

Titre: Détermination absolue de la distribution spatiale de la non-linéarité
Title: de second ordre dans des échantillons plans

Auteur: Vincent Tréanton
Author:

Date: 2005

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Tréanton, V. (2005). Détermination absolue de la distribution spatiale de la non-linéarité de second ordre dans des échantillons plans [Ph.D. thesis, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/7576/>
Citation:

 **Document en libre accès dans PolyPublie**
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/7576/>
PolyPublie URL:

Directeurs de recherche: Suzanne Lacroix, & Nicolas Godbout
Advisors:

Programme: Unspecified
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

Détermination absolue de la distribution spatiale de la non-linéarité
de second ordre dans des échantillons plans

TRÉANTON Vincent

DÉPARTEMENT DE GÉNIE PHYSIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

THÈSE PRÉSENTÉE EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE PHILOSOPHIÆ DOCTOR
(GÉNIE PHYSIQUE)

JUIN 2005

©TRÉANTON Vincent 2005.



Library and
Archives Canada

Bibliothèque et
Archives Canada

Published Heritage
Branch

Direction du
Patrimoine de l'édition

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file Votre référence

ISBN: 978-0-494-17015-1

Our file Notre référence

ISBN: 978-0-494-17015-1

NOTICE:

The author has granted a non-exclusive license allowing Library and Archives Canada to reproduce, publish, archive, preserve, conserve, communicate to the public by telecommunication or on the Internet, loan, distribute and sell theses worldwide, for commercial or non-commercial purposes, in microform, paper, electronic and/or any other formats.

The author retains copyright ownership and moral rights in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

AVIS:

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque et Archives Canada de reproduire, publier, archiver, sauvegarder, conserver, transmettre au public par télécommunication ou par l'Internet, prêter, distribuer et vendre des thèses partout dans le monde, à des fins commerciales ou autres, sur support microforme, papier, électronique et/ou autres formats.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur et des droits moraux qui protègent cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

In compliance with the Canadian Privacy Act some supporting forms may have been removed from this thesis.

Conformément à la loi canadienne sur la protection de la vie privée, quelques formulaires secondaires ont été enlevés de cette thèse.

While these forms may be included in the document page count, their removal does not represent any loss of content from the thesis.

Bien que ces formulaires aient inclus dans la pagination, il n'y aura aucun contenu manquant.


Canada

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Cette thèse intitulée:

Détermination absolue de la distribution spatiale de la non-linéarité
de second ordre dans des échantillons plans

présentée par: TRÉANTON Vincent

en vue de l'obtention du diplôme de: Philosophiæ Doctor

a été dûment acceptée par le jury d'examen constitué de:

M. KASHYAP Raman, Ph.D., président

Mme LACROIX Suzanne, D. Sc., membre et directrice de recherche

M. GODBOUT Nicolas, Ph.D., membre et codirecteur de recherche

M. ALBERT Jacques, Ph.D., membre externe

M. MARTINU Ludvik, Ph.D, membre

Remerciements

Je remercie ma directrice de recherche, Suzanne Lacroix, ainsi que mon codirecteur, Nicolas Godbout, pour leur supervision et leur support tout au long de la réalisation de ce projet ainsi que pour leurs conseils lors de la rédaction de cette thèse. Mes remerciements vont également aux étudiants du Laboratoire des fibres optiques et en particulier à Martine Jalbert qui a réalisé la plupart des échantillons polés présentés dans cette thèse ainsi qu'à Lutfu Ozcan et Johann Gest pour le divertissement qu'ils m'ont apportés. Je n'oublie pas de remercier Bertrand Gauvreau et François Barrette pour leur aide technique: ils m'ont appris beaucoup.

Je remercie enfin profondément ma mère et mes grands-parents pour leurs encouragements et leur soutien de toujours. Sans vous, cette thèse n'aurait jamais été réalisée.

Résumé

En 1986, Österberg et Margulis injectent un faisceau issu d'un laser Nd:YAG en mode impulsionnel dans une fibre optique dopée au germanium. Après douze heures, ils observent l'apparition d'une onde harmonique de longueur d'onde $0,532 \mu\text{m}$. Cette découverte initiale s'est avérée fondamentale puisqu'elle démontre la possibilité de créer une susceptibilité non-linéaire de second ordre dans les verres de silice. La recherche dans ce domaine a connu de grands développements car cette découverte a un potentiel technologique important. En effet, une telle création permet la génération d'une onde de second harmonique et le mélange d'onde mais aussi le contrôle de l'indice par un champ électrique externe dans les guides d'ondes par effet Pockels.

Afin de permettre son application à des procédés industriels, il est nécessaire non seulement de bien contrôler le procédé lui-même mais aussi de caractériser de façon adéquate la susceptibilité induite. L'origine de l'apparition de cette susceptibilité est encore mal connue en partie parce qu'il n'a pas été possible jusqu'à présent de déterminer avec précision la distribution spatiale de la non-linéarité. Ceci est particulièrement important afin d'évaluer le procédé de poling ainsi que lors de la réalisation de composants d'optique guidée où la localisation de la non-linéarité est critique afin de maximiser le recouvrement avec l'onde guidée.

Le but de cette thèse est de développer une technique qui permette de déterminer de façon absolue la distribution spatiale de la susceptibilité de second ordre d'une vaste gamme de matériaux optiques et ce en préservant l'intégrité de l'échantillon.

En particulier, cette technique est appliquée à la caractérisation de lames de silice polées thermiquement.

La principale contribution de cette thèse consiste en l'introduction d'une technique expérimentale et d'une méthode d'analyse des données qui permettent de déterminer de façon précise la distribution spatiale de la susceptibilité non-linéaire de second ordre d'échantillons plans. Cette méthode a été appliquée à des lames de silice polées thermiquement et a permis d'observer des effets encore non rapportés dans la littérature.

Dans un premier temps, nous avons modifié la technique conventionnelle des franges de Maker en plaçant la lame à mesurer entre lentilles hémicylindriques : cette amélioration a permis d'augmenter considérablement l'angle interne maximal et d'ainsi réduire l'incertitude sur la détermination de l'épaisseur de la couche non-linéaire induite et donc sur l'amplitude de la susceptibilité. Cette configuration expérimentale permet d'observer des couches aussi fines que $5\text{ }\mu\text{m}$. Nous avons également proposé de représenter les données expérimentales en fonction de la fréquence spatiale au lieu de l'angle interne. Cette représentation de Fourier-Maker permet de discriminer par simple inspection du signal expérimental si la distribution de la couche non-linéaire est uniforme ou pas. Dans le cas où elle est uniforme, il est possible de déterminer l'épaisseur de la couche et l'amplitude de la susceptibilité directement du signal expérimental. Qui plus est, cette représentation permet de déterminer de façon unique l'épaisseur de la couche non-linéaire ce qui réduit encore l'incertitude sur ces mesures.

Lors de l'application de cette technique expérimentale et de cette méthode d'analyse à des lames polées thermiquement d'Infrasil et de Suprasil, nous avons obtenu des signaux beaucoup plus complexes que ce qui a pu être rapporté jusqu'à maintenant dans la littérature à l'exception d'un auteur [114] qui a utilisé une technique

destructive.

En particulier, nous avons observé que la dynamique du poling thermique dans les verres de Suprasil et d'Infrasil était très différente. En effet, le temps de poling optimal pour le Suprasil est supérieur à 100 minutes alors qu'il est plutôt de moins de 15 minutes pour l'Infrasil. Ce résultat est en contradiction avec ce que l'on retrouve dans la littérature puisqu'il y est supposé que les temps de poling optimaux sont similaires mais les mesures ont été effectuées dans l'air. Il serait intéressant de poursuivre l'étude entreprise ici afin de déterminer les temps de polings idéaux pour ces deux types de verre avec plus de précision.

Nous avons également observé que les lames d'Infrasil ayant subi des polings d'environ 15 minutes présentaient une susceptibilité de près de 0,5 pm/V sur une couche non-linéaire de 2 μm sous la surface anodique. Ce résultat est très proche de la limite théorique prévue par le modèle de migration ionique et nous donne une indication indirecte sur une modification éventuelle la susceptibilité de troisième ordre. Une modification de cette dernière impliquerait qu'un processus autre que la migration ionique, l'orientation dipolaire, pourrait être responsable de l'apparition d'une susceptibilité de second ordre lors du poling thermique. Nous avons modifié notre montage de franges de Maker afin de mesurer le signal de troisième harmonique. Les mesures que nous avons effectuées sur ces lames d'Infrasil n'indiquent pas de changement dans la susceptibilité de troisième ordre : l'amplitude et la symétrie du tenseur de la susceptibilité de troisième ordre est inchangée ce qui ne permet pas d'écarter la migration ionique comme origine de l'apparition d'une non-linéarité de second ordre dans les verre de silice.

Ensuite, nous avons proposé une technique expérimentale ainsi qu'une méthode d'analyse permettant de localiser la couche non-linéaire induite sous la surface anodique de l'échantillon par le poling thermique. Cette technique consiste à accoler à

l'échantillon à mesurer une lame de quartz dont la susceptibilité de second ordre est complètement déterminée, le tout étant placé entre lentilles hémicylindriques. Cette mesure interférométrique conserve l'information sur la phase du signal provenant de l'échantillon polé. En combinant ces mesures avec les mesures obtenues pour la lame polée et la lame de quartz séparément, il devient possible de localiser la position de la couche non-linéaire par rapport à la surface. Nous avons vu que pour certaines des lames étudiées, la couche non-linéaire est enterrée sous la surface anodique : nous avons émis l'hypothèse que cela provenait de l'injection de charges externes par la surface anodique ce qui semble conforme à ce qui est rapporté dans la littérature.

Abstract

Since the discovery in 1986 by Österberg and Margulis of a second order nonlinear susceptibility in silica glasses, this area captured the interest of many research groups since it has a significant technological impact. This allows not only for second harmonic generation and wave mixing as well as electrically controlled refractive index change in optical waveguides by Pockels effect.

The origin of that nonlinearity is still not completely understood since until now, the spatial distribution was not properly determined. This is especially essential when evaluating the poling process and when poling optical waveguides where the localization of the nonlinearity is critical to overlap the guided wave.

Therefore, this thesis aims at developing a characterization technique allowing for the absolute determination of the spatial distribution of the second order susceptibility of a wide array of nonlinear optical materials while preserving its integrity. This technique has been specifically applied to thermally poled silica glass plates.

This technique is twofold : it consists in an experimental technique and a data analysis technique. The Maker fringe technique is modified by placing the sample under test in between hemicylindrical lenses : this scheme greatly increases the maximum attainable internal propagation angle. This in turn reduces the uncertainty on the thickness of the induced nonlinear layer and therefore on its amplitude. We were able to measure layers as thin as $5\text{ }\mu\text{m}$. We also proposed to represent the measured data as a function of the spatial frequency rather than the internal angle. This representation,

referred to as Fourier-Maker, allows to determine at a glance if the nonlinearity distribution is uniform or not. When it is uniform, one can directly determine the layer thickness and the susceptibility amplitude from the measured signal. In addition, the layer thickness is uniquely determined which further reduces the uncertainty.

When applying this technique to thermally poled Infrasil and Suprasil silica glass plates, we obtained much more complex signals than what was reported in the literature except from one author [114] that employed a destructive process.

In particular, we observed that the poling dynamic was distinct in Infrasil and Suprasil sample. The optimal poling time for Suprasil glass plates was found to be higher than 100 minutes while it is lower than 15 minutes for Infrasil glass. This is in contradiction with already reported results that were however measured in air. More work would need to be undertaken to further refine the optimal poling duration.

It was also observed that Infrasil plates poled for 15 minutes had a susceptibility of about 0.5 pm/V on a layer of 2 μm under the anodic surface. This is close to the theoretical limit imposed by the charge migration model and gives us an indirect indication of a potential change in the third harmonic susceptibility. A change would indicate that an other process than charge migration is involved, like dipolar orientation, which is responsible for the generation of a second order susceptibility in thermally poled silica. We modified the Maker fringe setup to measure third harmonic generation. Our measurements in Infrasil glass plates does not indicate any change in the third order susceptibility. Both the amplitude and the symmetry of the third order tensor is maintained which means that charge migration can not be discarded as the origin of the appearance of the second order nonlinearity.

Finally, we developed a technique that allows to localize the induced nonlinear layer under the anodic surface. It consists in placing a reference quartz plate in front of the sample whose susceptibility is fully known. This interferometric method keeps a

trace of the phase information coming from the sample. By combining this information with the measured signals from the sample and the quartz plate taken separately, it then becomes possible to localize the nonlinear layer with respect to the surface. Some of the measured samples had a layer buried under the anodic surface : this is believed to come from external charge injection by the anode.

Table des matières

Remerciements	iv
Résumé	v
Abstract	ix
Table des matières	xii
Table des figures	xvi
Liste des tableaux	xxx
Liste des sigles et notations	xxxi
Introduction	1
1 Poling thermique	4
1.1 Induction d'effets non-linéaires de second ordre dans la silice	4
1.1.1 Création de $\chi^{(2)}$	4
1.1.2 Origine de $\chi^{(2)}$ dans la silice	6
1.2 Notions sur le poling thermique	7
1.2.1 Technique expérimentale	7
1.2.2 Migration ionique dans les verres polés thermiquement	12

1.3	Méthodes de caractérisation de $\chi^{(2)}$ dans les verres polés	19
1.4	Conclusion	25
2	Caractérisation optique par franges de Maker	26
2.1	Génération de second harmonique	26
2.1.1	Résolution des équations couplées	26
2.1.2	Symétrie du tenseur de $\chi_{\text{eff}}^{(2)}(z)$ pour le quartz et la silice polée	31
2.1.3	Réflexions de Fresnel	35
2.1.4	Simulation numérique des franges de Maker	39
2.1.5	Méthode Maker-Fourier	49
2.2	Montage des franges de Maker	52
2.2.1	Dispositif expérimental	52
2.2.2	Normalisation du signal de second harmonique	54
2.2.3	Etalonnage des photomultiplicateurs	55
2.3	Modifications au montage expérimental	56
2.4	Conclusion	61
3	Mesures de franges de Maker	62
3.1	Résultats expérimentaux	62
3.1.1	Lames de silice de type Infrasil TM	64
3.1.2	Lame de silice de type Suprasil TM	80
3.2	Analyse des résultats	97
3.2.1	Reproductibilité du montage de poling thermique	97
3.2.2	Comparaison du poling effectué dans l'air et sous vide	101
3.2.3	Etude de l'effet de la température sur la distribution de la non-linéarité	104

3.2.4	Etude de l'effet de la tension appliquée sur la distribution de la nonlinéarité	107
3.2.5	Dynamique du poling thermique dans les verres de Suprasil TM et d'Infrasil TM	113
3.2.6	Etude de l'effet de la polarisation du faisceau laser	119
3.2.7	Irrégularités dans les franges de Maker	120
3.2.8	Validité du modèle de Von Hippel	125
3.3	Conclusion	129
4	Localisation non-destructive de la couche non-linéaire	130
4.1	Méthode interférométrique	130
4.1.1	Principe de la méthode	131
4.1.2	Exemples numériques	135
4.2	Résultats expérimentaux	138
4.3	Analyse des résultats	151
4.3.1	Etude de l'effet de la tension appliquée	151
4.3.2	Etude de l'effet de la durée du poling	151
4.3.3	Comparaison air-vide	155
4.3.4	Etude de reproductibilité	156
4.3.5	Vérification de la méthode	158
4.4	Justification des distributions obtenues	161
4.5	Conclusion	175
5	Nature de la non-linéarité de second ordre induite	176
5.1	Génération de troisième harmonique	177
5.1.1	Calcul de la puissance de troisième harmonique pour un verre de silice	178

5.1.2 Exemples numériques de troisième harmonique	179
5.2 Mesure de la troisième harmonique dans un verre de silice	182
5.3 Mesure de la troisième harmonique pour la lame “batman”	186
5.4 Conclusion	190
Conclusion	191
Bibliographie	197
A Paramètres physiques de la silice	212
B Notation contractée des indices	216
C Facteurs de Fresnel : cas où le faisceau pompe et celui de second harmonique sont non-colinéaires	218
D Etude de sensibilité des mesures interférométriques	220
E Facteurs de Fresnel pour la GTH	226

Table des figures

1.1	Schéma du montage expérimental de poling thermique.	9
1.2	Température de l'échantillon durant le poling.	11
1.3	Répartition des charges dans une lame de verre polée thermiquement a) avant le retrait des électrodes et b) après leur retrait.	14
1.4	Distribution du champ électrique statique induit dans l'échantillon donné par l'équation 1.11.	16
1.5	Distribution du champ électrique statique induit dans l'échantillon a) durant le poling et b) après le retrait des électrodes.	18
2.1	Schéma de la direction de propagation des ondes pompe et doublée dans le matériau non-linéaire.	27
2.2	Orientation des axes «cristallographiques» d'une lame de silice polée. Ici, le référentiel (x, y, z) est celui de la lame alors que (x, y, z) est celui du faisceau.	32
2.3	Orientation des axes cristallographiques d'une lame de quartz avec une coupe x. Ici, le référentiel (x, y, z) est celui de la lame alors que (x, y, z) est celui du faisceau.	34
2.4	Angles de réfractions dans la silice (a) et le quartz (b) à la longueur d'onde de pompe (θ_ω , ligne continue) et à la longueur de second har- monique ($\theta_{2\omega}$, ligne tiretée).	36

2.5	Coefficients de transmission pour une polarisation P (a) et une polarisation S (b) dans une lame de silice.	38
2.6	Coefficients de transmission pour une polarisation P (a) et une polarisation S (b) dans une lame de quartz.	38
2.7	Evolution théorique de la puissance de l'onde de second harmonique en fonction de l'angle de propagation interne pour une lame de quartz plongée dans un milieu de même indice de réfraction lorsque le faisceau laser est polarisé P.	40
2.8	Evolution théorique de la puissance de l'onde de second harmonique en fonction de l'angle de propagation interne pour une lame de quartz plongée dans l'air lorsque le faisceau laser est polarisé P.	41
2.9	Evolution théorique de la puissance crête du second harmonique en fonction de l'angle de propagation interne avec et sans limitations de Fresnel pour une lame de silice polée.	42
2.10	Evolution théorique de la puissance de second harmonique en fonction de l'angle de propagation interne avec limitations de Fresnel pour des lames de silice polée.	43
2.11	Distribution de la non-linéarité dans la profondeur de lames de 1 mm d'épaisseur.	44
2.12	Evolution théorique de la puissance de second harmonique en fonction de l'angle de propagation interne avec limitations de Fresnel pour les distributions illustrées à la figure 2.11.	45
2.13	Franges de Maker simulées (b) avec réflexions de Fresnel pour deux distributions de la nonlinéarité (a).	46

2.14	Incertitude calculée sur la détermination de l'épaisseur L de la couche non-linéaire uniforme dans une lame de silice pour le cas où les réflexions de Fresnel sont présentes.	47
2.15	Incertitude calculée sur la détermination de l'épaisseur L de la couche non-linéaire uniforme dans une lame de silice pour le cas où les réflexions de Fresnel sont absentes.	48
2.16	Franges de Maker et signal Fourier-Maker pour les distributions de $\chi_{\text{eff}}^{(2)}(z)$ présentées à la figure 2.13(a).	50
2.17	Schéma du dispositif expérimental des franges de Maker.	52
2.18	Schéma de l'assemblage composé d'une paire de lentilles hémicylindriques faites de BK7 et la lame à caractériser.	57
2.19	Coefficient de transmission de Fresnel dans le cas non-colinéaire pour une lame de silice placée entre lentilles hémicylindriques.	59
2.20	Schéma de l'assemblage composé d'une paire de lentilles hémicylindriques faites de BK7 et la lame à caractériser.	60
3.1	Profil test de la distribution de la nonlinéarité pour des lames placées dans l'air.	63
3.2	Profil test de la distribution de la nonlinéarité pour des lames placées entre lentilles.	64
3.3	Franges de Maker pour la lame I1 et représentation Fourier-Maker. La lame a été mesurée dans l'air.	66
3.4	Franges de Maker pour la lame I2 et représentation Fourier-Maker. La lame a été mesurée dans l'air.	67
3.5	Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame I2 et simulées. La lame a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.	68
3.6	Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame I2 et simulé.	68

3.7	Franges de Maker pour la lame I3 et représentation Fourier-Maker. La lame a été mesurée dans l'air.	69
3.8	Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame I3 et simulées. La lame a été mesurée entre lentilles hémicylindriques. . . .	70
3.9	Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame I3 et simulé.	70
3.10	Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame I4 et simulées. La lame a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.	71
3.11	Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame I4 et simulé.	71
3.12	Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame I5 et simulées. La lame a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.	72
3.13	Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame I5 et simulé.	72
3.14	Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame I6 et simulées. La lame a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.	73
3.15	Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame I6 et simulé.	73
3.16	Franges de Maker pour la lame I7 et représentation Fourier-Maker. La lame a été mesurée dans l'air.	74
3.17	Franges de Maker pour la lame I7 avec un faisceau incident d'état de polarisation P et de polarisation S.	74
3.18	Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame I7 et simulées. La lame a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.	75
3.19	Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame I7 et simulé.	75
3.20	Franges de Maker pour la lame I8 et représentation Fourier-Maker. La lame a été mesurée dans l'air.	76
3.21	Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame I8 et simulées. La lame a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.	77
3.22	Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame I8 et simulé.	77

3.23	Franges de Maker pour la lame I9 et représentation Fourier-Maker. La lame a été mesurée dans l'air.	78
3.24	Franges de Maker pour la lame I9 mesurée entre lentilles hémicylindrique avec un faisceau incident d'état de polarisation P et de polarisation S.	78
3.25	Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame I9 et simulées. La lame a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.	79
3.26	Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame I9 et simulé.	79
3.27	Franges de Maker pour la lame S1 et représentation Fourier-Maker. La lame a été mesurée dans l'air.	81
3.28	Franges de Maker pour la lame S1 avec un faisceau incident d'état de polarisation P et de polarisation S.	82
3.29	Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame S1 et simulées. La lame a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.	83
3.30	Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame S1 et simulé.	83
3.31	Franges de Maker pour la lame S2 et représentation Fourier-Maker. La lame a été mesurée dans l'air.	84
3.32	Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame S2 et simulées. La lame a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.	85
3.33	Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame S2 et simulé.	85
3.34	Franges de Maker pour la lame S3 et représentation Fourier-Maker. La lame a été mesurée dans l'air.	86
3.35	Franges de Maker pour la lame S4 et représentation Fourier-Maker. La lame a été mesurée dans l'air.	87
3.36	Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame S4 et simulées. La lame a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.	88
3.37	Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame S4 et simulé.	88

3.38	Franges de Maker pour la lame S5 et représentation Fourier-Maker. La lame a été mesurée dans l'air.	89
3.39	Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame S5 et simulées. La lame a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.	90
3.40	Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame S5 et simulé.	90
3.41	Franges de Maker pour la lame S6 et représentation Fourier-Maker. La lame a été mesurée dans l'air.	91
3.42	Franges de Maker pour la lame S7 et représentation Fourier-Maker. La lame a été mesurée dans l'air.	92
3.43	Franges de Maker pour la lame S8 et représentation Fourier-Maker. La lame a été mesurée dans l'air.	93
3.44	Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame S8 et simulées. La lame a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.	94
3.45	Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame S8 et simulé.	94
3.46	Franges de Maker pour la lame S9 et représentation Fourier-Maker. La lame a été mesurée dans l'air.	95
3.47	Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame S9 et simulées. La lame a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.	96
3.48	Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame S9 et simulé.	96
3.49	Etude de reproductibilité du montage de poling thermique pour les lames d'infrasil. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I7, I8 et I9 mesurées dans l'air.	99
3.50	Etude de reproductibilité du montage de poling thermique pour les lames d'infrasil. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I7, I8 et I9 mesurées entre lentilles hémicylindriques.	99

3.51	Etude de reproductibilité du montage de poling thermique pour les lames de Suprasil. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S1 et S3 mesurées dans l'air.	102
3.52	Comparaison du poling thermique effectué sous vide et dans l'air pour les lames d'Infrasil. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I4, I5 et I6 mesurées entre lentilles hémicylindriques.	103
3.53	Etude de l'effet de la température de poling pour les lames d'Infrasil I1, I2 et I3 polées respectivement à 250, 300 et 350°C. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I1, I2 et I3 mesurées dans l'air.	106
3.54	Etude de l'effet de la température de poling pour les lames d'Infrasil I2 polée à 300°C et I3 polée à 350°C. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I2 et I3 mesurées entre lentilles hémicylindriques.	106
3.55	Etude de l'effet de la tension de poling pour les lames de Suprasil S1 polée à 3 kV et S2 polée à 5 kV. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S1 et S2 mesurées dans l'air.	109
3.56	Etude de l'effet de la tension de poling pour les lames de Suprasil S1 polée à 3 kV et S2 polée à 5 kV. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S1 et S2 mesurées entre lentilles hémicylindriques.	109
3.57	Etude de l'effet de la tension de poling pour les lames de Suprasil S4 (8 kV), S6 (2 kV), S7 (3 kV) et S8 (4 kV). Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S4, S6, S7 et S8 mesurées dans l'air.	112
3.58	Etude de l'effet de la tension de poling pour les lames de Suprasil S4 et S8 polées à 8 et 4 kV. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S4 et S8 mesurées entre lentilles hémicylindriques.	112

3.59	Etude de l'effet de la durée du poling pour les lames de Suprasil S4 (90 minutes), S5 (15 minutes) et S9 (30 minutes). Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S4, S5 et S9 mesurées dans l'air.	115
3.60	Etude de l'effet de la durée du poling pour les lames de Suprasil S4 (90 minutes), S5 (15 minutes) et S9 (30 minutes). Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S4, S5 et S9 mesurées entre lentilles hémicylindriques.	115
3.61	Etude de l'effet de la durée du poling pour les lames d'Infrasil I6 et I7 polées pendant 100 et 15 minutes. La lame I6 a été polée sous une tension de 4 kV alors que la lame I7 a été polée à 8 kV. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I6 et I7.	117
3.62	Photographie de la zone polée de la lame "batman" : la zone polée, située au centre, présente une coloration plus pâle que la zone non-polée située en périphérie.	123
3.63	Spectre de transmission pour la lame "batman" dans la zone non-polée (trait tireté) et zone polée (trait pointillé) ainsi que pour une lame vierge d'infrasil (trait continu).	124
3.64	Franges de Maker pour la lame "batman" avec un faisceau incident d'état de polarisation P (trait continu) et de polarisation S (traits tiretés). Les mesures ont été effectuées sans lentilles hémicylindriques.	125
3.65	Tension calculée pour les lames d'Infrasil. Ces tensions ont été calculées à partir des distributions de la susceptibilité déterminées lors des mesures entre lentilles hémicylindriques.	127
3.66	Tension calculée pour les lames de Suprasil. Ces tensions ont été calculées à partir des distributions de la susceptibilité déterminées lors des mesures entre lentilles hémicylindriques.	128

4.1	Configuration expérimentale pour les mesures interférométriques. . . .	131
4.2	Franges de Maker simulés pour un empilement de deux lames de quartz de même épaisseur.	136
4.3	Signal interférométrique simulé pour un empilement de lames de quartz et de silice.	137
4.4	Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame de référence de phase en quartz coupe x et simulées.	138
4.5	Franges de Maker interférométriques pour la lame I4.	140
4.6	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I4 et simulé.	140
4.7	Franges de Maker interférométriques pour la lame I5.	141
4.8	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I5 et simulé.	141
4.9	Franges de Maker interférométriques pour la lame I6.	142
4.10	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I6 et simulé.	142
4.11	Franges de Maker interférométriques pour la lame I7.	143
4.12	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I7 et simulé.	143
4.13	Franges de Maker interférométriques pour la lame I8.	144
4.14	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I8 et simulé.	144
4.15	Franges de Maker interférométriques pour la lame I9.	145
4.16	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I9 et simulé.	145
4.17	Franges de Maker interférométriques pour la lame S1.	146

4.18	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S1 et simulé.	146
4.19	Franges de Maker interférométriques pour la lame S2.	147
4.20	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S2 et simulé.	147
4.21	Franges de Maker interférométriques pour la lame S4.	148
4.22	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S4 (et simulé.	148
4.23	Franges de Maker interférométriques pour la lame S5.	149
4.24	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S5 et simulé.	149
4.25	Franges de Maker interférométriques pour la lame S9	150
4.26	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S9 et simulé.	150
4.27	Etude de l'effet de la tension de poling pour les lames de Suprasil S1 polée à 3 kV et S2 polée à 5 kV. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S1 et S2 obtenue des mesures interférométriques. . . .	152
4.28	Etude de l'effet de la durée du poling pour les lames de Suprasil S4 (90 minutes), S5 (15 minutes) et S9 (30 minutes). Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S4, S5 et S9 obtenue des mesures interférométriques.	153
4.29	Etude de l'effet de la durée du poling pour les lames d'Infrasil I6 et I7 polées 100 et 15 minutes. La lame I6 a été polée sous une tension de 4 kV alors que la lame I7 a été polée à 8 kV. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I6 et I7 obtenue des mesures in- terférométriques.	154

4.30	Comparaison du poling thermique effectué sous vide et dans l'air pour les lames d'Infrasil I4 (vide) et I5 (air). Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I4 et I5 obtenue des mesures interférométriques.	156
4.31	Etude de reproductibilité du montage de poling thermique pour les lames d'Infrasil. Ces lames ont été polées dans des conditions identiques soit à 300 °C sous une tension de 8 kV pendant 15 minutes. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I7, I8 et I9 obtenue des mesures interférométriques.	157
4.32	Somme des deux signaux interférométriques ($ A+B ^2 + A-B ^2$) pour la lame I7 (ligne continue), deux fois le signal de la lame de référence de phase ($2 B ^2$) (ligne tiretée) et deux fois le signal de l'échantillon ($2 A ^2$) (ligne pointillée).	159
4.33	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S9 et simulé avec enfouissement variable.	160
4.34	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I9 et simulé avec enfouissement variable.	161
4.35	Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames de Suprasil S1 polée à 3 kV et S2 polée à 5 kV obtenue des mesures interférométriques.	164
4.36	Distribution de la charge nette calculée à partir de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ de la figure 4.35 pour les lames S1 et S2.	164
4.37	Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames de Suprasil S4 polée 15 minutes, S5 polée 30 minutes et S9 polée 90 minutes obtenue des mesures interférométriques.	167
4.38	Distribution de la charge nette calculée à partir de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ de la figure 4.37 pour les lames S4, S5 et S9.	167

4.39	Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames d'Infrasil I6 polée à 4 kV pendant 100 minutes et I7 polée à 8 kV pendant 15 minutes obtenue des mesures interférométriques.	170
4.40	Distribution de la charge nette calculée à partir de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ de la figure 4.39 pour les lames I6 et I7.	170
4.41	Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames d'Infrasil I4 polée sous vide et I5 polée dans l'air obtenue des mesures interférométriques.	172
4.42	Distribution de la charge nette calculée à partir de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ de la figure 4.41 pour les lames I4 et I5.	172
4.43	Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames d'Infrasil I7, I8 et I9 polées à 300 °C sous une tension de 8 kV pendant 15 minutes obtenue des mesures interférométriques.	174
4.44	Distribution de la charge nette calculée à partir de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ de la figure 4.43 pour les lames I7, I8 et I9.	174
5.1	Franges de Maker pour une lame de silice et pour la même lame avec un $\chi^{(3)}$ doublé sur 1 μm	181
5.2	Signal Fourier-Maker pour une lame de silice et pour la même lame avec un $\chi^{(3)}$ doublé sur 1 μm	181
5.3	Franges de Maker expérimentales et simulées pour la lame I7 dans la zone polée.	183
5.4	Signal Fourier-Maker expérimental et simulé pour la lame I7 dans la zone polée.	183
5.5	Franges de Maker expérimentales et simulées pour la lame I7 dans la zone non-polée.	184
5.6	Signal Fourier-Maker expérimental et simulé pour la lame I7 dans la zone non-polée.	184

5.7	Franges de Maker de troisième harmonique en polarisation P et en polarisation S pour la lame I7 dans la zone polée.	186
5.8	Franges de Maker de troisième harmonique en polarisation P et en polarisation S pour la lame I7 dans la zone non-polée.	187
5.9	Franges de Maker expérimentales et simulées pour la lame "batman" dans la zone non-polée.	188
5.10	Signal Fourier-Maker expérimental et simulé pour la lame "batman" dans la zone non-polée.	188
5.11	Franges de Maker de troisième harmonique en polarisation P et en polarisation S pour la lame "batman" dans la zone polée.	189
A.1	Indice de réfraction de la silice à 20°C selon l'équation A.1.	213
A.2	Vitesse de groupe de la silice à 20°C selon les données de l'équation A.1.	213
A.3	Dispersion de la vitesse de groupe de la silice à 20°C selon les données de l'équation A.1.	214
A.4	Facteurs de transmission en fonction de l'indice de réfraction pour la traversée d'une lame à faces parallèles à incidence normale.	215
D.1	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I4 et simulé avec enfouissement variable.	221
D.2	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I5 et simulé avec enfouissement variable.	221
D.3	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I6 et simulé avec enfouissement variable.	222
D.4	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I7 et simulé avec enfouissement variable.	222
D.5	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I8 et simulé avec enfouissement variable.	223

D.6	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S1 et simulé avec enfouissement variable.	223
D.7	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S2 et simulé avec enfouissement variable.	224
D.8	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S4 et simulé avec enfouissement variable.	224
D.9	Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S5 et simulé avec enfouissement variable.	225
E.1	Coefficients de transmission pour une polarisation P et une polarisation S dans une lame de silice pour la génération de la troisième harmonique.	227

Liste des tableaux

1.1	Composition chimique des verres de Suprasil TM et d'Infrasil TM	13
3.1	Condition de poling des lames d'Infrasil TM	65
3.2	Condition de poling des lames de Suprasil TM	80
3.3	Condition de poling des lames I4, I7 et I9 d'épaisseur 1 mm et position des irrégularités observées dans les signaux expérimentaux.	121
B.1	Indices contractés.	217

Liste des sigles et notations

GSH génération de second harmonique

GTH génération de troisième harmonique

Nd:YAG laser Neodymium doped Yttrium Aluminum Garnet

UV ultraviolet

c vitesse de la lumière dans le vide

D constante de diffusion

e charge électronique

i nombre imaginaire

I intensité optique

i, j, k, l indices d'un vecteur ou tenseur

k nombre d'onde d'une onde plane

Δk désaccord de phase pour des ondes planes

n concentration des charges négatives

p concentration des charges positives

P puissance optique

P polarisation dans le plan d'incidence

S polarisation perpendiculaire au plan d'incidence

V_0 potentiel électrique

$\chi^{(n)}$ susceptibilité d'ordre n

$\chi_{\text{eff}}^{(2)}$ susceptibilité effective

ε_0 permittivité du vide

λ longueur d'onde

μ mobilité d'une particule chargée

ω pulsation optique

Introduction

Depuis la découverte en 1986 par Österberg et Margulis d'une susceptibilité non-linéaire de second ordre dans les verres de silice, la recherche dans ce domaine a connu de grands développements. Il faut dire que cette découverte initiale a un potentiel technologique important. En effet, une telle création permet la génération d'une onde de second harmonique et le mélange d'onde mais aussi le contrôle de l'indice par un champ électrique externe dans les guides d'ondes par effet Pockels.

