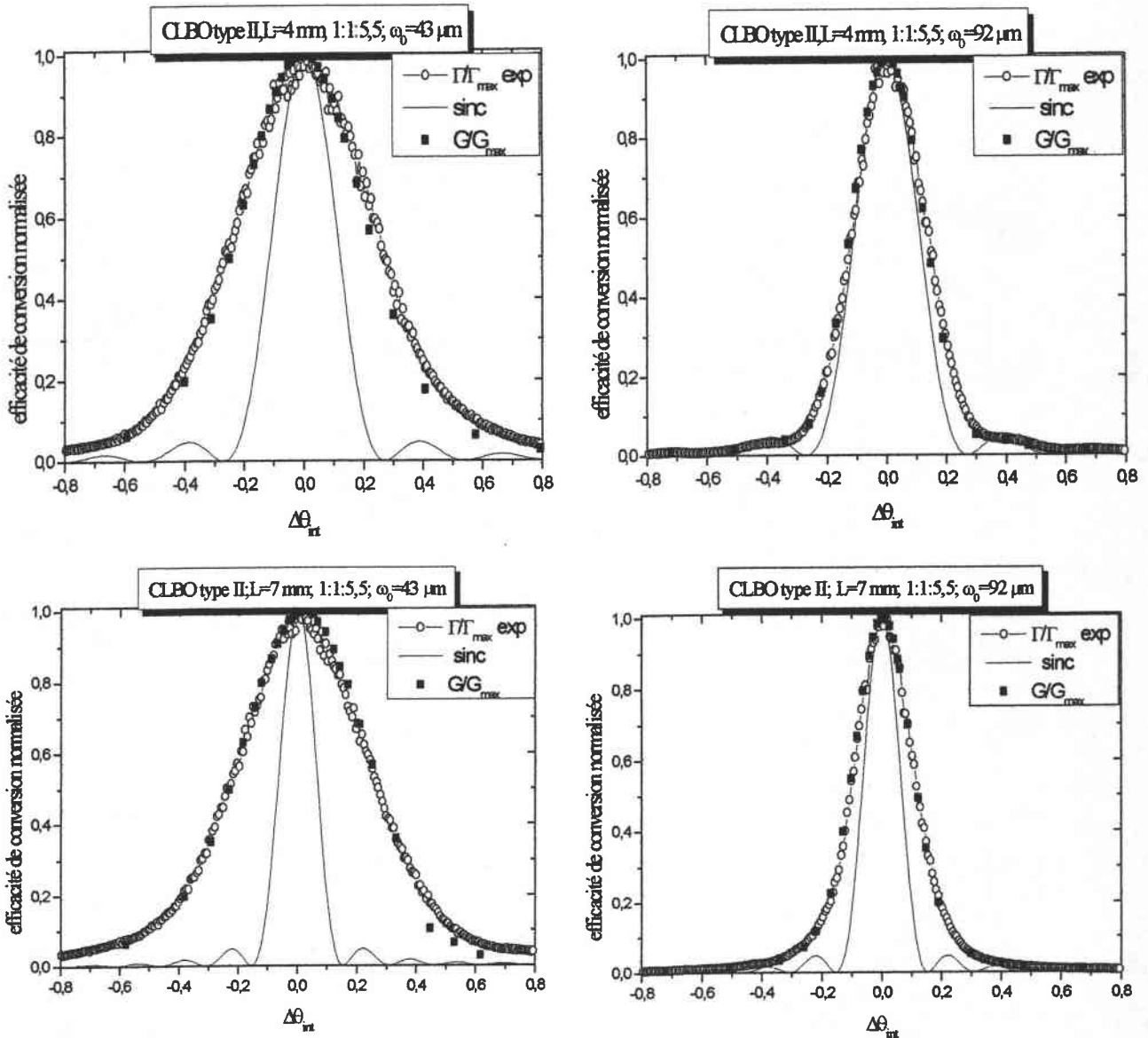


Figure 7: Comparaison entre les courbes d'acceptance angulaire de CLBO stœchiométrique de type II expérimentales et théoriques pour un faisceau Gaussien et aussi avec l'onde plane pour les différentes longueurs d'échantillons et pour les focales 10 cm et 20 cm



**Figure 8 :** Comparaison entre les courbes d'acceptance angulaire de CLBO non-stœchiométrique de type I expérimentales et théoriques pour un faisceau gaussien et aussi avec l'onde plane pour les différentes longueur d'échantillons et pour les focales 10 cm et 20 cm



**Figure 9 :** Comparaison entre les courbes d'acceptance angulaire de CLBO non-stœchiométrique de type II expérimentales et théoriques pour un faisceau gaussien et aussi l'onde plane pour les différentes longueur d'échantillons et pour les focales 10 cm et 20 cm

Nous remarquons le bon accord entre les courbes théoriques et expérimentales pour un faisceau gaussien pour les deux compositions. Nous résumons les différents résultats dans le tableau 8:

L (mm)	Col $\omega_0$ ( $\mu\text{m}$ )	$\Delta\theta_{\text{FWHM}}$ ( $^\circ$ )		$\Delta\theta_{\text{FWHM}}$ avec $\text{sinc}^2(\Delta K L/2)$ ( $^\circ$ )	$\Delta\theta_{\text{FWHM}} \times L$ (mradcm) avec		$\Delta\theta_{\text{FWHM}} \times L$ avec $\text{sinc}^2(\Delta K L/2)$ (mradcm)
		exp	G		exp	G	
4 (I,ns)	43	0,29	0,298	0,14	2	2,08	1
	92	0,18	0,178	0,14	1,25	1,24	1
4 (I,s)	43	0,29	0,29	0,14	2	2	1
	92	0,18	0,18	0,14	1,25	1,25	1
4(II,ns)	43	0,5	0,48	0,24	3,48	3,35	1,67
	92	0,29	0,286	0,24	2,02	0,199	1,67
4 (II ,s)	43	0,48	0,48	0,24	3,35	3,35	1,67
	92	0,29	0,288	0,24	2,02	2	1,67
7 (I,ns)	43	0,28	0,276	0,08	3,4	3,37	1
	92	0,16	0,16	0,08	1,9	1,9	1
7 (I,s)	43	0,28	0,278	0,08	3,4	3,39	1
	92	0,16	0,16	0,08	1,9	1,9	1
7 (II,ns)	43	0,496	0,496	0,137	6	6	1,67
	92	0,23	0,23	0,137	2,8	2,8	1,67
7 (II,s)	43	0,5	0,483	0,137	6,1	5,9	1,67
	92	0,23	0,23	0,137	2,8	2,8	1,67

**Tableau 8 :** Valeurs expérimentales et théoriques  $\Delta\theta_{\text{FWHM}}$  pour différentes longueurs de cristaux de CLBO (s, ns), types d'accord de phase et conditions de focalisation

Nous remarquons le bon accord entre la théorie et l'expérience surtout pour le stœchiométrique ce qui confirme encore une fois nos conclusions fait pour le BBO et LTB.

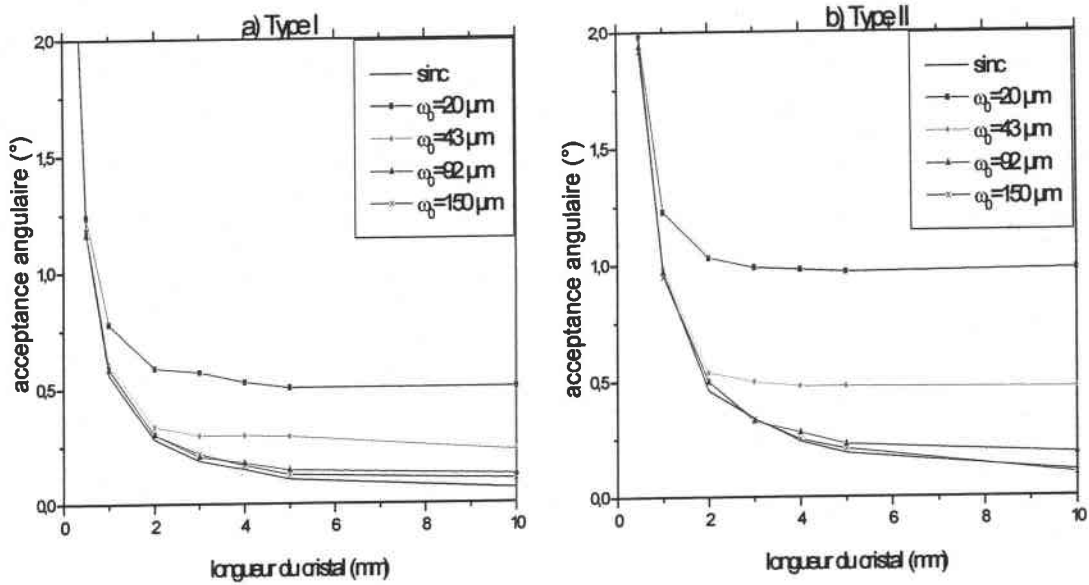
Les valeurs expérimentales d'acceptance angulaire de CLBO stœchiométrique et non-stœchiométrique sont pratiquement identiques. Par contre les valeurs théoriques de G conduisent à des valeurs d'acceptance angulaire légèrement différentes entre les deux compositions.

À partir de ces remarques, nous confirmons notre doute à propos de la différence des indices de réfraction et nous privilégions les indices de la composition stœchiométrique qui conduisent à un meilleur accord entre théorie et expérience.

#### IV-3-3-b) Extrapolation de l'acceptance angulaire

De la même manière que dans le cas de BBO et LTB, nous pouvons prévoir la valeur de l'acceptance angulaire d'un échantillon du longueur L et du col  $\omega_0$  bien déterminées ( figure 10 ).

Compte tenu de la similitude des résultats obtenus entre les deux compositions, nous gardons dans les calculs théoriques de G et de  $\text{sinc}^2(\Delta K L/2)$ , le même jeu d'indice pour les deux types d'échantillons, soit les indices mentionnés pour le stœchiométrique :



**Figure 10 :** Valeurs théoriques d'acceptance angulaire de CLBO en fonction de L pour différentes tailles du col 20, 43, 92, 150  $\mu\text{m}$

#### IV-3-4) Conclusion

La mesure de l'acceptance angulaire nous a conduit à des conséquences très importantes :

- Elle valide les valeurs du col trouvées expérimentalement.
- Elle confirme la validité du calcul de la fonction G.
- Elle montre que le produit  $\Delta\theta_{\text{FWHM}} \times L$  n'est pas une constante dans le cas d'un faisceau gaussien ; mais dépend de la condition de focalisation, de la longueur du cristal et du walk-off.
- Elle confirme que nos cristaux sont monodomains et homogènes.
- Il est possible de prévoir la valeur de l'acceptance angulaire d'un échantillon du longueur L et pour un col  $\omega_0$  bien déterminés.

#### IV-4. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats expérimentaux de l'angle d'accord de phase, du coefficient optique NL effectif  $d_{\text{eff}}$  et de l'acceptance angulaire pour différents échantillons de la famille des borate BBO, LTB et CLBO ainsi qu'une comparaison avec les valeurs trouvées dans la littérature.

L'étude faite sur BBO nous a permis de déterminer les coefficients  $d_{22}$  et  $d_{31}$ . Ces coefficients de BBO sont élevés par rapport à LTB et CLBO, mais le walk-off important et la faible valeur d'acceptance angulaire sont des inconvénients dans BBO.

Pour LTB pur et dopé, nous avons déterminé la valeur d'angle d'accord de phase, le coefficient  $d_{31}$  et la valeur de l'acceptance angulaire. Ce cristal est caractérisé par son seuil de dommage élevé et son domaine de transparence large mais il a un faible coefficient NL par rapport aux autres borates. Il reste un bon candidat pour les applications dans le domaine UV.

Enfin nous avons étudié le cristal CLBO avec deux compositions, stœchiométrique et non- stœchiométrique. La mesure du coefficient  $d_{36}$  et de l'acceptance angulaire pour ces deux compositions nous a conduit à des résultats identiques.

## CONCLUSION GENERALE

---

Dans ce mémoire, nous nous sommes intéressés à l'étude des propriétés optiques non linéaires par génération de second harmonique de cristaux borates et spécifiquement le tétraborate de lithium (LTB) pur et dopé. Nous avons mesuré le coefficient optique non linéaire effectif ( $d_{\text{eff}}$ ) pour un faisceau gaussien, en utilisant la théorie de Boyd et de Zondy, qui nous a permis d'obtenir des valeurs absolues des coefficients en tenant compte des propriétés du cristal et du faisceau incident.

Pour cela, nous avons été amené d'abord à chercher les propriétés linéaires du cristal et à bien caractériser le faisceau incident.

Au début de cette étude, nous avons déterminé le col du faisceau gaussien, cette mesure étant faite à l'aide de la méthode du couteau de Foucault et ceci pour différentes focales 100 mm, 200 mm et 300 mm ; les résultats obtenus sont reproductibles et cohérents : l'explication des faibles écarts trouvés entre les valeurs théoriques et expérimentales est donnée.

Après la caractérisation du faisceau incident ainsi que des éléments optiques du banc de mesure, nous sommes passés à la caractérisation optique non linéaire des échantillons étudiés.

Ce banc mis en place est utilisé pour plusieurs applications :

- Mesure de l'angle d'accord de phase.
- Mesure du coefficient optique non linéaire effectif ( $d_{\text{eff}}$ ) absolu et relatif.
- Test de l'homogénéité des cristaux.
- Mesure la valeur l'acceptance angulaire.
- Mesure du coefficients  $d_{ij}$  par la technique des franges de Maker en ajoutant deux polariseurs, un à l'entrée et l'autre à la sortie du cristal.

Toutes nos mesures, pour les différents cristaux étudiés en l'occurrence BBO, LTB et CLBO, sont faites à partir d'un laser Nd: YAG. Nos résultats sont comparés avec ceux trouvés dans la littérature.

À partir d'un échantillon taillé selon les axes cristallographiques, nous avons mesuré l'angle d'accord de phase de cristaux LTB pur et LTB dopé. Nous avons remarqué une augmentation de  $0,13^\circ$  pour le cristal LTB dopé. Cette différence est néanmoins peu significative puisqu'elle est de même ordre de grandeur que l'incertitude sur la coupe des échantillons.



Ensuite nous avons mené une étude sur le cristal CLBO, avec pour objectif de mesurer l'angle d'accord de phase, le coefficient non linéaire et l'acceptance angulaire, mais aussi de comparer les résultats obtenues pour le CLBO stœchiométrique (s ; 1 :1 :6) et le CLBO non-stœchiométrique (ns ; 1 :1 :5,5), ceci afin d'analyser l'influence de la composition de bain sur les propriétés ONL de ce matériau.

La mesure de l'angle d'accord de phase des deux compositions a donnée les mêmes résultats. On peut en conclure que les deux types de cristaux de CLBO ont les mêmes indices de réfraction.

Ensuite, à l'aide d'un échantillon taillé selon l'angle d'accord de phase déterminé, nous avons mesuré le coefficient absolu  $d_{\text{eff}}$  de ces cristaux pour différentes longueurs d'échantillon et focalisation ; nous pouvons en conclure:

- ❖ Pour BBO, l'étude menée en accord de phase de type I et II nous a permis, premièrement de valider notre technique de mesure (BBO étant un cristal connu), deuxièmement de déterminer le coefficient effectif non linéaire et finalement de déduire les valeurs de coefficients  $d_{ij}$  ( $d_{22}$ ,  $d_{31}$ ). Le coefficient  $d_{22}$  trouvé est en bon accord avec les résultats de la littérature ; par contre pour le coefficient  $d_{31}$ , la diversité des valeurs proposées dans la littérature rend difficile une comparaison.