L'origine de l'apparition de cette susceptibilité est encore mal connue en partie parce qu'il n'a pas été possible jusqu'à présent de déterminer avec précision la distribution spatiale de la non-linéarité. Ceci est particulièrement important afin d'évaluer le procédé de poling ainsi que lors de la réalisation de composants d'optique guidée où la localisation de la non-linéarité est critique afin de maximiser le recouvrement avec l'onde guidée.

L'objectif principal de cette thèse est de développer une technique qui permette de déterminer de façon absolue la distribution spatiale de la susceptibilité de second ordre d'une vaste gamme de matériaux optiques et ce en préservant l'intégrité de l'échantillon. En particulier, cette technique sera appliquée à la caractérisation de lames de silice polées thermiquement car l'effet de ce traitement sur la distribution spatiale est extrêmement important pour l'amélioration de ce procédé et des dispositifs utilisant ce principe.

Nous présentons au chapitre 1 la technique de poling thermique qui a servi à

réaliser les échantillons étudiés dans cette thèse. En particulier, nous décrivons de façon succincte la technique expérimentale permettant d'induire une susceptibilité de second ordre permanente dans les verres de silice. Les fondements de la théorie expliquant ce processus sont introduits afin d'analyser les résultats expérimentaux des chapitre subséquents.

Le chapitre 2 est consacré à la technique des franges de Maker qui est la méthode de caractérisation de la susceptibilité de second ordre induite par poling thermique la plus adéquate. En première partie du chapitre, la théorie permettant l'analyse des mesures optiques est introduite pour des lames de silice polée et des lames de quartz. L'allure des franges de Maker obtenues lorsque ces lames sont placées dans l'air ou lorsque les facteurs de Fresnel sont nuls est représentée pour différentes distributions spatiales de la non-linéarité de second ordre. Enfin, une méthode facilitant l'analyse des franges de Maker est présentée. Dans la seconde partie du chapitre, le montage expérimental est décrit ainsi que la procédure permettant la calibration des mesures. La fin du chapitre concerne les améliorations apportées au montage de franges de Maker qui permettent de réduire l'incertitude sur la détermination de la distribution de la susceptibilité de second ordre.

Dans le chapitre 3, nous étudions expérimentalement la création d'une susceptibilité de second ordre dans les verres d'Infrasil et de Suprasil polés thermiquement. Nous nous intéressons d'abord à la reproductibilité du montage de poling thermique et étudions ensuite l'effet de l'environnement lors du poling. Les conditions expérimentales du poling sont ensuite étudiées : l'effet de la température, l'effet de la tension appliquée et l'effet de la durée du poling. Enfin, des mesures effectuées pour les deux polarisations orthogonales P et S sont présentées ainsi que résultats inusités.

Au chapitre 4, nous poursuivons notre étude de la distribution de la susceptibilité en déterminant la localisation de la couche non-linéaire induite. La méthode

expérimentale ainsi que la technique d'analyse permettant de déterminer ces paramètres sont présentées. Cette technique est ensuite appliquée aux lames déjà étudiées au chapitre précédent.

Le dernier chapitre est consacré à une étude plus approfondie de la nature de la non-linéarité induite par le poling thermique. Nous y vérifions si la susceptibilité de troisième ordre existant avant le poling est modifiée par ce processus. La théorie de la génération de troisième ordre dans les verres de silice est présentée afin d'analyser les résultats expérimentaux.

Chapitre 1

Poling thermique

Dans ce chapitre, nous présentons la technique de poling thermique qui a permis la réalisation des échantillons étudiés aux chapitre suivants. Nous nous intéressons tout d'abord aux différentes méthodes proposées afin d'induire une susceptibilité de second ordre dans les verres de silice ainsi qu'à l'origine ce phénomène. Nous présentons ensuite le poling thermique des lames à face parallèles plus en détail puis un modèle simple décrivant ce processus. Ce modèle est basé sur l'hypothèse que la migration de charges est responsable de l'apparition d'une susceptibilité non-linéaire de second ordre dans les verres de silice. La suite de la thèse aura pour objet de vérifier la véracité de cette supposition.

1.1 Induction d'effets non-linéaires de second ordre dans la silice

1.1.1 Création de $\chi^{(2)}$

La silice dont les fibres optiques sont constituées est un matériau ayant de nombreuses propriétés optiques et mécaniques intéressantes qui peuvent s'avérer utiles

pour de multiples applications allant des télécommunications à la biologie. En effet, ce matériau présente une faible absorption pour une vaste gamme spectrale et est chimiquement et mécaniquement stable. De plus, ce matériau est très commun et de faible coût puisque présent en abondance dans la nature.

Cependant, les verres sont des matériaux amorphes et donc isotropes, ce qui implique l'absence de non-linéarités de second ordre. En effet, les verres présentent, au plan structural, une symétrie d'inversion. La découverte, il y a une vingtaine d'années, de l'autogénération de second harmonique dans les fibres optiques causa une grande surprise dans le milieu scientifique et fut l'instigatrice d'importants efforts de recherche [95]. Après les premières expériences d'autogénération, de nouvelles techniques expérimentales ont été proposées afin d'augmenter l'importance de la susceptibilité de second ordre créée. Les principales sont le poling thermique [88, 89] et le poling UV [28].

L'autogénération a été appliquée aux fibre optiques [95] : ce procédé consiste en l'injection dans le mode fondamental de la fibre d'un faisceau laser très intense présentant des impulsion de plusieurs kW de puissance crête. Après un certain temps, un signal de second harmonique est détecté. Il s'agit donc d'une méthode toute optique et interne puisque aucun effet externe n'est présent.

Le poling thermique suit une approche différente puisque cette technique repose sur des effet externes. Un fort voltage de l'ordre de quelques milliers de Volts est appliqué sur l'échantillon tout en chauffant ce dernier à haute température afin d'augmenter la conduction de charges électriques sous l'effet du champ appliqué.

Quant au poling UV, il est similaire au poling thermique mais la source de chaleur est remplacée par l'insolation du matériau par un laser UV ($\lambda = 196$ ou 248 nm avec une énergie de l'ordre de l'eV) qui induit le transfert d'électrons dans la bande de conduction et ionise des défauts.

Ces deux dernières approches, poling thermique et poling UV, ont également été appliquées aux fibres optiques ainsi qu'aux lames massives de silice.

1.1.2 Origine de $\chi^{(2)}$ dans la silice

Deux approches ont été proposées afin d'expliquer l'apparition de second harmonique dans les verres de silice. Ces modèles ont d'abord été introduits afin d'expliquer l'autogénération dans les fibres optiques [95], puis ont ensuite été appliqués au poling thermique et UV.

Le premier modèle, proposé par Stolen [118], suppose que la symétrie du matériau est brisée par la création d'un champ électrique statique interne E_{DC} . Lors du traitement du matériau par poling thermique, des charges positives, présentes dans le matériau, se déplacent et créent ce champ. L'apparition de la non-linéarité est donc due à un effet externe et se trouve localisée dans une région du matériau. Selon ce modèle, $\chi^{(2)}$ est le résultat d'un couplage entre la susceptibilité de troisième ordre $\chi^{(3)}$ et le champ statique E_{DC} . La valeur de la susceptibilité de second ordre induite est donnée par [118]

$$\chi^{(2)} = 3\chi^{(3)}E_{DC}. \quad (1.1)$$

Cette relation implique que le tenseur de symétrie de $\chi^{(2)}$ induit présente les mêmes propriétés que celui de $\chi^{(3)}$. En particulier, pour le tenseur de $\chi^{(3)}$, il est connu que le rapport de l'élément de tenseur pour une polarisation incidente P à celui pour une polarisation S est donné par [9]

$$\chi_P^{(3)} = 3\chi_S^{(3)}. \quad (1.2)$$

Qui plus est, il est possible de déduire de l'équation 1.1 une valeur maximale de la susceptibilité de second ordre dans la silice. Le champ électrique maximal dans la silice pure a pour borne supérieure, le champ de rupture diélectrique qui vaut environ $1 \cdot 10^9 \text{ V/m}$ alors que l'amplitude de l'élément de tenseur $\chi_P^{(3)}$ est de $2 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2/\text{V}^2$. La

valeur maximale de la susceptibilité de second ordre prévue par ce modèle est donc de $\chi^{(2)} = 0,6 \text{ pm/V}$. Ces remarques sont particulièrement importantes puisqu'elles permettent de vérifier expérimentalement la validité du modèle de R. Stolen et al.

Le second modèle proposé suppose que la susceptibilité $\chi^{(2)}$ apparaît suite à un bris dans la symétrie de la silice grâce à un réarrangement des atomes. Il ne s'agit plus ici d'une simple migration de charges mais d'un changement au niveau structurel. La silice ne présentant pas d'ordre à longue portée, il est par contre possible de créer des dipôles et d'ainsi induire une symétrie à courte portée. L'amplitude de la susceptibilité de second ordre ne dépend donc plus dans le cadre de ce modèle que de celle de troisième ordre mais de la quantité de dipôles impliqués ainsi que de leur hyperpolarisabilité de second ordre.

1.2 Notions sur le poling thermique

Les techniques de caractérisation développées au cours de cette thèse sont applicables à une vaste gamme de matériaux présentant des non-linéarités de second ordre. Nous avons choisi de les appliquer en particulier à l'étude des lames de silice polées thermiquement parce que la susceptibilité induite par ce procédé n'est pas très bien connue ce qui empêche d'évaluer rigoureusement ce type de traitement. Qui plus est, le Laboratoire des fibres optiques dispose depuis plusieurs années d'une importante expertise dans le domaine du poling avec, entre autres, un montage expérimental établi.

1.2.1 Technique expérimentale

Le poling thermique consiste à chauffer le matériau tout en appliquant un champ électrique intense à l'aide d'électrodes placées de part et d'autre de la lame à poler.

L'élévation de la température a pour but de faciliter le déplacement des ions positifs (Na, K, Li, Ca, H, selon la composition du verre) induit par la haute tension appliquée. La première expérience de poling thermique a été réalisée en 1991 par Myers [89] : des lames de verre de silice à faces parallèles ont été traitées et les auteurs ont démontré la présence d'une susceptibilité de deuxième ordre. Les lames ont été placées entre une électrode de silicium et une électrode d'acier inoxydable. De cette façon, le champ électrique appliqué est perpendiculaire aux faces de la lame. Cet empilement est chauffé à des températures comprises entre 250 et 350°C et la tension est appliquée lorsque la température maximale est atteinte. Après 15 minutes, le chauffage est interrompu mais le champ électrique est maintenu jusqu'au retour à la température ambiante. Myers et al. [89] ont montré que la susceptibilité induite se trouvait localisée sous la surface de l'anode sur une faible épaisseur d'environ 3 μm . Ce résultat a été obtenu par une expérience de franges de Maker (voir le chapitre 2) et confirmé par attaque chimique. La face anodique a été exposée à l'acide hydrofluoridique (HF) et l'expérience des franges de Maker a été répétée. Après une gravure d'environ 3 μm , la puissance de second harmonique devient nulle : l'amplitude de la susceptibilité non-linéaire a ensuite pu être déduite du relevé des franges de Maker et valait environ 1 pm/V.

Depuis, de nombreux auteurs ont réalisé des expériences similaires sur une grande variété de verres de silice [35, 45, 50, 55, 56, 73, 75, 84, 121, 129]. Cette technique a également été appliquée au traitement des fibres optiques [60, 62, 63, 70, 72, 77, 81, 86, 93, 103, 104, 108, 133] : la géométrie cylindrique de ces dernières rend la réalisation expérimentale très délicate et la détermination précise de la localisation de la couche non-linéaire, de son épaisseur et de l'amplitude de la non-linéarité induite difficile. Jusqu'à présent, la valeur maximale de l'amplitude de la susceptibilité de deuxième ordre rapportée est comprise entre 0,20 et 2 pm/V selon la composition du verre

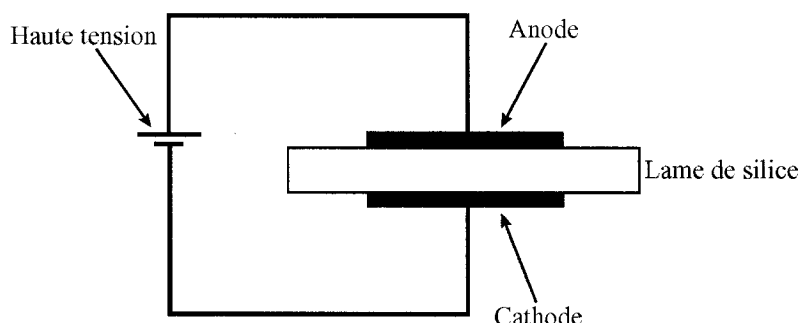


FIG. 1.1 – *Schéma du montage expérimental de poling thermique.*

étudié. Ces valeurs peuvent sembler faibles si on les compare à celles obtenues pour certains polymères dont la susceptibilité de second ordre peut valoir quelques dizaines de pm/V selon la composition. Il ne faut pas oublier que la silice présente de nombreux avantages dont sa grande stabilité mécanique, sa grande transparence pour un vaste domaine spectral et le fait que les fibres optiques soient faites de silice.

Le montage expérimental qui a permis la réalisation du poling thermique des lames étudiées dans le cadre de cette thèse est schématisé à la figure 1.1. Il consiste en une source de haute tension de plusieurs milliers de Volts, d'une anode et d'une cathode placées de part et d'autre de la lame d'épaisseur allant de 0,3 à 1 mm, d'éléments chauffants situés au-dessus et en dessous de la lame et d'une enceinte à vide qui contient le tout.

Nous avons choisi d'employer des électrodes faites de silicium car ce matériau présente de nombreux avantages par rapport aux autres alternatives suggérées dans la littérature. Ces électrodes ne se dégradent pas au cours du poling, leurs surfaces sont parallèles et planes permettant un bon contact avec les lames de silice et enfin

elles présentent l'avantage important de bloquer l'injection de charges limitant ainsi la contamination éventuelle de l'échantillon. Également, une étude détaillée réalisée récemment [111] confirme la pertinence de notre choix et a démontré l'importance du fini de surface (absence d'irrégularités) des électrodes sur l'uniformité du poling. L'épaisseur ainsi que l'amplitude de la nonlinéarité induite étaient affectées par la présence de rayures sur les électrodes.

Bien que la majorité des expériences de poling thermique aient été réalisées dans l'air, nous avons choisi d'effectuer nos poling sous vide. Cette décision a été motivée par des publications récentes [57] montrant une plus grande reproductibilité des expériences de poling. En effet, un environnement contrôlé réduit la contamination de l'échantillon durant le traitement limitant ainsi l'injection d'ions externes. Des études ont été effectuées en polant dans différentes atmosphères ou en introduisant un dopant : eau [41, 47, 91, 92], sodium [47, 48, 123] ou hydrogène [90]. De plus, dans l'air, le champ de claquage limite la tension qu'il est possible d'appliquer sur l'échantillon : le poling sous vide permet d'appliquer des tensions plus élevées que pour le poling dans l'air. Comme nous l'avons vu à la section 1.1.2, le claquage diélectrique limite l'amplitude maximale de la susceptibilité de deuxième ordre : il devient ainsi possible de s'approcher de la limite théorique. En pratique, nous avons pu appliquer des tensions allant jusqu'à 8 kV alors que dans l'air cette tension est limitée à 4 kV.

En plus de la composition du verre polé, il y a trois paramètres à étudier afin d'optimiser l'amplitude de la susceptibilité de second ordre induite par le poling car elle est indépendante de l'épaisseur de la lame polée. Ce sont la tension appliquée, la température de poling et enfin la durée du poling. Les deux premiers paramètres sont facilement contrôlables et sont définis de la même façon par tous les auteurs. Nous allons donc expliciter notre définition de durée du poling parce qu'il y a une grande confusion dans la littérature à ce sujet.

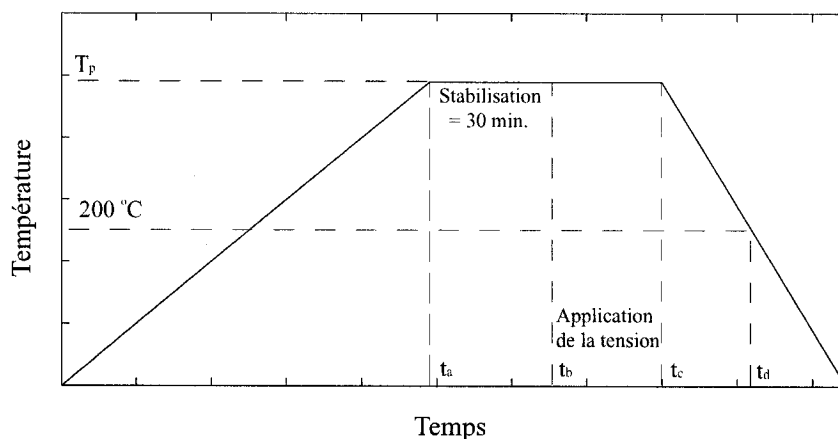


FIG. 1.2 – *Température de l'échantillon durant le poling.*

L'évolution de la température au cours du poling thermique est présenté à la figure 1.2. La température est progressivement augmentée jusqu'à atteindre celle de poling T_p au temps t_a . Après stabilisation de la température maximale pendant 30 minutes, la haute tension est appliquée au temps t_b et maintenue jusqu'au retour à la température ambiante. Au temps t_c le chauffage est arrêté et la température décroît. Pour toutes les lames qui seront utilisées dans le cadre de cette thèse, le temps de montée est d'environ 90 minutes et on laisse la température se stabiliser pendant 30 minutes. Le poling étant sous cloche fermée, la lame redescend à température ambiante au bout de 2 heures environ. Après interruption du chauffage, la lame redescend à 200°C en 15 minutes : sachant que la mobilité ionique des verres de silice devient faible à cette température (ceci a été vérifié par mesures de courant), ceci constitue donc le temps minimal de poling atteignable avec ce montage. Il n'est donc pas possible d'effectuer des poling très courts, de l'ordre de quelques secondes à quelques minutes, en polant sous vide.

Nous définissons la durée du poling thermique comme étant la période de temps où la température est supérieure à 200°C et où la haute tension est appliquée. Nous avons

choisi 200°C comme borne car, comme nous venons de le mentionner, la migration de charges peut être négligée à cette température [5]. Ceci correspond donc sur la figure 1.2, au temps $t_d - t_b$. Dans la suite de cette thèse, nous nous référerons à cette période de temps comme étant la durée du poling. Lorsque l'on veut comparer des recettes de poling thermique, il faut donc s'assurer d'employer les mêmes définitions. On remarque d'ailleurs dans la littérature que l'amplitude de $\chi^{(2)}$ induit est plus faible dans le cas du poling sous vide que pour le poling dans l'air : les temps de poling sont simplement différents. Notre étude récente à temps identiques semble montrer que les couches induites sont identiques : ceci sera vu plus en détail au chapitre 2.

1.2.2 Migration ionique dans les verres polés thermiquement

Un modèle de migration ionique dans les verres a été proposé par Proctor [101] au début des années 1960. De très nombreuses améliorations à ce modèle ont fait l'objet de plusieurs thèses depuis quelques années : le lecteur intéressé par une étude plus détaillée pourra consulter les références [15, 36, 67, 75, 113]. Nous nous contenterons pour notre part de présenter la théorie et les résultats essentiels afin d'analyser les résultats optiques des chapitres suivants.

Ce modèle simplifié suppose que la lame de verre traitée contient deux types de porteurs de charges pouvant se déplacer sous l'action d'un champ électrique externe : des charges positives et des charges négatives. Les verres de silice étudiés lors de nos travaux étaient des verres de Suprasil et d'Infrasil. Le verre Suprasil est de plus haute pureté que l'Infrasil et sa composition est proche de celle des fibres optiques. La concentration des impuretés présentes dans ces deux types de verre est présentée au tableau 1.1. Dans les verres de silice, la mobilité des ions négatifs (O, Cl) est plus faible en comparaison de celle des ions positifs : on peut donc considérer que seuls les ions positifs migrent dans l'échantillon sous l'effet du champ externe.

TAB. 1.1 – *Composition chimique des verres de SuprasilTM et d'InfrasilTM.*

Type d'ion	Conc. Suprasil (cm ⁻³)	Conc. Infrasil (cm ⁻³)
Na	1,1·10 ¹⁴	2,1·10 ¹⁵
Li	7·10 ¹³	7·10 ¹⁵
K	1,2·10 ¹³	9,9·10 ¹⁴
Ca	6·10 ¹³	1,2·10 ¹⁵
Mg	1·10 ¹²	2·10 ¹⁴
Al	9·10 ¹³	3,6·10 ¹⁶
Cr	4,7·10 ¹²	9,3·10 ¹³
Cu	7,6·10 ¹²	7,6·10 ¹³
Fe	1,7·10 ¹³	7·10 ¹⁴
Ti	5·10 ¹³	1·10 ¹⁵

Supposons également que la lame est placée entre deux électrodes planes et parallèles qui sont supposées bloquantes: ceci implique qu'il n'y a pas d'injection de charges externes et seules les impuretés présentes dans le matériau participent au processus de migration de charges. Ceci est justifié par certains des résultats présentés plus loin. La configuration expérimentale est représentée à la figure 1.3a). Les charges positives se déplacent vers la surface cathodique sous l'effet du champ électrique externe appliqué laissant sous la surface anodique un surplus de charges positives. L'évolution de la concentration des charges positives notée p et celle des charges négatives notée n est donnée par

$$\frac{\partial p}{\partial t} = D_p \frac{\partial^2 p}{\partial z^2} - \mu_p \frac{\partial(Ep)}{\partial z} \quad (1.3)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D_n \frac{\partial^2 n}{\partial z^2} + \mu_n \frac{\partial(En)}{\partial z} \quad (1.4)$$

où D_p et D_n sont les coefficients de diffusion des deux types de charges, μ_p et μ_n leur mobilité et E est le champ électrique externe appliqué selon la direction z perpen-

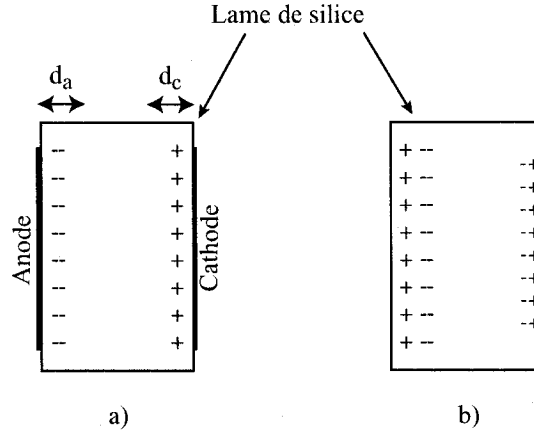


FIG. 1.3 – Répartition des charges dans une lame de verre polée thermiquement
a) avant le retrait des électrodes et b) après leur retrait.

diculaire aux faces de la lame. Les différents coefficients présentés ici sont supposés indépendants de la position z dans l'échantillon, ce qui est réaliste puisque les concentrations sont faibles et donc les interactions entre voisins sont négligeables.

Le respect de l'équation de Gauss implique que

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \frac{e}{\varepsilon}(p - n) \quad (1.5)$$

où e est la charge de l'électron et ε la permittivité du matériau.

Nous considérons maintenant le cas où le régime stationnaire est atteint puisqu'il n'est pas question ici de modéliser la distribution des charges au cours du poling thermique mais d'avoir une idée de la distribution de charges à la fin du processus juste avant le retrait des électrodes. Dans ce cas, la concentration de charges positives et négatives est considérée constante, donc indépendante du temps. Nous avons remarqué précédemment que, dans le cas de verres de silice, les charges positives participent au poling alors que les charges négatives peuvent être considérées comme immobiles. Ceci est raisonnable car les principaux contaminants présents dans ces

verres, les ions alcalins Li^+ , Na^+ et K^+ , sont peu liés à la structure vitreuse alors que les ions négatifs (O^-) en font intégralement partie restant donc essentiellement immobiles.

Dans ces conditions, les équations 1.3 et 1.4 se réduisent à

$$D_p \frac{\partial p}{\partial z} = \mu_p E p \quad (1.6)$$

Les conditions aux limites sont fixées par les conditions d'électrodes bloquantes ainsi que les conditions de Gauss (équation 1.5). Elles sont données pour les deux interfaces (en $z = 0$ et $z = L$, l'épaisseur de la lame)

$$D_p \frac{\partial p}{\partial z}(z = 0) = \mu_p E p(z = 0) \quad (1.7)$$

$$D_p \frac{\partial p}{\partial z}(z = L) = \mu_p E p(z = L) \quad (1.8)$$

$$\int_0^L E dz = V_0 \quad (1.9)$$

où V_0 est le potentiel appliqué aux électrodes.

La résolution de ce système d'équations permet de déterminer la forme du champ électrique distribué à l'intérieur de l'échantillon et donc, en vertu de l'équation 1.1, la forme de la non-linéarité de second ordre induite. Il n'est toutefois pas possible d'obtenir une solution analytique et il faut donc recourir à une méthode numérique. Von Hippel [130] a proposé une série d'hypothèses simplifiant ces équations et permettant l'obtention d'une solution analytique simple. Notons N le nombre par unité de volume d'entités pouvant libérer des cations dans le verre. Supposons également que le taux de recombinaison des cations est faible et que la diffusion est faible ($D_p = 0$). Lorsque N est suffisamment important pour créer un champ interne pouvant compenser le champ externe, il y a écrantage du champ. Trois régions sont créées dans l'échantillon : une première zone chargée négativement située sous l'anode, une région neutre et une région chargée positivement sous la cathode tel qu'illustré à la figure 1.3a).

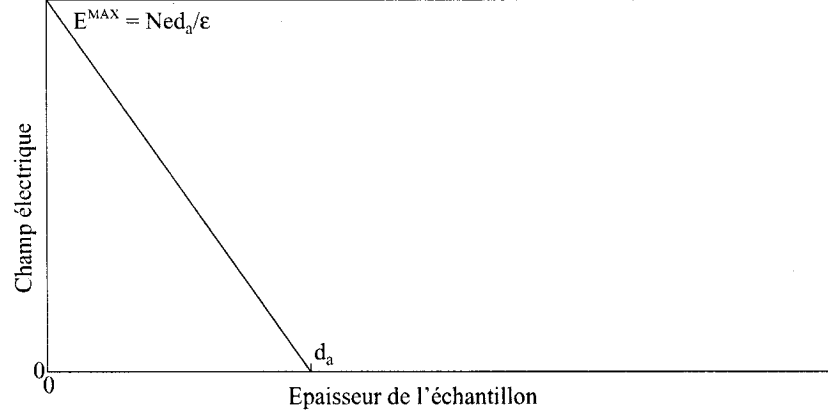


FIG. 1.4 – *Distribution du champ électrique statique induit dans l'échantillon donné par l'équation 1.11.*

A terme, la totalité des charges positives mobiles ont quitté la région anodique et cette dernière ne contient plus que des charges négatives. L'équation 1.5 se réduit à

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \frac{-Ne}{\epsilon} \quad (1.10)$$

L'intégration de cette équation mène à la relation suivante

$$E(z) = \frac{-Ne}{\epsilon}(z - d_a) \quad (1.11)$$

pour la zone anodique où d_a est l'épaisseur de cette région. Pour la zone neutre située entre les zones anodiques et cathodiques, le champ est nul

$$E(z) = 0. \quad (1.12)$$

Dans la zone cathodique, le champ est important mais demeure fini alors que son épaisseur d_c est négligeable par rapport à celle de la zone anodique d_a . Ce champ est représenté à la figure 1.4. En combinant les équations 1.9 et 1.11, nous pouvons déterminer l'épaisseur de la zone anodique

$$d_a = \sqrt{\frac{2\epsilon V_0}{Ne}}. \quad (1.13)$$

On constate que l'épaisseur de la zone anodique ne dépend pas de l'épaisseur de l'échantillon : cette observation a déjà été faite [111] et sera confirmée expérimentalement au chapitre 2. Le champ électrique à la surface anodique ($z = 0$) est maximal et est donné par

$$E^{\max} = \frac{Ned_a}{\varepsilon}. \quad (1.14)$$

Le champ électrique est donc positif et orienté de l'anode à la cathode. Par conséquent, si ce modèle simplifié de Von Hippel est valide, la non-linéarité de second ordre induite doit être de même signe que la non-linéarité de troisième ordre en vertu de la relation 1.1. En effet, cette équation implique que les deux susceptibilités sont de même signe si le champ statique est positif. Il s'agit donc d'un critère important afin de discriminer si le processus créant la non-linéarité est la migration ionique ou un autre. Ceci sera vérifié au chapitre 3. Ces résultats nous permettent de prévoir approximativement l'épaisseur et le champ maximal induits dans le matériau polé. A titre d'exemple, une concentration $N = 5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ et une tension de poling $V_0 = 8 \text{ kV}$, conduisent à une épaisseur de la couche anodique $d_a = 18 \text{ }\mu\text{m}$ et un champ maximal de $E^{\max} = 9,2 \cdot 10^8 \text{ V/m}$. En faisant appel à l'équation 1.1, nous pouvons déterminer l'amplitude maximale de la susceptibilité induite ce qui donne en rappelant que $\chi^{(3)} = 2 \cdot 10^{-22} (\text{V/m})^2$, une valeur de $0,55 \text{ pm/V}$ pour $\chi^{(2)}$.

Le modèle présenté permet d'estimer la forme du champ électrique induit dans la lame en régime stationnaire lors du poling. Nous sommes néanmoins intéressés par la distribution du champ lors du retrait des électrodes car c'est la situation qui est intéressante en pratique. Il nous faut donc raisonner autrement afin de déterminer l'allure du champ après retrait des électrodes.

A la fin du poling, lorsque le chauffage est arrêté et que l'échantillon est retourné à la température ambiante avec la haute tension maintenue, la distribution du champ interne est illustrée à la figure 1.5a). Cette distribution est déterminée du modèle

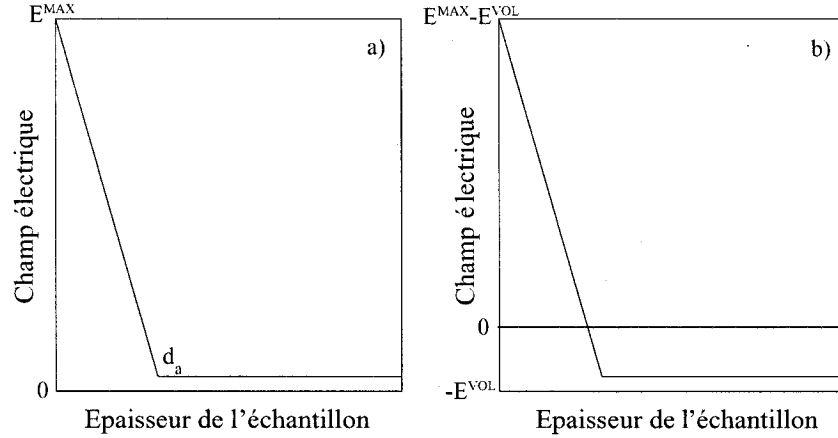


FIG. 1.5 – Distribution du champ électrique statique induit dans l'échantillon a) durant le poling et b) après le retrait des électrodes.

précédent mais en tenant compte du champ distribué dans le volume contrairement au modèle de Von Hippel. Ensuite, la tension est ramenée progressivement à zéro : il n'y a plus de champ externe appliqué. Afin de respecter l'équation 1.9 avec $V_0 = 0$, il faut que le champ interne induit translate vers le bas pour que cette intégrale soit nulle. La situation est représentée à la figure 1.5b) : on note que le champ maximal sous la surface anodique diminue mais reste positif alors que le champ de volume devient négatif.

Lors du retrait des électrodes, si l'on suppose que l'ensemble des charges présentes sur les électrodes sont enlevées, le champ interne doit être négatif. Cette situation est physiquement impossible puisque l'échantillon ne peut être stable que si la différence de potentiel entre les faces est nulle. Qui plus est, il est peu réaliste de penser que les électrodes ne laissent pas de charges à la surface de la lame. Il y a aussi sans doute contamination provenant des ions présents dans l'air. Le champ électrique doit donc plutôt suivre la distribution de la figure 1.5b). Ceci suppose donc que la surface de la courbe sous la surface anodique et celle distribuée dans le volume doivent être

égales afin que l'échantillon soit neutre. Cette observation permet donc de trouver une relation entre le champ interne E^{vol} situé dans le volume et celui situé sous la surface $E^{\text{max}} - E^{\text{vol}}$, et donc de relier $\chi^{(2)}$ de surface et de volume dans le cadre du modèle de migration de charges. Ceci est vérifié au chapitre 2.

1.3 Méthodes de caractérisation de $\chi^{(2)}$ dans les verres polés

Un grand nombre de techniques ont été proposées afin de caractériser la susceptibilité de second ordre dans les fibres ou les lames polées thermiquement. Nous ne décrirons ici que les techniques applicables aux lames de silice massive à faces parallèles, géométrie qui est étudiée dans cette thèse.

La technique la plus couramment employée est la méthode des franges de Maker introduite par P. D. Maker et al. [79]. Cette technique est la première à avoir été employée afin de caractériser la susceptibilité de second ordre induite dans les verres de silice polée thermiquement [89]. Elle consiste à insoler par un laser pulsé intense (le plus souvent un Nd:YAG Q-switché) la lame à caractériser tout en la faisant tourner : la puissance de second harmonique est relevée en fonction de l'angle d'incidence. Il est possible de déduire du signal mesuré l'amplitude de la susceptibilité ainsi que l'épaisseur de la couche non-linéaire induite. Néanmoins, dans le cas des lames de silice polée, l'épaisseur de la couche non-linéaire peut être de l'ordre de quelques micromètres alors que la méthode ne permet de déterminer avec précision que des épaisseurs supérieures à $15\ \mu\text{m}$. La technique développée dans cette thèse étant basée sur la méthode des franges de Maker, cette méthode ainsi que ses limitations sont présentées en détail au chapitre 2, nous ne la détaillerons pas plus ici.

Pour contourner cette limitation et pouvoir mesurer de faibles épaisseurs, il a

été proposé par R. Myers et al. [89] d'attaquer à l'acide hydrofluorique (HF) la surface anodique de l'échantillon, là où l'on suppose qu'une couche non-linéaire se forme. Elle est basée sur l'observation expérimentale que le taux de gravure par HF de la silice est modifié par la présence d'une zone de déplétion (D. E. Carlson et al. [16]), par insolation UV (J. H. Kyung et al. [65]) ou par la présence d'un réseau périodique de second harmonique (W. Margulis et al. [81]). La procédure suivante a été employée : la lame polée est tout d'abord mesurée par la méthode des franges de Maker et est ensuite gravée pour une durée fixée. L'épaisseur enlevée à la surface de la lame est mesurée par un profilomètre avant que l'expérience de franges de Maker ne soit reproduite. Cette procédure est répétée jusqu'à qu'il n'y ait plus de signal de second harmonique mesurable. Myers a déterminé que ses lames polées présentaient une couche non-linéaire de $3\text{ }\mu\text{m}$ située sous la surface anodique.

W. Margulis et al. [82] ont raffiné la technique en effectuant simultanément l'attaque au HF et la mesure de l'épaisseur gravée ce qui permet de graver le matériau en continu donnant une résolution de 100 nm. Un laser He:Ne est dirigé à incidence quasi-normale sur la face anodique de la lame polée. Cette dernière est immergée dans le HF du côté de la face anodique seulement de façon que la face arrière demeure intacte pour que la réflexion sur cette face soit constante. Le signal interférométrique est mesuré au cours de l'attaque chimique. Afin d'avoir une référence, une zone non-polée de l'échantillon a été mesurée de la même façon : on utilise le fait ici que le taux d'attaque dans les deux zones est différent. Ainsi, lorsque la région de déplétion se trouve complètement gravée, le taux d'attaque devrait être le même dans les deux zones.

Une amélioration importante à cette méthode a également été proposée par des chercheurs travaillant avec W. Margulis [18, 69, 128, 129] : le signal de second harmonique de la lame est mesuré au cours de la gravure au HF. Cet ajout est intéressant

car il permet également de déterminer quelle région de la couche anodique génère le signal de second harmonique le plus élevé et donc présente la susceptibilité $\chi^{(2)}$ la plus grande.

Ces observations ont suggéré à l'équipe de Y. Quiquempois [114] de proposer un traitement mathématique qui permet de retrouver la distribution de la susceptibilité de second ordre induite à partir des données obtenues de l'expérience introduite par W. Margulis. Ce traitement est basé sur la reconstruction du profil de $\chi^{(2)}$ par étapes à partir du relevé de la puissance de second harmonique pour un angle d'incidence fixe en fonction de l'épaisseur gravée du matériau. Pour la première tranche enlevée, un profil constant est supposé ce qui permet de déterminer la phase et l'amplitude du signal. Ces informations en conjonction avec le signal obtenu au deuxième segment, permettent d'obtenir la phase et l'amplitude du signal de ce second segment. Ceci est répété pour le reste des données.

Ces différentes variantes de la technique interférométrique présentent l'intérêt d'avoir une grande résolution spatiale (100 nm) comparativement à la technique des franges de Maker. Elles ont néanmoins le désavantage d'être destructives. La technique de reconstruction proposée par Y. Quiquempois et al. dépend fortement de la puissance de second harmonique mesurée au cours de la gravure : il faut donc que cette mesure soit indépendante des fluctuations du laser de pompe et que la surface gravée ne devienne pas diffusante. Cette dernière remarque explique pourquoi cette technique ne permet de retrouver la distribution de la susceptibilité de second ordre que pour les premiers micromètres situés sous la surface anodique.

Y. Quiquempois [112] a aussi proposé de remplacer la gravure au HF par un polissage mécanique de la face anodique. Cette approche présente le désavantage important de ne pas permettre d'enlever de fines couches de matériau alors que la mesure simultanée du signal de second harmonique est impossible. Néanmoins, cette

technique permet d'obtenir un estimé de l'épaisseur de la couche anodique.

Différentes techniques ont été proposées afin de déterminer la distribution des charges dans les lames après poling. P. G. Kazansky et son équipe ont introduits une technique qui permet de localiser et déterminer le signe des charges électriques présentes dans la lame [61]. Elle consiste à générer une onde acoustique de faible durée par un laser pulsé intense : l'amplitude et le signe des courants induits par le mouvement des charges soumises à l'impulsion sont enregistrés en fonction de la position de l'impulsion dans la lame. Ceci a permis de montrer la présence de couches de charges positives et négatives près de la surface anodique. L'origine du champ électrique induit n'a pu être identifié. Egalement, la résolution de cette technique est limitée à $3\text{ }\mu\text{m}$ ce qui est insuffisant lorsque l'on veut caractériser la zone située immédiatement sous la surface.

T. Alley et al. [4] ont proposé une méthode permettant de déterminer la distribution des charges dans les lames polées. Elle est basée sur la gravure par HF de la lame dans la direction perpendiculaire à l'orientation du champ électrique statique induit par le poling. Des lames polées ont été découpées au centre de la zone polée et cette surface exposée a été attaquée au HF. Cette zone attaquée est ensuite étudiée avec un microscope à force atomique (AFM). Comme mentionné précédemment, le taux d'attaque au HF est affecté par la présence d'une zone de déplétion. Ces analyses ont permis de visualiser la position de la zone de déplétion de charges et son déplacement en fonction de la durée du poling.

Des mesures de SIMS (Scattered ion mass spectroscopy) ont également été effectuées par T. Alley et al. [6] sur les mêmes échantillons. L'analyse SIMS consiste à ablater une couche de la surface de l'échantillon par un faisceau d'ions. Les atomes ionisés sont séparés par un spectromètre de masse selon leur rapport masse/charge. L'ablation forme un cratère à la surface de l'échantillon : la mesure de la profondeur

de ce cratère au cours de l'analyse des ions éjectés donne la variation de l'intensité des ions en fonction du temps. En supposant un taux d'ablation constant (quelques nm/s), cette mesure peut être convertie en changement relatif de concentration d'un atome en fonction de la profondeur sous la surface de l'échantillon. La limite de détection de cette technique est de 5 ppm alors que la résolution est de $0,5\ \mu\text{m}$ pour de faibles profondeurs et de $2\ \mu\text{m}$ pour des profondeurs importantes. Ces résultats combinés avec ceux obtenus par gravure transversale ont mis en évidence l'injection de charges (K et Na) par la surface anodique dû à une contamination lors du poling ainsi que la présence de deux zones de déplétions associées au porteur rapide (Na) et à un second porteur plus lent (Li).

Il a également été proposé par différents chercheurs ([5, 35, 38, 85]) de mesurer le courant traversant l'échantillon au cours du poling. Un électromètre est placé en série après l'échantillon et le courant est ainsi mesuré.

T. G. Alley [5] a effectué cette mesure tout en mesurant simultanément la puissance de second harmonique généré. Une électrode d'ITO (Indium Tin Oxide) a été déposée sur le dessus de la lame et une électrode de silicium placée sous celui-ci. L'ITO présente la particularité d'être optiquement transparent pour les longueurs de pompe et de second harmonique tout en étant un conducteur électrique. Le montage optique est similaire à celui du montage des franges de Maker mais la lame est maintenue à un angle fixe et les mesures sont effectuées en réflexion [88]. Des mesures similaires ont été effectuées par F. C. Garcia [35] sur des verres dopés au sodium. Le processus de poling appliqué ici est différent de celui décrit à la section 1.2 : en effet, ici l'échantillon est maintenu à température constante (275°C) alors que la tension est d'abord montée à 5 kV avant d'être descendue à 0 (processus de depoling) puis à $-5\ \text{kV}$. Ce processus a été reproduit plusieurs fois et a permis d'observer la formation d'une charge d'espace lors de l'inversion de la tension ainsi que l'effet de plusieurs por-

teurs de charges. Ceci a amené de nombreux chercheurs [5, 15, 67, 75, 105, 113, 121] à proposer un modèle à plusieurs porteurs généralisant le formalisme de la section 1.2.2. Ce modèle permet de prévoir la distribution de charges sous la surface anodique et donc le champ électrique induit.

Si le modèle de migration est valide (Eq. 1.1), il est possible de déduire de la distribution du champ électrique induit la distribution de la susceptibilité de second ordre induite. Des mesures de courant de poling et de depoling ont été effectuées permettant d'en déduire un estimé du champ électrique de surface et donc de la susceptibilité de second ordre (N. Godbout et al. [38]).

Le groupe de C. J. S. Matos [85] a observé par le biais de mesures de courant de poling l'émission de charges. Les échantillons étudiés étaient des verres de sodium et une électrode de carbone était utilisée comme anode : ceci n'a pas été observé avec une électrode d'aluminium.

L'objectif de cette thèse étant de déterminer avec précision la distribution spatiale de la susceptibilité de second ordre dans l'épaisseur de l'échantillon, il nous faut donc employer une méthode permettant de déterminer à la fois l'amplitude de la susceptibilité, l'épaisseur de la couche non-linéaire et sa localisation dans l'échantillon. A la lumière des différentes méthodes présentées plus haut et visant à atteindre le même objectif, nous avons donc choisi de modifier la technique des franges de Maker afin d'en contourner les limitations. En effet, les techniques présentées ci-haut, en dehors de la méthode interférométrique de W. Margulis adaptée par Y. Quiquempois [114], ne permettent pas de déterminer cette distribution. Qui plus est, la technique interférométrique ne permet d'étudier que des couches minces ($10\ \mu\text{m}$). D'autres techniques aussi basées sur les franges de Maker seront discutées au chapitre 2.

1.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons introduit une technique expérimentale qui permet de générer une non-linéarité de second ordre dans des verres de silice qui n'en présentent pas autrement. Ce procédé repose sur la migration d'ions dans la matrice vitreuse qui induisent un champ statique permanent sous la surface anodique de la lame de verre. Nous avons en particulier présenté un modèle de migration ionique très simplifié qui permet de déterminer la distribution du champ électrique statique induit et donc de la non-linéarité de second ordre. En plus, nous disposons de relations permettant d'obtenir un ordre de grandeur de l'épaisseur de la couche non-linéaire créée ainsi que de l'amplitude de la susceptibilité d'ordre deux maximale. Enfin, nous avons présenté les différentes techniques utilisées par le passé pour caractériser la distribution de la susceptibilité de second ordre induite par le poling thermique de lames de silice.

Nous nous intéresserons dans le reste de cette thèse à une méthode optique basée sur la technique des franges de Maker permettant de complètement déterminer l'amplitude et la distribution de la susceptibilité de second ordre permanente présente après le poling.

Chapitre 2

Caractérisation optique par franges de Maker

2.1 Génération de second harmonique

2.1.1 Résolution des équations couplées

Soit une onde plane et monochromatique incidente à un angle θ_i sur une lame à faces parallèles. Les directions de propagation des différentes ondes présentes sont indiquées à la figure 2.1. Puisque le matériau est dispersif, les angles de réfraction des ondes de pompe et de second harmonique sont légèrement différents. Ces angles peuvent être calculés à partir de l'équation de Snell-Descartes pour chacune des ondes :

$$n \sin \theta_i = n_\omega \sin \theta_\omega \quad (2.1)$$

$$n \sin \theta_i = n_{2\omega} \sin \theta_{2\omega} \quad (2.2)$$

où n , n_ω et $n_{2\omega}$ sont les indices de l'air, du matériau aux longueurs d'onde de pompe et de second harmonique respectivement alors que θ_ω et $\theta_{2\omega}$ sont les angles de réfractions dans le matériau aux longueurs d'onde de pompe et de second harmonique respec-

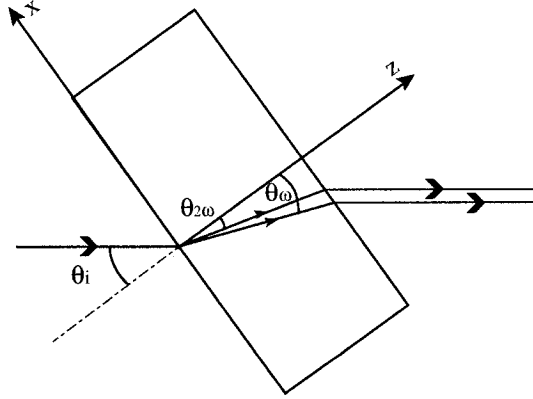


FIG. 2.1 – Schéma de la direction de propagation des ondes pompe et doublée dans le matériau non-linéaire.

tivement. En pratique, la différence entre ces angles de réfraction est très faible et se limite, du moins dans les cas considérés dans le cadre de cette thèse, à moins de $0,5^\circ$. Pour cette raison, nous allons développer les équations régissant la conversion de fréquences dans le cas où le faisceau de pompe et le faisceau de second harmonique généré dans l'échantillon sont colinéaires.

La démonstration des équations couplées régissant la génération de second harmonique ayant été largement présentée dans la littérature [9, 12], nous allons partir directement de ces équations afin d'arriver à l'expression modélisant les franges de Maker. Nous avons choisi le formalisme utilisé dans [12]. Le système de deux équations couplées s'exprime comme :

$$\frac{dE_i^\omega}{dZ} = \frac{-i\omega}{2cn_\omega} \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega; 2\omega, -\omega) E_j^{2\omega} E_k^\omega e^{-i\Delta k Z} \quad (2.3)$$

$$\frac{dE_i^{2\omega}}{dZ} = \frac{-i\omega}{2cn_{2\omega}} \chi_{ijk}^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega) E_j^\omega E_k^\omega e^{i\Delta k Z} \quad (2.4)$$

où c est la vitesse de la lumière dans le vide et $\chi_{ijk}^{(2)}$ sont les éléments du tenseur de la susceptibilité diélectrique de second ordre. Dans ces équations Δk est le désaccord

de nombre d'onde entre l'onde de pompe et son harmonique qui s'exprime :

$$\Delta k = k_{2\omega} - 2k_{\omega} = \frac{4\pi(n_{2\omega} - n_{\omega})}{\lambda}. \quad (2.5)$$

Cette expression est strictement valable dans le cas où nous supposons la propagation colinéaire des deux ondes : nous verrons subséquemment les implications de cette hypothèse.

Afin de résoudre ce système d'équations couplées, nous posons comme première hypothèse que les indices de réfraction sont indépendants de la position Z dans le matériau : cette hypothèse est raisonnable dans la mesure où le matériau est homogène comme le quartz ou encore que la variation d'indice de réfraction est très faible comme dans le cas de lames de silice polée où l'effet induit est très faible. Cette dernière remarque a une autre conséquence : si le taux de conversion est faible, cela revient à dire que le taux de variation de l'amplitude de l'onde de pompe est approximativement nul simplifiant ainsi l'équation 2.4 et annulant l'équation 2.3. En pratique, la polarisation de l'onde de pompe est contrôlable à l'aide d'une lame demi-onde et, en général, on souhaite caractériser le matériau selon une onde de pompe polarisée P (parallèle au plan d'incidence) ou S (perpendiculaire à ce même plan). De cette façon, l'équation 2.4 peut se réécrire sous la forme suivante en notant $E^{\omega} = E_k^{\omega} = E_j^{\omega} = \text{constante}$:

$$\frac{dE^{2\omega}}{dZ} = \frac{-i\omega}{2cn_{2\omega}} \chi_{\text{eff}}^{(2)}(Z) (E^{\omega})^2 e^{i\Delta k Z} \quad (2.6)$$

où $\chi_{\text{eff}}^{(2)}(Z)$ est la susceptibilité effective de second ordre sur lequel nous reviendrons à la section 2.1.2. Cette équation est aisément intégrable par rapport à Z . En notant L l'épaisseur de la lame à faces parallèles, on obtient :

$$E^{2\omega}(\theta) = \frac{-i\omega}{2cn_{2\omega}} (E^{\omega})^2 \int_0^{\frac{L}{\cos\theta}} \chi_{\text{eff}}^{(2)}(Z) e^{i\Delta k Z} dZ. \quad (2.7)$$

L'intensité d'une onde plane est donnée par :

$$I^{\omega} = \frac{\varepsilon_0 c n_{\omega}}{2} |E^{\omega}|^2 \quad (2.8)$$

ce qui permet d'obtenir l'intensité de l'onde de seconde harmonique en fonction de la distance z dans le matériau en effectuant le changement de variable $z = Z \cos \theta$:

$$I^{2\omega}(\theta) = \frac{\omega^2 (I^\omega)^2}{2\varepsilon_0 c^3 n_{2\omega} n_\omega^2 \cos^2 \theta} \left| \int_0^L \chi_{\text{eff}}^{(2)}(z) e^{\frac{i\Delta k z}{\cos \theta}} dz \right|^2. \quad (2.9)$$

Une des hypothèse qui a mené à l'obtention de l'équation 2.9 consiste à poser que les ondes qui interagissent dans le matériau étudié sont des ondes planes monochromatiques. Or, le laser que nous utilisons dans l'expérience des franges de Maker est un Nd:YAG linéairement polarisé et présentant un profil spatial approximativement gaussien. Le faisceau est focalisé sur l'échantillon en une tache de waist w_0 de $80 \mu\text{m}$ afin d'effectuer une mesure localisée sur l'échantillon et d'augmenter la densité de puissance. Ce laser fonctionne en mode impulsif avec un profil temporel également gaussien avec une durée d'impulsion d'environ $\tau = 200 \text{ ns}$. Il est donc nécessaire de modifier l'équation 2.9 avant de l'appliquer à des mesures expérimentales.

Il a été démontré [115] que dans le cas d'un faible taux de conversion, et, si les relations suivantes sont respectées :

$$\frac{L}{\cos(\theta)} < \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (2.10)$$

$$\frac{L}{\cos(\theta)} < \frac{\tau^2}{2 \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2}} \quad (2.11)$$

$$\frac{L}{\cos(\theta)} < \frac{\tau v_\omega v_{2\omega}}{v_\omega - v_{2\omega}}, \quad (2.12)$$

il est possible de remplacer l'amplitude de l'onde plane par celle du champ instantané à l'entrée de la lame. Ici, $\frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2}$ représente la dispersion des vitesses de groupe alors que v_ω et $v_{2\omega}$ sont respectivement les vitesses de groupe à la longueur d'onde pompe et second harmonique. Les courbes présentant ces trois paramètres sont présentées à l'annexe A. Pour les longueurs d'onde qui nous intéressent ici (532 nm et 1064 nm), et sachant que nos échantillons mesurent au plus 1,2 mm, on détermine que l'angle interne maximal de la région de validité de ces hypothèses est de 86° .

Lorsque la lame tourne dans le plan, la projection du faisceau du laser sur la lame inclinée fait en sorte que le faisceau n'est plus circulaire mais elliptique : il y a anamorphisme, le waist du laser est plus grand selon l'axe x que selon l'axe y (se référer à la figure 2.1). Ainsi, w_{0x} varie avec l'angle de propagation alors que w_{0y} reste constant. Il faut donc multiplier le champ E^ω par le facteur suivant :

$$F(x, y, z, t) = e^{-\left(\frac{x^2}{w_{0x}^2} + \frac{y^2}{w_{0y}^2}\right)} e^{-\frac{t^2}{2\tau^2}}. \quad (2.13)$$

L'intensité devient donc :

$$I(x, y, z, t) = I_0 e^{-2\left(\frac{x^2}{w_{0x}^2} + \frac{y^2}{w_{0y}^2}\right)} e^{-\frac{t^2}{\tau^2}} \quad (2.14)$$

où I_0 dénote l'intensité maximale ($t = 0$). La puissance optique instantanée est définie comme

$$P^\omega(t) = \iint I(x, y, z, t) dx dy = \frac{I_0 w_{0x} w_{0y} \pi}{2} e^{-\frac{t^2}{2\tau^2}} \quad (2.15)$$

La puissance crête est atteinte lorsque l'exponentielle de l'équation 2.15 égale 1 et en vertu de l'équation 2.9 :

$$P_c^{2\omega}(t) = \frac{\omega^2 (P_c^\omega)^2}{2\varepsilon_0 c^3 n_{2\omega} n_\omega^2 \cos^2(\theta) \pi w_{0x} w_{0y}} \left| \int_0^L \chi_{\text{eff}}^{(2)}(z) e^{\frac{i\Delta k z}{\cos \theta}} dz \right|^2 \quad (2.16)$$

Dans la lame, le waist minimum est donné par

$$w_{0x} = w_{0y} \frac{\cos \theta_i}{\cos \theta} \quad (2.17)$$

Cette expression permet de calculer la puissance de second harmonique générée dans un échantillon. Néanmoins, il faut encore connaître la dépendance angulaire de $\chi_{\text{eff}}^{(2)}(z)$ qui provient de la symétrie de $\chi_{ijk}^{(2)}(z)$ pour le matériau et aussi les pertes de puissance dues aux interface air-matériau. Ces questions sont respectivement l'objet des sections suivantes.

2.1.2 Symétrie du tenseur de $\chi_{\text{eff}}^{(2)}(z)$ pour le quartz et la silice polée

La détermination du tenseur de la susceptibilité non-linéaire d'ordre deux est essentielle si l'on veut ensuite analyser les résultats expérimentaux et retrouver avec précision l'amplitude et, dans le cas de l'étude de verres de silice polée, la distribution spatiale de cette non-linéarité. La susceptibilité peut se diviser en deux composantes : une première reflétant la distribution spatiale de la susceptibilité dans la lame et l'autre associée à la structure même du matériau. La notation contractée des indices qui permet de passer de $\chi_{ijk}^{(2)}(z)$ à $\chi_{\text{eff}}^{(2)}(z)$ est présentée à l'annexe B. Dans le cadre de cette étude, nous avons caractérisé deux matériaux non-linéaires distincts : le quartz et la silice polée. Nous allons traiter chacun de ces cas séparément en débutant avec la silice.

Tenseur de $\chi_{\text{eff}}^{(2)}(z)$ pour la silice polée

Nous avons vu à la section 1.1.2 que dans le cas d'une lame à face parallèles de silice polée, le champ électrostatique induit par le poling est perpendiculaire aux faces de la lame. L'échantillon se comporte comme un cristal ayant la symétrie de rotation autour de l'axe optique selon z . Le tenseur de susceptibilité d'ordre deux d'un matériau présentant une telle symétrie est présenté à l'équation 2.18 tirée de Boyd [9].

$$\chi_{\text{eff}}^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{13}^{(2)} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{13}^{(2)} & 0 & 0 \\ \chi_{13}^{(2)} & \chi_{13}^{(2)} & \chi_{33}^{(2)} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.18)$$

L'orientation des axes du système est présentée à la figure 2.2. Nous allons dans un premier temps nous intéresser au cas où le faisceau laser est polarisé dans le plan d'incidence (polarisation P). La polarisation générée à la fréquence de second

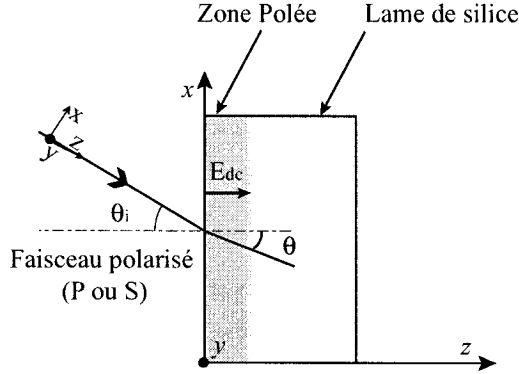


FIG. 2.2 – Orientation des axes «cristallographiques» d'une lame de silice polée. Ici, le référentiel (x, y, z) est celui de la lame alors que (x, y, z) est celui du faisceau.

harmonique s'exprime comme suit pour cette polarisation :

$$P_P^{2\omega} = P_x^{2\omega} \cos \theta + P_z^{2\omega} \sin \theta \quad (2.19)$$

où l'indice P indique la polarisation P et θ est l'angle de propagation interne du faisceau de second harmonique ($\theta = \theta_{2\omega}$). Les composantes de cette polarisation dans le référentiel de la lame sont données par

$$P_x^{2\omega} = 2\chi_{13}^{(2)} E_x^\omega E_z^\omega \quad (2.20)$$

$$P_y^{2\omega} = 0 \quad (2.21)$$

$$P_z^{2\omega} = \chi_{13}^{(2)} (E_x^\omega)^2 + \chi_{33}^{(2)} (E_z^\omega)^2. \quad (2.22)$$

En supposant toujours que $\theta_\omega = \theta_{2\omega} = \theta$, le champ électrique du faisceau incident de polarisation P est donné par

$$E_x^\omega = E_P^\omega \cos \theta \quad (2.23)$$

$$E_y^\omega = 0 \quad (2.24)$$

$$E_z^\omega = E_P^\omega \sin \theta. \quad (2.25)$$

Combinons maintenant les équations 2.19 à 2.23, nous obtenons la polarisation non-linéaire totale :

$$P_P^{2\omega} = (E_P^\omega)^2 \sin \theta [\chi_{33}^{(2)} \sin^2 \theta + 3\chi_{13}^{(2)} \cos^2 \theta]. \quad (2.26)$$

Dans le cas où le modèle de migration de charges est valide (section 1.1.2), $\chi_{33}^{(2)} = 3\chi_{13}^{(2)}$. Pour les expériences menées dans le cadre de cette thèse il s'est avéré que cette relation est valide. Substituons dans l'équation 2.26, nous obtenons finalement

$$\chi_{\text{eff}}^{(2)} = \chi_{33}^{(2)} \sin \theta. \quad (2.27)$$

En effectuant le même raisonnement pour le cas où la polarisation du faisceau laser incident est selon l'axe y (polarisation S), la susceptibilité effective devient

$$\chi_{\text{eff}}^{(2)} = \chi_{13}^{(2)} \sin \theta = \frac{1}{3} \chi_{33}^{(2)} \sin \theta. \quad (2.28)$$

Tenseur de $\chi_{\text{eff}}^{(2)}(z)$ pour le quartz coupe x

Nous avons employé à plusieurs reprises dans le cadre de ce travail des lames de quartz coupées selon l'axe x communément appelées x - *cut*. Le schéma des axes cristallographiques de la lame et de l'orientation de la polarisation du faisceau laser est illustré à la figure 2.3.

L'équation 2.29 donne la forme du tenseur de la susceptibilité d'ordre deux pour le groupe de symétrie du quartz [9].

$$\chi_{\text{eff}}^{(2)} = \begin{pmatrix} \chi_{11}^{(2)} & -\chi_{11}^{(2)} & 0 & \chi_{14}^{(2)} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -\chi_{14}^{(2)} & -\chi_{11}^{(2)} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.29)$$

La polarisation générée au second harmonique s'exprime comme suit pour une polarisation P incidente :

$$P_P^{2\omega} = P_x^{2\omega} \sin \theta + P_y^{2\omega} \cos \theta \quad (2.30)$$

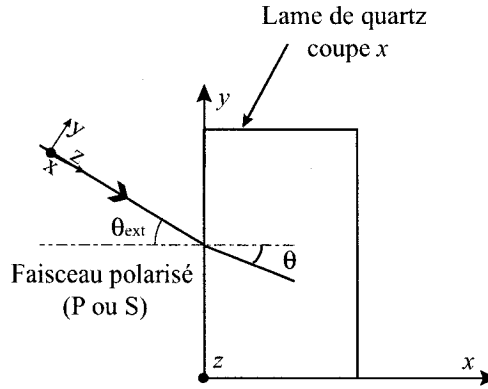


FIG. 2.3 – *Orientation des axes cristallographiques d'une lame de quartz avec une coupe x. Ici, le référentiel (x, y, z) est celui de la lame alors que (x, y, z) est celui du faisceau.*

où θ est l'angle de propagation interne du faisceau de second harmonique ($\theta = \theta_{2\omega}$). Les composantes de cette polarisation non-linéaire dans le référentiel de la lame sont données par les relations suivantes en utilisant le tenseur tel que défini précédemment :

$$P_x^{2\omega} = \chi_{11}^{(2)}[(E_x^\omega)^2 - (E_y^\omega)^2] \quad (2.31)$$

$$P_y^{2\omega} = -\chi_{11}^{(2)} E_x^\omega E_y^\omega \quad (2.32)$$

$$P_z^{2\omega} = 0. \quad (2.33)$$

Selon la figure 2.3, on voit que le champ électrique polarisé dans le plan d'incidence s'exprime comme

$$E_x^\omega = E_P^\omega \sin \theta \quad (2.34)$$

$$E_y^\omega = E_P^\omega \cos \theta \quad (2.35)$$

$$E_z^\omega = 0. \quad (2.36)$$

En combinant les équations 2.30 à 2.34, nous obtenons la forme suivante :

$$P_P^{2\omega} = (E_P^\omega)^2 \chi_{11}^{(2)} \sin \theta [1 - 4 \cos^2 \theta]. \quad (2.37)$$

Le susceptibilité effective est donc

$$\chi_{\text{eff}}^{(2)} = \chi_{11}^{(2)} \sin \theta [1 - 4 \cos^2 \theta]. \quad (2.38)$$

Dans le cas où la polarisation de l'onde optique est perpendiculaire au plan d'incidence, on a que $E_x = E_y = 0$ et donc que les termes de l'équation 2.31 et 2.31 s'annulent : il ne devrait donc y avoir aucune génération de second harmonique dans ce cas.