- ❖ Pour LTB, l'étude est rendue plus difficile à cause de la faible puissance harmonique ; ceci nous a poussé à n'étudier l'échantillon qu'aux fortes focalisations. Les résultats obtenus pour ce cristal sont comparables avec ceux trouvés dans la littérature. Un phénomène particulier a été remarqué dans ce cristal, en l'occurrence une forme allongée de l'onde harmonique en sortie de l'échantillon: nous pensons que cet effet est peut-être dû aux défauts de croissance des cristaux.

L'étude de ce cristal LTB a été étendue à l'effet du dopage MgO ( $3,6 \cdot 10^{-4}$  mole /mole) : nous avons obtenu une augmentation d'environ 9% du coefficient effectif  $d_{\text{eff}}$  par rapport au LTB pur. Cette augmentation est répétitive et systématiquement obtenue pour les différents échantillons de LTB dopés dont nous disposons, ce qui donne des indications claires sur l'influence de dopage.

- ❖ Les résultats obtenus pour les deux compositions du cristal CLBO en type I et II sont identiques. Ce résultat a confirmé notre doute sur la différence d'indice de réfraction donnée dans la littérature. Aussi nous avons déduit la valeur de coefficient  $d_{36}$  à partir de  $d_{\text{eff I}}$  et  $d_{\text{eff II}}$ .



En complément aux mesures de coefficient  $d_{\text{eff}}$  et d'angle d'accord de phase, nous avons fait des mesures, autour de l'angle d'accord de phase, de l'acceptance angulaire, pour les trois cristaux étudiés. Cette étude nous conduit aux conclusions suivantes:

- Elle valide les valeurs du col trouvées expérimentalement.
- Elle confirme la validité du calcul de la fonction G.
- Elle montre que le produit  $\Delta\theta_{\text{FWHM}} \times L$  n'est pas une constante dans le cas d'un faisceau gaussien mais dépend de la condition de focalisation, de la longueur du cristal et du walk-off.
- Elle confirme que nos cristaux sont monodomains et homogènes.
- Il est possible de prévoir la valeur de l'acceptance angulaire d'un échantillon de longueur L et pour un col  $\omega_0$  bien déterminés

Nous avons également essayé d'utiliser la technique des franges de Maker afin de mesurer directement les coefficients  $d_{ij}$ . Pour le coefficient  $d_{33}$  du cristal LTB, la mesure a donnée des courbes qui coïncident bien avec celles trouvées théoriquement. L'absence d'un échantillon de référence ne nous a pas permis de déduire la valeur de  $d_{33}$ .

## PERSPECTIVES

Nos travaux nous permettent d'envisager les perspectives suivantes :

- Notre technique nous permet de mesurer les coefficients  $d_{\text{eff}}$  sur des cristaux taillés selon l'angle d'accord de phase et d'en déduire certains coefficients  $d_{ij}$  qui interviennent dans le développement des  $d_{\text{eff}}$ . Afin d'avoir accès à d'autres coefficients  $d_{ij}$ , nous envisageons de compléter notre étude par des mesures avec la technique des franges de Maker. La connaissance des valeurs de tous les  $d_{ij}$  est non seulement intéressante en tant que telle, mais elle permettra en plus de vérifier les conditions de Kleinman en comparant les différents coefficients.
- Les incertitudes élevées (de l'ordre de 10%) nous poussent à revoir nos éléments de mesure de puissance et aussi la technique de détermination de col.
- Les faibles puissances harmoniques obtenues pour certains cristaux en mode continu nous conduisent à réfléchir sur l'extension de notre technique de mesure du coefficient effectif absolu en utilisant le mode impulsionnel.

- 
- Les différents indices de réfraction utilisés dans nos calculs sont extraits de la littérature. Il serait intéressant de pouvoir mesurer les indices de réfraction dans notre laboratoire, notamment pour l'étude de matériaux moins connus.
  - Les borates sont caractérisés par leur domaine de transparence large et leur résistance au seuil de dommage élevés. L'étude faite sur les trois borates étudiés devra être poursuivie dans le domaine de l'UV puisqu'ils ont des caractéristiques intéressantes dans ce domaine et des coefficients  $d_{\text{eff}}$  élevés.
  - La mesure des coefficients  $d_{\text{eff}}$  pour les différents borates étudiés à une autre longueur d'onde permettra aussi d'analyser la dépendance des coefficients  $d_{ij}$  en fonction de la longueur d'onde : il est clair que pour un même composé et un même type d'accord de phase, le développement de  $d_{\text{eff}}$  en fonction des  $d_{ij}$  et de l'angle d'accord de phase reste le même car il ne dépend que de la symétrie cristalline. En revanche, la valeur de  $d_{\text{eff}}$  sera différente puisque la valeur de l'angle d'accord de phase n'est plus la même. Mais qu'en est-il des valeurs de  $d_{ij}$  ? Une étude comparative des  $d_{\text{eff}}$  et donc de certains  $d_{ij}$  à 1064 nm et 532 nm nous éclairera sur ce point.
  - Le dopage en MgO du cristal LTB augmente son coefficient  $d_{\text{eff}}$  de façon non négligeable: des études additionnelles avec un accroissement en dopant sont à envisager.
  - L'étude de CLBO dopé (Er, Al, Mg, Ca...) s'avère prometteuse [Sasaki 2000].

---

**Références Bibliographiques**

---

- [Bai 1998] «Growth and characterization of pure and Er-doped CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> single crystals» K. Bai, S. T. Jung, J. of Crys. Growth, Vol. 186, 1998, pp. 612-615.
- [Becker 1998] «Borate Materials in Non-linear Optics » P. Becker, Adv. Mater. Vol. 10, No. 13, 1998, pp. 979-992.
- [Bjorkholm 1965] «Optical Second Harmonic Generation Using a Focused Gaussian Laser Beam» J. E. Bjorkholm, Phys. Rev. Vol. 142, No. 1, 1965, pp. 126-136.
- [Bjorkholm 1966] «Dependence of Second Harmonic Generation on the Position of the Focus Beam» J. E. Bjorkholm, Phys. Rev. Vol. 148, No. 1, 1966, pp. 302-312.
- [Bohatý 1989] «Electrooptical Coefficients and Temperature and Pressure Derivatives of the Elastic Constants of Tetragonal Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>» L. Bohatý, S. Haussühl, J. Liebertz, Crys. Res. Technol. Vol. 24, No. 11, 1989, pp. 1159-1163.
- [Bohatý 1990] «Electro-optic and Electrostrictive Properties of the Low-Temperature Phase of Barium Borate BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>» L. Bohatý, J. Liebertz, Zeit. Kristallogr. Vol. 192, 1990, pp. 91-95.
- [Boyd 1965] «Second Harmonic Generation of Light with Double Refraction» G. D. Boyd, A. Ashkin, J. M. Dziedzic, et D. A. Kleinman, Phys. Rev. Vol. 137, No. 4A, 1965, pp. 1305-1320.
- [Boyd 1968] «Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams» G. D. Boyd, D. A. Kleinman, J. Appl. Phys. Vol. 39, No. 8, 1968, pp.3597-3606.

- [Bréhat 1989] «Calculation of Double Refraction Walk-off Angle Along the Phase-Matching Directions in Non-Linear Biaxial Crystals » F. Bréhat, B. Wyncke, J. Phys. B: At. Mol. Pt. Phys. Vol. 22, 1989, pp. 1891-1898.
- [Chen 1985] «A New-Type ultraviolet SHG Crystal  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>» C. Chen, B. Wu, A. Jiang, G. You, Scientia Sinica B, Vol. 28, No. 3, 1988, pp. 235-243.
- [Chen 1989] «New Non-linear Optical Crystal: LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub>» C. Chen, Y Wu, A. Jiang, B. Wu, G. You, R. Li, S. Lin, J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 6, No. 4, 1989, pp. 616-621.
- [Chen 1989a] «New Non-linear Optical Crystal: LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub>» C. T. Chen, Y. C. Wu, A. Jiang, G. M. You, R. K. Li, S. Lin, J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 6, No. 4, 1989a, pp. 616-621.
- [Chen 1991] «Développements Récents des Cristaux Optiques Non linéaires BBO et LBO » C.T Chen, Fujian Castech Crystals et Fujian Institut, Opto No. 64, Nov - Dec 1991.
- [Chen 1993] «Developpement of new non-linear optical crystals in the borate series» C.T. Chen, Laser science And technologies, Vol. 15, 1993.
- [Dmitriev 1991] « Handbook of Nonlinear Optical Crystals » V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, D. N. Nikogosyan, Springer-Verlag Berlin, 1991.
- [Eimerl 1987] «Optical, Mechanical, and Thermal Properties of Barium Borate» D. Eimerl, L. Davis, S. Velsko, E. K. Graham, A. Zalkin, J. Appl. Phys. Vol. 62, No. 5, 1987, pp. 1968-1982.
- [Fan 1989] «Barium Borate Optical Parametric Oscillator» Y. X. Fan, R. C. Eckardt, R L. Byer, C. Chen and A. D. Jiang, IEEE J. Of Quant. Elect. Vol. 25, No. 6, 1989, pp. 1196-1199.
- [Feigelson 1989] «Solution Growth of Barium Metaborate Crystals by Top Seeding » R. S. Feigelson, R. J. Raymakers, R. K. Route, J. Crys. Growth, Vol. 97, 1989, pp. 352-366.
- [Franken 1961] «Generation of Optical Harmonics» P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, G. Weinreich, Phys. Rev. Lett. Vol. 7, No. 4, 1961, pp. 118-119.

- [Furusawa 1990] «Raman Scattering Study of Lithium Diborate ( $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ ) Single Crystal» Shin-ichi Furusawa, S. tange, Y. Ishihiro, K. Miwa, J. Phys. Soc. Jap. Vol. 59, No. 5, 1990, pp. 1825 – 1830.
- [Furusawa 1991] «Second Harmonic Generation in  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ » S. I. Furusawa, O. Chikagawa, S. Tange, T. Ishidate, H. Orihara, Y. Ishibashi, K. Miwa, J. Phys. Soc. Jap. Vol. 60. No. 8, 1991, pp. 2691-2693.
- [Ghosh 1995] «Temperature Dispersion of refractive Indices in  $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$  and  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  Crystals for Nonlinear Optical devices » G. Ghosh, J. Appl. Phys. Vol. 78, No. 11, 1995, pp. 6752-6760.
- [Guo 1989] «Pyroelectric, Piezoelectric and Dielectric Properties of  $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$  Single Crystal» A. Guo, A.S. Bhalla, J. Appl. Phys. Vol. 66, No. 12, 1989, pp. 6186-6188.
- [Herman 1995] «Maker Fringes Revisited: Second Harmonic Generation from Birefringent or Absorbing Materials» W. N. Herman and L. M. Hayden, J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 12, No. 3, 1995, pp. 416-427.
- [Hobden 1967] «Phase-Matched Second Harmonic Generation in Biaxial Crystals» M. V. Hobden, J. Appl. Phys. Vol. 38, No. 11, 1967, pp. 4365-4374.
- [Hon 1979] «High Average Power, Efficient Second Harmonic Generation» D. Hon, Laser Handbook, Holland Publishing Company. 1979.
- [Ito 1975] «Generalized Study on Angular Dependence of Induced Second-Order Non-linear Optical Polarizations and Phase Matching in Biaxial Crystals» H. Ito, H. Naito, H. Inaba, J. Appl. Phys. Vol. 46, No. 9, 1975, pp. 3992-3998.
- [Jerphagnon 1970] «Maker Fringes: A Detailed Comparison of Theory and Experiment for Isotropic and Uniaxial Crystals» J. Jerphagnon, K. Kurtz, J. Appl. Phys. Vol. 41, No. 4, 1970, pp. 1667-1681
- [Kato 1990] «Tunable UV Generation to  $0.2325 \mu\text{m}$  in  $\text{LiB}_3\text{O}_5$ » K. Kato, IEEE. J. Quant. Elect. Vol. 26, No. 7, 1990, pp. 1173-1175.
- [Kleinman 1962] «Theory of Second Harmonic Generation of Light» D. A. Kleinman, Phys. Rev. Vol. 128, No. 4, 1962, pp. 1761-1774.

- [Kleinman 1966] «Dependence of Second Harmonic Generation on the Position of the Focus» D. A. Kleinman, R. C. Miller, Phys. Rev. No.1, Vol. 148, 1966, pp. 302-312.
- [Komatsu 1993] «Mode of Occurrence and Cause of Cracking of  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  Single Crystals During Growth by Czochralski Method» R. Komatsu, S. Uda, K. Hikita, Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 32, Part 1, No. 9B, 1993, pp. 4364-4366.
- [Komatsu 1994] «Growth of Crack-Free 3-Inch-Diameter Lithium Tetraborate Single Crystals by Czochralski Method» R. Komatsu, T. Sugawara, S. Uda, Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 33, Part 1, No. 9B, 1994, pp. 5533-5535.
- [Komatsu 1995] «Mode of Occurrence and Cause of Twinning in Lithium Tetraborate Grown by Czochralski Method» R. Komatsu, T. Sugawara, T. Sugihara, S. Uda, Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 34, Part 1, No. 9B, 1995, pp. 5467-5470.
- [Komatsu 1996] «Growth of Twinned Lithium Tetraborate Crystal and its Application to Bimorph Actuator» R. Komatsu, H. Iizuka, S. Uda, Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 35, Part 1, No. 9B, 1996, pp. 5042-5045.
- [Komatsu 1997] «Growth and Ultraviolet Application of  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  Crystals: Generation of the Fourth and Fifth Harmonics of  $\text{Nd}:\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  lasers» R. Komatsu, T. Sugawara, K. Sassa, N. Sarukura, Z. Liu, S. Izumida, Y. Segawa, S. Uda, T. Fukuda, K. Yamanouchi, Appl. Phys. Lett. Vol. 70, No. 26, 1997, pp. 3492-3494.
- [Kouta 1991] « $\beta$ - $\text{BaB}_2\text{O}_4$  Single Crystal Growth by Czochralski Method » H. Kouta, Y. Kuwano, K. Ito, F. Marumo, J. Cryst. Growth, Vol. 114, 1991, pp. 676-682.
- [Krogh-Moe 1962] «The Crystal Structure of Lithium Diborate,  $\text{Li}_2\text{O} \cdot 2\text{B}_2\text{O}_3$ » J. Krogh-Moe, Acta. Cryst. 15, 1962, pp. 190-193.
- [Kwon 1994] «Characteristics of Critically Phase-matched Second Harmonic Generation of a  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  Crystal Grown by Czochralski method » T. Y. Kwon, J. J. Ju, J. W. Cha, J. N. Kim, S. I. Yun, Mat. Lett. Vol. 20, 1994, pp. 211-215.