2.1.3 Réflexions de Fresnel

L'échantillon à faces parallèles est placé dans l'air et selon la loi de Snell-Descartes il y a réfraction à chacune des interfaces : ce phénomène limite l'angle interne maximal dans la silice et le quartz à $43,2^\circ$ et $40,2^\circ$ respectivement à la longueur d'onde du second harmonique. Les valeurs des indices de réfraction de ces deux matériaux pour différentes longueurs d'onde sont présentées à l'annexe A. Il faut aussi tenir compte des réflexions de Fresnel à chaque interface. Ces formules dépendent de la polarisation de l'onde de pompe. Les coefficient de transmission pour les deux polarisations usuelles parallèle (notée P) et perpendiculaire (notée S) au plan d'incidence sont données par les équations 2.39 et 2.40 où les indices i et t indiquent le milieu d'incidence et le milieu de transmission.

$$T_P = \frac{4n_i n_t \cos \theta_i \cos \theta_t}{(n_i \cos \theta_t + n_t \cos \theta_i)^2} \quad (2.39)$$

$$T_S = \frac{4n_i n_t \cos \theta_i \cos \theta_t}{(n_i \cos \theta_i + n_t \cos \theta_t)^2} \quad (2.40)$$

L'onde de pompe subit une réfraction à la première interface et est transmise avec un angle θ_ω alors que l'onde de second harmonique est générée avec un angle légèrement

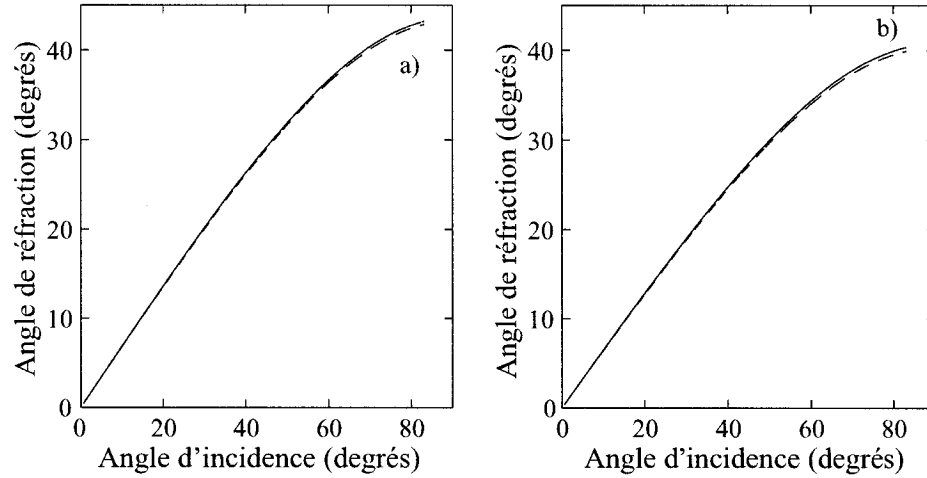


FIG. 2.4 – Angles de réfractions dans la silice (a) et le quartz (b) à la longueur d'onde de pompe (θ_ω , ligne continue) et à la longueur de second harmonique ($\theta_{2\omega}$, ligne tirée).

différent noté $\theta_{2\omega}$: ceci provient du fait que le matériau est dispersif. Nous avons d'ailleurs posé comme hypothèse lors du développement de la relation reliant la puissance de second harmonique générée à celle de la pompe que les deux faisceaux étaient colinéaires. Ceci est illustré à la figure 2.4 où les angles de réfraction pour une propagation colinéaire et non-colinéaire sont tracés en fonction de l'angle d'incidence pour la silice et le quartz. On remarque tout d'abord que quel que soit le matériau, la différence angulaire est très faible et est seulement visible pour des angles internes proches de la limite de réfraction : en première approximation, l'hypothèse posée précédemment est donc tout à fait adéquate pour le cas qui nous préoccupe. Néanmoins, nous allons développer parallèlement les formules de transmission pour les deux cas afin de les comparer mais aussi parce que nous allons rencontrer dans une prochaine section des situations où il est nécessaire d'utiliser une formule tenant compte de la propagation non-colinéaire.

Développons maintenant les équations qui nous donneront le coefficient de transmission en polarisation P ou S. Nous allons nous référer à la figure 2.1 et rappeler l'équation 2.16. L'onde de pompe subit d'abord une réfraction à la première interface air-verre avec un coefficient de transmission noté T_{12} et est ensuite faiblement convertie en second harmonique. Cette dernière est à son tour réfractée à la deuxième interface avec un coefficient de transmission noté T_{21} . Par conséquent, puisque la puissance de second harmonique est proportionnelle au carré de la puissance pompe, le coefficient de transmission est donné par :

$$T_{tot} = T_{12}^2 T_{21} \quad (2.41)$$

En introduisant les définitions des différents coefficients dans cette dernière équation, on obtient pour une polarisation de l'onde de pompe parallèle ou perpendiculaire au plan d'incidence les relations suivantes pour le cas colinéaire :

$$T_{tot,P} = 64 \frac{n_{2\omega} n_{\omega}^2 \cos^3 \theta_i \cos^3 \theta}{(\cos \theta + n_{\omega} \cos \theta_i)^4 (n_{2\omega} \cos \theta_i + \cos \theta)^2} \quad (2.42)$$

$$T_{tot,S} = 64 \frac{n_{2\omega} n_{\omega}^2 \cos^3 \theta_i \cos^3 \theta}{(\cos \theta_i + n_{\omega} \cos \theta)^4 (n_{2\omega} \cos \theta + \cos \theta_i)^2} \quad (2.43)$$

où nous avons posé $\theta_t = \theta$ qui est l'angle de propagation interne alors que θ_i est l'angle externe. Le détail des calculs ainsi que les équations pour le cas non-colinéaire sont présentés à l'annexe C. Les deux coefficients précédents sont tracés en fonction de l'angle d'incidence pour les cas colinéaire et non-colinéaire, pour une lame de silice (2.5) et une lame de quartz (2.6). Nous remarquons tout d'abord que les différences entre les courbes du cas colinéaires et celles du cas non-colinéaire sont faibles pour les petits angles ce qui confirme que les hypothèses sont valides. De plus, on voit que les réflexions de Fresnel ont plus d'effet sur la limite de la plage des angles pouvant être explorés dans le quartz puisque son indice de réfraction est plus élevé que celui de la silice.

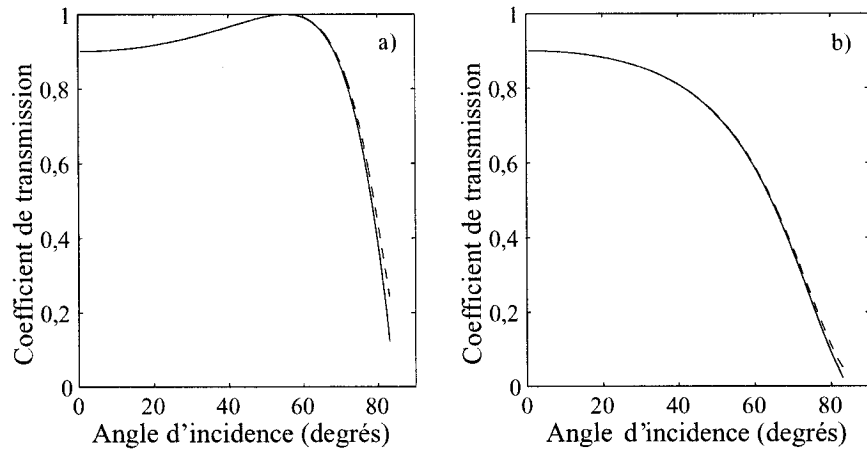


FIG. 2.5 – Coefficients de transmission pour une polarisation P (a) et une polarisation S (b) dans une lame de silice. Le cas colinéaire correspond aux lignes continues alors que le cas non-colinéaire correspond aux lignes tiretées.

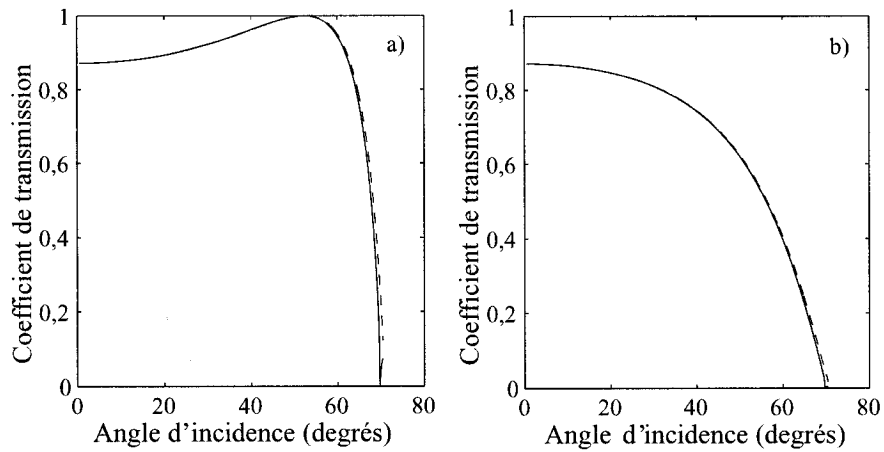


FIG. 2.6 – Coefficients de transmission pour une polarisation P (a) et une polarisation S (b) dans une lame de quartz. Le cas colinéaire correspond aux lignes continues alors que le cas non-colinéaire correspond aux lignes tiretées.

2.1.4 Simulation numérique des franges de Maker

Les relations développées dans les sections précédentes nous permettent maintenant de modéliser les franges de Maker obtenues expérimentalement. Pour ce faire, il suffit d'utiliser l'équation 2.16 et les relations de Fresnel appropriées suivant la polarisation incidente du faisceau de pompe. Les paramètres relatifs au faisceau laser peuvent être mesurés expérimentalement (section 2.2) alors que les indices de réfractons eux dépendent du matériau caractérisé. Lors de ce travail, nous avons étudié des lames de quartz de coupe x ainsi que des lames de silice polée avec le montage décrit au Chapitre 1. Les indices de réfraction en fonction de la longueur d'onde sont présentés à l'annexe A. Par conséquent, la seule portion de la relation qui reste à déterminer est l'intégrale en z , soit

$$f(\theta) = \left| \int_0^L \chi_{\text{eff}}^{(2)}(z) e^{\frac{i\Delta k z}{\cos \theta}} dz \right|^2 \quad (2.44)$$

Ce terme qui tient compte de la distribution spatiale de la non-linéarité de second ordre dépend évidemment de l'échantillon.

Afin de simplifier la présentation des résultats dans la suite de cette section, nous ignorons les préfacteurs présents dans l'équation 2.16 et ne considérons que les termes suivants

$$P^{2\omega}(\theta) = C \frac{f(\theta)T(\theta)}{\cos^2 \theta} \quad (2.45)$$

où $T(\theta)$ représente le coefficient total de transmission de Fresnel et C est un facteur de proportionnalité. Nous allons maintenant présenter les simulation pour des lames de quartz coupe x et des lames de silice polée.

Franges de Maker théoriques dans une lame de quartz coupe x

Dans le cas du quartz, la nonlinéarité de second ordre est distribuée uniformément dans toute l'épaisseur de l'échantillon. La symétrie du tenseur a déjà été étudiée à

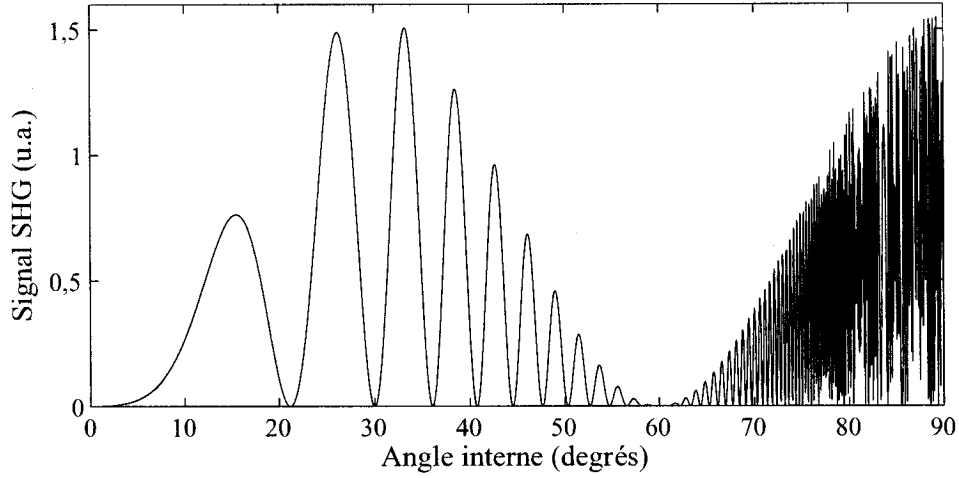


FIG. 2.7 – *Evolution théorique de la puissance de l'onde de second harmonique en fonction de l'angle de propagation interne pour une lame de quartz plongée dans un milieu de même indice de réfraction lorsque le faisceau laser est polarisé P.*

la section 2.1.2. Les franges de Maker théoriques pour une lame de $500\ \mu\text{m}$ sont présentées sur la figure 2.7 dans le cas où la lame est plongée dans un milieu de même indice de réfraction : par conséquent, l'angle de propagation à l'intérieur de la lame n'est pas limité par les réfractions air-verre. Également, les franges de Maker pour la même lame mais cette fois placée dans l'air sont présentées à la figure 2.8. Nous notons ici l'effet important des réfractions aux interfaces air-verre qui coupent plus de la moitié du signal puisque l'angle limite de réfraction est de $40,2^\circ$. Néanmoins, il est encore possible d'obtenir plusieurs franges de Maker ce qui à partir des mesures expérimentales, permet de déterminer avec précision la valeur du tenseur de second harmonique puisque l'épaisseur de la zone non-linéaire est connue avec précision (épaisseur de la lame).

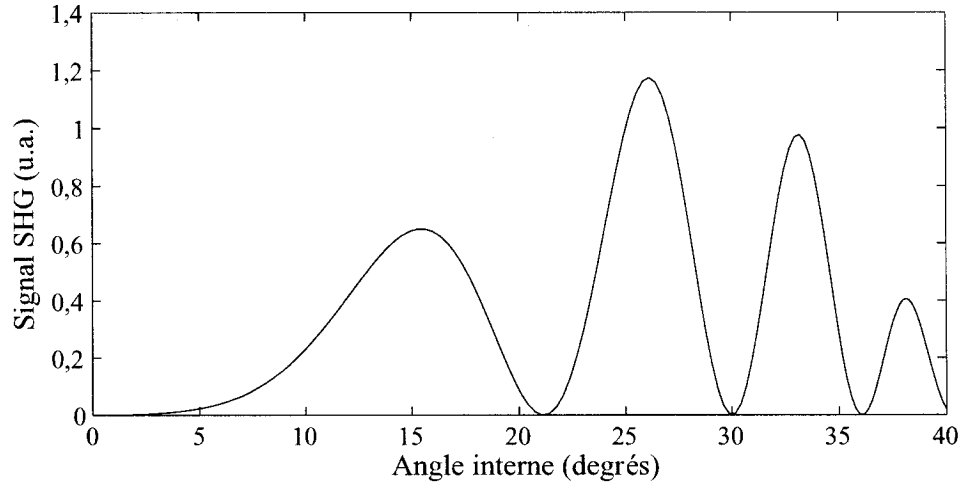


FIG. 2.8 – *Evolution théorique de la puissance de l'onde de second harmonique en fonction de l'angle de propagation interne pour une lame de quartz plongée dans l'air lorsque le faisceau laser est polarisé P.*

Franges de Maker théoriques dans une lame de silice polée

Nous allons maintenant étudier le cas où la non-linéarité n'est pas distribuée uniformément dans la profondeur de l'échantillon ce qui est le cas pour des lames de silice polée comme celles étudiées au chapitre 3.

Considérons tout d'abord que la non-linéarité est située immédiatement sous la surface et est constituée d'une mince couche homogène. Le résultat d'une telle distribution est illustré à la figure 2.9 pour le cas où les réfractions de Fresnel sont présentes et celui où elles sont ignorées. Il faut d'abord noter que le maximum de la frange de Maker observé vers 37° ne correspond pas au premier maximum des franges qui est situé vers 68° , bien au-delà de la limite imposée par les réfractions de Fresnel, soit $43,2^\circ$ qui provient de la réfraction limite à l'interface air-verre. Les réfractions de Fresnel, en conjonction avec l'épaisseur de la couche non-linéaire, influencent la position du maximum. Cette observation ajoutée au fait que seule une frange soit visible

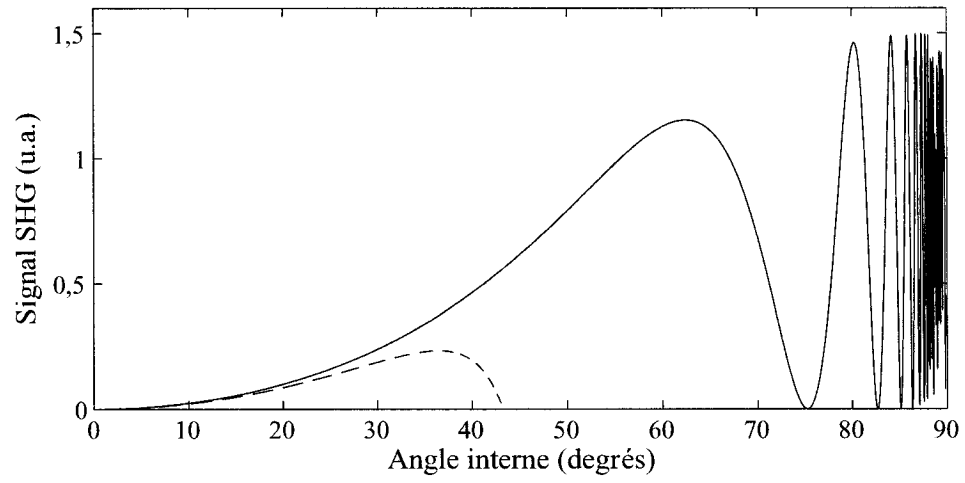


FIG. 2.9 – *Evolution théorique de la puissance crête de la seconde harmonique en fonction de l'angle de propagation interne avec (ligne tiretée) et sans (ligne continue) limitations de Fresnel pour une lame de silice polée avec une couche non-linéaire uniforme de $15\ \mu\text{m}$ d'épaisseur.*

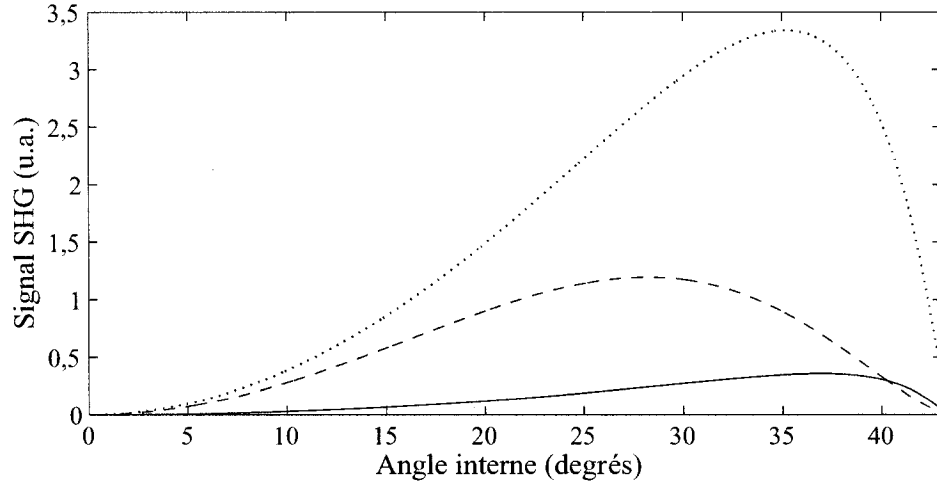


FIG. 2.10 – *Evolution théorique de la puissance de second harmonique en fonction de l'angle de propagation interne avec limitations de Fresnel pour des lames de silice polée ayant une couche non-linéaire uniforme de $5\ \mu\text{m}$ (ligne continue), de $25\ \mu\text{m}$ (ligne pointillée) et de $40\ \mu\text{m}$ (ligne tiretée) d'épaisseur. L'amplitude de la non-linéarité est maintenue constante.*

entraîne une grande incertitude sur la détermination de l'épaisseur de la couche et par conséquent sur la valeur même de la non-linéarité. L'allure des franges de Maker simulées pour des couches dont les épaisseurs varient de 5 à $40\ \mu\text{m}$ et où l'amplitude maximum de la non-linéarité est maintenue sont présentées à la figure 2.10. Nous remarquons que la position du maximum varie en fonction de l'épaisseur simulée : pour des épaisseurs croissantes, le maximum se déplace vers des angles plus petits. Néanmoins, il ne faut pas en déduire qu'un maximum à faible angle signifie nécessairement une grande épaisseur.

Nous allons maintenant nous attarder à l'étude d'une seconde distribution de la non-linéarité qui correspond à une situation pratique rencontrée au chapitre 3. Nous allons étudier le cas où une couche de faible épaisseur est sous la surface de

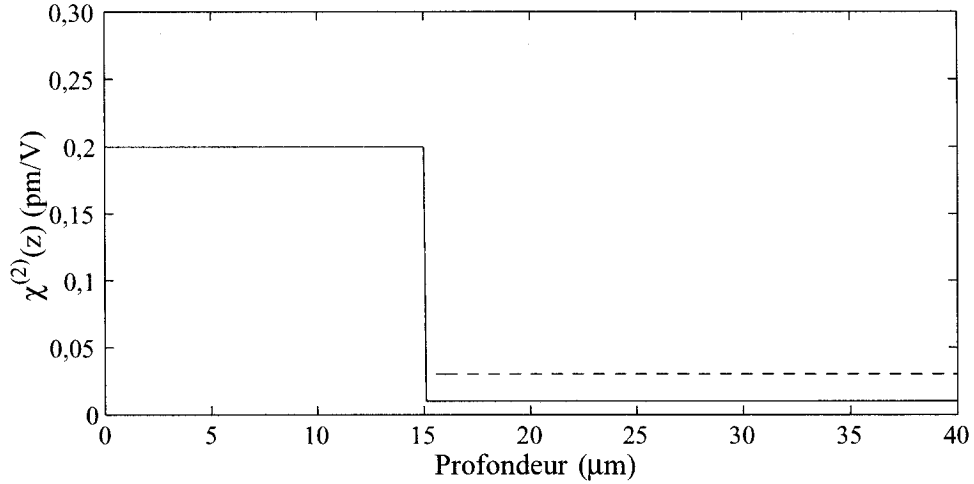


FIG. 2.11 – *Distribution de la non-linéarité dans la profondeur de lames de 1 mm d'épaisseur. La non-linéarité de la seconde distribution (ligne tiretée) est le double de la première (ligne continue). La couche de volume est uniforme dans toute la profondeur de l'échantillon.*

l'échantillon alors que s'y superpose une seconde couche dont l'amplitude de la non-linéarité est beaucoup plus faible mais distribuée dans l'ensemble de l'échantillon. De telles distributions sont illustrées à la figure 2.11. Elles sont similaires, seule l'amplitude de la nonlinéarité dans le volume a été doublée. Les franges de Maker pour ces deux distributions sont présentées à la figure 2.12. L'effet de la présence de cette seconde couche est bien visible et s'illustre par la surmodulation de haute fréquence qui se superpose à la frange de Maker due à la première couche. Egalement, on voit qu'une augmentation de la seconde nonlinéarité a pour effet de creuser davantage la frange et ainsi d'augmenter le contraste.

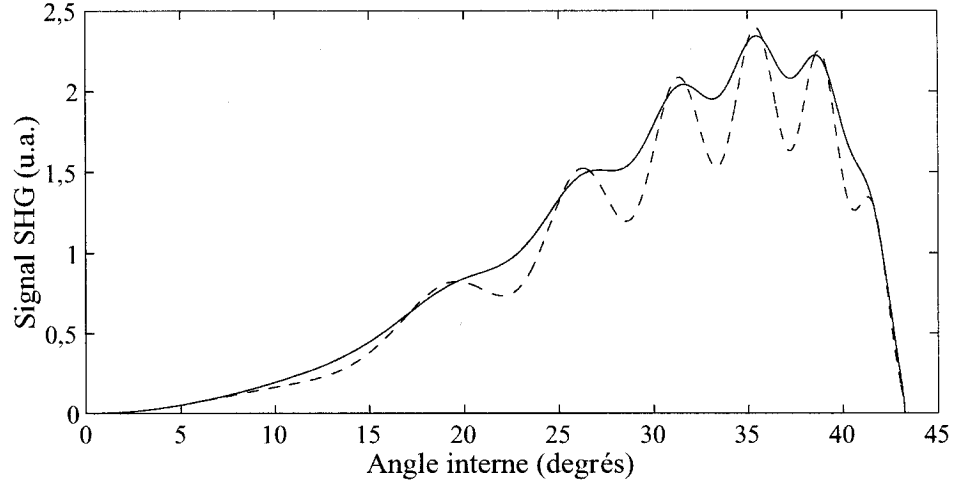


FIG. 2.12 – *Evolution théorique de la puissance de second harmonique en fonction de l'angle de propagation interne avec limitations de Fresnel pour les distributions illustrées à la figure 2.11.*

Limitations dues aux réfractions de Fresnel

Comme nous l'avons mentionné précédemment, la présence des réfractions de Fresnel limite grandement l'information qu'il est possible d'obtenir sur la distribution de la non-linéarité dans l'échantillon. En particulier, il est impossible de déterminer avec précision l'épaisseur réelle de la couche non-linéaire induite par le poling thermique et donc l'amplitude de la susceptibilité. Afin d'illustrer ceci, nous avons tracé à la figure 2.13a) deux distributions très différentes et les franges de Maker simulées correspondantes à la figure 2.13b). Comme nous pouvons l'observer, les franges de Maker sont presque identiques empêchant de discriminer entre les deux profils. Ceci a pour effet d'entacher la valeur de l'épaisseur de la couche non-linéaire d'incertitudes importantes malgré le fait que cette valeur soit très différente dans les deux cas (20 et 30 μm). L'exemple présenté ici est extrême puisque les deux distributions de la figure 2.13a) sont très différentes ce qui augmente l'incertitude sur l'épaisseur. Nous

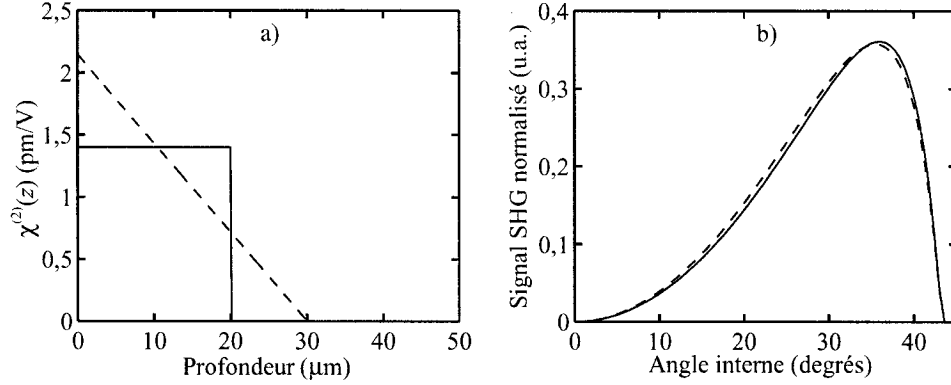


FIG. 2.13 – *Franges de Maker simulées (b) avec réflexions de Fresnel pour deux distributions de la nonlinéarité (a).*

allons donc évaluer l'importance de cette incertitude pour le cas simple d'une distribution créneau uniforme telle qu'illustrée à la figure 2.13a). Appellons ΔL l'incertitude sur l'évaluation de l'épaisseur de la couche non-linéaire qui provient de l'incertitude $\Delta\theta$ sur l'évaluation du maximum de la frange de Maker. La relation entre ces deux quantités est donnée par :

$$\Delta L = \left| \frac{1}{\frac{\partial \theta_{max}(L)}{\partial L}} \right| \cdot \Delta\theta \quad (2.46)$$

où $\theta_{max}(L)$ est la position angulaire du maximum de la frange de Maker pour une couche non-linéaire d'épaisseur L et $\Delta\theta$ est l'incertitude sur cette position. Au vu des résultats expérimentaux présentés au chapitre 3, nous évaluons cette incertitude à 1° . Le calcul de ΔL a été effectué en utilisant l'expression précédente et avec la définition de la puissance de seconde harmonique de l'équation 2.45 et ce, pour le coefficient de Fresnel pour une polarisation P. Le résultat du calcul a été tracé à la figure 2.14 pour des épaisseurs de couche allant jusqu'à $40 \mu\text{m}$ qui correspond à l'épaisseur maximale rencontrée expérimentalement. Nous voyons que l'incertitude calculée est très importante pour des épaisseurs inférieures à $20 \mu\text{m}$ et qu'en dessous de

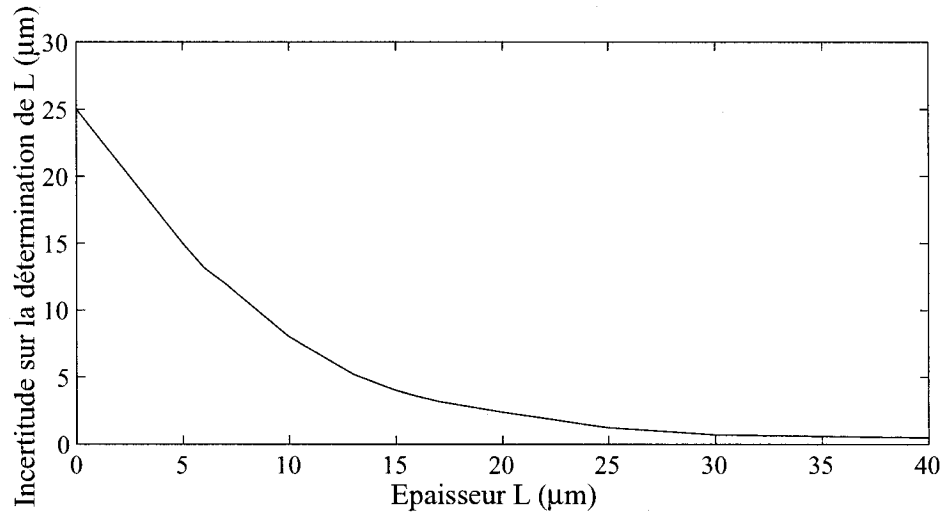


FIG. 2.14 – *Incertitude calculée sur la détermination de l'épaisseur L de la couche non-linéaire uniforme dans une lame de silice pour le cas où les réflexions de Fresnel sont présentes.*

10 μm elle est même supérieure à l'épaisseur elle-même. Par conséquent, la technique ne peut être utilisée pour la caractérisation de couches non-linéaire minces. A titre de comparaison, nous avons effectué le même calcul en supposant que les réflexions de Fresnel sont absentes : le résultat est illustré à la figure 2.15. Nous voyons ici que l'incertitude sur la détermination de l'épaisseur est bien inférieure au cas avec lentilles et qu'il est maintenant possible de mesurer avec précision des couches aussi fines que 4 μm . Nous allons proposer dans la suite de ce chapitre une méthode expérimentale permettant de se rapprocher du cas idéal où l'effet des réfractions de Fresnel est minimisé.

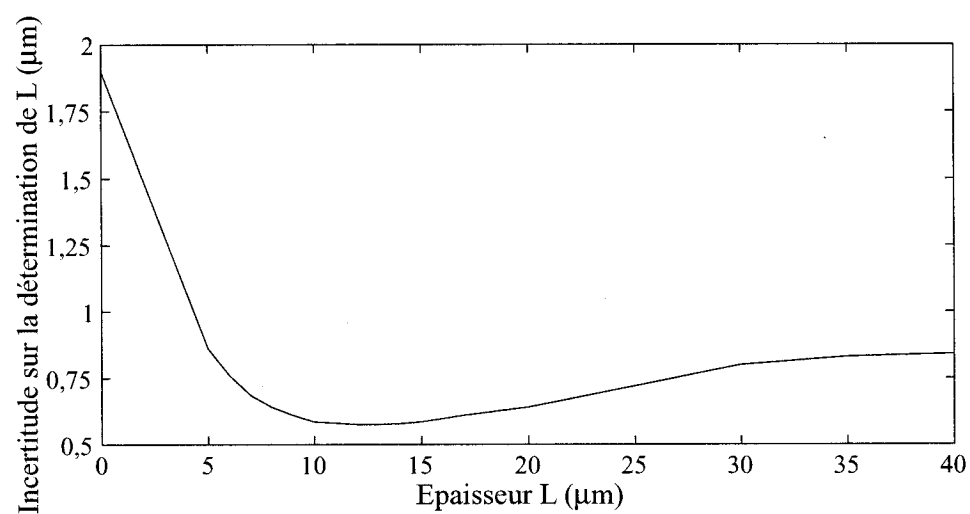


FIG. 2.15 – Incertitude calculée sur la détermination de l'épaisseur L de la couche non-linéaire uniforme dans une lame de silice pour le cas où les réflexions de Fresnel sont absentes.

2.1.5 Méthode Maker-Fourier

Rappelons l'équation 2.45 qui donne la puissance de second harmonique générée en fonction de l'angle d'incidence, soit

$$P^{2\omega}(\theta) = C \frac{f(\theta)T(\theta)}{\cos^2 \theta} \quad (2.47)$$

où C est une constante et

$$f(\theta) = \left| \int_0^L \chi_{\text{eff}}^{(2)}(z) e^{\frac{i\Delta k z}{\cos \theta}} dz \right|^2 \quad (2.48)$$

est l'amplitude au carré de la transformée de Fourier de $\chi_{\text{eff}}^{(2)}(z)$ avec $k = \frac{\Delta k}{\cos \theta}$ comme fréquence spatiale. Maintenant, multiplions par k^2 les transformées de Fourier au carré pour les deux distributions illustrées à la figure 2.13(a) : le résultat qui est simplement $f \cdot k^2$ est tracé en fonction de k à la figure 2.16(b). Notons que pour cette représentation, le signal des θ positifs et négatifs est superposé puisqu'ils correspondent au même k . Ce signal est appelé dans la suite de cette thèse *signal de Fourier-Maker*. A titre de référence, nous avons également tracé les mêmes signaux simulés en fonction de l'angle de propagation interne à la figure 2.16(a). Dans le cas où la réfraction est présente, le seul signal disponible est celui qui se trouve marqué par le rectangle gris de la figure 2.16. En effet, la limite inférieure est $k \geq \Delta k$: ceci provient du fait que le plus petit angle mesurable est 0° et que $k = \frac{\Delta k}{\cos \theta}$. Cette limite est également valide pour le cas où les réfractions de Fresnel sont absentes. La limite supérieure quand à elle est déterminée par l'angle de réfraction limite qui est de $43,2^\circ$ pour la silice. Nous remarquons qu'ici les signaux simulés sont très similaires et que même en représentation Fourier-Maker, il est impossible de discriminer entre les deux distributions.

Par contre, lorsque les réflexions de Fresnel sont absentes, nous constatons immédiatement pour le premier profil (échelon), que le signal Fourier-Maker est simplement un sinus carré. En effet, le résultat de l'intégration de l'équation 2.44 pour cette

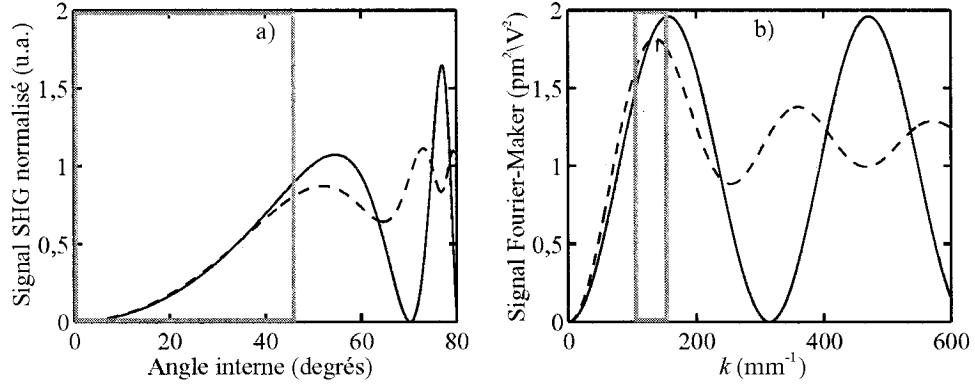


FIG. 2.16 – a) *Franges de Maker* et b) *signal Fourier-Maker* pour les distributions de $\chi_{\text{eff}}^{(2)}(z)$ présentées à la figure 2.13(a). Les rectangles gris indiquent les données disponibles lorsque les réfractions de Fresnel sont présentes.

distribution donne

$$f = \frac{4}{k^2} \sin^2 \frac{kL}{2} \quad (2.49)$$

où L est l'épaisseur de la couche non-linéaire. Si on multiplie ce résultat par k^2 , le signal obtenu est simplement un sinus carré. Par conséquent, si le signal à analyser est bien un sinus carré, il est possible de déterminer immédiatement l'épaisseur L de la couche non-linéaire par

$$L = \frac{2\pi}{S} \quad (2.50)$$

où S est la période du signal. Dans le cas présent, il est aisé de vérifier que l'épaisseur de la couche est bien de $20 \mu\text{m}$. De la même façon, le maximum de l'amplitude de ce signal correspond au carré de $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$ qui est bien ici de $1,4 \text{ pm/V}$. Si nous observons maintenant le signal Fourier-Maker pour le profil triangulaire (ligne tiretée), nous constatons qu'il est très différent du signal précédent : une distribution triangulaire donne donc un sinus carré amorti dans la représentation Fourier-Maker. Il est donc possible de déterminer par simple inspection de ce signal la nature de la distribution de

la non-linéarité dans l'échantillon et en particulier de déterminer si il s'agit d'un profil constant ou non. Pour des profils plus complexes composés de plusieurs structures, la représentation de Fourier-Maker permet d'effectuer une analyse préliminaire du signal expérimental et ainsi faciliter le lissage de ces courbes en donnant une première estimation du profil.

Cette représentation Fourier-Maker peut nous suggérer de simplement prendre la transformée de Fourier inverse du signal et d'ainsi en déduire directement la distribution $\chi_{\text{eff}}^{(2)}(z)$. Ceci est malheureusement impossible car de nombreuses informations sont manquantes. Premièrement, la phase du signal ne peut être déterminée par la méthode des Franges de Maker puisque seule l'amplitude au carré de la transformée de Fourier de $\chi_{\text{eff}}^{(2)}(z)$ est mesurée. Ensuite, cette amplitude n'est elle-même pas connue pour les k inférieurs à Δk . Enfin, l'amplitude ne peut être déterminée expérimentalement pour une infinité de k et sera donc forcément bornée. Toutes ces contraintes concourent à rendre impossible l'utilisation de la transformée de Fourier inverse. La section 3.2 décrit une méthode expérimentale permettant d'augmenter la plage de fréquences spatiales k disponibles et de contourner ces problèmes démontrant ainsi tout l'intérêt de cette représentation.

2.2 Montage des franges de Maker

2.2.1 Dispositif expérimental

Le montage expérimental de mesure des franges de Maker réalisé dans le cadre de cette thèse est présenté à la figure 2.17. Le laser de pompe est un Nd:YAG de marque *Quantronix* pouvant fonctionner en mode continu ou en mode Q-commuté. Dans le premier mode d'opération, il délivre une puissance allant jusqu'à 8 Watts alors qu'en mode impulsif, il délivre des impulsions de 200 ns de durée à un taux de répétition de 1 kHz pour une puissance moyenne de 900 mW.

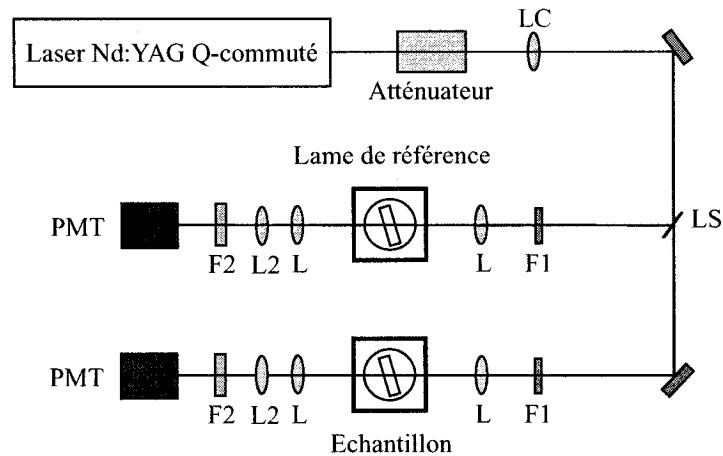


FIG. 2.17 – Schéma du dispositif expérimental des franges de Maker.

Il est à noter que cette puissance n'est pas celle utilisée lors des expériences : en général, moins de 250 mW sont nécessaires. A cette fin, un atténuateur composé d'une lame demi-onde et de deux prismes polariseurs est placé à la sortie du laser : le deuxième polariseur permet d'assurer que le faisceau ait une polarisation horizontale. Une lentille de grande focale (plus de 4 mètres) permet de maintenir le faisceau collimé sur tout le parcours menant au montage proprement dit. Par la suite le faisceau est

divisé en deux à l'aide d'une séparatrice : 75% de la puissance est dirigée sur la ligne de mesure alors que le restant est dirigé sur la ligne de référence. La lame de référence est une lame de quartz coupe x de 0,485 mm d'épaisseur qui génère significativement plus de second harmonique que les échantillons à mesurer. C'est pour cette raison que la puissance envoyée sur la ligne de référence est trois fois plus faible que celle envoyée sur la ligne de mesure. Ces deux lignes sont autrement à tout point de vue identiques mis à part la présence d'une lame demi-onde sur la ligne de mesure afin de pouvoir changer la polarisation du faisceau incident. Ce dernier ajout est particulièrement utile dans la détermination de la symétrie du tenseur de la susceptibilité non-linéaire de second ordre. La description qui suit est applicable aux deux branches.

Un filtre passe-haut permet d'éliminer l'onde harmonique parasite provenant des éléments optiques précédents tout en laissant passer le faisceau de pompe. Le faisceau est ensuite focalisé à l'aide d'une lentille de 10 cm de focale (L) produisant une tache de $180\ \mu\text{m}$ de diamètre sur la face d'entrée de l'échantillon. Une seconde lentille identique à la première placée symétriquement permet de recollimer à la sortie le faisceau de pompe ainsi que le faisceau de second harmonique généré (SHG) dans l'échantillon. Une autre lentille $L2$ de 20 cm de focale permet de focaliser le faisceau de SHG sur le photomultiplicateur. Le système de détection est composé d'un photomultiplicateur et d'une lame dichroïque séparant les deux faisceaux de façon à ce que seulement l'onde harmonique soit détectée. Afin d'augmenter l'isolation du système, deux filtres passe-bas sont placés devant le photomultiplicateur donnant une isolation totale de plus de 100 dB. L'échantillon à mesurer est placé sur un support composé d'une table de rotation motorisée ayant une résolution angulaire de $0,02^\circ$, une table de translation servant à ajuster la face d'entrée de l'échantillon avec le centre de rotation de la table de rotation ainsi que d'un goniomètre qui, utilisé en conjonction avec la table de rotation, permet d'assurer que le faisceau laser soit à incidence normale sur

l'échantillon. La lame de référence est placée sur un support similaire mais, contrairement à l'échantillon, elle est maintenue à un angle fixe qui correspond au maximum de génération soit 50° pour la lame utilisée. L'ensemble du montage est placé dans une cage permettant d'éliminer toute lumière parasite provenant de la lampe du laser et des autres équipements. Le courant généré par chacun des photomultiplicateurs est détecté directement par un oscilloscope de marque *Yokogawa* ayant une bande passante de 500 MHz. Les photomultiplicateurs sont alimentés par une source haute tension allant jusqu'à 1500 V : il est donc possible d'amplifier le signal détecté en variant la tension de la source.

2.2.2 Normalisation du signal de second harmonique

Le signal provenant de la ligne de l'échantillon est divisé par celui provenant de la ligne de référence afin de normaliser le signal. D'une part, les fluctuations de puissance du laser sont éliminées par cette procédure, ce qui est particulièrement important car les fluctuations du signal de second harmonique seront d'autant plus importantes que la puissance de second harmonique dépend du carré de la puissance de pompe. D'autre part, le signal ainsi traité est référencé par rapport à un échantillon dont la non-linéarité est bien connue ce qui permet d'avoir une mesure à la fois indépendante des fluctuations du laser mais aussi indépendante de la puissance incidente sur l'échantillon. Les mesures ainsi faites donnent un signal mesuré en W^{-1} . Ceci peut sembler étonnant mais s'explique aisément. Exprimons les puissances de second harmonique mesurée sur chacune des deux lignes comme suit :

$$P_e^{2\omega} = F(\theta)(P_e^\omega)^2 \quad (2.51)$$

$$P_r^{2\omega} = G(\theta)(P_r^\omega)^2 \quad (2.52)$$

où les indices e et r se rapportent à la ligne de l'échantillon et à la ligne de référence respectivement alors que F et G sont des facteurs ayant une dépendance angu-

laire. La lame de référence étant maintenue à un angle fixe de 50° , le facteur G est complètement déterminé. Cet angle correspond à la position du second maximum des franges de Maker de la lame de quartz : cette position dépend de l'épaisseur de la lame et peut être différente pour d'autres lames. Le rapport entre la puissance incidente sur l'échantillon et celle incidente sur la lame de référence est connue et vaut 3 ($P_e^\omega = 3P_r^\omega$). En combinant les équations précédentes avec cette dernière observation, nous obtenons que

$$F(\theta) = \frac{P_e^{2\omega}}{(P_e^\omega)^2} = \frac{G(\theta = 50^\circ)}{9} \frac{P_e^{2\omega}}{P_r^{2\omega}}. \quad (2.53)$$

Par conséquent, le signal normalisé est bien exprimé en W^{-1} .

2.2.3 Etalonnage des photomultiplicateurs

A priori, la correspondance Volts/Watts des photomultiplicateurs utilisés est inconnue. Afin de régler ce problème, un cristal de BBO, générant suffisamment de puissance dans le visible pour être détectable par un puissancemètre de marque *Ophir* qui est déjà calibré en Watts par le fabricant selon les standards NIST, a été placé en lieu et place de la lame échantillon et la puissance générée a été mesurée. Par la suite, un système d'atténuateurs calibrés à 532 nm a été placé devant le photomultiplicateur afin de réduire la puissance incidente ce qui permet de mesurer la puissance crête en Volts des impulsions de second harmonique directement sur l'oscilloscope. Connaissant le facteur d'atténuation du système, il est possible de trouver le facteur de conversion recherché. Cette opération a été répétée pour différentes tensions d'opération de la source haute tension des photomultiplicateurs et ce pour chacun des photomultiplicateurs.

En pratique, une tension de 600 V a été appliquée sur le photomultiplicateur de la ligne de référence alors que 1200 V ont été utilisés sur celui de la ligne de mesure. Ces valeurs sont les plus adéquates pour le type de signal mesuré.

2.3 Modifications au montage expérimental

Le montage expérimental présenté à la section 2.2 ne permet pas la détermination précise de l'épaisseur de la couche non-linéaire créée sous la surface anodique. En particulier, pour des épaisseurs de moins de $10\text{ }\mu\text{m}$, l'incertitude sur la détermination est supérieure à l'épaisseur elle-même (Fig. 2.14).

Plusieurs techniques permettant de mesurer de faibles épaisseurs avec une précision satisfaisante ont été proposées. La première consiste en l'attaque chimique par acide hydrofluorique (HF) de la couche cathodique sur une fraction de micromètre suivi de la mesure de second harmonique généré à un angle fixé. Cette procédure est répétée jusqu'à ce qu'il n'y ait plus de signal mesurable. Cette méthode a été proposée par W. Margulis et al.[82] et depuis utilisée par de nombreux chercheurs [18, 69, 82, 128, 129, 112]. Il a également été proposé de remplacer l'attaque au HF par un polissage mécanique [111]. Ces approches ont le désavantage d'être destructives ce qui ne permet pas de les appliquer systématiquement puisque les échantillons sont détruits.

La seconde approche consiste à modifier le montage expérimental des franges de Maker afin de minimiser l'effet des réflexions de Fresnel. Il a été proposé de placer la lame à caractériser entre une paire de prismes tronqués [107] (connus sous le nom de roof prism) faits d'un verre dont l'indice de réfraction est proche de celui de la lame. Lors de la rotation de la lame pour la mesure, la présence des prismes permet de maintenir l'angle d'incidence proche de la normale sur une petite plage angulaire. Cette méthode expérimentale permet d'augmenter la plage angulaire des mesures mais les résultats obtenus sont difficiles à analyser. Cette limitation provient de la géométrie même des prismes : en effet, il faut effectuer de nombreuses corrections car le faisceau n'est proche de l'incidence normale que pour certains angles. Il a ensuite été proposé de remplacer les prismes par une paire de lentilles hémisphériques [112, 111] : de cette façon, le faisceau est toujours à incidence normale ce qui permet réellement de mini-

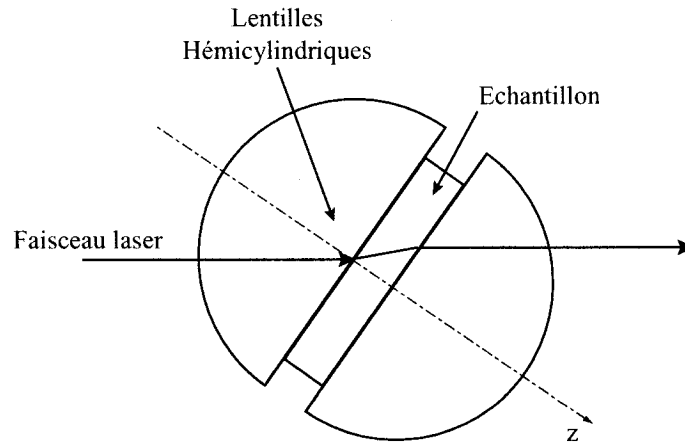


FIG. 2.18 – Schéma de l'assemblage composé d'une paire de lentilles hémicylindriques faites de BK7 et la lame à caractériser.

miser la réfraction de Fresnel, que ce soit pour le faiceau pompe ou celui de second harmonique. Les mesures ainsi réalisées sont facilement analysables et permettent de mesurer des couches de faible épaisseur avec une bonne précision puisque l'incertitude sur la détermination de l'épaisseur est d'un ordre de grandeur plus faible que précédemment (Figure 2.15).

Nous avons décidé d'utiliser des lentilles hémicylindriques [125, 126] plutôt que les lentilles hémisphériques. Le montage expérimental réalisé est illustré à la figure 2.18. Cette configuration expérimentale à l'avantage d'être plus facile à mettre en place car elle est moins sensible aux erreurs d'alignement ce qui permet d'obtenir des mesures répétables. De plus, il devient possible de faire des mesures en différents points de la surface de l'échantillon en simplement montant ou descendant l'assemblage lentilles-lame. Ceci est particulièrement utile dans le cas de la silice polée où la zone non-linéaire peut ne pas être uniforme.

L'utilisation de ces lentilles permet d'ouvrir significativement l'angle de propa-

gation interne dans les lames de silice. Nous allons devoir maintenant considérer que le faisceau de pompe et celui de second harmonique voyagent selon des angles différents dans l'épaisseur de l'échantillon. L'expression de l'accord de phase dérivée à l'équation 2.5 n'est plus valable puisque nous nous trouvons maintenant dans le cas non-colinéaire. Elle devient :

$$k = k_{2\omega} - 2k_{\omega} = \frac{2\omega}{c}(n_{\omega} \cos \theta_{\omega} - n_{2\omega} \cos \theta_{2\omega}) \quad (2.54)$$

$$= \frac{2\omega}{c} \frac{(n_{\omega} - n_{2\omega})}{\cos \frac{\theta_{\omega} + \theta_{2\omega}}{2}} \cos \frac{\theta_{\omega} - \theta_{2\omega}}{2} \quad (2.55)$$

où c est la vitesse de la lumière dans le vide, θ_{ω} et $\theta_{2\omega}$ sont les angles internes de propagation, et n_{ω} et $n_{2\omega}$ sont les indices de réfractions à la longueur d'onde du faisceau pompe et de second harmonique. Pour passer de l'équation 2.54 à 2.55, nous avons employé l'équation de Snell-Descartes ($n_{\omega} \sin \theta_{\omega} = n_{2\omega} \sin \theta_{2\omega}$).

L'emploi de ces lentilles résout le problème de la détermination de l'épaisseur de la couche anodique mais il ne faut pas croire que l'effet de réfractions et réflexions de Fresnel est totalement éliminé et que nous nous trouvons dans un cas idéal. Les lentilles utilisées sont faites de BK7, un verre ayant un indice de réfraction d'environ 1,5 à la longueur d'onde du faisceau de pompe alors que les lames de silice ont un indice d'environ 1,46 à cette même longueur d'onde. On pourrait objecter qu'il suffit d'employer des lentilles faites de silice et que ceci éliminerait le problème. Nous ne l'avons pas fait car nous avons également utilisé dans la suite de ce travail (Chapitre 4) des lames de quartz coupe x dont l'indice de réfraction de 1,534 est supérieur aux indices de la silice et du BK7. Il est donc avantageux pour nous d'utiliser le BK7 puisque son indice de réfraction est entre celui du quartz et celui de la silice permettant ainsi de minimiser les pertes pour les deux cas de figure. Le coefficient de transmission de Fresnel calculé pour les deux états de polarisation orthogonaux P et S est tracé à la figure 2.19 en fonction de l'angle externe.

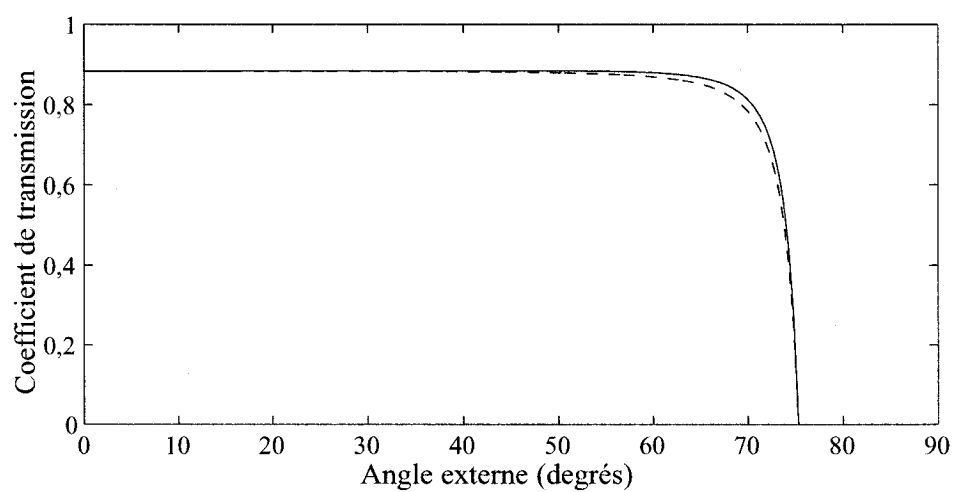


FIG. 2.19 – Coefficient de transmission de Fresnel dans le cas non-colinéaire pour une lame de silice placée entre lentilles hémicylindriques faites de BK7. La courbe en trait continu correspond au cas où l'état de polarisation du faisceau laser incident horizontal (P) alors que la courbe tiretée correspond à la polarisation verticale (S).

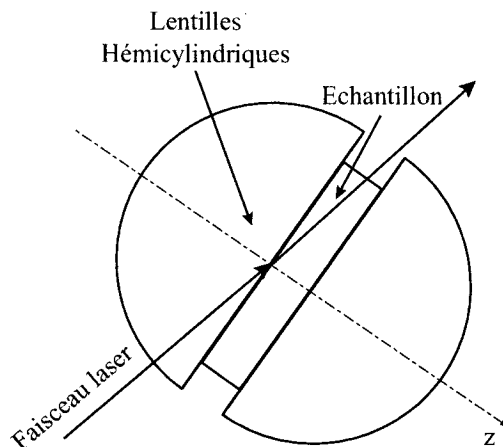


FIG. 2.20 – Schéma de l'assemblage composé d'une paire de lentilles hémicylindriques faites de BK7 et la lame à caractériser. Le faisceau laser arrive à incidence rasante : le faisceau est réfracté par la tranche de l'échantillon

Nous remarquons que le choix du BK7 limite l'angle externe maximal à $75,6^\circ$ dans le cas de la silice ce qui correspond à un angle de propagation interne de 89° . Cet angle maximal est également limité par la réfraction du faisceau de second harmonique par la tranche de l'échantillon. Cette situation est illustrée à la figure 2.20. Nous constatons que pour un certain angle à l'interface lentille-lame, le faisceau est réfracté par la tranche de l'échantillon. Sachant que la plupart des lames mesurées par ce procédé ont une épaisseur moyenne de 1,1 mm et que les lentilles hémicylindriques utilisées ont un rayon de 20 mm, nous obtenons que l'angle maximal est de 85° plutôt que 89° . En pratique, un troisième facteur est à considérer : lorsque le faisceau généré arrive à l'interface de la seconde lentille, il est recollimé par cette dernière et le faisceau est ensuite collecté par le photomultiplicateur. Pour des angles proches du maximum, le faisceau arrivera loin du centre géométrique de la lentille de sortie ce qui aura pour effet de le dévier à la sortie de la lentille et d'empêcher qu'il soit complètement

collecté : c'est pour cette raison que l'angle maximal atteint lors des mesures est de 83 degrés. Nous avons tenu compte de cette déviation lors de l'analyse de nos résultats expérimentaux des chapitres 3 et 4 puisque ceci peut avoir un effet important lors de la détermination de la distribution de la susceptibilité de second ordre.

2.4 Conclusion

Nous venons de présenter les notions de base de la théorie de la génération de second harmonique dans des échantillons plans. Ces équations permettent de modéliser les franges de Maker et ainsi analyser les données expérimentales. Nous avons introduit une façon nouvelle de représenter les données expérimentales en fonction de la fréquences spatiale au lieu de l'angle de propagation interne. Cette représentation de Fourier-Maker permet de discriminer par simple inspection du signal expérimental si la distribution de la couche non-linéaire est uniforme ou pas. Dans le cas où elle est uniforme, il est possible de déterminer l'épaisseur de la couche et l'amplitude de la susceptibilité directement du signal expérimental.

Nous avons proposé de placer l'échantillon à caractériser entre lentilles hémicylindriques afin d'augmenter la plage angulaire lors de la mesure de franges de Maker et d'ainsi pouvoir déterminer avec précision l'épaisseur de la couche non-linéaire induite sous la surface anodique. Par conséquent, la détermination de l'amplitude de la susceptibilité de second ordre est également plus précise. Cette amélioration permet de mesurer des épaisseurs aussi fines que 5 μm rendant cette technique non-destructive plus attrayante.

Le chapitre suivant présente les résultats expérimentaux obtenus sur des lames de silice de type Infrasil et Suprasil en utilisant le montage de franges de Maker et la méthode d'analyse de données introduite ici.

Chapitre 3

Mesures de franges de Maker

3.1 Résultats expérimentaux

Au premier chapitre, nous avons introduit un modèle de conduction ionique qui permet de décrire l'apparition d'une nonlinéarité de second ordre dans les verres de silice polés. En particulier, nous avons vu que l'épaisseur de la couche ainsi créée est fonction de la concentration initiale de cations dans le verre. Pour cette raison, notre étude a porté sur deux types de lames de silice (Infrasil et Suprasil) afin de vérifier ce résultat. La composition de ces lames a déjà été présentée au tableau 1.1.

Afin d'analyser les franges de Maker expérimentales, nous allons utiliser les relations 2.16, 2.27 ainsi que le facteur de Fresnel approprié (2.42 ou 2.43) selon l'état de polarisation du faisceau incident. Comme nous l'avons fait précédemment, nous allons devoir supposer une distribution de la nonlinéarité $\chi^{(2)}(z)$ puisqu'il est impossible d'effectuer la transformée inverse de Fourier sur les signaux expérimentaux (section 2.1.5). Au vu des signaux mesurés, nous avons choisi d'utiliser le profil illustré à la figure 3.1. Nous aurions aussi pu essayer d'utiliser un profil triangulaire mais comme nous l'avons vu à la section 2.1.5, les deux situations sont très difficiles à départager lorsque les réflexions de Fresnel sont présentes. L'utilisation des lentilles nous permet-

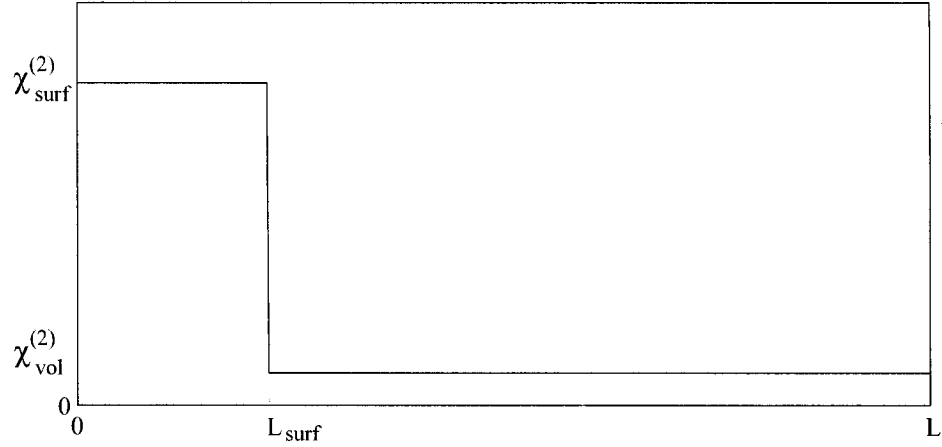


FIG. 3.1 – *Profil test de la distribution de la nonlinéarité pour des lames placées dans l'air.*

tant de détecter des couches d'épaisseurs plus faibles que lors de mesures effectuées dans l'air, les franges de Maker ainsi obtenues peuvent présenter une structure plus complexe que le profil échelon de la figure 3.1. Par conséquent, nous utilisons une distribution test de la nonlinéarité présentant de multiples plateaux ce qui permettra de prendre en compte des détails fins indétectables avant. Ce profil est illustré à la figure 3.2. Comme nous le voyons, ce profil est composé de deux plateaux séparés par des descentes et d'un troisième plateau qui représente la nonlinéarité induite dans le volume du matériau d'épaisseur L . Il est donc possible d'ajuster 7 paramètres lors du lissage des courbes expérimentales. Nous avons limité ce profil test à 3 plateaux parce que cela s'est avéré suffisant pour les données à modéliser. Dans les sections suivantes, nous étudions certains échantillons de la section 3.1 en utilisant cette amélioration au montage. Nous avons par contre enlevé les facteurs de Fresnel tels que définis à la figure 2.19 provenant de la différence d'indice entre la silice et les lentilles. Il est à noter que pour vérifier la répétabilité des mesures avec l'assemblage de lentilles,

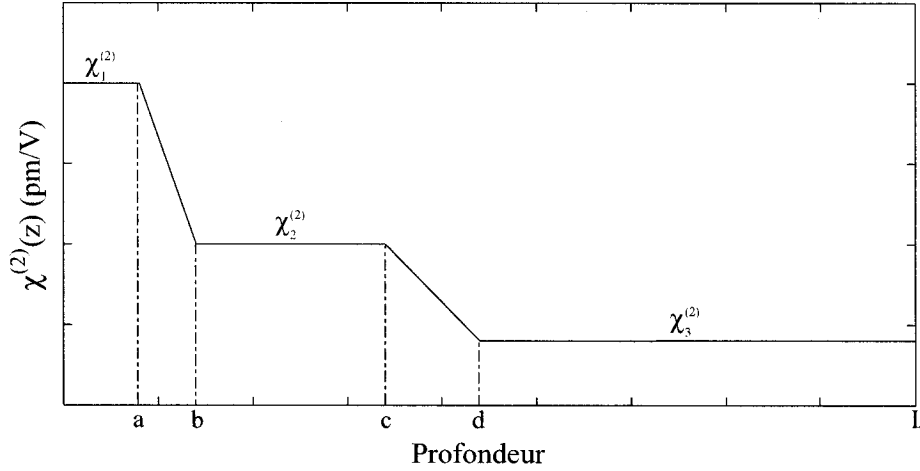


FIG. 3.2 – *Profil test de la distribution de la nonlinéarité pour des lames placées entre lentilles.*

les mesures présentées ici ont été répétées au moins deux fois : les différents résultats ne sont pas présentés ici, mais nous avons évalué cette reproductibilité à environ 1 pourcent sur la puissance crête mesurée.

Nous allons aux sous-sections 3.1.1 et 3.1.2 présenter les résultats expérimentaux obtenus lors des mesures effectuées sur des lames d’Infrasil et de Suprasil placées dans l’air et entre lentilles hémicylindriques. Les échantillons n’ont pu être tous mesurés systématiquement selon les deux configurations expérimentales car certaines lames ont été employées pour d’autres projets de recherche. Ces résultats sont analysés à la section 3.2. Toutes les lames présentées ici ont été polées sous vide à l’exception de la lame I5.