- [Kwon 1996] «Linear Optical Properties and Characteristics of Critically Phase-matches Second Harmonic Generation of  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  Crystal Grown by Czochralski method» T. Y. Kwon, J. J. Ju, H. K. Kim, J. W. Cha, J. N. Kim, M. Cha, S. I. Yun, *Mat. Lett.* Vol. 27, No. 1996, pp. 317-321.
- [Kwon 1997] «Quadratic Non-linear Optical Coefficients of Pure and MgO-Doped Lithium Diborate Crystals» T. Y. Kwon, J. J. Ju, H. K. Kim, D. J. Kim, J. W. Cha, J. N. Kim, S. I. Yun, M. Cha, *Mat. Lett.* Vol. 30 1997, pp. 293-297.
- [Lalanne 1994] «Interaction Laser Molécule : physique du laser et optique non linéaire moléculaire » J. R. Lalanne, A. Ducasse, S. Kielich, Polytechnica 1994.
- [Lin 1990] «The Nonlinear Optical Characteristics of a  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  Crystal» S. Lin, Z. Sun, B. Wu, C. Chen, *J. Appl. Phys.* Vol. 67, No. 2, 1990, pp. 634-638.
- [Lomonov 1994] «The Growth of  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  Single Crystals and Investigation of Low Temperature Elastic Anomalies» V. A. Lomonov, P. A. Senushenkov, I. M. Silvestrova, Yu. V. Pisarevsky, A. V. Vinogradov, *Journal de Physique IV Colloque C2, Supplément au journal de Physique III*, Vol. 4, 1994, pp. 199 – 200.
- [Maeda 1994] «Dielectric, Elastic and Piezoelectric Properties of  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  Single Crystals in the Temperature Range from 4 K to 900 K » M. Maeda, H. Tachi, K. Honda and I. Suzuki, *Jpn. J. Appl. Phys.* Vol. 33, Part 1, No. 4A, 1994, pp. 1965-1969.
- [Maker 1962] «Effects of Dispersion and Focusing on the Production of Optical Harmonics» P. D. Maker, R. W. Terhume, M. Nisenoff and C. M. Savage, *Phys. Rev. Lett.* Vol. 8, No. 1, 1962, pp. 21-22.
- [Midwinter 1965] «The effect of Phase Matching Method and of Uniaxial Crystal Symmetry on the Polar Distribution of Second-Order Non-linear Optical Polarization» J. E Midwinter, J. Warner, *Brit. J. Appl. Phys.* Vol. 16, 1965, pp. 1135-1142.



- [Mighell 1966] «The Crystal Structure of the High Temperature Form of Barium Borate,  $BaO \cdot B_2O_3$ » A. D. Mighell, A. Perloff, S. Block, Acta. Cryst. Vol. 20, 1966, pp. 819-823.
- [Mori 1995] «Non-linear Optical Properties of Cesium Lithium Borate » Y. Mori, I. Kuroda, S. Nakajima, T. Sasaki, S. Nakai, Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 34, 1995, pp. L296-L298.
- [Mori 1995] «Growth of a Nonlinear Optical Crystal: Cesium Lithium Borate» A. Y. Mori, I. Kuroda, S. Nakajima, A. Taguchi, T. Sasaki, S. Nakai, J. Cryst. Growth, Vol. 156, 1995, pp. 307-309.
- [Ney 1998] «Etude de l'Origine des Propriétés Electrooptiques et Optiques Non Linéaires d'un Composé de la Famille des Borates : Le Métaborate de Baryum ( $\beta$ -BBO)» P. Ney, Laboratoire MOPS/ CLOES Metz, 1998.
- [Nikogosyan 1991] «Beta Barium Borate (BBO): A Review of Its Properties and Applications» D.N. Nikogosyan, Appl. Phys. A. 52, 1991, pp. 359-368.
- [Nikogosyan 1994] «Lithium Triborate (LBO): A Review of Its Properties and Applications» D.N. Nikogosyan, Appl. Phys. A 58, 1994, pp. 181-191.
- [Paul 1982] «Raman spectrum of  $Li_2B_4O_7$ » G. L. Paul, W. Taylor, J. Phys. C: Sol. Stat. Phys. Vol. 15, 1982, pp. 1753-1764.
- [Polgár 1991] «Growth and Characterization of Alpha, and Beta-Barium Metaborate Single Crystals» K. Polgár, Á. Péter, F. Schmith, Crystal Properties and preparation, Vol. 36-38, 1991, pp.209-215
- [Radaev 1992] «Deformation Density in Lithium Triborate,  $LiB_3O_5$ » S.F. Radaev, B.A. Maximov, V.I. Simonov, B.V. Andreev, V.A. D'Yakov, Acta. Cryst. B 48, 1992, pp.154-160.
- [Roberts 1992] «Simplified Characterization of Uniaxial and Biaxial Nonlinear Optical Crystals: A Plea for Standardization of Nomenclature and Conventions» D A. Roberts, IEEE J. Of Quant. Elect. Vol. 28, No. 10, 1992, pp. 2057-2074.



- [Ryu 1998] «Growth and characterisation of CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> (CLBO) Crystals» G. Ryu, C. S. Yoon, T. P. J. Han, H. G. Gallagher, *J. of Cry. Growth*, Vol. 191, 1998, pp. 492-500.
- [Sapriel 1976] «L'acousto-optique» J. Sapriel, Ed. Masson, 1976.
- [Sasaki 1997] «Non-linear Optical Crystals for Ultra-violet Light Generation» T. Sasaki, Faculty of Engineering, Osaka University, May 12, 1997.
- [Sasaki 2000] «Recent Development of Non-linear Optical Borate Crystal: Key Materials for Generation of Visible and UV Light» T. Sasaki, Y. Mori, M. Yoshimura, Y.K. Yap, *Mat. Scien. Eng*, Vol. 30, 2000, pp. 1-54.
- [Sugawara 1998] «Linear and non-Linear Optical Properties of Lithium Tetraborate » T. Sugawara, R. Komatsu et S. Uda, *Sol. Sta. Comm.* Vol. 107, No. 5, 1998, pp. 233-237.
- [Sugawara 1998] «Growth and Characterization of Lithium Tetraborate Crystals Grown in Phase-Matching Directions» T. Sugawara, R. Komatsu, S. Uda, *J. of Cry. Growth*, Vol. 193, 1998, pp. 364-369.
- [Takei 1997] «Thermal Expansion of Pure and Al-Doped CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> Crystals for Non-linear Optical Applications» H. Takei, T. Suzuki, M. Mamiya, F. Sakai, M. Koike, Y. Mori, T. Sasaki, *Jpn. J. Appl. Phys.* Vol. 36, 1997, pp. 126-128.
- [Thénot 1995] «Participation à la Réalisation d'un Banc de Génération de Second Harmonique en vue de Mesurer les Coefficients Optiques Non-Linéaires de Différents Matériaux» J Y. Thénot, Rapport de Stage, 1995.
- [Uda 1997] «Congruent Composition and Solid Solution Range of Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>» S. Uda, R. Komatsu, K. Takayama, *J. of Cry. Growth*, Vol. 171, 1997, pp. 458-462.
- [Umemura 1999] «New Data on the Phase-matching Properties of CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub>» N. Umemura, K. Yoshida, T. Kamimura, Y. Mori, T. Sasaki, K. Kato, *Adv. Sol. State*, Vol. 26, 1999, pp. 715-719.

- [Vezin 1997] «Characterization of Defects in  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  Crystals Grown by Czochralski and Bridgman Methods» V. Vezin, T. Sugawara, R. Komatsu, S. Uda, Jpn. J. Appl. Phys, Vol. 36, Part. 1, No. 9B, 1997, pp. 5950-5953.
- [Wu 1993] « $\text{CsB}_3\text{O}_5$ : A New Nonlinear Optical Crystal » Y. Wu, T. Sasaki, S. Nakai, A. Yokotani, C. Chen, Appl. Phys. Lett. Vol. 62, No. 21, 1993, pp. 2614-2615.
- [Wyncke 1989] «Calculation of the Effective Second-order Non-linear Coefficients along the Phase Matching in Acentric Orthorhombic Biaxial Crystals» B. Wyncke and F. Bréhat, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. Vol. 22, 1989, pp. 363-373.
- [Xue 2000] «Non-linear Optical Properties of Borate Crystals » D. Xue, K. Betzler, H. Hesse, D. Lammers, Sol. Stat. Comm. Vol. 114, 2000, pp. 21-25.
- [Yao 1984] «Calculations of Optimum Phase Match Parameters for the Biaxial Crystal  $\text{KTiPO}_4$ » J.Q. Yao, T. S. Fahlen, J. Appl. Phys. Vol. 55, No. 1, 1984, pp. 65-68.
- [Yao 1992] «Accurate Calculation of the Optimum Phase Matching Parameters in the Three-Wave Interactions with Biaxial Nonlinear Optical Crystals » J. Yao, W. Sheng, W. Shi, J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 9, No. 6, 1992, pp. 891- 902.
- [Yap 1998] « $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$  Crystal for Frequency Doubling the Nd: YAG Laser» Y.K. Yap, S. Haramura, A. Taguchi, Y. Mori, T. Sasaki, J. Opt. Comm. Vol. 145, 1998, pp. 101-104.
- [Yariv 1984] «Optical Wave in Crystals: Propagation and Control of Laser Radiation » A. Yariv and P. Yeh, Wiley-interscience, 1984.
- [Zhao 1990] «Crystal Growth and Properties of Lithium Triborate » S. Zhao, C. Huang, H. Zhang, J. of Crys. Growth, Vol. 99, 1990, pp. 805-810.
- [Zhou 1996] «High-Efficiency Intracavity Continuous-Wave Ultraviolet Generation Using Crystals  $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ ,  $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$  and  $\text{LiB}_3\text{O}_5$ » W.-L. Zhou, Y. Mori, T. Sasaki, S. Nakai, Opt. Cmm, Vol. 123, 1996, pp. 583-586.

- 
- [Zondy 1991]** «Comparative Theory of Walkoff-Limited Type-II Versus Type-I Second Harmonic Generation With Gaussian Beams» J. J. Zondy, J. Opt. Comm. Vol. 81, No.6, 1991, pp. 427-440.
- [Zondy 1994]** «Type-II Frequency Doubling at  $\lambda=1.30 \mu\text{m}$  and  $\lambda=2.53 \mu\text{m}$  in Flux-Grown Potassium Titanyl Phosphate» J. J. Zondy, M. Abed, A. Clairon, J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 11, No. 10, 1994, pp. 2004-2015.

---

# Annexe A

---

## *Croissance et préparation de LTB*

<i>A-1. Introduction.....</i>	<i>A-2</i>
<i>A-2. Dispositif de croissance mis au point au laboratoire MOPS .....</i>	<i>A-2</i>
<i>A-3. Présentation schématique du four.....</i>	<i>A-3</i>
<i>A-4. Présentation de la méthode Czochralski .....</i>	<i>A-3</i>
<i>A-5. Difficultés rencontrées et qualité cristalline .....</i>	<i>A-5</i>
<i>A-6. Différentes origines donnant lieu au phénomène Twist- Tilt.....</i>	<i>A-6</i>
<i>A-7. Polissage et coupe .....</i>	<i>A-7</i>

### ***A-1. Introduction***

La croissance, l'orientation, la coupe et le polissage du tétraborate de lithium ( $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ , LTB), ont été effectués au « Research Laboratory For Crystal Physics » de l'Académie des Sciences de Budapest par Katalin POLGAR, ainsi que dans notre Laboratoire « Matériaux Optique, Photonique et Systèmes » de l'Université de Metz par Alain MAILLARD. Dans les deux cas, la méthode de croissance utilisée est la technique de Czochralski.

### ***A-2. Dispositif de croissance mis au point au laboratoire MOPS [Figure 1]***

Le four de croissance utilisé est un système dérivé de la croissance industrielle du silicium. Un chauffage du four par induction permet d'atteindre des températures de l'ordre de  $1600^\circ\text{C}$ , la plage habituelle de fonctionnement étant de  $1150^\circ\text{C}$ . Un contrôleur eurotherm 903P pilote la tension de sortie du générateur de tension radio fréquence qui alimente l'inducteur. Un ensemble de céramiques de haute et basse densité, isole le creuset. Le porte germe et le support de creuset sont motorisés en translation et rotation.

L'enceinte du four est fermée hermétiquement par un couvercle et l'utilisation d'une pompe à palette permet de réaliser des vides primaires. L'injection de gaz de diverses natures nous donne la possibilité de travailler sous atmosphère choisie, à des pressions légèrement supérieures à la pression atmosphérique.

Afin de contrôler visuellement l'évolution en temps réel de la croissance, sur l'écran de l'ordinateur, nous avons un couvercle supérieur du système de tirage, équipé d'un système d'éclairage et d'une caméra permettant de visualiser le ménisque que forme le cristal au contact du bain.

Un thermocouple en platine est utilisé pour contrôler la température à l'interface solide - liquide tandis qu'un autre thermocouple identique placé au fond du creuset en platine nous renseigne sur les changements de température du bain.

### A-3. Présentation schématique du four

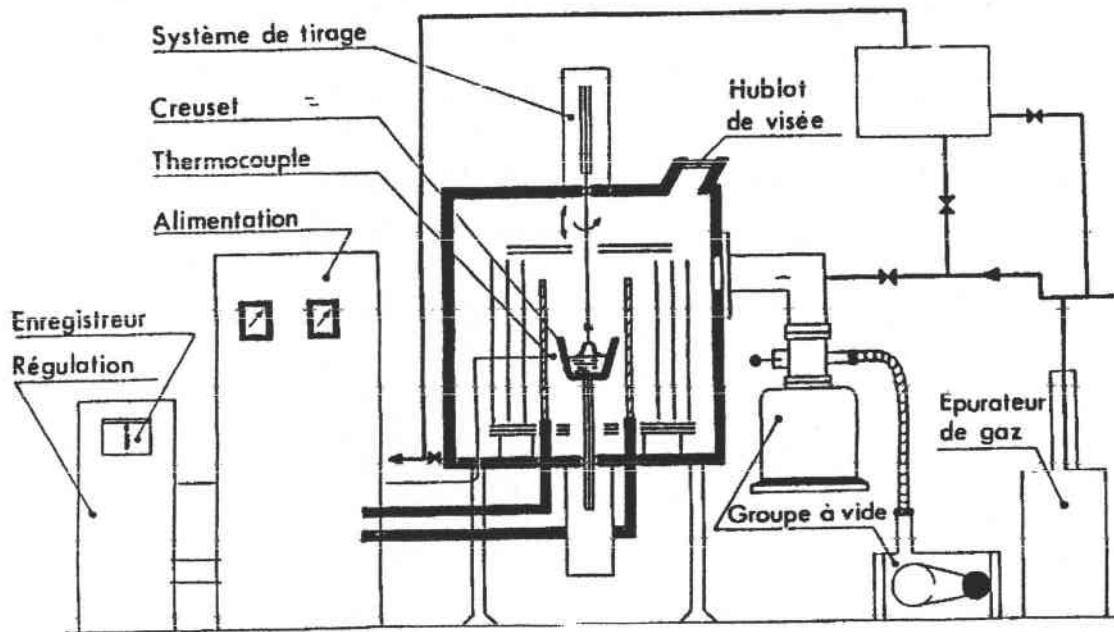


Figure 1 : Schéma du four de tirage par Czochralski

Le creuset convenablement rempli de produit, est placé à l'intérieur d'un élément chauffant ; dans notre cas le dispositif ne possède pas de boucle de correction. On peut donc programmer des rampes ou des paliers de chauffage par l'intermédiaire d'un logiciel gérant à distance le régulateur.