3.1.1 Lames de silice de type InfrasilTM

Nous avons polé thermiquement 9 lames de type Infrasil provenant du même lot dans différentes conditions expérimentales qui sont résumées au tableau 3.1. Ces

TAB. 3.1 – *Condition de poling des lames d'InfrasilTM.*

Échantillon	Epaisseur (mm)	Tension (kV)	Température (°C)	Durée (min.)
I1	0,684	8	250	30
I2	0,695	8	300	30
I3	0,710	8	350	30
I4	0,910	3,4	300	100
I5	0,986	3,4	300	100
I6	0,989	4	300	100
I7	1,110	8	300	15
I8	1,115	8	300	15
I9	1,152	8	300	15

conditions ont été choisies afin de pouvoir étudier l'effet des paramètres expérimentaux suivants : tension appliquée lors du poling, température de poling et durée du poling. Les épaisseurs des lames indiquées dans ce tableau ont été mesurées à l'aide d'un vernier électronique dont la résolution est de $1\text{ }\mu\text{m}$: l'uniformité de l'épaisseur pour ces lames est d'environ $\pm 3\mu\text{m}$.

Pour tous les résultats expérimentaux présentés ici, nous avons ajusté les distributions des figures 3.1 et 3.2 en utilisant un lissage des moindres carrés non-linéaire. Cet ajustement a été effectué en utilisant un algorithme prédéfini par le logiciel MATLAB. Nous avons indiqué sur chacune des figures le coefficient de corrélation noté R^2 . Ce dernier est supérieur à 0,99 dans la plupart des cas sauf pour certains échantillons où il situe entre 0,96 et 0,98. Il est à noter que ces lames présentent des irrégularités dans le profil des franges de Maker (ou en représentation Fourier-Maker) qui ne sont pas prises en compte par le lissage. Ces irrégularités sont d'ailleurs discutées à la section 3.2.7.

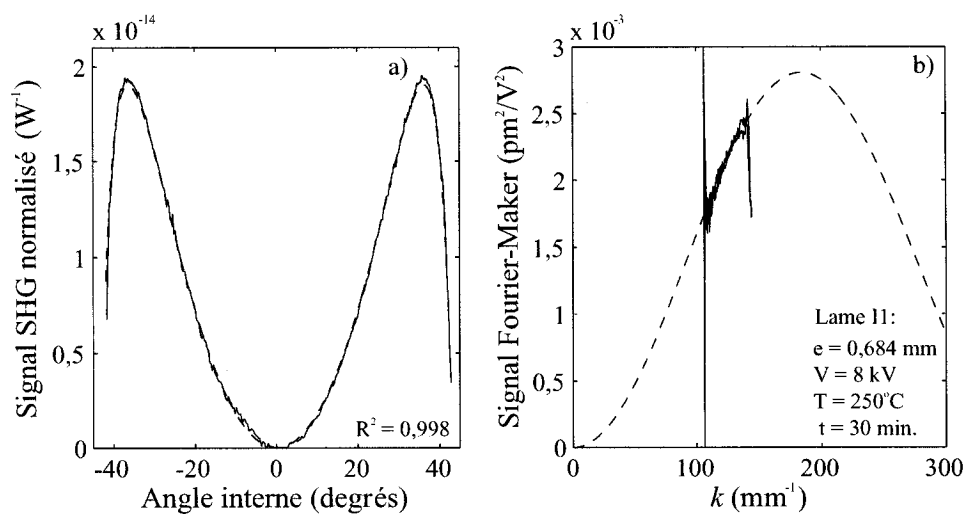


FIG. 3.3 – a) *Franges de Maker pour la lame I1* et b) *représentation Fourier-Maker*. Les courbes en trait continu représentent les données expérimentales alors que les traits tiretés sont pour les courbes issues du lissage. La lame, polée 30 minutes à 250°C sous une tension de 8 kV , a été mesurée dans l'air.

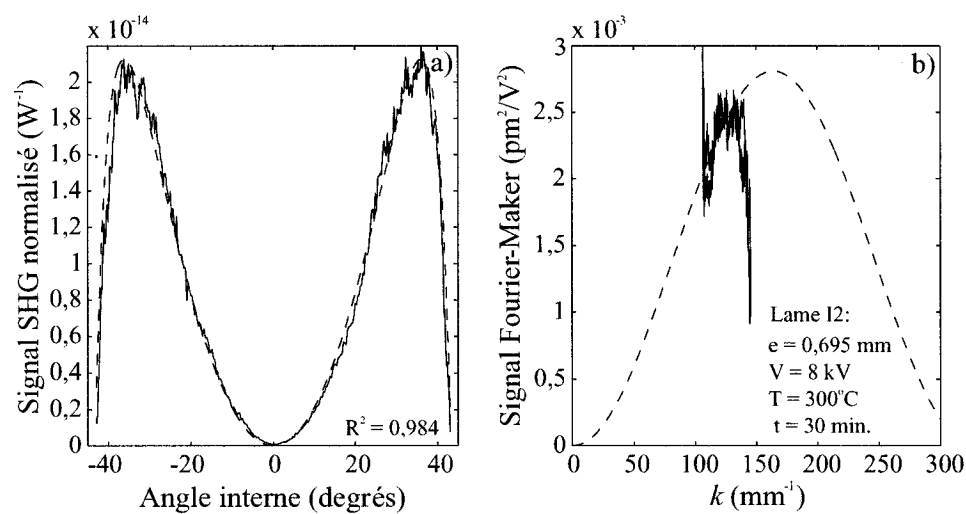


FIG. 3.4 – a) *Franges de Maker pour la lame I2 et b) représentation Fourier-Maker.* Les courbes en trait continu représentent les données expérimentales alors que les traits tiretés sont pour les courbes issues du lissage. La lame, polée 30 minutes à 300°C sous une tension de 8 kV, a été mesurée dans l'air.

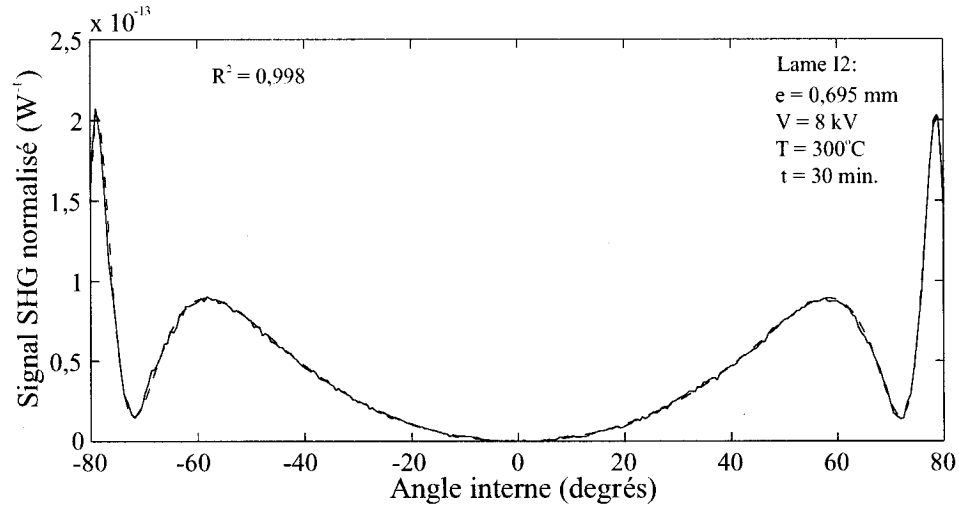


FIG. 3.5 – *Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame I2 (trait continu) et simulées (trait tireté). La lame, polée 30 minutes à 300 °C sous une tension de 8 kV, a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.*

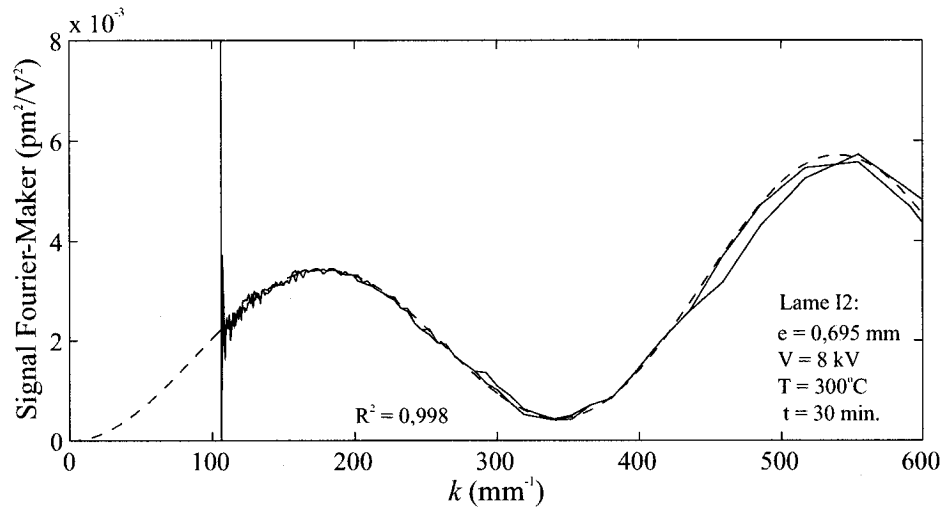


FIG. 3.6 – *Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame I2 (trait continu) et simulé (trait tireté). Ces signaux sont calculés à partir du signal expérimental et du signal simulé présentés à la figure 3.5.*

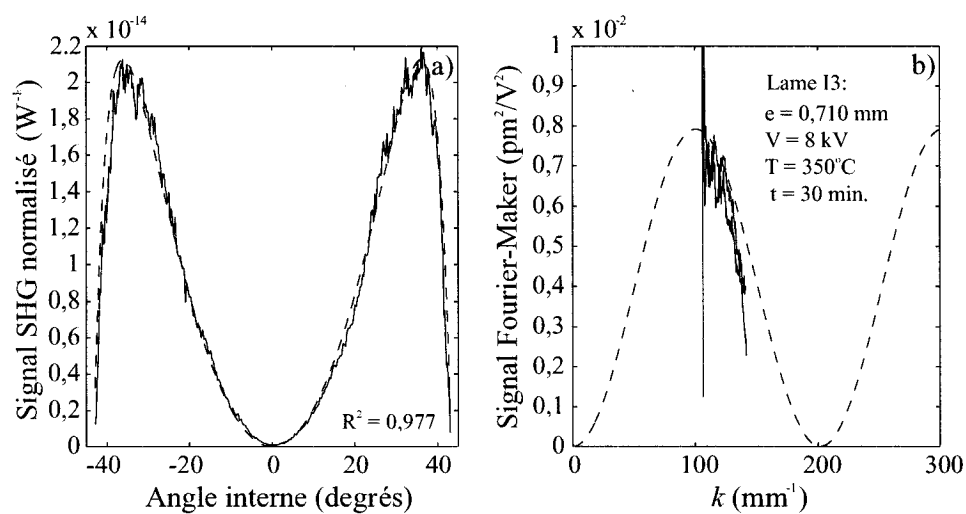


FIG. 3.7 – a) Franges de Maker pour la lame I3 et b) représentation Fourier-Maker. Les courbes en trait continu représentent les données expérimentales alors que les traits tiretés sont pour les courbes issues du lissage. La lame, polée 30 minutes à $350^\circ C$ sous une tension de 8 kV, a été mesurée dans l'air.

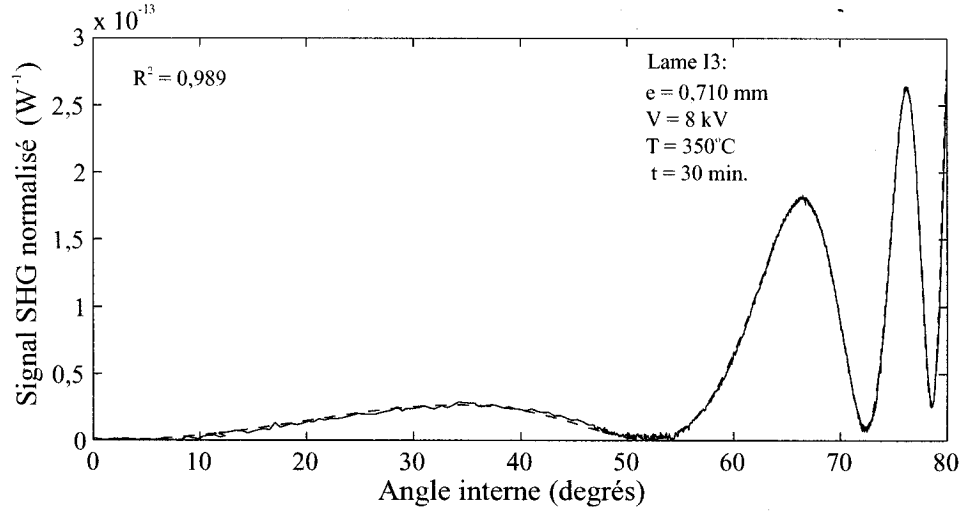


FIG. 3.8 – *Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame I3 (trait continu) et simulées (trait tireté). La lame, polée 30 minutes à 350 °C sous une tension de 8 kV, a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.*

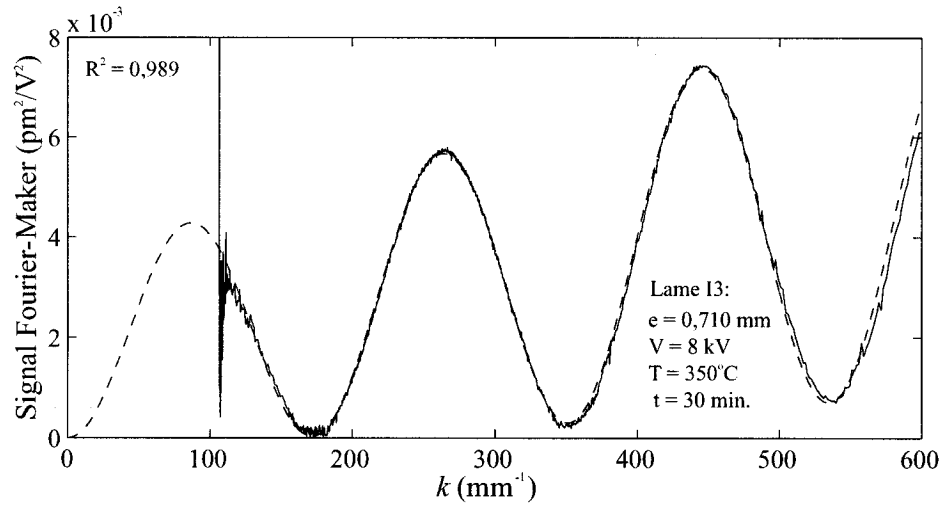


FIG. 3.9 – *Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame I3 (trait continu) et simulé (trait tireté). Ces signaux sont calculés à partir du signal expérimental et du signal simulé présentés à la figure 3.8.*

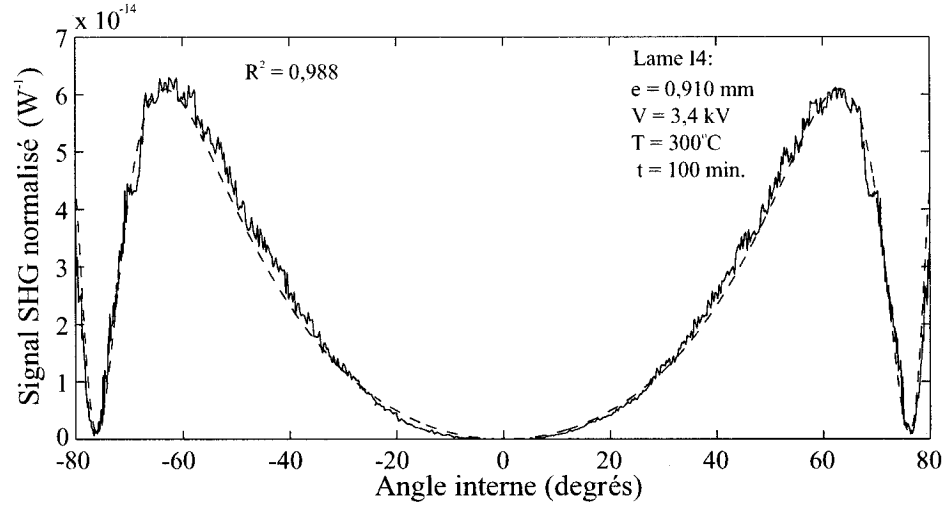


FIG. 3.10 – *Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame I4 (trait continu) et simulées (trait tireté). La lame, polée 100 minutes à 300 °C sous une tension de 3,4 kV, a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.*

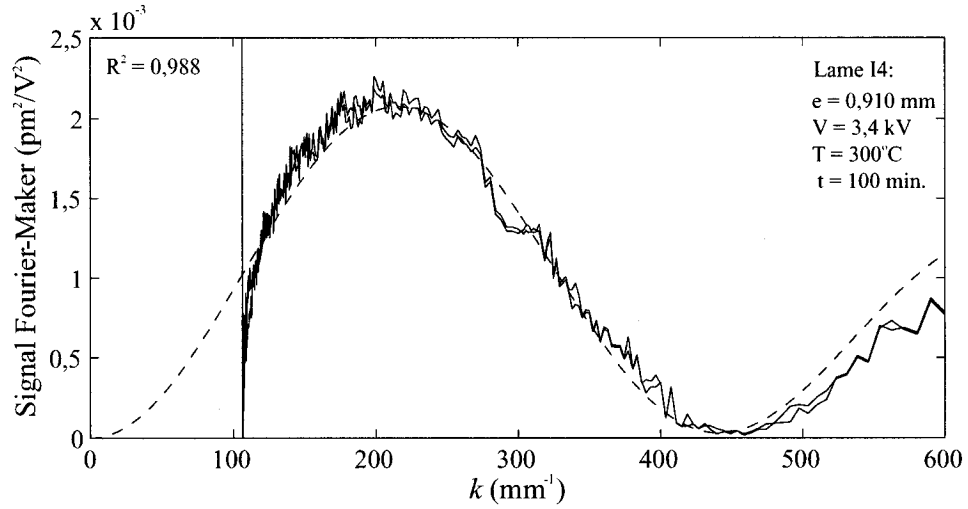


FIG. 3.11 – *Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame I4 (trait continu) et simulé (trait tireté). Ces signaux sont calculés à partir du signal expérimental et du signal simulé présentés à la figure 3.10.*

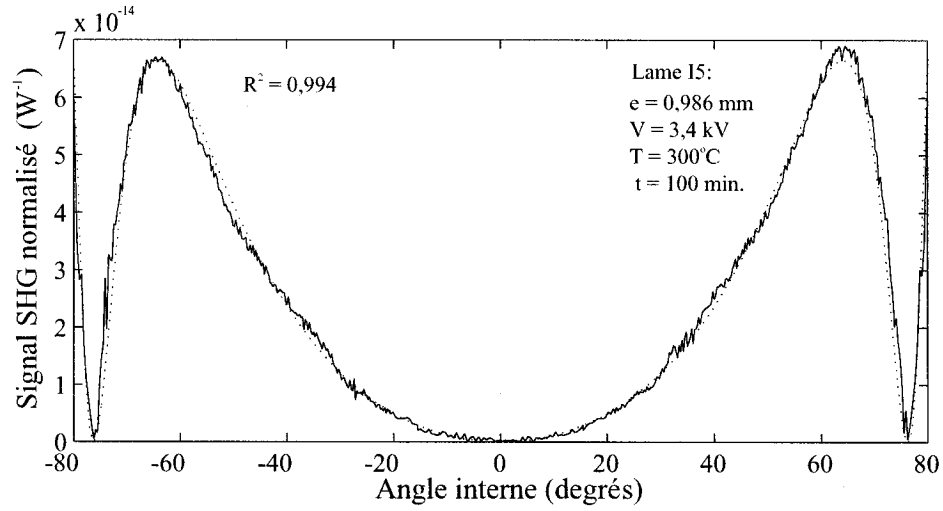


FIG. 3.12 – *Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame I5 (trait continu) et simulées (trait tireté). La lame, polée dans l'air pendant 100 minutes à 300 °C sous une tension de 3,4 kV, a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.*

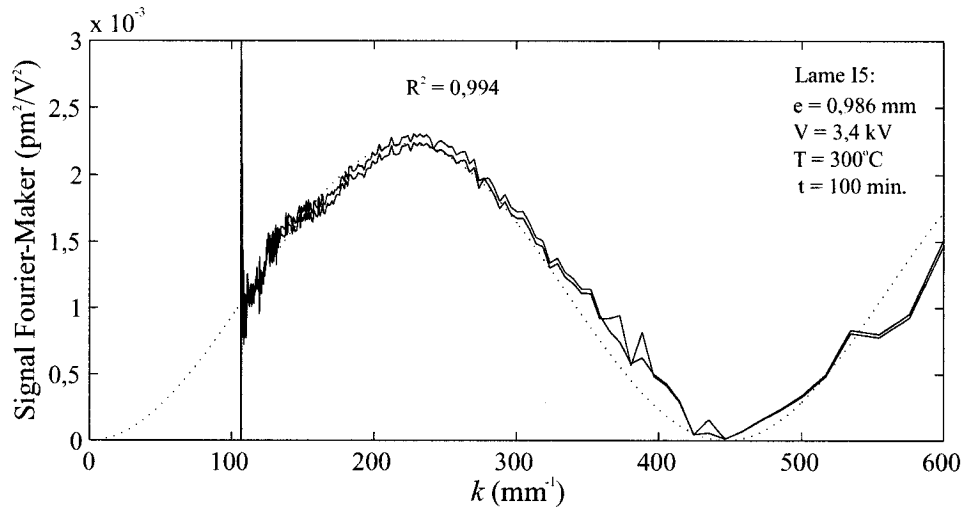


FIG. 3.13 – *Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame I5 (trait continu) et simulé (trait tireté). Ces signaux sont calculés à partir du signal expérimental et du signal simulé présentés à la figure 3.12.*

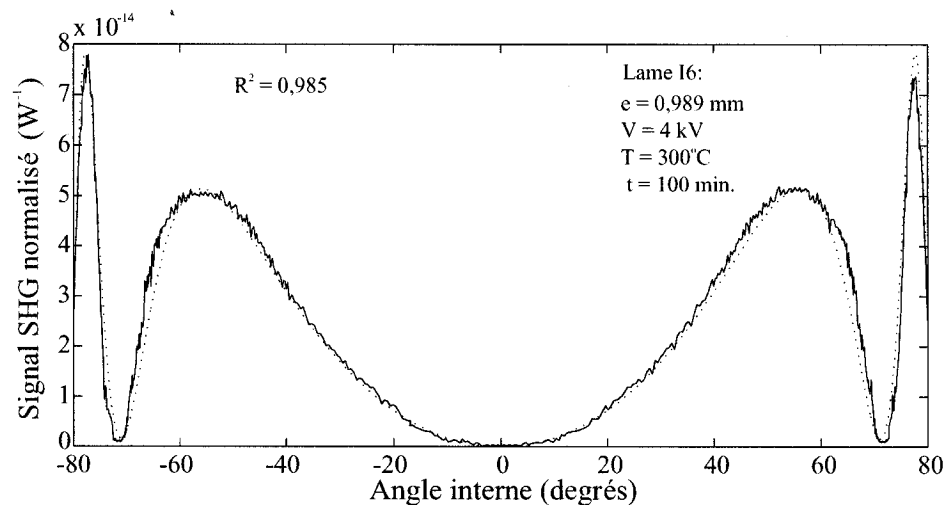


FIG. 3.14 – *Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame I6 (trait continu) et simulées (trait tireté). La lame, polée 100 minutes à 300 °C sous une tension de 4 kV, a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.*

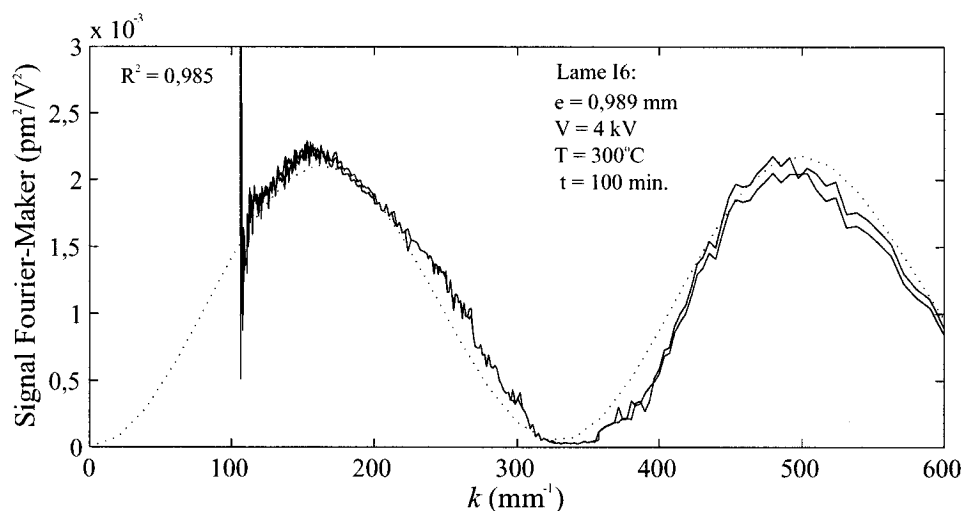


FIG. 3.15 – *Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame I6 (trait continu) et simulé (trait tireté). Ces signaux sont calculés à partir du signal expérimental et du signal simulé présentés à la figure 3.14.*

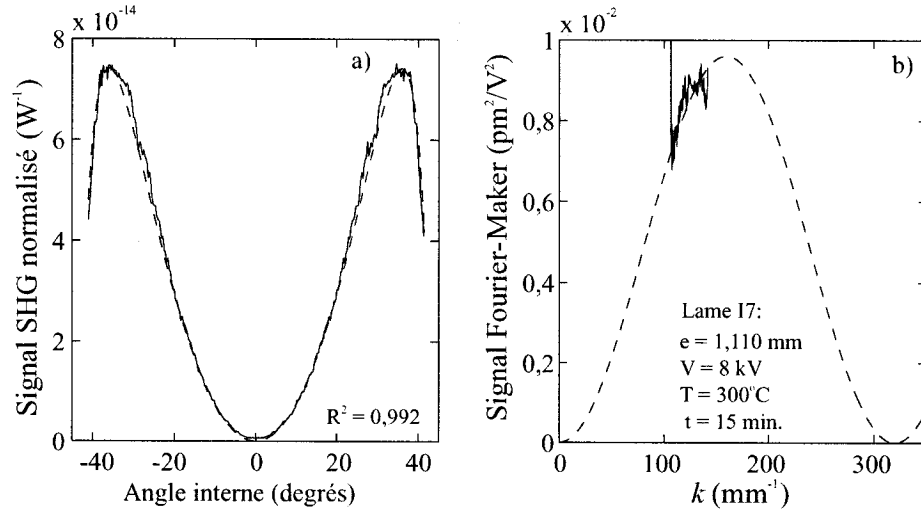


FIG. 3.16 – a) *Franges de Maker* pour la lame I7 et b) *représentation Fourier-Maker*. Les courbes en trait continu représentent les données expérimentales alors que les traits tiretés sont pour les courbes issues du lissage. La lame, polée 15 minutes à 300°C sous une tension de 8 kV , a été mesurée dans l'air.

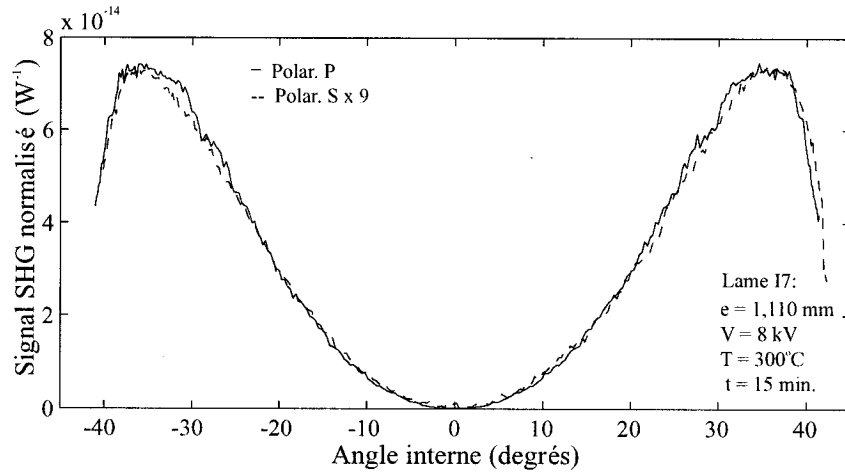


FIG. 3.17 – *Franges de Maker* pour la lame I7 avec un faisceau incident d'état de polarisation P (trait continu) et de polarisation S (traits tiretés). Le signal pour la polarisation S a été multiplié par 9.

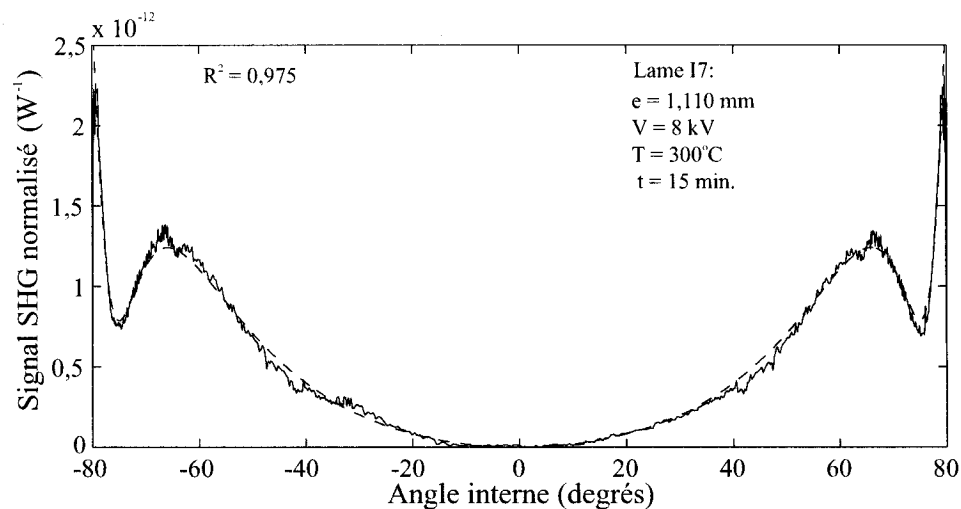


FIG. 3.18 – *Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame I7 (trait continu) et simulées (trait tireté). La lame, polée 15 minutes à 300 °C sous une tension de 8 kV, a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.*

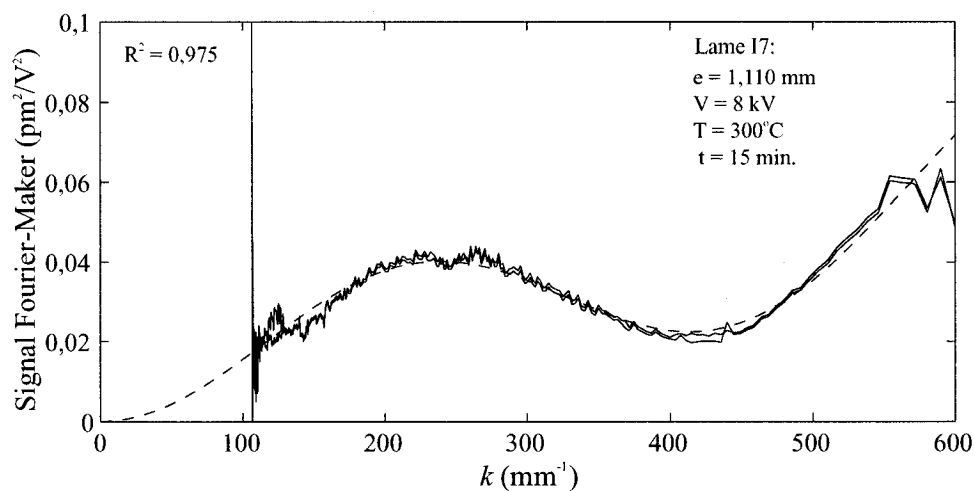


FIG. 3.19 – *Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame I7 (trait continu) et simulé (trait tireté). Ces signaux sont calculés à partir du signal expérimental et du signal simulé présentés à la figure 3.18.*

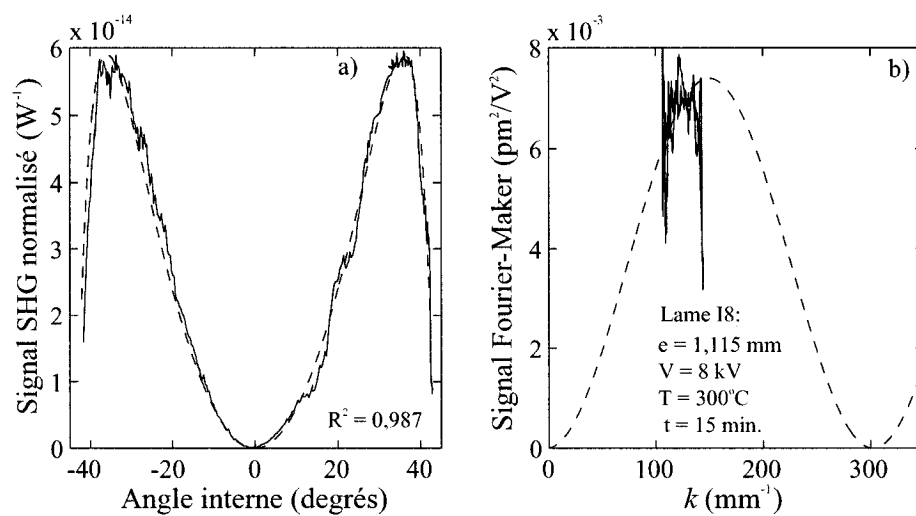


FIG. 3.20 – a) *Franges de Maker pour la lame I8 et b) représentation Fourier-Maker.* Les courbes en trait continu représentent les données expérimentales alors que les traits tiretés sont pour les courbes issues du lissage. La lame, polée 15 minutes à $300^\circ C$ sous une tension de 8 kV, a été mesurée dans l'air.

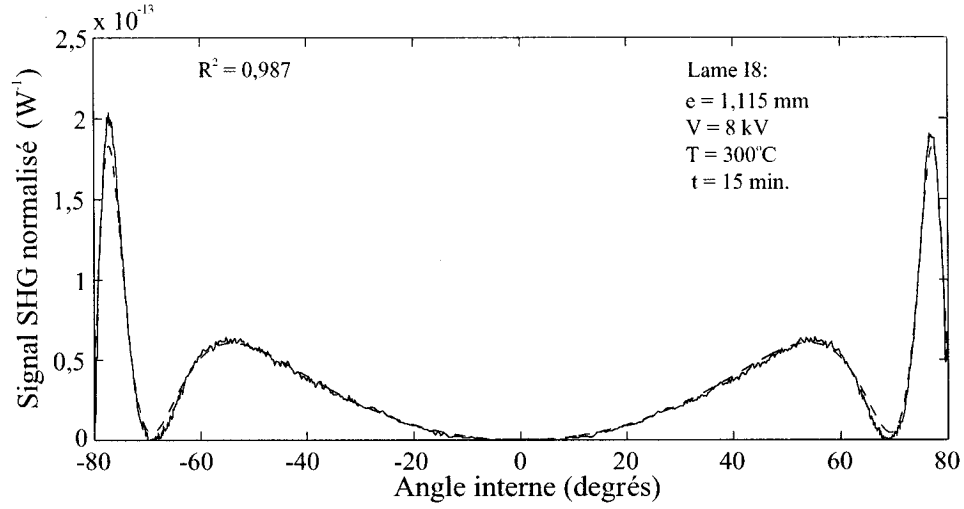


FIG. 3.21 – *Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame 18 (trait continu) et simulées (trait tireté). La lame, polée 15 minutes à 300 °C sous une tension de 8 kV, a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.*

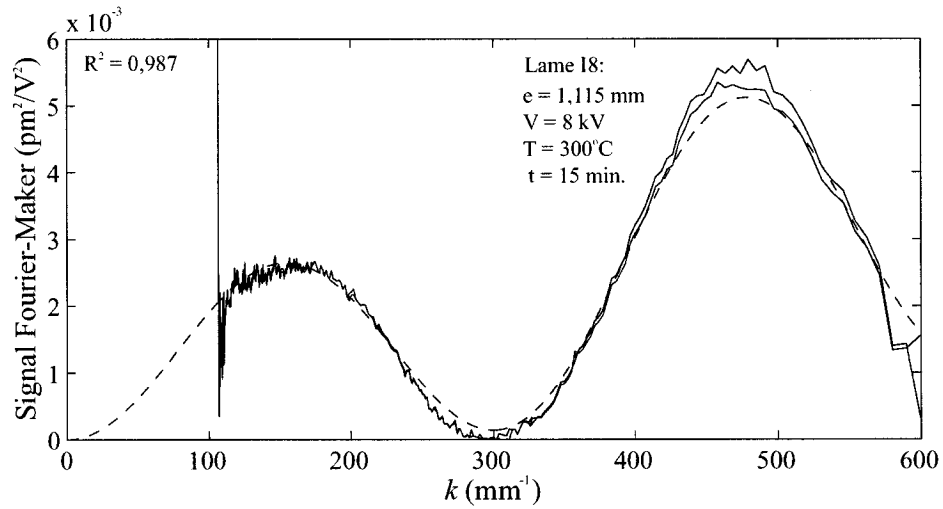


FIG. 3.22 – *Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame 18 (trait continu) et simulé (trait tireté). Ces signaux sont calculés à partir du signal expérimental et du signal simulé présentés à la figure 3.21.*

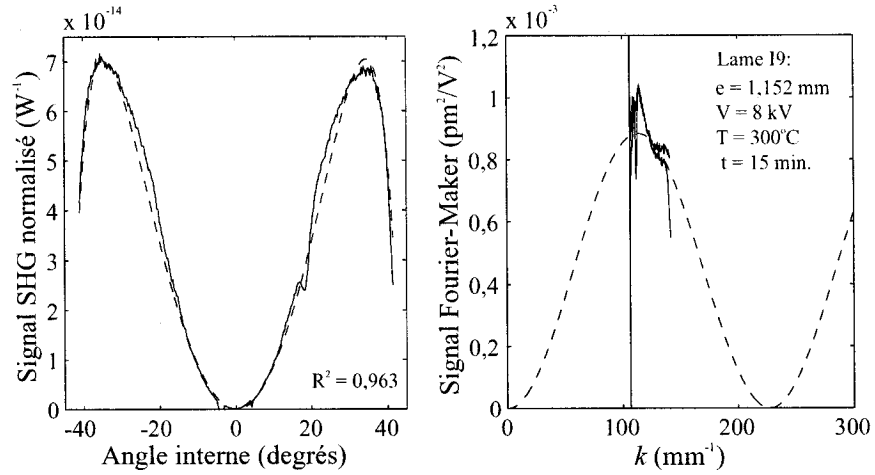


FIG. 3.23 – a) *Franges de Maker pour la lame I9* et b) *représentation Fourier-Maker*. Les courbes en trait continu représentent les données expérimentales alors que les traits tiretés sont pour les courbes issues du lissage. La lame, polée 15 minutes à 300°C sous une tension de 8 kV, a été mesurée dans l'air.

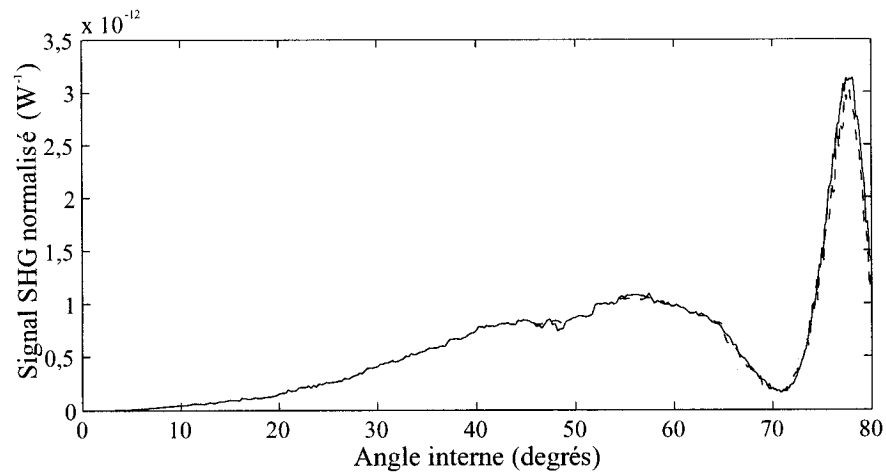


FIG. 3.24 – *Franges de Maker pour la lame I9 mesurée entre lentilles hémicylindrique avec un faisceau incident d'état de polarisation P (trait continu) et de polarisation S (traits tiretés). Le signal pour la polarisation S a été multiplié par 9.*

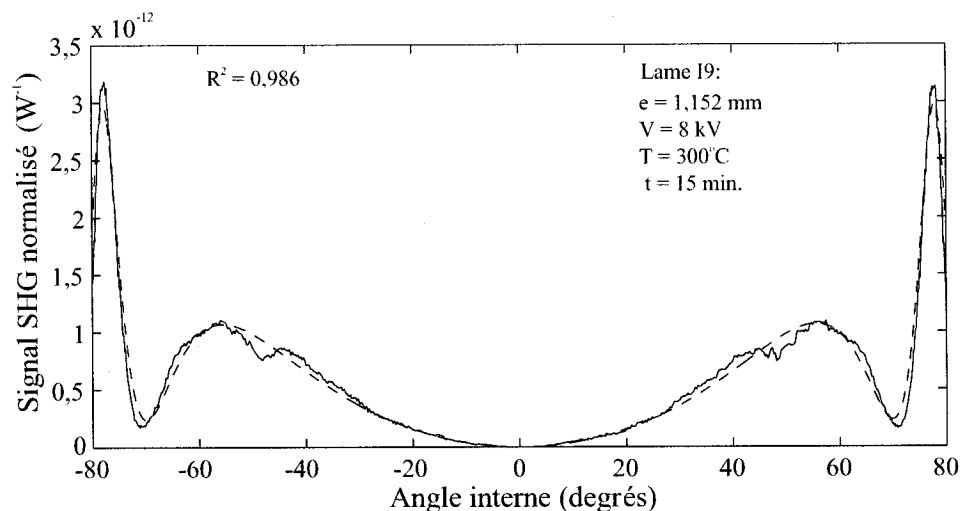


FIG. 3.25 – *Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame I9 (trait continu) et simulées (trait tireté). La lame, polée 15 minutes à 300 °C sous une tension de 8 kV, a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.*

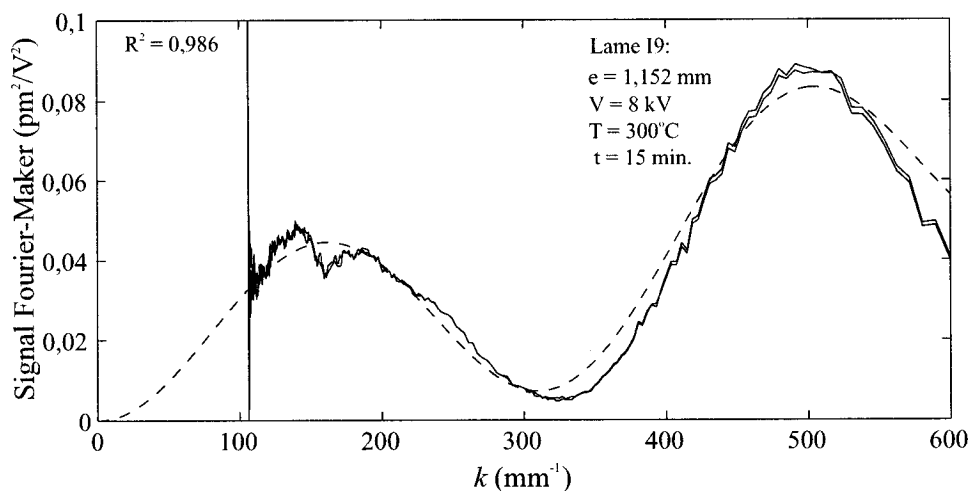


FIG. 3.26 – *Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame I9 (trait continu) et simulé (trait tireté). Ces signaux sont calculés à partir du signal expérimental et du signal simulé présentés à la figure 3.25.*

TAB. 3.2 – *Condition de poling des lames de SuprasilTM.*

Échantillon	Epaisseur (mm)	Tension (kV)	Température (°C)	Durée (min.)
S1	0,684	3	300	90
S2	0,683	5	300	90
S3	0,721	3	300	90
S4	1,159	8	300	90
S5	1,167	8	300	15
S6	1,166	2	300	90
S7	1,276	3	300	90
S8	1,178	4	300	90
S9	1,188	8	300	30

3.1.2 Lame de silice de type SuprasilTM

Nous nous sommes également intéressés à un deuxième type de lame de silice, les lames de SuprasilTM qui sont de plus grande pureté que les lames précédentes en InfrasilTM. Nous avons polé thermiquement 9 lames de SuprasilTM dans différentes conditions résumées au tableau 3.2. Le même type d'études que précédemment a été réalisée. Il est à noter qu'ici aussi, toutes les lames proviennent du même lot ce qui permet de minimiser l'effet de la concentration d'impuretés dans les études. Les épaisseurs des lames indiquées dans ce tableau ont été mesurées à l'aide d'un vernier électronique dont la résolution est de $1\text{ }\mu\text{m}$: l'uniformité de l'épaisseur pour ces lames est d'environ $\pm 3\text{ }\mu\text{m}$. Comme pour les lames d'Infrasil de la section 3.1.1, nous avons ajusté les distributions des figures 3.1 et 3.2 en utilisant un lissage des moindres carrés non-linéaire. Le coefficient de corrélation noté R^2 pour ces lames est également très élevé (supérieur à 0,97) mais est en général inférieur à celui obtenu pour les lames d'Infrasil. Ceci est particulièrement vrai pour les mesures entre lentilles

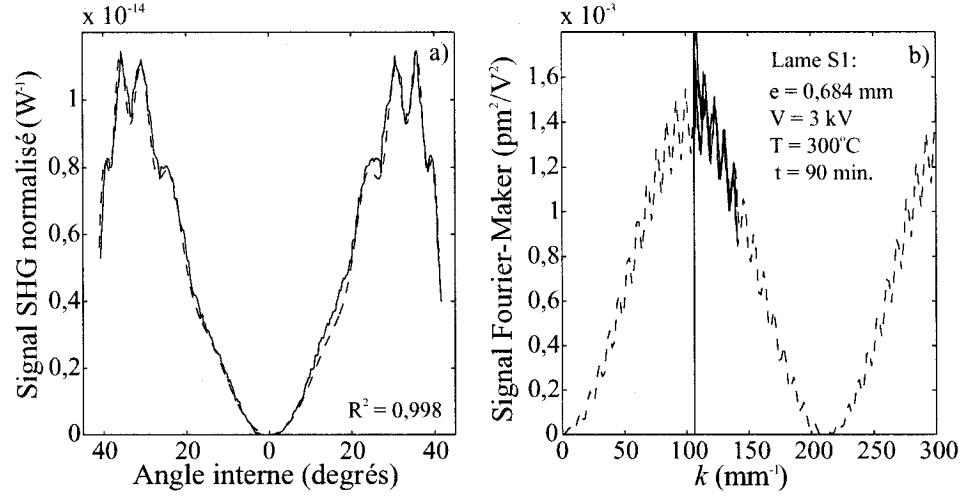


FIG. 3.27 – a) *Franges de Maker pour la lame S1 et b) représentation Fourier-Maker.* Les courbes en trait continu représentent les données expérimentales alors que les traits tiretés sont pour les courbes issues du lissage. La lame, polée 90 minutes à $300^\circ C$ sous une tension de 3 kV, a été mesurée dans l'air.

qui présentent une surmodulation provenant de la couche distribuée en profondeur tel que vu à la section 2.1.4. Pour des mesures à grand angle de propagation interne (haute fréquence spatiale) les oscillations s'atténuent car la résolution angulaire (k) est limitée par la résolution du moteur de rotation. Ces différences ont pour effet de réduire le coefficient de corrélation.

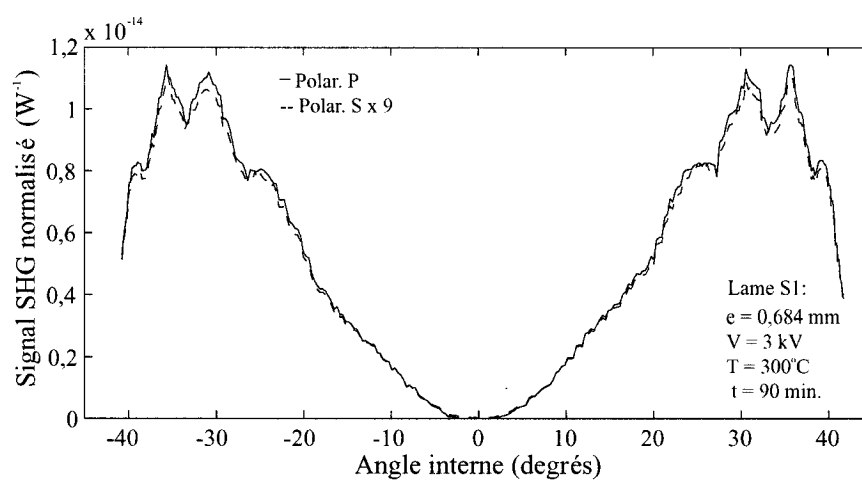


FIG. 3.28 – *Franges de Maker pour la lame S1 avec un faisceau incident d'état de polarisation P (trait continu) et de polarisation S (traits tiretés). Le signal pour la polarisation S a été multiplié par 9.*

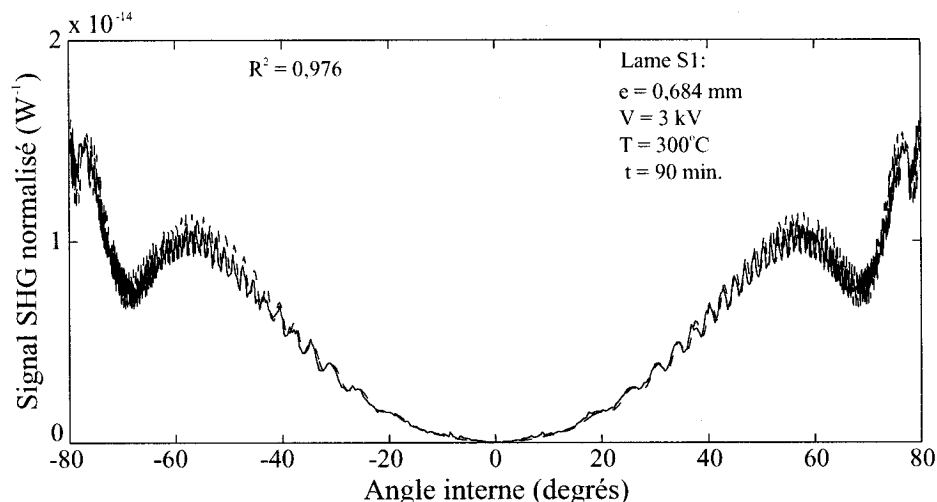


FIG. 3.29 – *Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame S1 (trait continu) et simulées (trait tireté). La lame, polée 90 minutes à 300 °C sous une tension de 3 kV, a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.*

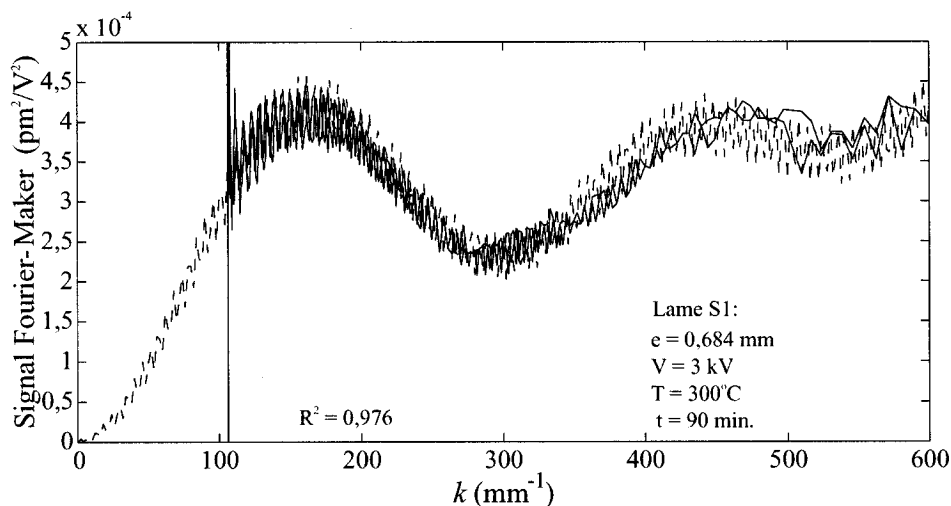


FIG. 3.30 – *Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame S1 (trait continu) et simulé (trait tireté). Ces signaux sont calculés à partir du signal expérimental et du signal simulé présentés à la figure 3.29.*

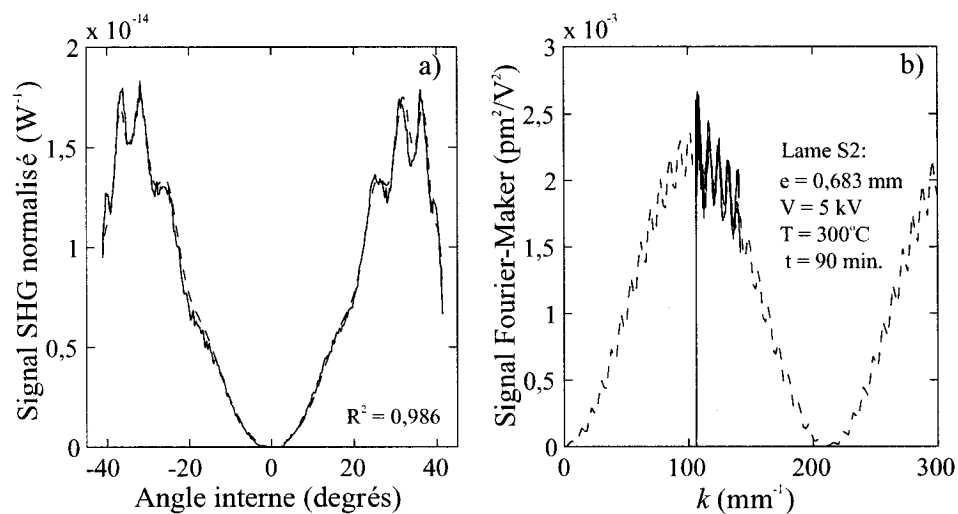


FIG. 3.31 – a) *Franges de Maker pour la lame S2* et b) *représentation Fourier-Maker*. Les courbes en trait continu représentent les données expérimentales alors que les traits tiretés sont pour les courbes issues du lissage. La lame, polée 90 minutes à 300°C sous une tension de 5 kV, a été mesurée dans l'air.

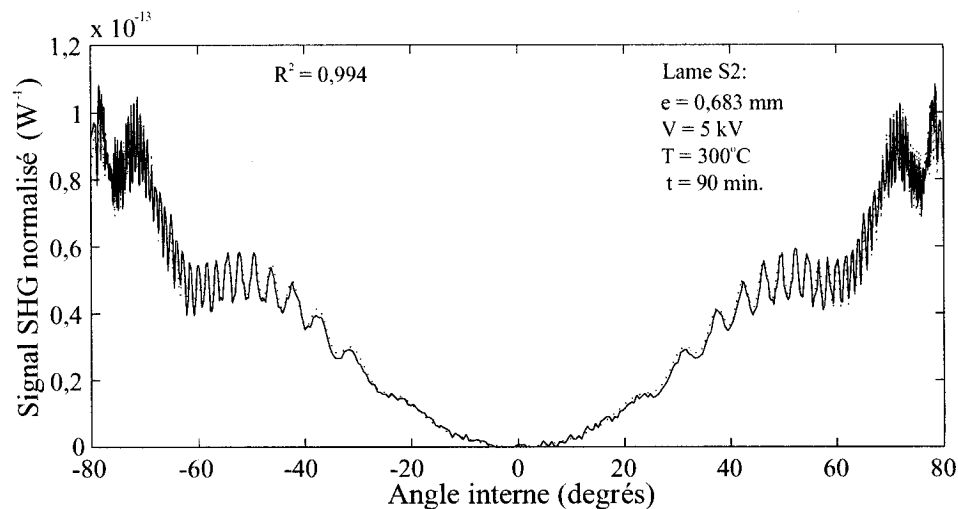


FIG. 3.32 – Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame S2 (trait continu) et simulées (trait tireté). La lame, polée 90 minutes à 300°C sous une tension de 5 kV, a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.

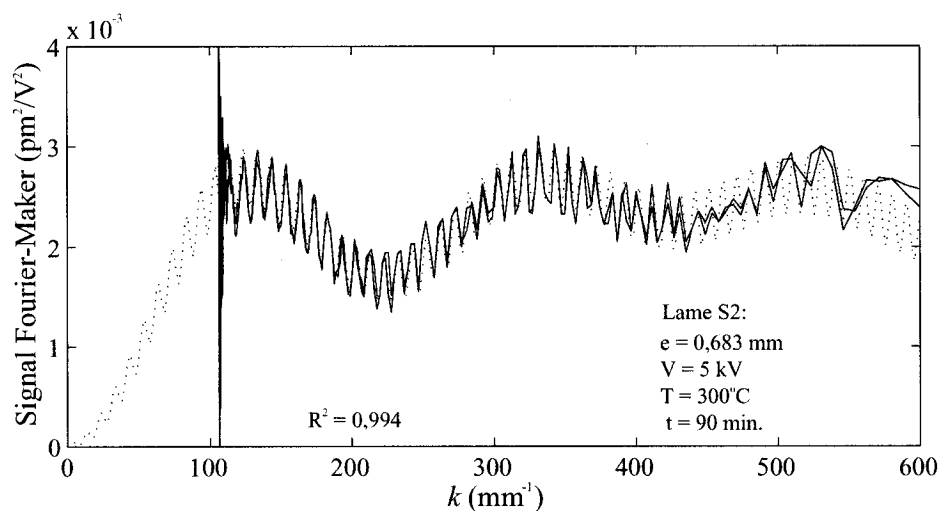


FIG. 3.33 – Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame S2 (trait continu) et simulé (trait tireté). Ces signaux sont calculés à partir du signal expérimental et du signal simulé présentés à la figure 3.32.

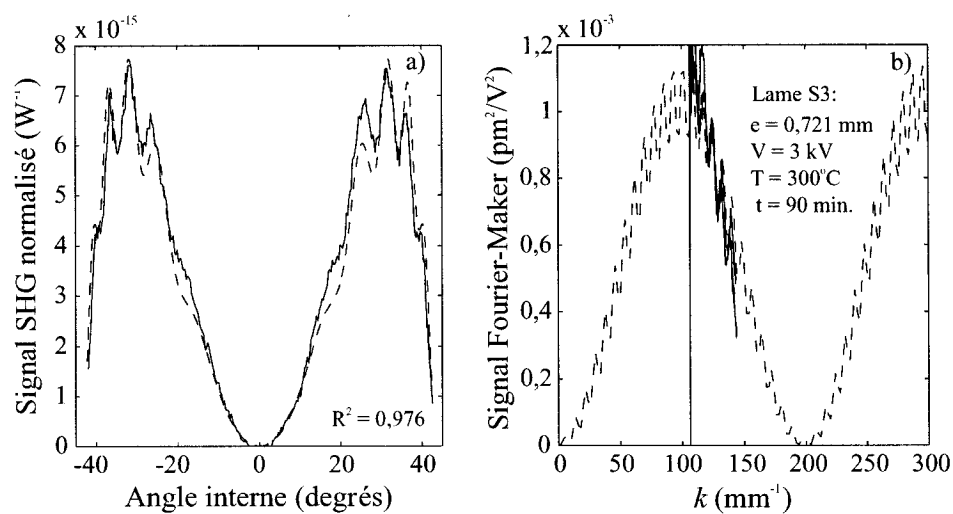


FIG. 3.34 – a) Franges de Maker pour la lame S3 et b) représentation Fourier-Maker. Les courbes en trait continu représentent les données expérimentales alors que les traits tiretés sont pour les courbes issues du lissage. La lame, polée 90 minutes à 300°C sous une tension de 3 kV, a été mesurée dans l'air.

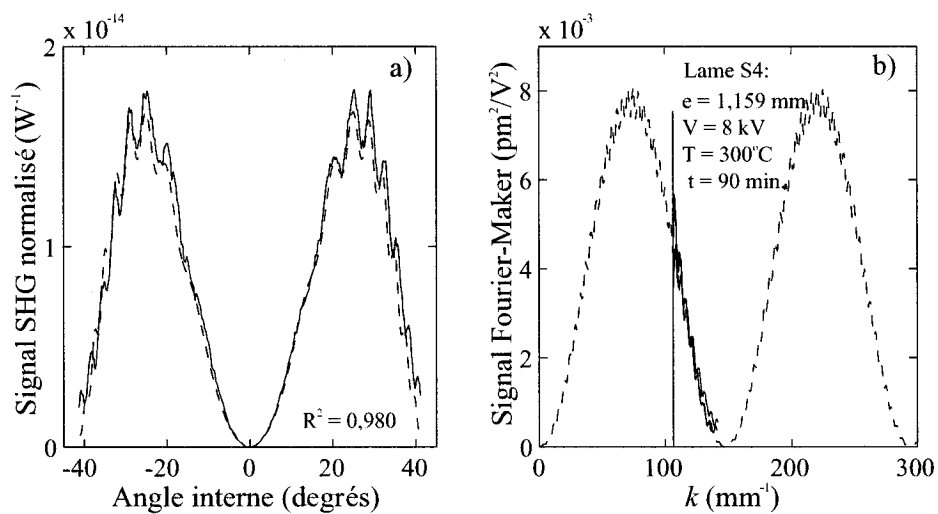


FIG. 3.35 – a) *Franges de Maker pour la lame S4* et b) *représentation Fourier-Maker*. Les courbes en trait continu représentent les données expérimentales alors que les traits tiretés sont pour les courbes issues du lissage. La lame, polée 90 minutes à $300^\circ C$ sous une tension de 8 kV, a été mesurée dans l'air.

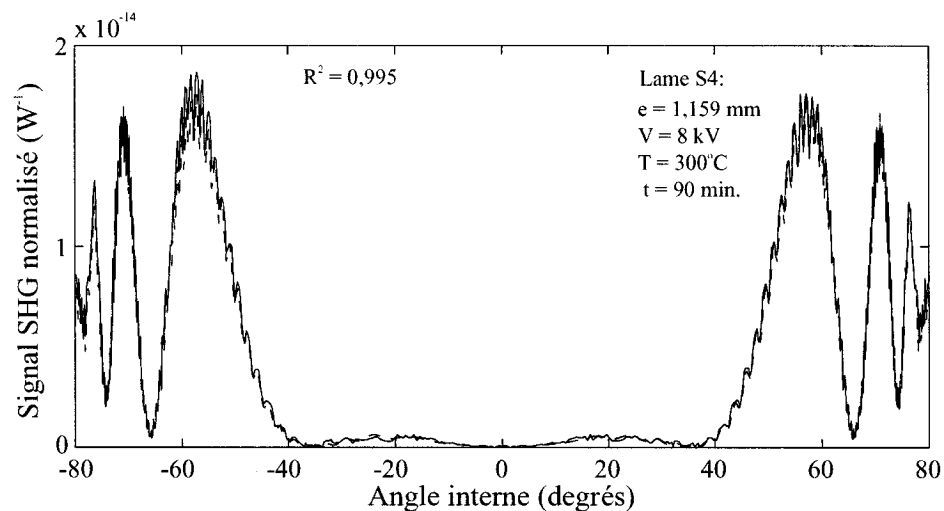


FIG. 3.36 – *Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame S4 (trait continu) et simulées (trait tireté). La lame, polée 90 minutes à 300 °C sous une tension de 8 kV, a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.*

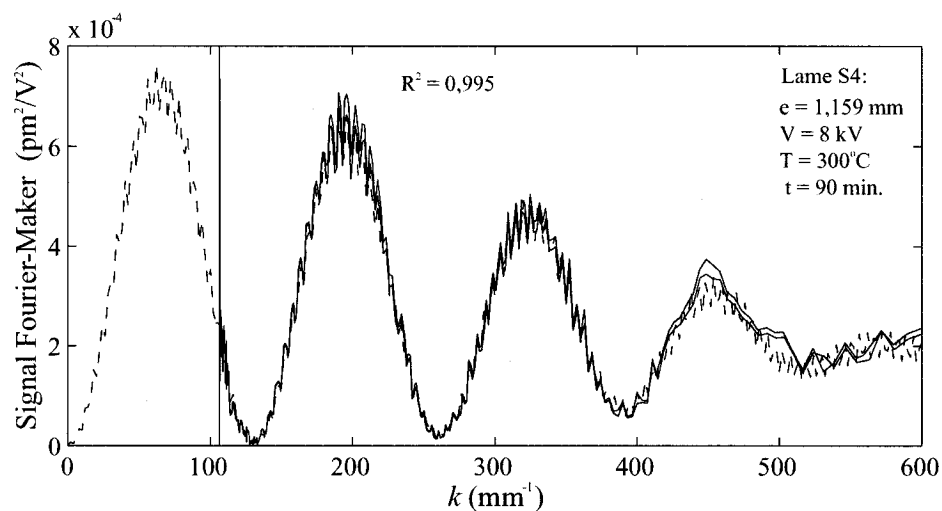


FIG. 3.37 – *Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame S4 (trait continu) et simulé (trait tireté). Ces signaux sont calculés à partir du signal expérimental et du signal simulé présentés à la figure 3.36.*

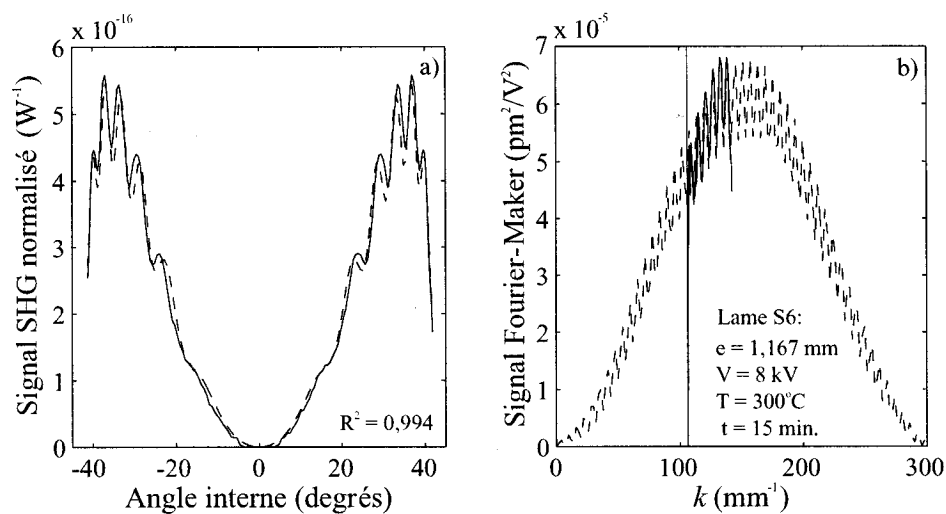


FIG. 3.38 – a) Franges de Maker pour la lame S5 et b) représentation Fourier-Maker. Les courbes en trait continu représentent les données expérimentales alors que les traits tiretés sont pour les courbes issues du lissage. La lame, polée 15 minutes à 300°C sous une tension de 8 kV, a été mesurée dans l'air.