Le groupe de pompage permet d'assurer au début des opérations une atmosphère propre ainsi qu'un dégazage des matériaux afin d'éliminer les gaz occlus ou absorbés qui pouvant donner naissance à des bulles d'air dans le bain fondu, ces dernières pouvant se transmettre dans le cristal.

Différents mécanismes assurent la translation et la rotation de la barre porte germe et du support du creuset qui peut indifféremment rester fixe ou être mobile au cours du tirage, pourvu qu'il soit toujours dans un gradient de température convenable et contrôlé. Tous les paramètres de tirage sont fonction du volume du cristal.

### A-4. Présentation de la méthode Czochralski

Les monocristaux de LTB sont obtenus par croissance à l'air libre à partir d'un bain de  $\text{Li}_2\text{O}$  et  $\text{B}_2\text{O}_3$  avec un taux molaire (B/Li) de 2.

Cette technique consiste en un tirage d'un cristal à partir d'un germe monocristallin au contact d'un bain en fusion et permet d'obtenir rapidement des cristaux homogènes et de bonne qualité, et de diamètre assez important (60 mm ou plus).

La procédure suivante est suivie:

1. La température du bain est augmentée jusqu'à quelques degrés au dessus de la température de fusion (917 °C).
2. Le germe monocristallin, tournant lentement, est descendu lentement et à une vitesse décroissante de telle manière qu'il ne reste pas en contact avec la surface du bain.
3. Après une courte pause (typiquement 1 à 3 min), le tirage est effectué avec une faible vitesse axiale (environ la moitié de la valeur finale). Le nouveau cristal doit croître avec un diamètre qui est sensiblement inférieur au diamètre du germe.
4. La vitesse de croissance ainsi que la vitesse de rotation sont augmentées jusqu'à leur valeur optimale finale. Dans la littérature, on reporte pour la croissance des cristaux de LTB par tirage Czochralski une vitesse de croissance finale comprise entre 0,6 mm/h et 1 mm/ et de 0,2 à 10 tours par minute pour la vitesse de rotation finale. Ces différents paramètres sont résumés dans le tableau I.

Il faut noter que les conditions de croissance diffèrent selon la dimension du creuset, du diamètre ainsi que de la longueur du cristal désirée.

5. La température du bain est lentement diminuée et le diamètre du cristal grandit. À un point déterminé par l'expérience, la diminution de la température du bain est arrêtée et le cristal atteint alors son diamètre final.
6. La croissance à un diamètre constant est maintenue jusqu'à ce que la longueur du cristal désirée soit atteinte.
7. Pour arrêter la croissance, on peut augmenter rapidement la vitesse de tirage de telle manière que le cristal ne soit plus en contact avec le bain. Toutefois de rapides changements lors de la croissance peuvent conduire à des dislocations ou même à des brisures. Pour cela, on préfère plutôt augmenter la température du bain lentement de telle sorte que le diamètre du cristal diminue jusqu'à zéro.

Auteurs [Références]	Croissance axiale	Diamètre	Vitesse de translation	Vitesse de rotation	Diamètre de creuset en platine
Komatsu 93	<110>	60 mm	0,8 mm/h	0,5-3 rpm	90 mm×90 mm
Komatsu 94	<110>	80 mm	0,6 mm/h	0,2-5 rpm	130 mm×130 mm
Komatsu 96	<110>	60 mm	1 mm/h	0,2-10 rpm	-
Furusawa 90	<100> et <110>	80 ~ 90 mm	1 mm/h	0,5-5 rpm	150 mm×150 mm
Lomonov 94	<100> et <001>	80 mm	0,7 mm/h	50 rpm	-

*Tableau 1: Paramètres des croissances Czochralski*

#### **A-5. Difficultés rencontrées et qualité cristalline**

Un premier type de problèmes rencontrés pendant la croissance des cristaux LTB par la méthode Czochralski est l'apparition des boules à l'interface solide – liquide et de fissures durant la croissance du cristal.

Deux types de fissures peuvent apparaître pendant la croissance du cristal :

- 1) la première catégorie de fissures est observée au début de la formation du cristal. Ces fissures sont dues à la polycristallinité; elles peuvent être évitées par l'utilisation d'un germe très pur orienté avec une grande précision, ou bien en maintenant la phase liquide plus de 15 h avant de commencer la croissance, ceci afin que la densité et la viscosité soient stables.
- 2) l'autre type de fissures se produit plus tard, après que le cristal ait atteint un diamètre constant. Son origine n'est pas encore très bien connue, mais il apparaît que ces fissures se produisent à une température particulière au fond de creuset. Pour éviter leurs apparitions, la croissance du cristal doit se faire en maintenant le creuset à une température élevée de 852°C.

Un autre problème majeur apparaissant dans la croissance des cristaux de grande taille est le phénomène de "twinning" (jumelage). Ce phénomène réduit significativement les performances pour l'utilisation de LTB dans le SAW.

Shi-ji Fan *et al* ont synthétisés des cristaux de LTB selon la direction [001] par la méthode Bridgman et ont conclu à une cause mécanique du twinning [Komatsu 1995].

Kamiyama *et al* ont aussi reporté le twinning dans les cristaux de LTB développés selon la direction [001] par la technique Czochralski [Komatsu 1995].



Le twinning dans LTB développé par la technique Czochralski selon la direction  $[110]$  est parfois détecté quand le diamètre du cristal obtenu est supérieur à 60 mm. Le twinning est souvent initié juste au dessous du germe [Komatsu 1995].

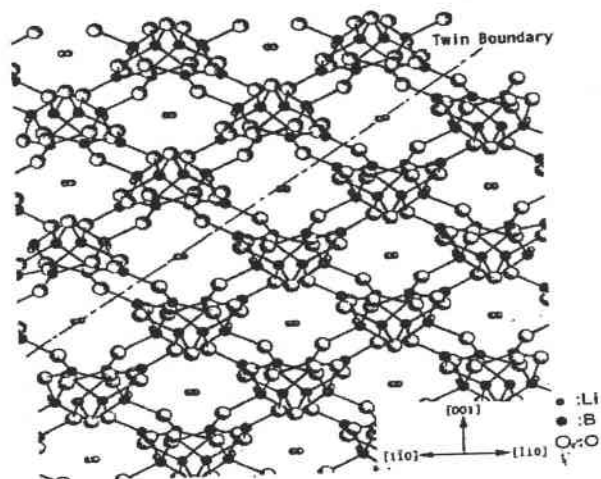


Figure 2: La projection le long de  $[110]$  montrant le twinning  $(110)$

Les différents jumeaux sont des inverses l'un à l'autre en ce qui concerne l'axe  $c$ ; la frontière de jumelage est parallèle au plan  $(112)$ . C'est un jumelage de croissance produit à partir des symétries  $4_1$  et  $4_3$  de LTB. Une large fluctuation de température de mélange est souvent produite quand le gradient de température est large à côté de l'interface, conduisant à une variation de la vitesse de croissance particulièrement grande au début de la croissance. Ainsi il est important d'éviter une grande fluctuation de température pour éviter la production de jumelage.

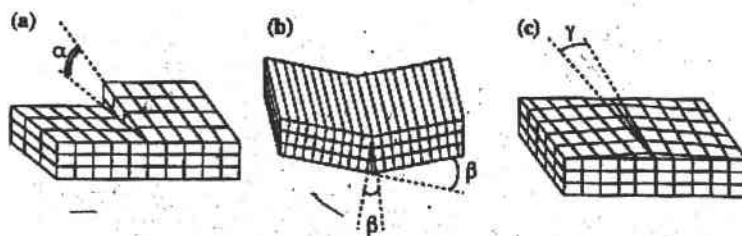
#### A-6. Différentes origines donnant lieu au phénomène "Twist-Tilt"

Un autre problème apparaissant à la croissance de LTB est le phénomène du "twist et tilt". Le phénomène du twist consiste en une rotation (torsion) des axes cristallins autour d'une direction déterminée.

Une étude menée par Vezin [Vezin 1997] a mis en évidence des défauts créant des frontières de grain observés dans une tranche  $(110)$  de LTB coupée à partir des cristaux développés par des méthodes de Bridgman et de Czochralski selon le plan  $(110)$ . L'étude de ces défauts a été faite par la technique de diffraction des rayons X. De faibles angles des frontières de grain (low-angle grain boundaries) forment ainsi un ensemble de dislocations. Les auteurs distinguent deux types de configurations de frontières :

1) Twist : une frontière de torsion composée de dislocations telles que représentée dans la figure 3 (a).

2) Tilt : une frontière d'inclinaison composée de dislocations de bord telles que représentée dans la figure 3 (b) et (c).



**Figure 3 :** Faibles angles des frontières grain (a) frontière Twist (b) et (c) frontière Tilt

En général, les frontières de grain se composent d'un twist (torsion) et deux composantes de tilt (inclinaison). La désorientation entre les grains séparée par une frontière est définie par les trois angles suivants  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$ .

Dans l'étude faite par Vezin, ces lignes de dislocations et ces faibles angles des frontières de grain sont observés dans les cristaux développés par les techniques Bridgman et Czochralski. Les principales tendances observées sont une majorité de dislocations dans le plan (112), dues peut être à la structure du cristal (une grande densité atomique dans cette direction), une minorité de dislocations dans le plan (111) et des défauts de faibles angles des frontières grain dans les plans (111) et (112).

#### **A-7. Polissage et coupe**

La même technique est utilisée pour couper et polir les échantillons LTB dont nous disposons, qu'ils aient été synthétisés à Metz ou en Hongrie

LTB étant un matériau robuste, nous utilisons pour le couper soit une machine type Microsilice 2 ou bien une scie à disque diamanté. Après avoir coupé les cristaux, soit selon les axes cristallographiques ou soit selon l'angle d'accord de phase, un polissage soigné des faces du cristal est indispensable. Pour cela nous utilisons de la poudre de diamant à 1 micron lubrifié à l'huile sur un support ASFL Pad.

# Annexe B

---

## *Cristaux biaxes*

<b>B-1. Calcul de l'angle d'accord de phase.....</b>	<b>B-2</b>
B-1-a) Dépendance spatiale des indices de réfraction.....	B-2
B-1-b) Recherche de l'accord de phase.....	B-2
B-1-c) Direction d'accord de phase.....	B-3
B-1-d) Calcul numérique de la direction d'accord de phase.....	B-6
<b>B-2. Développement des coefficients non linéaires effectifs <math>d_{eff}</math> pour un cristal biaxe en fonction des <math>d_{ij}</math> .....</b>	<b>B-6</b>
B-2-a) Polarisation induite .....	B-6
B-2-b) Composantes du champ électrique.....	B-6
B-2-c) Développement de $d_{eff}$ .....	B-8
<b>B-3. Acceptance angulaire .....</b>	<b>B-8</b>

Dans cette annexe, nous présentons les différents paramètres de GSH dans le cas des cristaux biaxes. Un cristal biaxe est un cristal qui contient deux axes optiques, ce qui donne naissance, lorsqu'on l'attaque avec un faisceau laser non polarisé, à deux rayons extraordinaires.

Nous supposons que les trois ondes de lumières colinéaires de fréquences  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  et  $\omega_3$  respectivement, sont en interaction avec un matériau non linéaire biaxe de longueur L.

### B-1. Calcul de l'angle d'accord de phase

#### B-1-a) Dépendance spatiale des indices de réfraction

La dépendance des indices de réfraction en fonction de la direction de propagation ainsi que leurs polarisations sont plus complexes dans le cas des cristaux biaxes que dans le cas des cristaux uniaxes.

La surface des indices de réfraction pour une onde optique de fréquence  $\omega_i$  dans un cristal biaxe satisfait à l'équation suivante [Ito 1975]:

$$\frac{\sin^2(\theta)\cos^2(\varphi)}{n_i^{-2} - n_{xi}^{-2}} + \frac{\sin^2(\theta)\sin^2(\varphi)}{n_i^{-2} - n_{yi}^{-2}} + \frac{\cos^2(\theta)}{n_i^{-2} - n_{zi}^{-2}} = 0 \quad (\text{B-1})$$

Où  $\theta$  est l'angle entre la direction de propagation et l'axe z et  $\varphi$  est l'angle entre la projection du vecteur k dans le plan x-y et l'axe x.

$n_{xi}$ ,  $n_{yi}$  et  $n_{zi}$  sont les trois indices de réfraction principaux à une température donnée. La solution de l'équation (B-1) s'obtient en recherchant la courbe d'intersection des surfaces d'indices des trois ondes en interaction.

#### B-1-b) Recherche de l'accord de phase

La courbe d'accord de phase de type I est déterminée à partir des équations de (II-1), où  $i = 1, 2, 3$  et

$$\omega_1 n_1' + \omega_2 n_2' = \omega_3 n_3'' \quad (\text{B-2})$$

Les indices  $n_1'$  et  $n_2'$  sont les plus grandes des deux solutions positives réelles (c'est à dire indices de réfraction de chemin lent) de l'équation (B-1) ou  $i=1$  et 2 respectivement [Yao 1984].

et l'indice  $n_3''$  est la plus petite des deux solutions réelles positives (c'est à dire indices de réfraction de chemin rapide) à l'équation (B-1) quand  $i = 3$ .

La courbe d'accord de phase de type II est déterminée à partir des équations comprenant l'équation (B-1) et

$$\omega_1 n_1' + \omega_2 n_2'' = \omega_3 n_3'' \quad (\text{B-3})$$

Où  $n_2''$  est la plus petite des deux solutions positives réelles à l'équation (B-1) quand  $i=2$  [Yao 1984].

Les courbes d'accord de phase (pour le type I et II) pour un cristal biaxe peuvent être résolues, à condition de tenir compte de la dispersion donc des équations de Sellmeir du cristal [Yao 1992].

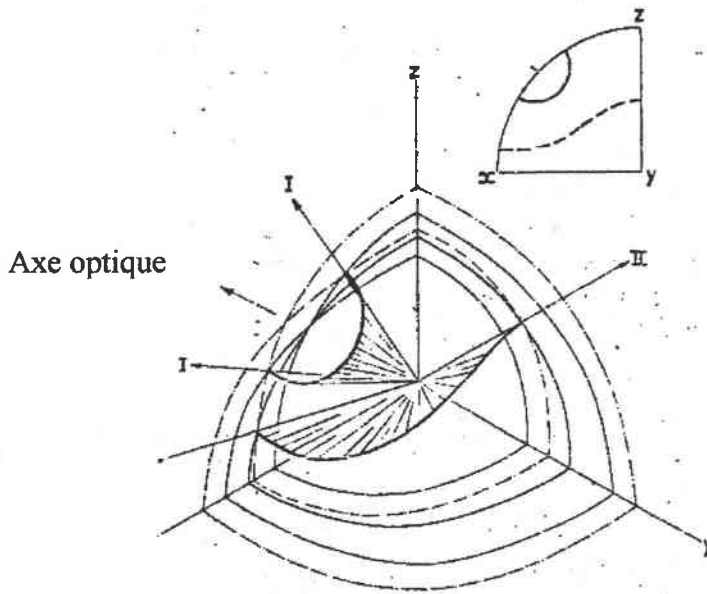
#### B-1-c) Direction d'accord de phase

La direction d'accord de phase dans un cristal biaxe est l'intersection des surfaces d'indices aux fréquences fondamentales et harmoniques. Cette direction est restreinte aux "bons" comportement du cristal c'est à dire dans le cas où la direction de ces axes principaux ne changent pas avec la fréquence, les dispersions sont faibles et approximativement égales entre les fréquences fondamentales (indice 1) et harmoniques (indice 2). Dans ce cas, on peut considérer que les indices de réfractons principaux du cristal obéissent aux relations suivantes [Hobden 1967] :  $n_2^z > n_1^z$ ,  $n_2^y > n_1^y$ ,  $n_2^x > n_1^x$  ;  $n_2^z - n_1^z \approx n_2^y - n_1^y \approx n_2^x - n_1^x \ll n_1^x$ .

La convention usuelle place les indices de réfraction principaux dans l'ordre  $n_2^z > n_2^y > n_2^x$ ,  $n_1^z > n_1^y > n_1^x$ .

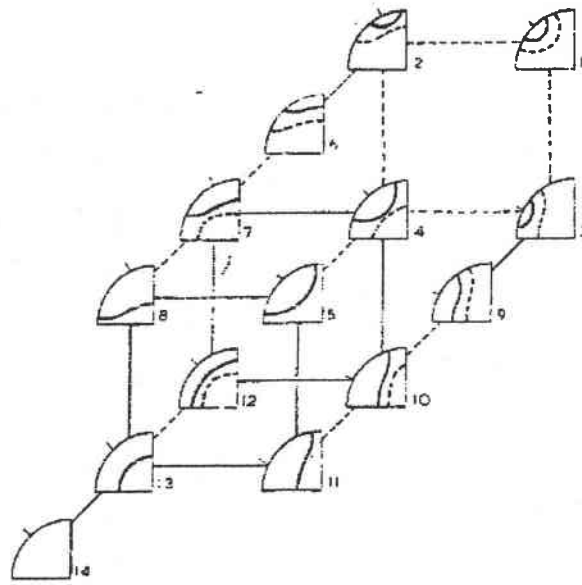
Les indices 1 et 2 réfèrent aux fréquences fondamentales et harmoniques.

La figure 1 représente par exemple l'indice de surface pour le cas où  $n_2^z > n_1^z > n_2^y > n_1^y > n_2^x > n_1^x$  et  $n_2^x > \frac{1}{2}(n_1^x + n_1^y)$ ,  $n_2^y > \frac{1}{2}(n_1^y + n_1^z)$ , l'allure de la direction d'accord de phase dans un quadrant de la projection stéréographique est aussi montrée.



**Figure 1 :** Direction d'accord de phase pour un cristal biaxe avec  $n_2^z > n_1^z > n_2^y > n_1^y > n_2^x > n_1^x$ ,  $n_2^x > \frac{1}{2}(n_1^z + n_1^y)$  et  $n_2^y > \frac{1}{2}(n_1^y + n_1^z)$

À cause des limitations de comportement optique données ci-dessus il y a treize configurations d'accord de phase sont possibles en fonction des valeurs respectives de  $n_2^z$ ,  $n_2^y$ ,  $n_2^x$ ,  $n_1^z$ ,  $n_1^y$ ,  $n_1^x$ ,  $\frac{1}{2}(n_1^x + n_1^y)$ ,  $\frac{1}{2}(n_1^y + n_1^z)$  et  $\frac{1}{2}(n_1^x + n_1^z)$ . Les allures de la projection stéréographique sont schématisées dans la figure 2 ainsi que les cas où la situation d'accord de phase n'est pas possible (cas 14). Les quadrants de la projection stéréographique sont donnés avec l'axe optique principal x à gauche, l'axe optique principal y en dehors de la page et l'axe optique principal z vers le haut de la page. Les courbes en ligne continue représentent le type I et celle en ligne discontinue le processus de type II [Hobden 1967].



**Figure 2 :** Schéma des classes possibles des directions d'accord de phase dans un cristal biaxe

1	$n_2^x < 1/2(n_1^x + n_1^y) ; n_2^y < 1/2(n_1^y + n_1^z)$	$n_2^z > n_1^z > n_2^y > n_1^y > n_2^x > n_1^x$
2	$n_2^x > 1/2(n_1^x + n_1^y) ; n_2^y < 1/2(n_1^y + n_1^z)$	
3	$n_2^x < 1/2(n_1^x + n_1^y) ; n_2^y > 1/2(n_1^y + n_1^z)$	
4	$n_2^x > 1/2(n_1^x + n_1^y) ; n_2^y > 1/2(n_1^y + n_1^z)$	
5	$n_2^x > 1/2(n_1^x + n_1^z)$	
6	$n_2^x < 1/2(n_1^x + n_1^z) ; n_2^y < 1/2(n_1^y + n_1^z)$	$n_2^z > n_1^z > n_2^y > n_2^x > n_1^y > n_1^x$
7	$n_2^x < 1/2(n_1^x + n_1^z) ; n_2^y > 1/2(n_1^y + n_1^z)$	
8	$n_2^x > 1/2(n_1^x + n_1^z) ; n_2^y < 1/2(n_1^y + n_1^z)$	
9	$n_2^x < 1/2(n_1^x + n_1^y)$	$n_2^x > n_2^y > n_1^z > n_1^y > n_2^x > n_1^x$
10	$n_2^x > 1/2(n_1^x + n_1^y) ; n_2^x < 1/2(n_1^x + n_1^z)$	
11	$n_2^x > 1/2(n_1^x + n_1^z)$	
12	$n_2^x < 1/2(n_1^x + n_1^z)$	$n_2^x > n_2^y > n_1^z > n_2^x > n_1^y > n_1^x$
13	$n_2^x > 1/2(n_1^x + n_1^z)$	
14		$n_2^z > n_2^y > n_2^x > n_1^z > n_1^y > n_1^x$

**Tableau 1 :** Conditions sur les indices de réfraction pour chaque classe représentée dans la figure 2

Les pointillés entre deux quadrants dans la figure 2 représentent une transition à partir d'une situation d'accord de phase critique (CPM) à une autre où l'accord de phase est non

critique (NCPM) produite à cause d'une égalité accidentelle de certains indices de réfraction. Cela peut seulement se produire le long soit de l'axe x, y ou z.

#### *B-1-d) Calcul numérique de la direction d'accord de phase*

L'équation (B-1) n'a pas de solution analytique, un calcul numérique permet de trouver les directions  $(\theta, \varphi)$  de propagation à partir de l'équation d'indice des surfaces à  $\omega$  et  $2\omega$  [Hobden 1967].

Yao et al [Yao 1984] donnent la démarche de programmation à adapter pour le calcul des angles d'accord de phase. Il est par ailleurs à noter que pour avoir un bon accord entre la courbe théorique et les valeurs expérimentales, il est indispensable de connaître les indices principaux avec une bonne précision ( $10^{-3}$ ).

### ***B-2. Développement des coefficients non linéaires effectifs $d_{eff}$ pour un cristal biaxe en fonction des $d_{ij}$***

#### *B-2-a) Polarisation induite*

La polarisation optique NL  $P(\omega_3)$  induite par les deux champs électriques appliqués  $E_k(\omega_2)$  et  $E_j(\omega_1)$  avec des fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  est donnée par :

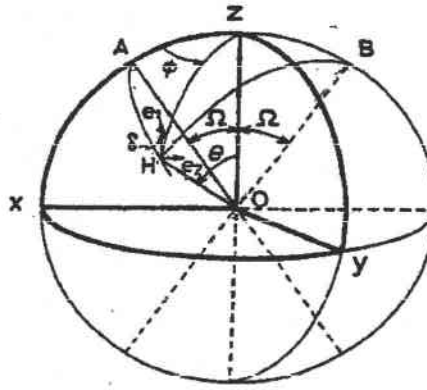
$$P_i(\omega_3) = d_{ijk}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) (b_j) (b_k) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (B-4)$$

où  $(a_j)$  et  $(a_k)$  sont les tenseurs de  $E_j(\omega_1)$  et  $E_k(\omega_2)$  respectivement et  $d_{ijk}(-\omega_3, \omega_2, \omega_1)$  est le tenseur de polarisation de second ordre d'un cristal NL.

#### *B-2-b) Composantes du champ électrique*

Dans un milieu biréfringent quelconque, les directions de polarisation, pour une direction de propagation donnée, sont données par la construction de Sylvester [Ito 1975], et dépendent de  $\theta$  et  $\varphi$ . La figure 3 explique la méthode de construction :





**Figure 3:** Les directions de propagation et de polarisation des ondes optiques dans un cristal biaxe [ITO 1975]

La direction de propagation est matérialisée par le segment OH, repéré par les angles  $\theta$  et  $\varphi$ . OA et OB sont les axes optiques du milieu, faisant un angle  $\Omega$  avec l'axe z.  $e_1$  correspond à la direction de polarisation lente (indice le plus élevé), et dirigé selon l'arc de cercle bissecteur du triangle sphérique AHB. Celui-ci fait en H, un angle  $\delta$  avec l'arc HZ.

La polarisation rapide (correspondant à l'indice le plus faible), est orthogonale à  $e_1$  et est notée  $e_2$ .

La polarisation  $e_1$  de l'onde traversant la direction  $(\theta, \varphi)$  a comme composante de champ électrique  $E_j^{e_1}(\omega_1)$  avec  $(j=1, 2, 3)$  donnée par (voir figure 3) :

$$\begin{aligned} E_1^{e_1}(\omega_1) &= (\cos \theta \cos \varphi \cos \delta - \sin \varphi \sin \delta) E^{e_1}(\omega_1) \\ E_2^{e_1}(\omega_1) &= (\cos \theta \sin \varphi \cos \delta + \cos \varphi \sin \delta) E^{e_1}(\omega_1) \\ E_3^{e_1}(\omega_1) &= (-\sin \theta \cos \delta) E^{e_1}(\omega_1) \end{aligned} \quad (\text{B-5})$$

ses trois équations sont exprimé par  $E_j^{e_1}(\omega_1) = (a_j^{e_1}) E^{e_1}(\omega_1)$ .

En utilisant les cosinus directeurs :

$$\left( a_j^{e_1} \right) = \begin{pmatrix} \cos \theta \cos \varphi \cos \delta - \sin \varphi \sin \delta \\ \cos \theta \sin \varphi \cos \delta + \cos \varphi \sin \delta \\ -\sin \theta \cos \delta \end{pmatrix} \quad (\text{B-6})$$

Où  $\delta$  est exprimé en fonction de  $\theta$ ,  $\varphi$  et  $\Omega$  comme :

$$\cot g 2\delta = \frac{\cot g^2 \Omega \sin^2 \theta - \cos^2 \theta \cos^2 \varphi + \sin^2 \varphi}{\cos \theta \sin 2\varphi} \quad (\text{B-7})$$

Avec  $\Omega$  est l'angle entre l'axe z et la direction de propagation de l'onde à la fréquence  $\omega_1$  dans le cristal :

$$\text{tg} \Omega = \frac{n_3(\omega_1) \left[ n_2^2(\omega_1) - n_1^2(\omega_1) \right]^{1/2}}{n_1(\omega_1) \left[ n_3^2(\omega_1) - n_2^2(\omega_1) \right]} \quad (\text{B-8})$$

et  $E^{e_1}(\omega_1)$  est une amplitude scalaire de champ polarisé  $e_1$  à la fréquence  $\omega_1$ .

De la même façon, pour une onde polarisée  $e_2$ , nous avons :  $E_j^{e_2}(\omega_1) = (a_j^{e_2}) E^{e_1}(\omega_1)$

$$\begin{pmatrix} a_j^{e_2} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\cos\theta \cos\varphi \sin\delta - \sin\varphi \cos\delta \\ -\cos\theta \sin\varphi \sin\delta + \cos\varphi \cos\delta \\ \sin\theta \sin\delta \end{pmatrix} \quad (\text{B-9})$$

et  $E^{e_2}(\omega_1)$  est une amplitude scalaire de champ polarisé  $e_2$  à la fréquence  $\omega_1$ .

### B-2-c) Développement de $d_{eff}$

La polarisation NL  $P_i(\omega_m)$  induite par l'interaction NL dans un milieu où se propage l'onde  $e_1$  ou l'onde  $e_2$  à la fréquence  $\omega_m$  sont :

$$P^{e_1}(\omega_m) = (a_i^{e_1})^* P_i(\omega_m) \quad (\text{B-10})$$

$$P^{e_2}(\omega_m) = (a_i^{e_2})^* P_i(\omega_m)$$

Les matrices  $(a_i^{e_1})^*$  et  $(a_i^{e_2})^*$  sont les transposées des matrices  $(a_i^{e_1})$  et  $(a_i^{e_2})$  respectivement.

La polarisabilité NL de second ordre induite dans un cristal biaxe est donnée par les équations suivantes :

Pour le type I ( $e_1 e_1 \rightarrow e_2$ ) on a

$$\begin{aligned} P_{e_1 e_1}^{e_2}(\omega_3) &= (a_i^{e_2})^* d_{ijk}(-\omega_3, \omega_2, \omega_1) (a_j^{e_1}) (a_k^{e_1}) E^{e_1}(\omega_1) E^{e_1}(\omega_1) \\ &= d_{eff}^I(\theta, \varphi) E^{e_1}(\omega_1) E^{e_1}(\omega_1) \end{aligned} \quad (\text{B-11})$$

Et pour le type II ( $e_2 e_1 \rightarrow e_2$ ) on obtient

$$\begin{aligned} P_{e_2 e_1}^{e_2}(\omega_3) &= (a_i^{e_2})^* d_{ijk}(-\omega_3, \omega_2, \omega_1) (a_j^{e_1}) (a_k^{e_2}) E^{e_1}(\omega_2) E^{e_2}(\omega_1) \\ &= d_{eff}^{II}(\theta, \varphi) E^{e_1}(\omega_2) E^{e_2}(\omega_1) \end{aligned} \quad (\text{B-12})$$

### B-3. Acceptance angulaire

La direction de vecteur d'onde des trois ondes en interaction est caractérisée par  $(\theta, \varphi)$ , l'accord de phase correspond à  $(\theta_m, \varphi_m)$ . Lorsque l'onde incidente varie de  $\Delta\theta$  et de  $\Delta\varphi$  autour de la direction de propagation  $(\theta_m, \varphi_m)$ , l'onde se propage le long de  $\theta = \theta_m + \Delta\theta$  et  $\varphi = \varphi_m + \Delta\varphi$ , le désaccord de phase  $\Delta K$  résultant est donné par [Yao 1992]:

$$\begin{aligned} \Delta K &= k(\omega_3) - k(\omega_2) - k(\omega_1) \\ &= \frac{2\pi}{\lambda_3} n(\omega_3) - \frac{2\pi}{\lambda_2} n(\omega_2) - \frac{2\pi}{\lambda_1} n(\omega_1) \end{aligned} \quad (\text{B-13})$$

Pour le type I :  $n(\omega_1)$  et  $n(\omega_2)$  sont les indices de réfractons de l'onde  $\bar{e}_1$  et  $n(\omega_3)$  est l'indice de réfraction de l'onde  $\bar{e}_2$ . Pour le type II,  $n(\omega_1)$  et  $n(\omega_3)$  sont les indices de réfractons de l'onde  $\bar{e}_2$  et  $n(\omega_2)$  est l'indice de réfraction de l'onde  $\bar{e}_1$ .

Puisque  $\theta$  et  $\varphi$  varient seulement au voisinage de  $\theta_m$  et  $\varphi_m$ ,  $\Delta K$  peut être développé autour de  $(\theta_m, \varphi_m)$  comme une fonction de  $\Delta\theta$  ou  $\Delta\varphi$  :

$$\Delta K = \Delta K \Big|_{\substack{\theta=\theta_m \\ \varphi=\varphi_m}} + \frac{\partial \Delta K}{\partial \theta} \Big|_{\substack{\theta=\theta_m \\ \varphi=\varphi_m}} \cdot \Delta\theta + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \Delta K}{\partial \theta^2} \Big|_{\substack{\theta=\theta_m \\ \varphi=\varphi_m}} (\Delta\theta)^2 + \dots \quad (\text{B-14})$$

$$\Delta K = \Delta K \Big|_{\substack{\theta=\theta_m \\ \varphi=\varphi_m}} + \frac{\partial \Delta K}{\partial \varphi} \Big|_{\substack{\theta=\theta_m \\ \varphi=\varphi_m}} \cdot \Delta\varphi + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \Delta K}{\partial \varphi^2} \Big|_{\substack{\theta=\theta_m \\ \varphi=\varphi_m}} (\Delta\varphi)^2 + \dots \quad (\text{B-15})$$

Au début nous considérons l'effet de changement de  $\theta$  dans  $\Delta K$ .

$$\frac{\partial \Delta K}{\partial \theta} = \frac{2\pi}{\lambda_3} \frac{\partial n(\omega_3)}{\partial \theta} + \frac{2\pi}{\lambda_2} \frac{\partial n(\omega_2)}{\partial \theta} - \frac{2\pi}{\lambda_1} \frac{\partial n(\omega_1)}{\partial \theta} \quad (\text{B-16})$$

$$\frac{\partial^2 \Delta K}{\partial \theta^2} = \frac{2\pi}{\lambda_3} \frac{\partial^2 n(\omega_3)}{\partial \theta^2} + \frac{2\pi}{\lambda_2} \frac{\partial^2 n(\omega_2)}{\partial \theta^2} - \frac{2\pi}{\lambda_1} \frac{\partial^2 n(\omega_1)}{\partial \theta^2} \quad (\text{B-17})$$

À partir de référence [Yao 1984] nous avons :

$$n(\omega_i) = \left[ \frac{2}{-B_i \pm (B_i^2 - 4C_i)^{1/2}} \right]^{1/2} \quad (\text{B-18})$$

ou  $B_i$  et  $C_i$  sont en fonction de  $\theta$  et  $\varphi$  et  $i = 1, 2, 3$ .

Donc nous trouvons que:

$$\frac{\partial n(\omega_i)}{\partial \theta} = -\frac{\sqrt{2}}{2} \left\{ -B_i \pm \left[ B_i^2 - 4C_i \right]^{1/2} \right\}^{3/2} \times \left[ -\frac{\partial B_i}{\partial \theta} \pm \frac{B_i \frac{\partial B_i}{\partial \theta} - 2 \frac{\partial C_i}{\partial \theta}}{\left( B_i^2 - 4C_i \right)^{1/2}} \right] \quad (\text{B-19})$$

$$\frac{\partial^2 n(\omega_i)}{\partial \theta^2} = \frac{\partial}{\partial \theta} \left[ \frac{\partial n(\omega_i)}{\partial \theta} \right] \quad (\text{B-20})$$

Pour le type I, le signe négatif doit être tenu dans l'équation (B-18) et (B-19) quand  $i=1,2$  et le signe positif quand  $i=3$ . Pour le type II, le signe positif est nécessaire dans les équations dont  $i=1, 3$  et le signe négatif pour  $i=2$ .

$B_i$  et  $C_i$  sont donnée par [Yao 1984] :

$$B_i = (\sin^2 \theta) (\cos^2 \varphi) \left[ n_y^{-2}(\omega_i) + n_z^{-2}(\omega_i) \right] - (\sin^2 \theta) (\sin^2 \varphi) \left[ n_x^{-2}(\omega_i) + n_z^{-2}(\omega_i) \right] - \cos^2 \theta \left[ n_x^{-2}(\omega_i) + n_y^{-2}(\omega_i) \right] \quad (B-21)$$

$$C_i = (\sin^2 \theta) (\cos^2 \varphi) \left[ n_y^{-2}(\omega_i) n_z^{-2}(\omega_i) \right] - (\sin^2 \theta) (\sin^2 \varphi) \left[ n_x^{-2}(\omega_i) n_z^{-2}(\omega_i) \right] + \cos^2 \theta \left[ n_x^{-2}(\omega_i) n_y^{-2}(\omega_i) \right] \quad (B-22)$$

La dérivé de  $B_i$  et de  $C_i$  par rapport à  $\theta$  sont :

$$\frac{\partial B_i}{\partial \theta} = \left[ n_x^{-2}(\omega_i) + n_y^{-2}(\omega_i) - n_z^{-2}(\omega_i) - n_x^{-2}(\omega_i) \sin^2 \varphi - n_y^{-2}(\omega_i) \cos^2 \varphi \right] \sin 2\theta \quad (B-23)$$

$$\frac{\partial C_i}{\partial \theta} = \left[ n_y^{-2}(\omega_i) n_z^{-2}(\omega_i) \cos^2 \varphi + n_x^{-2}(\omega_i) n_z^{-2}(\omega_i) \sin^2 \varphi - n_x^{-2}(\omega_i) n_y^{-2}(\omega_i) \right] \sin 2\theta \quad (B-24)$$

Insérons les équations (B-18), (B-19), (B-23) et (B-24) dans les équations (B-16) et (B-17),

nous obtenons les expressions de  $\frac{\partial \Delta K}{\partial \theta}$  et  $\frac{\partial^2 \Delta K}{\partial^2 \theta}$ .

Sous l'approximation de faible signal, l'efficacité de conversion d'énergie de processus à trois ondes est proportionnelle à  $\text{sinc}^2[\Delta K \cdot L/2]$ . Si nous définissons l'acceptance angulaire comme :

$$\Delta K \cdot L/2 = \pm \pi \quad (B-25)$$

Et en insérant l'équation (B-25) dans l'équation (B-14), nous obtenons le résultat suivant en retenant le premier et le deuxième termes dans le développement de Taylor de  $\Delta K$  :

$$\frac{\partial \Delta K}{\partial \theta} \Delta \theta + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \Delta K}{\partial^2 \theta} \Delta \theta^2 = \frac{2\pi}{L} \quad (B-26)$$

ou

$$\frac{\partial \Delta K}{\partial \theta} \Delta \theta + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \Delta K}{\partial^2 \theta} \Delta \theta^2 = -\frac{2\pi}{L} \quad (B-27)$$

Les solutions des ces deux équations, qui déterminent l'acceptance angulaire  $\Delta \theta$ , sont données par l'intersection des fonctions quadratiques du coté gauche des deux équations (B-26) et (B-27) et des deux fonctions linéaires de coté droit de ces équations. Il y a deux cas possibles pour les solutions des équations (B-26) et (B-27):

- 1) Si les solutions existent pour les deux équations (B-26) et (B-27) et si  $\frac{\partial^2 \Delta K}{\partial^2 \theta} > 0$ , l'équation (B-26) a deux solutions de signes opposés, dénotées  $\Delta \theta_1$  et  $\Delta \theta_2$  respectivement. L'équation (B-27) a aussi deux solutions  $\Delta \theta_3$  et  $\Delta \theta_4$  mais de même signe, avec  $|\Delta \theta_3| < |\Delta \theta_4|$ . À partir des relations géométriques analytiques entre ces solutions nous trouvons que:

$|\Delta\theta_2| > |\Delta\theta_4| > |\Delta\theta_3|$  ou  $\Delta\theta_2, \Delta\theta_3$  et  $\Delta\theta_4$  portent le même signe. L'acceptance angulaire est donc donnée par  $\Delta\theta = \min(|\Delta\theta_1|, |\Delta\theta_2|)$ .

De la même façon, si  $\frac{\partial^2 \Delta K}{\partial^2 \theta} < 0$ , l'équation (B-27) a deux solutions de signes opposés,  $\Delta\theta_1$

et  $\Delta\theta_2$  et l'équation (B-27) a deux solutions de mêmes signes,  $\Delta\theta_3$  et  $\Delta\theta_4$  qui sont le même que celui de  $\Delta\theta_2$ .  $\Delta\theta_2, \Delta\theta_3$  et  $\Delta\theta_4$  satisfont au  $|\Delta\theta_2| > |\Delta\theta_4| > |\Delta\theta_3|$ . L'acceptance angulaire dans ce cas est à nouveau donnée par  $\Delta\theta = \min(|\Delta\theta_1|, |\Delta\theta_2|)$ .

2) Si une seule de ces deux équations (B-26) ou (B-27) a une solution  $\Delta\theta_1$  et  $\Delta\theta_2$  et l'autre n'en a pas, l'acceptance angulaire est  $\Delta\theta = \min(|\Delta\theta_1|, |\Delta\theta_2|)$ .

De la même façon, en remplaçant  $\frac{\partial B_i}{\partial \theta}$  et  $\frac{\partial C_i}{\partial \theta}$  dans l'équation (B-19) et (B-20) par  $\frac{\partial B_i}{\partial \varphi}$  et

$$\frac{\partial C_i}{\partial \varphi} :$$

$$\frac{\partial B_i}{\partial \varphi} = [n_y^{-2}(\omega_i) + n_x^{-2}(\omega_i)] \sin^2 \theta \sin 2\varphi \quad (\text{B-28})$$

$$\frac{\partial C_i}{\partial \varphi} = [n_x^{-2}(\omega_i) + n_y^{-2}(\omega_i)] n_z^{-2}(\omega_i) \sin^2 \theta \sin 2\varphi \quad (\text{B-29})$$

À partir des équations (B-16) et (B-17), nous pouvons obtenir  $\frac{\partial \Delta K}{\partial \theta}$  et  $\frac{\partial^2 \Delta K}{\partial^2 \theta}$  et à partir

des équations (B-15) et (B-25) nous obtenons :

$$\frac{\partial \Delta K}{\partial \varphi} \Delta \varphi + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \Delta K}{\partial^2 \varphi} \Delta \varphi^2 = \frac{2\pi}{L} \quad (\text{B-30})$$

$$\frac{\partial \Delta K}{\partial \varphi} \Delta \varphi + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \Delta K}{\partial^2 \varphi} \Delta \varphi^2 = -\frac{2\pi}{L} \quad (\text{B-31})$$

La même analyse qui conduit à la détermination de  $\Delta\theta$  est appliquée à la discussion de  $\Delta\varphi$  qui peut être déterminée par l'analyse des caractéristiques des solutions des équations (B-30) et (B-31).

# Annexe C

---

*Programme de mesure expérimental de  $d_{eff}$*

### C-1. Programme de mesure expérimental de $d_{eff}$

La mesure de  $d_{eff}$  pour un faisceau Gaussien se fait à partir de la formule de l'efficacité de conversion établie au chapitre II:

$$\Gamma_{SH} = \frac{P(2\omega)}{P^2(\omega)} = \frac{2\omega^2 d_{eff}^2}{\pi \epsilon_0^3 n_{\omega}^2 n_{2\omega}^2} \frac{L^2}{\omega_0^2} G_i(\lambda, t, f, \beta, \epsilon) \quad (C-1)$$

où la fonction  $G_i(\lambda, t, f, \beta, \epsilon)$  est une double intégrale qui tient compte des paramètres de faisceau et de cristal :

$$G_i(\lambda, t, f, \beta, \epsilon) = t^{-2} \int_0^t \int_0^t dy dy' \frac{\exp\left[-\lambda(y+y') - b(y-y')^2 - c(y^2+y'^2)\right]}{[1+i(y/\beta-f)][1-i(y'/\beta-f)]} \exp[-i\epsilon(y-y')] \quad (C-2)$$

avec

$P(\omega)$  : est la puissance IR fondamentale mesurée.

$P(2\omega)$  : est la puissance de l'onde harmonique mesurée.

Les valeurs du coefficient non-linéaire effectif  $d_{eff}$  sont déduites des mesures grâce à un programme mis au point sous Labview et demandant l'introduction des différents données.

Dans un premier temps, nous donnons les différentes paramètres du cristal : longueur du cristal, caractère uniaxe ou biaxe, valeurs des indices de réfraction  $\omega$  et  $2\omega$ , type d'accord de phase I ou II, type de l'onde à  $2\omega$  (ordinaire ou extraordinaire). Puis sont données la taille du waist et la valeur de la fonction G. À partir des valeurs d'indices à  $\omega$  et  $2\omega$  et des angles d'accord de phase dans le cas d'un cristal biaxe, les pseudo-indices vus par le cristal sont calculés.

#### Remarque :

Le programme de calcul de pseudo-indices permet seulement ce calcul dans un des quatre cas où si  $\theta = 90^\circ$  ou  $\theta = 0^\circ$  ou  $\varphi = 90^\circ$  ou  $\varphi = 0^\circ$  à partir de l'équation suivante :

$$\frac{\sin^2 \theta \cos^2 \varphi}{n(\theta, \varphi)^{-2} - n_x^{-2}} + \frac{\sin^2 \theta \sin^2 \varphi}{n(\theta, \varphi)^{-2} - n_y^{-2}} + \frac{\cos^2 \theta}{n(\theta, \varphi)^{-2} - n_z^{-2}} = 0$$

Il faut préciser si le cristal est traité antireflet ou non. Dans le cas positif, les coefficients de réflexions sont considérés nuls. Dans le cas contraire, nous calculons les coefficients de réflexions à incidence normale pour l'onde à  $\omega$  et à  $2\omega$ , nos mesures étant faites sur des cristaux taillés selon l'angle d'accord de phase.

Le coefficient de réflexion est donné par :

$$C = \frac{n-1}{n+1} \quad (C-3)$$

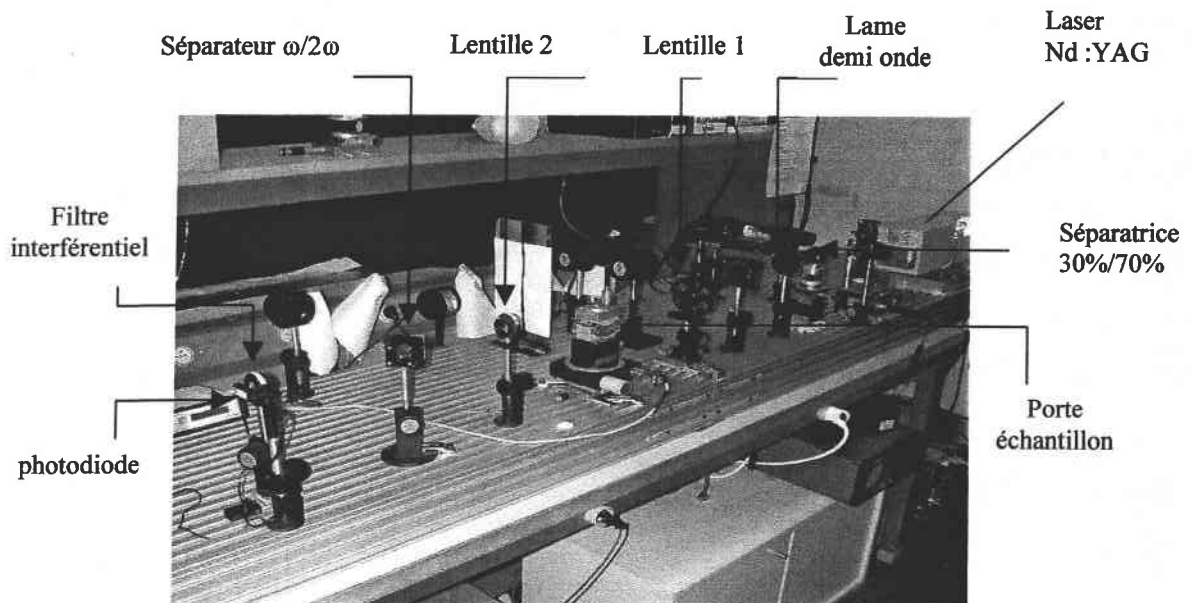
ou  $n$  est l'indice de réfraction.

Dans le cas du type I ( $o \rightarrow e$ ) nous avons :  $n = n_o$ ; pour  $e \rightarrow o \Rightarrow n = n_e$

Et pour le type II ( $o \rightarrow e$  ou  $e \rightarrow o$ ) l'indice de réfraction est présenté par :  $n = (n_o + n_e)/2$

Comme observé sur le schéma expérimental les puissances  $P(2\omega)$  et  $P(\omega)$  ne sont pas mesurées directement à la sortie et à l'entrée du cristal. Un coefficient  $K$  tient compte des coefficients de réflexions et de transmission de différents éléments optiques intermédiaire utilisés dans le montage. Les puissances fondamentales et harmoniques à l'entrée et à la sortie de cristal sont alors données par:

$$\Gamma_{SH \text{ réel}} = K \Gamma_{SH \text{ exp}}$$



Dans le calcul de  $P(2\omega)$  les facteurs suivants interviennent avec leurs coefficients respectifs :

- ✓ **a**: le coefficient de transmission du filtre interférentiel : 0,58.
- ✓ **b**: le coefficient de transmission dans le vert du séparateur  $\omega/2\omega$  : 0,93.
- ✓ **c**: le coefficient de transmission de la lentille après l'échantillon 0,98.

Pour avoir  $P(2\omega)$  réel, il faut tenir compte ainsi du coefficient de réflexion de la face de sortie du cristal d'où :

$$P(2\omega)_{\text{réel}} = [1/(a \times b \times c) (1 - C_{2\omega}^2)] \times P(2\omega)_{\text{mesurée}} \quad (C-4)$$

Pour avoir  $P(\omega)$  réel, nous tenons compte de la correction entre le bras de référence et le bras principal en mesurant le rapport de la puissance mesurée après la lentille de focalisation



et la puissance mesurée sur le bras de référence :  $d$ . Il faut aussi tenir compte de coefficient de réflexion de la première face de cristal d'où :

$$P^2(\omega)_{\text{réel}} = d^2 \times (1 - C_{\omega}^2)^2 \times P^2(\omega)_{\text{mesurée}} \quad (\text{C-5})$$

Alors le coefficient K est  $[1/(a \times b \times c) \times (1 - C_{2\omega}^2) \times d^2 \times (1 - C_{\omega}^2)^2]$

Après la détermination de coefficient K, nous obtenons le rapport  $\left[ \frac{P(2\omega)}{(P(\omega))^2} \right]$  réel et nous pouvons en déduire la valeur de  $d_{\text{eff}}$  moyenne ainsi que l'erreur expérimentale obtenue à partir de calcul de l'écart type d'un nombre donné de mesures.

# Annexe D

---

## *Franges de Maker*

<b>D-1. Introduction.....</b>	<b>D-2</b>
<b>D-2. Théorie des franges de Maker.....</b>	<b>D-2</b>
D-2-1) Description du phénomène.....	D-2
D-2-2) Génération et propagation de l'onde harmonique.....	D-3
D-2-3) Intensité et puissance en sortie du cristal.....	D-5
<b>D-3. Mesure de coefficient <math>d_{33}</math> du cristal LTB.....</b>	<b>D-6</b>
D-3-1) Configuration géométrique.....	D-7
D-3-2) Résultats expérimentaux.....	D-7
D-3-3) Commentaire.....	D-8
D-3-4) Perspectives.....	D-9

## D-1. Introduction

Les franges de Maker sont un phénomène typique de la propagation de la lumière dans un milieu non linéaire. Elles furent mises en évidence en 1962 par Maker et al [Maker 1962], qui constatèrent qu'en faisant varier l'angle d'incidence d'un faisceau laser sur un cristal non linéaire (du quartz), l'intensité de l'onde de second harmonique générée variait quasi périodiquement.

L'explication de ce phénomène est fournie par la nature de l'onde générée : celle-ci peut être décomposée en deux ondes, l'une appelée onde liée et l'autre onde libre. Les franges de Maker correspondent à l'interférence de ces deux ondes.

Grâce aux franges de Maker, nous pouvons mesurer la génération de second harmonique due à une seule composante du tenseur non linéaire. Pour cela, il est nécessaire de contrôler avec exactitude la polarisation du faisceau incident, ainsi que la polarisation de l'onde harmonique.

Dans cette annexe, les résultats obtenus par la technique des franges de Maker pour le cristal LTB sont donnés et discutés en les comparant avec ceux trouvés dans la littérature.

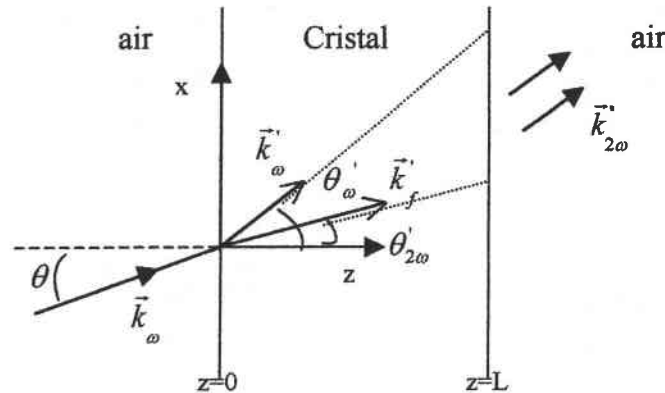
## D-2. Théorie des franges de Maker

### D-2-1) Description du phénomène

Lorsqu'une onde électromagnétique plane se propage dans un matériau non linéaire, le champ électrique  $\vec{E}_\omega$ , de pulsation  $\omega$  et de vecteur d'onde  $\vec{k}_\omega$ ; induit une polarisation non linéaire de pulsation  $2\omega$ . Cette polarisation émet elle-même une onde électromagnétique de pulsation  $2\omega$ . Cette onde est liée à la propagation de l'onde fondamentale dans le milieu, appelée onde liée de vecteur d'onde  $\vec{k}'_\omega$ . Elle se déplace dans une direction d'indice  $n_\omega$  et à un angle de réfraction  $\theta'_\omega$  (figure 1) [Jerphagnon 1970].

De plus à l'interface d'entrée, une onde harmonique est émise et se propage indépendamment de l'onde fondamentale, appelée onde libre de vecteur d'onde  $\vec{k}_f$ . Elle se déplace dans une direction d'indice  $n_{2\omega}$  et fait un angle  $\theta'_{2\omega}$  avec la normale [Jerphagnon 1970].

$\theta$  : est l'angle d'incidence du faisceau laser dans le cristal, mesuré entre la direction du faisceau et la normal à la surface.



**Figure 1** : Représentation de la propagation des ondes de second harmonique dans un cristal non linéaire de longueur  $L$ .

Le cristal est supposé sans perte d'absorption pour les deux fréquences fondamentales et harmoniques.

Nous nous plaçons dans l'hypothèse où le vecteur de Poynting est colinéaire avec le vecteur d'onde  $\vec{k}$  pour l'onde harmonique et fondamentale.

Nous supposons aussi que la dimension de l'échantillon est infinie [Jerphagnon 1970].

#### D-2-2) Génération et propagation de l'onde harmonique

La polarisation non linéaire  $\vec{P}'_{2\omega}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} [\vec{P}'_{2\omega} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} e^{-i\omega t} + c.c.]$  est introduite comme un terme de source dans l'équation de Maxwell [Jerphagnon 1970]:

$$\vec{\nabla} \times \vec{\nabla} \times \vec{E}'_{2\omega}(\vec{r}, t) + \frac{n_{2\omega}^2}{c^2} \left[ \frac{\partial^2 \vec{E}'_{2\omega}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} \right] = - \left( \frac{4\pi}{c^2} \right) \left[ \frac{\partial^2 \vec{P}'_{2\omega}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} \right] \quad (D-1)$$

Cette équation possède une solution générale sans second membre, qui correspond à la propagation libre d'une onde à  $2\omega$  dans le milieu, d'indice  $n_{2\omega}$ , et une solution particulière avec second membre, correspondant à l'onde liée. Alors l'expression générale de  $\vec{E}'_{2\omega}$  est :

$$\vec{E}'_{2\omega} = \underbrace{\vec{e}_f E'_f \exp(i\vec{k}_f \cdot \vec{r})}_{\text{onde libre}} + \underbrace{\vec{e}_b \left( \frac{4\pi P'_{2\omega}}{n_{\omega}^2 - n_{2\omega}^2} \right) \exp(i\vec{k}_b \cdot \vec{r})}_{\text{onde liée}} \left( \vec{p} - \frac{(\vec{k}_b \cdot \vec{p})}{|\vec{k}_f|^2} \vec{k}_b \right) \quad (D-2)$$

Les indices f et b désignent respectivement l'onde libre et l'onde liée.

Nous définissons les différents paramètres:

$$\vec{P} \left( P_x, P_y, P_z \right) \text{ vecteur unité de } \vec{P}'_{2\omega}.$$

$$|\vec{k}_f| = n_{2\omega} \left( \frac{2\omega}{c} \right) \text{ vecteur d'onde de l'onde libre.}$$

$$|\vec{k}_b| = n_{\omega} \left( \frac{2\omega}{c} \right) \text{ vecteur d'onde de l'onde liée.}$$

Les conditions aux limites, sur les interfaces d'entrée et de sortie, déterminent les amplitudes et les directions de propagation [Jerphagnon 1970]. Alors dans le cas :

➤ La polarisation non linéaire est perpendiculaire au plan d'incidence :

Le champ harmonique peut s'écrire [Jerphagnon 1970] :

$$\vec{E}'_{2\omega} = \vec{y} Q' \left( \frac{\cos\theta + n_{\omega} \cos\theta'}{n_{2\omega} \cos\theta' + \cos\theta} \exp(i\vec{k}_f \cdot \vec{r}) + \exp(i\vec{k}_b \cdot \vec{r}) \right) \quad (\text{D-3})$$

$$\text{avec : } Q' = \frac{4\pi P'_{2\omega}}{n_{\omega}^2 - n_{2\omega}^2}$$

➤ La polarisation non linéaire est dans le plan d'incidence :

Le champ harmonique peut s'écrire [Jerphagnon 1970] :

$$\vec{E}'_{2\omega} = -\vec{e}_f \beta Q' \exp(i\vec{K}_f \cdot \vec{r}) + \vec{e}_b Q' \exp(i\vec{K}_b \cdot \vec{r})$$

$$\text{avec : } \beta = \frac{b_x + n_{\omega} \cos\theta (p_x \cos\theta'_{\omega} - p_z \sin\theta'_{\omega})}{\cos\theta_{2\omega} + n_{2\omega} \cos\theta}$$

$$\text{où } \vec{e}_b = (b_x, 0, b_z)$$

$$\text{tels que : } b_x = p_x - \left( \frac{n_{\omega}}{n_{2\omega}} \right)^2 \sin\theta'_{\omega} (\sin\theta'_{\omega} p_x + \cos\theta'_{\omega} p_z)$$

$$b_z = p_z - \left( \frac{n_{\omega}}{n_{2\omega}} \right)^2 \cos\theta'_{\omega} (\sin\theta'_{\omega} p_x + \cos\theta'_{\omega} p_z)$$

À la sortie du cristal, l'onde harmonique a un vecteur d'onde  $k''_{2\omega} = 2k_{\omega}$ .

Une partie de l'onde libre est réfléchiée à l'intérieur du cristal. Pour tenir compte des interactions dues aux réflexions multiples, un terme correctif est introduit dans l'expression la puissance harmonique :  $R(\theta)$ .

L'application de la condition limite aux champs électriques et magnétiques à la face de sortie de cristal, nous permet de calculer l'amplitude de champ transmis.

*D-2-3) Intensité et puissance en sortie du cristal*

L'intensité  $I_{2\omega}''$  du faisceau de SH transmis est déduit à partir de :

$$I_{2\omega}'' = \frac{c}{8\pi} |E_{2\omega}''|^2$$

L'intensité de second harmonique s'écrit comme la somme de deux termes le premier terme dépend de  $\psi$  et l'autre non.

- Si la polarisation non linéaire est perpendiculaire au plan d'incidence :

$$I_{2\omega}'' = \frac{c}{8\pi} \frac{16\pi^2 |\vec{P}_{2\omega}'|^2}{(n_{\omega}^2 - n_{2\omega}^2)^2} \left[ \frac{8n_{2\omega} \cos\theta'_{2\omega} \frac{(\cos\theta + n_{\omega} \cos\theta'_{\omega})(n_{2\omega} \cos\theta'_{2\omega} + n_{\omega} \cos\theta'_{\omega})}{(\cos\theta + n_{2\omega} \cos\theta'_{2\omega})^3} \sin^2\psi}{\left( \frac{n_{\omega} \cos\theta'_{\omega} - n_{2\omega} \cos\theta'_{2\omega}}{(\cos\theta + n_{2\omega} \cos\theta'_{2\omega})^4} (n_{2\omega} \cos\theta'_{2\omega} - \cos\theta)^2 \right)} \right] \quad (D-4)$$

où

$$\psi = \left( \frac{\pi L}{2} \right) \left( \frac{4}{\lambda} \right) (n_{\omega} \cos\theta'_{\omega} - n_{2\omega} \cos\theta'_{2\omega}) \quad (D-5)$$

$$\sin\theta'_{\omega} = \frac{\sin\theta}{n_{\omega}} \quad \text{et} \quad \sin\theta'_{2\omega} = \frac{\sin\theta}{n_{2\omega}}$$

$c$  : la vitesse de la lumière.

Le second terme dans cette équation ne dépend pas de  $L$  et n'apporte qu'une faible contribution à  $I_{2\omega}''$ , généralement, il est négligé.

- Si la polarisation non linéaire est dans le plan d'incidence :

Le calcul est plus délicat, car  $E_{2\omega}''$  dépend de la projection de vecteur  $\vec{p}$  sur le plan de l'onde liée (c'est à dire l'onde fondamentale):

$$I_{2\omega}'' = \frac{c}{8\pi} \frac{16\pi^2 |\vec{P}_{2\omega}'|^2}{(n_{\omega}^2 - n_{2\omega}^2)^2} \left\{ 8n_{2\omega} \cos\theta'_{2\omega} \cos^2(\theta'_{\omega} - \eta) \frac{(n_{\omega} \cos\theta + \cos\theta'_{\omega})(n_{2\omega} \cos\theta'_{2\omega} + n_{\omega} \cos\theta'_{2\omega})}{(n_{2\omega} \cos\theta + \cos\theta'_{2\omega})^3} \sin^2\psi \right\} \quad (D-6)$$

Avec  $\eta$  est l'angle entre les deux vecteurs unitaires  $\vec{p}$  et  $\vec{x}$ .

Alors la puissance de second harmonique transmise est :

$$P_{2\omega}'' = \left( \frac{512\pi^2}{A} \right) d^2 t_{\omega}''^4 T_{2\omega}'' R(\theta) p(\theta)^2 P_{\omega}^2 \left[ \frac{1}{(n_{\omega}^2 - n_{2\omega}^2)^2} \right] \sin^2 \psi \quad (D-7)$$

$d$  : le coefficient NLO.

$P_{\omega}$  : la puissance fondamentale.

$t_{\omega}''$ ,  $T_{2\omega}''$  sont des fonctions de transmission qui dépendent de l'angle d'incidence et les indices de réfractons [Jerphagnon 1970].

$A$  : est la surface du faisceau.

$R(\theta)$  : est la correction de réflexions multiples

$$\text{ou } R(\theta) = \frac{1}{(1 - r_{2\omega}^4)(1 - r_{\omega}^8)} \left\{ 1 + \left[ \frac{p_R^2(\theta)}{p^2(\theta)} \right] r_{2\omega}^2 r_{\omega}^4 \right\} \quad (D-8)$$

Ce coefficient ne s'éloigne de 1 que pour des valeurs d'indices élevés ( pour  $n = 2$ ,  $R(0) \approx 1.01$ , mais pour  $n = 4$ ,  $R(0) = 1,20$ ).

$r$  : est le coefficient de réflexion.

$p(\theta)$  : le facteur projection, est le produit de deux quantité  $p_1$  et  $p_2$  données dans la publication [Jerphagnon 1970] pour différents groupes d'espace.

$p_R(\theta)$  : est généralement proche à  $p(\theta)$ .

En terme de puissance, et en tenant compte du caractère gaussien du champ fondamental et des réflexions multiples, nous pouvons mettre l'expression des franges de Maker sous la forme suivante [Jerphagnon 1970]:

$$P_{2\omega}'' = \left( \frac{512\pi^2}{A} \right) d^2 t_{\omega}''^4 T_{2\omega}'' R(\theta) p(\theta)^2 P_{\omega}^2 \left[ \frac{1}{(n_{\omega}^2 - n_{2\omega}^2)^2} \right] B(\theta) \sin^2 \psi \quad (D-9)$$

-  $B(\theta) = \exp \left( - \left( \frac{L^2}{\omega_0^2} \right) \cos^2 \theta (\tan \theta_{\omega}'' - \tan \theta_{2\omega}'')^2 \right)$  facteur de correction qui tient compte de l'effet de

la taille du faisceau.

-  $\omega_0$  : le waist du faisceau gaussien.

### D-3. Mesure de coefficient $d_{33}$ du cristal LTB

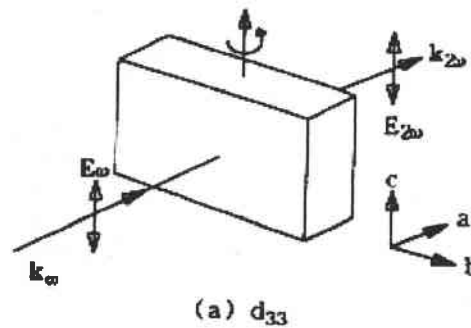
À partir de la technique d'accord de phase, correspondant à la détermination de  $d_{\text{eff}}$  sous la condition d'accord de phase par mesure de la puissance harmonique, seule la valeur de  $d_{31}$  apparaît dans le développement de  $d_{\text{eff}}$  pour le cristal de LTB.

Dans le tenseur de GSH de LTB (voir chapitre I), le coefficient  $d_{33}$  apparaît aussi un coefficient non nul à déterminer. Pour accéder à cette valeur, nous avons mis au point la technique des franges de Maker.

Cette technique nous permet de mesurer directement le coefficient non linéaire  $d_{33}$  sans passer par le coefficient effectif  $d_{\text{eff}}$ , en adaptant une configuration géométrique du cristal et des conditions de polarisation des ondes à  $\omega$  et à  $2\omega$  bien précises.

### D-3-1) Configuration géométrique

Le cristal LTB est de groupe d'espace 4mm, afin de déterminer le coefficient  $d_{33}$  nous utilisons la configuration suivante (figure 2):



**Figure 2 :** Configuration géométrique de LTB taillé selon les axes cristallographiques pour la mesure de coefficient  $d_{33}$

Le coefficient  $d_{33}$  correspond à une polarisation optique dirigée selon l'axe  $z$ , et due à un champ incident polarisé suivant  $z$  :  $P_z = d_{33} E_z^2$ ,  $P_x = P_y = 0$ .

Où  $P_x$ ,  $P_y$ ,  $P_z$  sont les composantes de polarisation quadratique induite le long des axes du cristal  $x$  ( $=a$ ),  $y$  ( $=b$ ) et  $z$  ( $=c$ ).

Il est donc nécessaire de placer un polariseur sur le faisceau à  $2\omega$ , ainsi qu'un autre polariseur sur le faisceau incident.

Pour nos mesures, nous utilisons le laser Nd :YAG en mode impulsif pour obtenir une efficacité de conversion suffisante.

### D-3-2) Résultats expérimentaux

Nous disposons de deux échantillons, taillés selon les axes cristallographiques et polis selon les faces souhaitées pour mesurer le coefficient  $d_{33}$ , de longueurs 4,5 mm et 1,355 mm selon l'axe  $x$ .



Les résultats expérimentaux obtenus à partir de cette configuration pour ces deux échantillons de longueurs différentes sont présentés dans les figures suivantes :

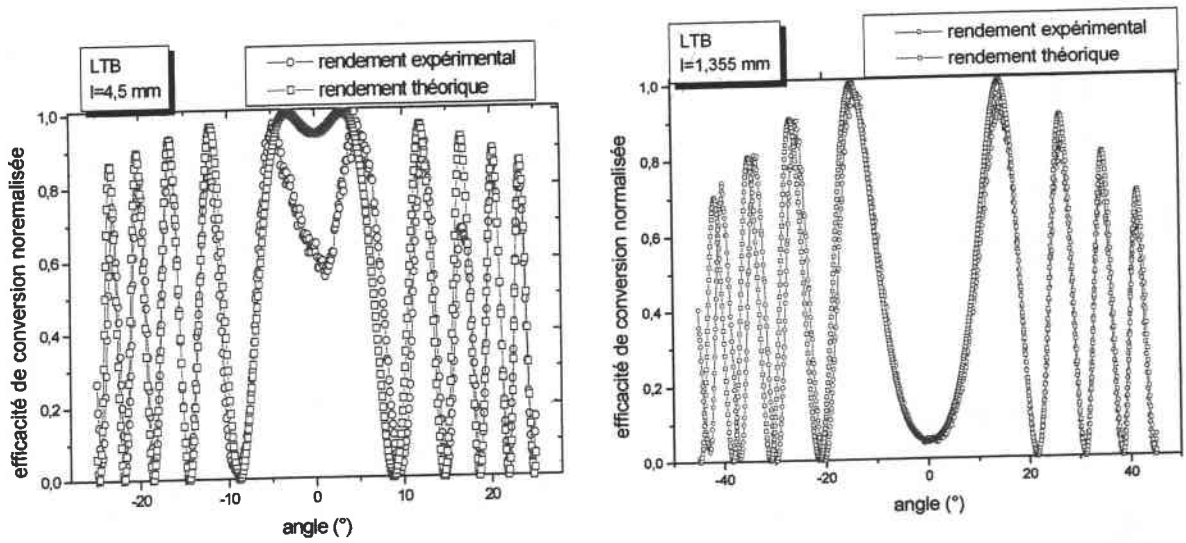


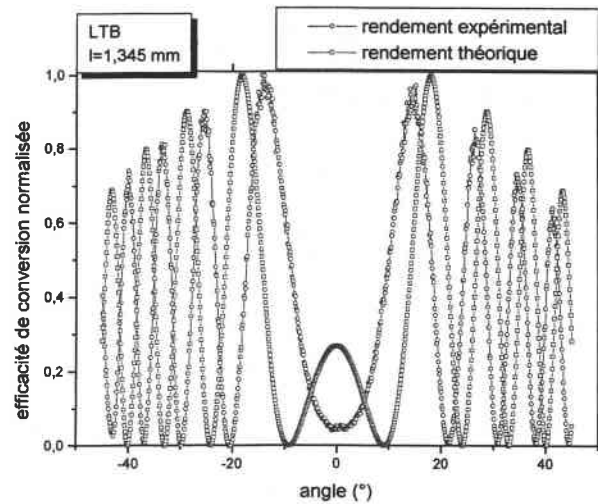
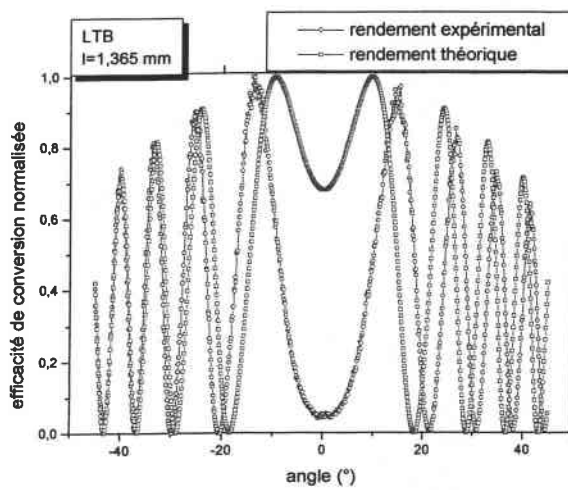
Figure 3 : Frange de Maker expérimentales et théoriques pour LTB de longueurs 1,355 mm et 4,5 mm

La figure 3 montre les franges de Maker obtenues dans cette configuration avec les deux cristaux de LTB. Les cercles rouges représentent le rendement de conversion expérimental alors que le rendement théorique, calculé à partir de l'équation (D-9) en négligeant les réflexions multiples  $R(\theta)$  et  $p(\theta) = 1$  dans le cas de groupe ponctuel 4mm (est celui de cristal LTB) [Jerphagnon 1970], est illustré avec des carrés bleus.

### D-3-3) Commentaire

Nous remarquons le bon accord entre les courbes théoriques et expérimentales pour les deux longueurs d'échantillon dont nous disposons.

Nous notons que les courbes théoriques sont très critiques à la longueur du cristal, et que un changement de 0,01 mm change totalement la forme de la courbe :



#### D-3-4) Perspectives

Dans les courbes de franges de Maker nous utilisons le Nd :YAG en mode impulsif. Afin de déterminer la valeur de  $d_{33}$ , nous sommes obligés d'utiliser un cristal de référence dont ses propriétés ONL sont connues comme le quartz ou le KDP.

Le fait de ne pas avoir un échantillon de référence, ne nous a pas permis de finir ce travail, mais nous a donné une ouverture à un travail très intéressant qui va nous permettre de déterminer les différents coefficients  $d_{ij}$  des différents échantillons.

## Résumé

« *Etude par génération de second harmonique (GSH) des propriétés optiques non linéaires du tétraborate de lithium ( $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ )* »

Les borates, grâce à leur large domaine de transparence et leur seuil de dommage optique élevé, présentent un grand intérêt sur le plan des propriétés optiques. Aussi de nombreuses études ont été menées ces dernières années sur la synthèse de nouveaux composés, sur les procédés d'obtention de cristaux de bonne qualité, et naturellement sur l'examen des différentes propriétés physiques des matériaux.

Dans ce mémoire, nous nous sommes intéressés à l'étude des propriétés optiques non linéaires (ONL) par génération de second harmonique (GSH) de cristaux borates et spécifiquement du tétraborate de lithium  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  (LTB) pur et dopé.

Les mesures des coefficients optiques non linéaires trouvées dans la littérature étant souvent relatives, elles conduisent à une large gamme de valeurs pour un même composé, la valeur de référence étant elle même

controversée. Cette constatation nous a conduit à développer une technique de mesure absolue des coefficients ONL sur des cristaux taillés selon l'angle d'accord de phase. Nos mesures sont effectuées à température ambiante, avec un laser Nd:YAG ( $\lambda = 1064$  nm) en mode continu focalisé sur l'échantillon. La théorie des faisceaux gaussiens, utilisés pour calculer la répartition d'intensité dans le cristal, permet de tenir compte de la réponse spécifique du matériau en fonction des conditions de focalisation. Grâce à ce calcul théorique et à la mesure expérimentale de l'efficacité de conversion, le coefficient ONL peut être déterminé.

Les coefficients ONL effectifs de LTB pur et dopé sont mesurés par cette technique ainsi que ceux d'autres borates comme le métaborate de baryum  $\text{BaB}_2\text{O}_4$  (BBO) et le borate de césium et de lithium  $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$  (CLBO). Les coefficients  $d_{ij}$  intervenant dans le développement des  $d_{\text{eff}}$  en sont déduits. L'acceptance angulaire définie comme la variation angulaire pour laquelle l'efficacité de conversion est égale à sa demi valeur maximale, est aussi étudiée pour ces différents matériaux. Une interprétation théorique de sa variation en fonction des conditions de focalisation est proposée.

**Mots clés :** Optique non linéaire ; Génération de second harmonique, Acceptance angulaire, Matériaux optiques ; Borate ; Tétraborate de lithium  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  ; Métaborate de baryum  $\text{BaB}_2\text{O}_4$ , Borate de césium et de lithium  $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$

## Abstract

« *Second harmonic generation (SHG) study of nonlinear optical properties of lithium tetraborate ( $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ ) crystals* »

Due to their large transparency range and their high optical damage threshold, borates are attractive optical properties. These last years, several investigations on the synthesis of new composites, on the processes to growth high quality crystals and naturally on the different physical properties have been made.

In this thesis, we study the non-linear optical (NLO) properties by second harmonic generation (SHG) of borate crystals, and specifically of pure and doped lithium tetraborate  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  (LTB).

Measurements of non-linear optical coefficients found in the literature are often relative and lead to a wide range of values for the same compound, the reference value being it self controverted. For this reason, we

have developed a technique of absolute measurement of the NLO coefficients on crystals cutted along the phase matching direction. Our measurements are performed at room temperature with a Nd:YAG laser ( $\lambda = 1064 \text{ nm}$ ) in continuous mode, focused on the sample. A Gaussian beam theory, used to calculate the intensity distribution inside the crystal, allows to take into account the material specific response as a function of the focusing conditions. Using this theoretical calculations, as well as experimental values of the conversion efficiency, the NLO coefficients can be determined.

Effective NLO coefficients of pure and doped LTB are measured using this technique as well as those of other borates like barium metaborate  $\text{BaB}_2\text{O}_4$  (BBO) and cesium-lithium borate  $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$  (CLBO). The  $d_{ij}$  coefficients involved in the  $d_{\text{eff}}$  development are deduced. The angular acceptance, defined as the angular variation for which the conversion efficiency is equal to its half-maximal value, is also studied for these various materials. A theoretical interpretation of its variation as function of the focusing conditions is proposed.

**Keywords:** Non-linear optic ; Second harmonic generation, Angular acceptance, Optics materials; Borate ; Lithium tetraborate  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  ; Barium metaborate  $\text{BaB}_2\text{O}_4$ , Cesium lithium borate  $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$