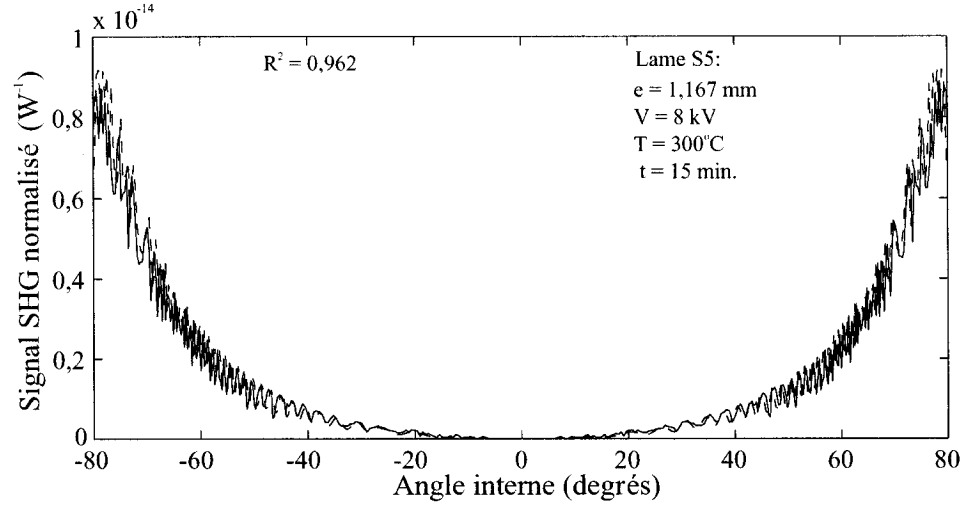


FIG. 3.39 – *Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame S5 (trait continu) et simulées (trait tireté). La lame, polée 15 minutes à 300 °C sous une tension de 8 kV, a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.*

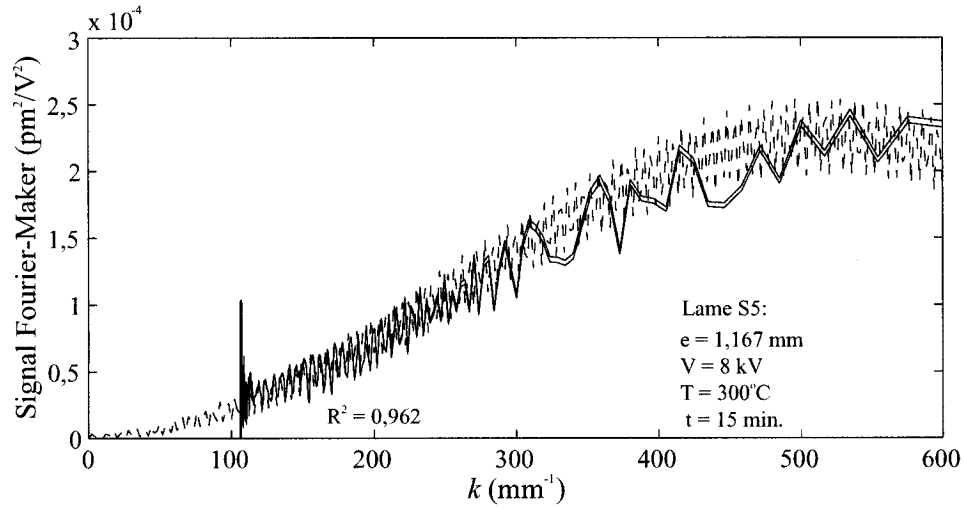


FIG. 3.40 – *Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame S5 (trait continu) et simulé (trait tireté). Ces signaux sont calculés à partir du signal expérimental et du signal simulé présentés à la figure 3.39.*

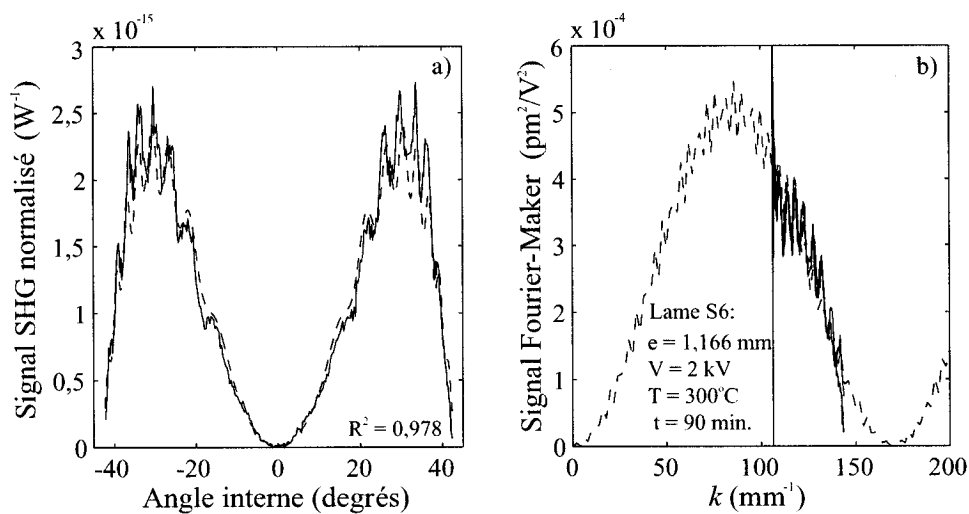


FIG. 3.41 – a) Franges de Maker pour la lame S6 et b) représentation Fourier-Maker. Les courbes en trait continu représentent les données expérimentales alors que les traits tiretés sont pour les courbes issues du lissage. La lame, polée 90 minutes à $300^\circ C$ sous une tension de 2 kV, a été mesurée dans l'air.

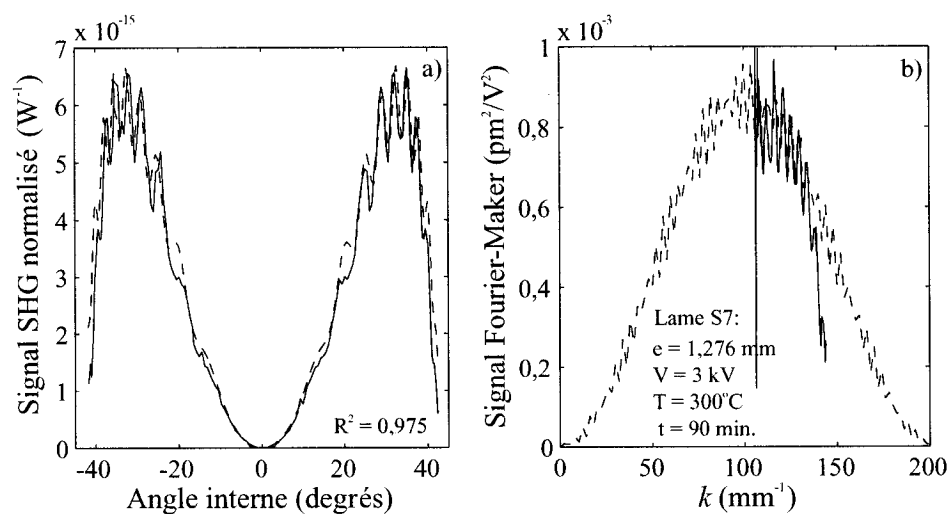


FIG. 3.42 – a) *Franges de Maker pour la lame S7* et b) *représentation Fourier-Maker*. Les courbes en trait continu représentent les données expérimentales alors que les traits tiretés sont pour les courbes issues du lissage. La lame, polée 90 minutes à $300^\circ C$ sous une tension de 3 kV, a été mesurée dans l'air.

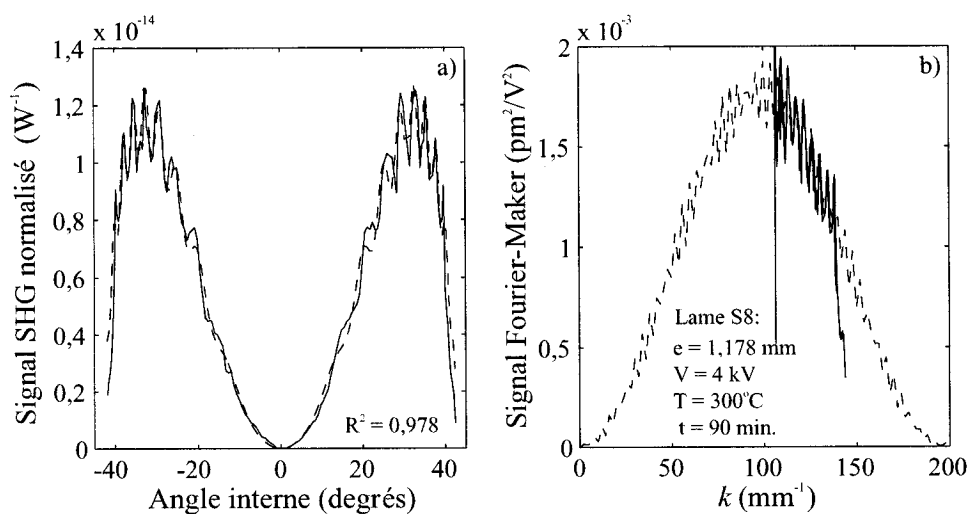


FIG. 3.43 – a) *Franges de Maker pour la lame S8* et b) *représentation Fourier-Maker*. Les courbes en trait continu représentent les données expérimentales alors que les traits tiretés sont pour les courbes issues du lissage. La lame, polée 90 minutes à 300°C sous une tension de 4 kV, a été mesurée dans l'air.

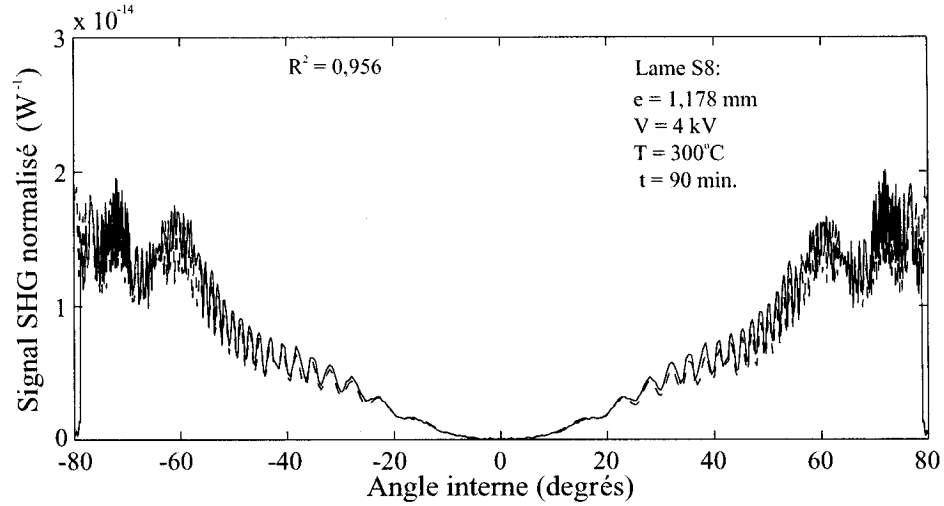


FIG. 3.44 – *Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame S8 (trait continu) et simulées (trait tireté). La lame, polée 90 minutes à 300°C sous une tension de 4 kV , a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.*

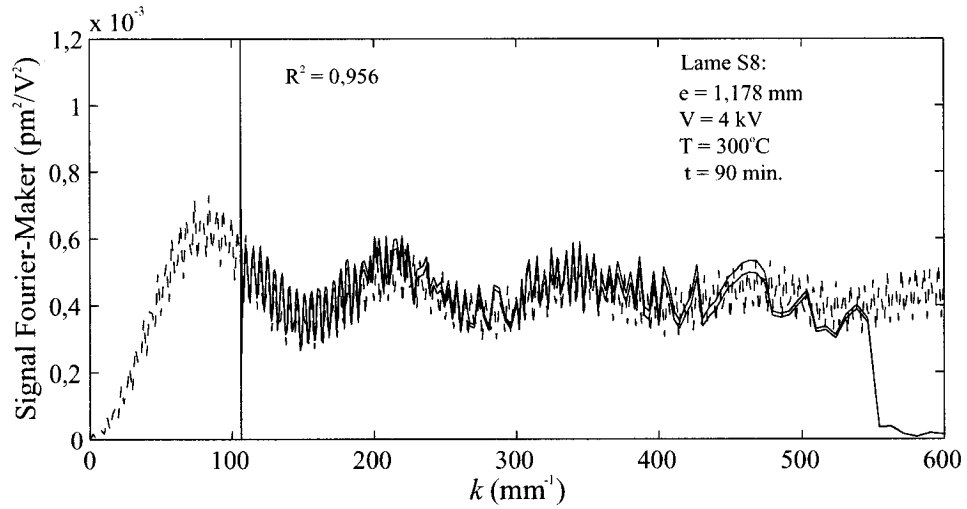


FIG. 3.45 – *Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame S8 (trait continu) et simulé (trait tireté). Ces signaux sont calculés à partir du signal expérimental et du signal simulé présentés à la figure 3.44.*

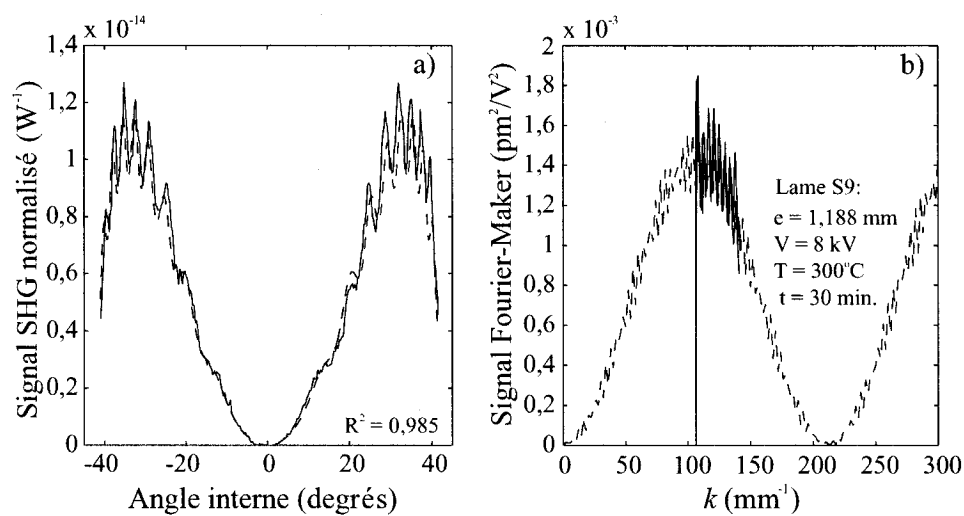


FIG. 3.46 – a) *Franges de Maker pour la lame S9* et b) *représentation Fourier-Maker*. Les courbes en trait continu représentent les données expérimentales alors que les traits tiretés sont pour les courbes issues du lissage. La lame, polée 30 minutes à 300°C sous une tension de 8 kV, a été mesurée dans l'air.

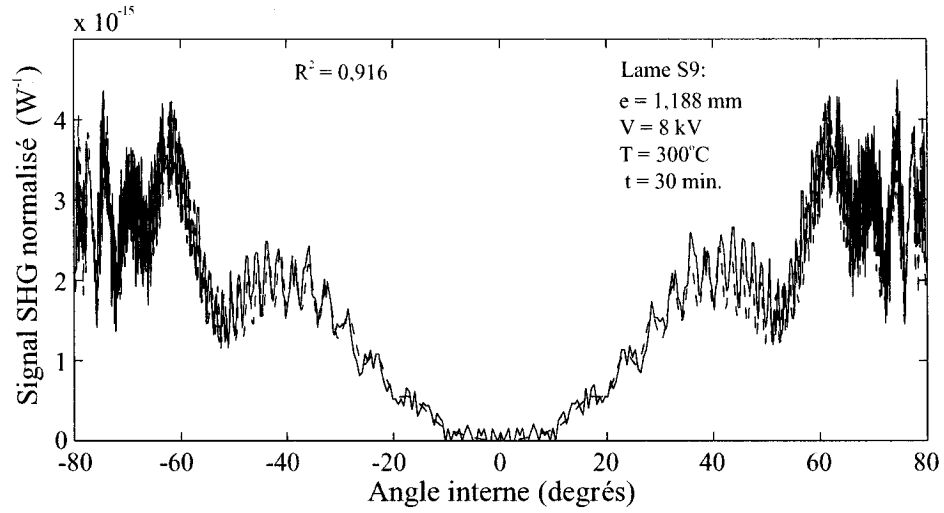


FIG. 3.47 – *Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame S9 (trait continu) et simulées (trait tireté). La lame, polée 30 minutes à 300 °C sous une tension de 8 kV, a été mesurée entre lentilles hémicylindriques.*

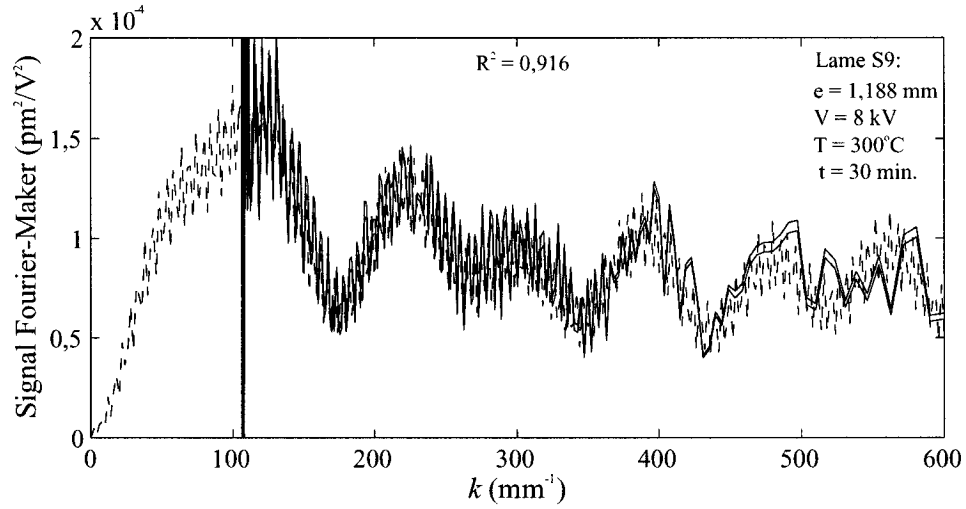


FIG. 3.48 – *Signal Fourier-Maker expérimental pour la lame S9 (trait continu) et simulé (trait tireté). Ces signaux sont calculés à partir du signal expérimental et du signal simulé présentés à la figure 3.47.*

3.2 Analyse des résultats

3.2.1 Reproductibilité du montage de poling thermique

Le montage de poling thermique présenté au chapitre 1 est un montage complexe pouvant entraîner de nombreux problèmes expérimentaux. Il est donc important de déterminer dans quelle mesure il est possible de traiter par ce procédé des lames de silice de façon reproductible.

Les lames I7, I8 et I9 ont été polées à 8 kV pendant 15 minutes à une température de 300°C. Ces lames, provenant du même lot, ont nominalelement la même composition et leurs épaisseurs sont similaires. Ces lames ont été mesurées dans l'air : les courbes de franges de Maker mesurées sont présentées avec leur représentation Fourier-Maker aux figures 3.16 à 3.23.

Nous constatons que les amplitudes des signaux expérimentaux des figures 3.16 à 3.23 sont très similaires. Les distributions de provenance des lissages des courbes sont présentées à la figure 3.49. Les distributions obtenues pour ces trois lames sont très proches ce qui semble indiquer que le montage est reproductible. Néanmoins, les résultats sont entachés par une incertitude d'environ 5 μm sur la détermination de l'épaisseur de la couche non-linéaire. C'est en effet l'incertitude indiquée à la figure 2.14 pour des lames dont la couche non-linéaire est d'environ 20 μm .

Afin de réduire cette incertitude, nous avons mesuré ces lames entre lentilles hémicylindriques : les franges de Maker obtenues ainsi que leur représentation de Fourier-Maker correspondante sont présentées aux figures 3.18 à 3.26. Nous remarquons tout d'abord que les franges de Maker mesurées sont symétriques pour chacune de ces 3 lames indiquant que les couches non-linéaires induites par le poling sont homogènes et que le montage est bien aligné. De plus, l'accord entre les courbes expérimentales et les courbes lissées semble très satisfaisant pour ces trois lames sauf

pour des angles proches de 80° et -80° . La présence de cette erreur systématique et ce symétriquement, nous pousse à croire que les lentilles employées ne sont pas parfaitement hémicylindriques ce qui n'est pas considéré dans les facteurs de Fresnel calculés plus tôt. De plus, de petits accidents sont présents vers 40° , 45° et 50° pour ces lames : nous nous attarderons à ceci à la section 3.2.7. En observant les signaux Fourier-Maker pour chacune des trois lames, nous réalisons tout l'intérêt de cette représentation. En effet, la période des différentes oscillation est bien visible sur ces figures et il relativement aisé d'en déduire l'épaisseur des différentes structures présentes. Ceci nous a permis d'établir une première estimation des paramètres de la distribution ce qui réduit considérablement le temps nécessaire pour effectuer le lissage des courbes expérimentales. Cette représentation nous permet de constater la présence d'oscillations rapides de faible amplitude qui semblent correspondre à un signal provenant du volume. En effet, cette surmodulation bien que difficilement visible pour certains k est présente pour les θ positifs et négatifs. Nous n'avons pas tenu compte de ces surmodulations lors des lissages des courbes. Les distributions obtenues des lissages sont présentées à la figure 3.50.

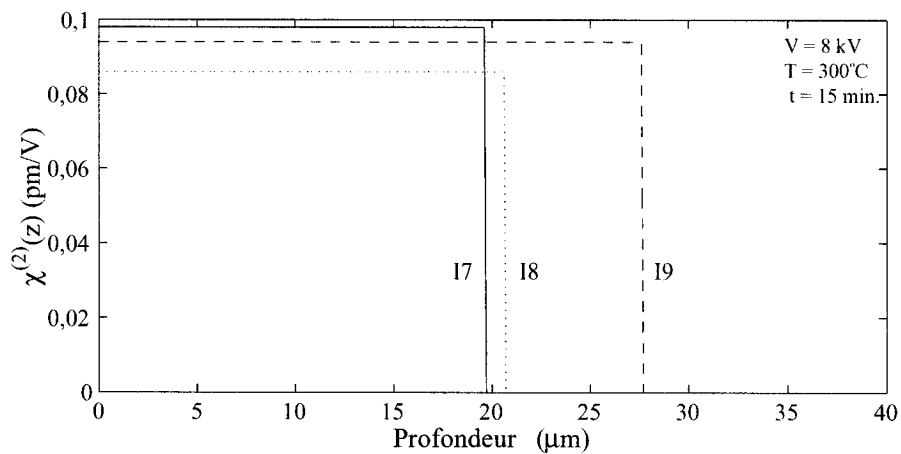


FIG. 3.49 – *Etude de reproductibilité du montage de poling thermique pour les lames d'infrasil. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I7, I8 et I9 mesurées dans l'air.*

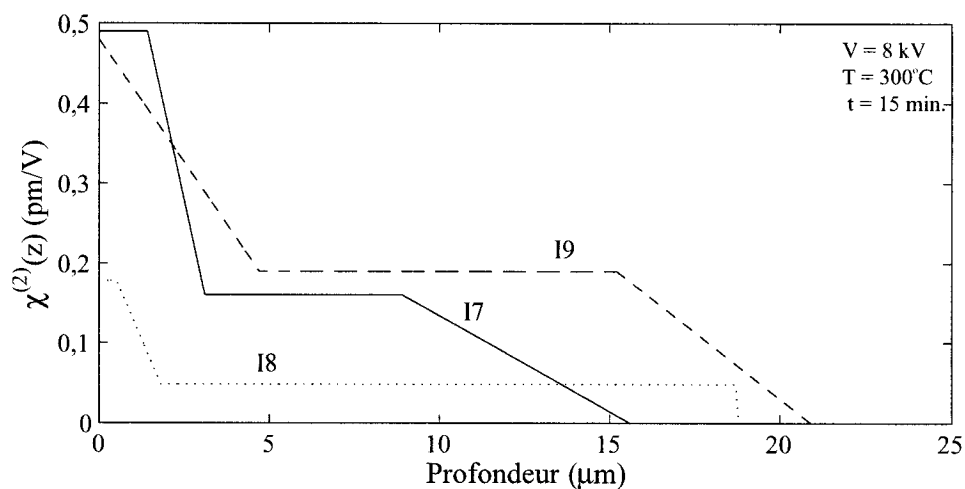


FIG. 3.50 – *Etude de reproductibilité du montage de poling thermique pour les lames d'infrasil. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I7, I8 et I9 mesurées entre lentilles hémicylindriques.*

Bien que les conditions de poling soient identiques pour ces trois lames, nous constatons que les franges de Maker obtenues et les distributions calculées sont différentes. Ceci n'était pas le cas lors des mesures sans lentilles où nous avons trouvé des paramètres très proches. Ici, les lames I7 et I9 présentent des susceptibilités de même grandeur alors que celle de la lame I8 est trois fois plus faible. D'autre part, l'épaisseur totale de la couche non-linéaire des lames I8 et I9 sont proches alors que celle de la lame I7 est significativement plus petite. Ces résultats semblent infirmer les résultats de la figure 3.49.

Si l'on étudie en détail ces constatations, il est possible de déterminer la cause de ce désaccord. La différence entre les lames I7 et I9 peut s'expliquer par un temps de poling plus long dans le cas de la lame I9 laissant plus de temps à la migration des porteurs de charges entraînant une épaisseur accrue. Il est tout à fait possible que la durée du chauffage, bien que voulue identique, ait été mal contrôlée ce qui peut expliquer la plus grande épaisseur de la distribution de la lame I9 par rapport à celle de I7. La faible amplitude déterminée pour la lame I8 s'explique par une tension effective inférieure à la tension appliquée et qui provient d'un mauvais contact entre les électrodes du montage et l'échantillon. Cette hypothèse est basée sur une observation expérimentale : lors du retrait des électrodes à la fin du poling, celles-ci ont pu être retirées sans effort ce qui n'est pas le cas pour les autres lames. Cette observation a également été réalisée par N. Godbout [36]. Ces résultats bien que décevants, sont néanmoins importants puisque nous avons identifié les sources d'erreur du montage de poling. Ceci illustre en plus tout l'intérêt des mesures effectuées entre lentilles puisque la conclusion de l'étude est tout à fait différente de celle effectuée sans lentilles. L'emploi du poling thermique afin d'induire une couche non-linéaire dans des lames de verre nécessite donc un contrôle minutieux des éléments du montage.

Nous poursuivons ici l'étude de reproductibilité débutée avec les lames d'Infra-

sil afin de déterminer si la valeur de la susceptibilité présente dans le volume est également reproductible. Deux lames d'épaisseurs proche, ont été polées dans les mêmes conditions soit à 300 °C pendant 90 minutes sous une tension de poling de 3 kV. Les courbes expérimentales mesurées sans lentilles ainsi que leur lissage sont présentées aux figures 3.27 et 3.34.

Encore une fois, nous voyons que les signaux obtenus sont très proches que ce soit pour l'amplitude ou la position du maximum, et ce pour les couches de surface et de volume. Les distributions obtenues des lissages sont présentées à la figure 3.51. Puisqu'il n'a pas été possible de mesurer la lame S3 entre lentilles hémicylindrique, nous ne pouvons pas conclure sur la reproductibilité de l'épaisseur et l'amplitude de la non-linéarité située sous la surface anodique car ces valeurs sont entachées d'incertitudes importantes. Par contre, pour ce qui est de la couche de volume, l'incertitude sur l'épaisseur est faible puisque ces couches font plus de 650 μm ce qui entraîne que l'amplitude de la non-linéarité peut être déterminée avec précision. Nous constatons sur la figure 3.51 que cette amplitude est identique pour les deux lames ce qui semble indiquer la reproductibilité du montage même pour des susceptibilité aussi faibles.

3.2.2 Comparaison du poling effectué dans l'air et sous vide

Nous avons dans le cadre de cette thèse étudié des lames de silice polées thermiquement sous vide. Nous avons choisi d'utiliser un système sous vide parce qu'il permet de mieux contrôler les contaminants présents lors du poling mais aussi parce que le champ de claquage pour une lame de silice placée sous vide est largement supérieur à son équivalent placé dans l'air. Nous avons pu appliquer des tensions de 8 kV alors que les montages similaires placés dans l'air sont limités à 5 kV. Afin de déterminer si l'emploi d'un système à vide a des conséquences sur la distribution de la nonlinéarité induite, nous avons polé les lames I4, I5 et I6 provenant du même

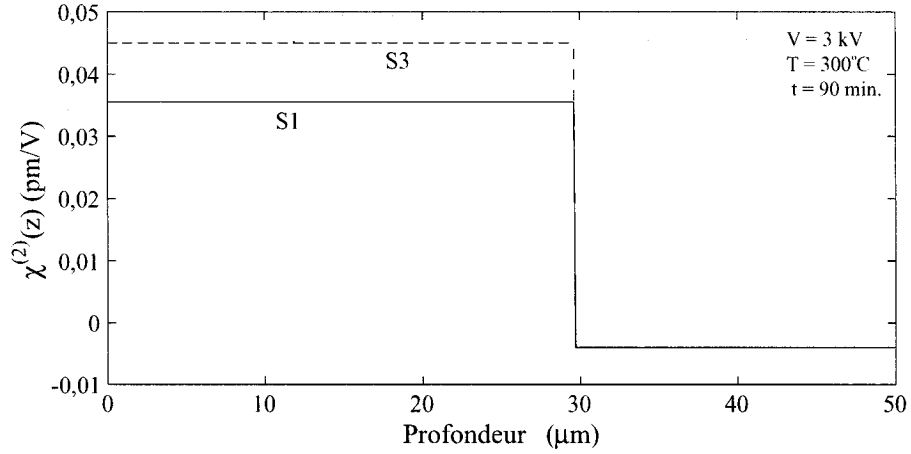


FIG. 3.51 – *Etude de reproductibilité du montage de poling thermique pour les lames de Suprasil. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S1 et S3 mesurées dans l'air.*

lot dans des conditions de poling similaires. Les lames I4 et I6 ont été polées dans le vide alors que la lame I5 a été polée dans l'air. Notons que la tension appliquée était de 3,4 kV sauf pour la lame I6 où elle a été légèrement supérieure à 4 kV. Les courbes expérimentales obtenues sont présentées aux figures 3.10 à 3.15 avec leur représentation Fourier-Maker.

Encore une fois, nous constatons que ces courbes sont bien symétriques et que l'accord entre courbes expérimentales et simulées est très bon sauf aux grands angles. L'allure générale de ces courbes est très similaire avec des amplitudes proches sauf pour la lame I6 qui, il est vrai, a été polée à une tension légèrement plus élevée. Ces courbes présentent encore une faible surmodulation correspondant à une non-linéarité distribuée dans le volume. Cette surmodulation est difficile à voir pour des lames d'infrasil mais a été observé par Y. Quiquempois [112]: ce dernier a poli la couche anodique ce qui a éliminé ce signal et mis en évidence le signal provenant de la couche distribuée dans le volume. La mesure de la période et de l'amplitude

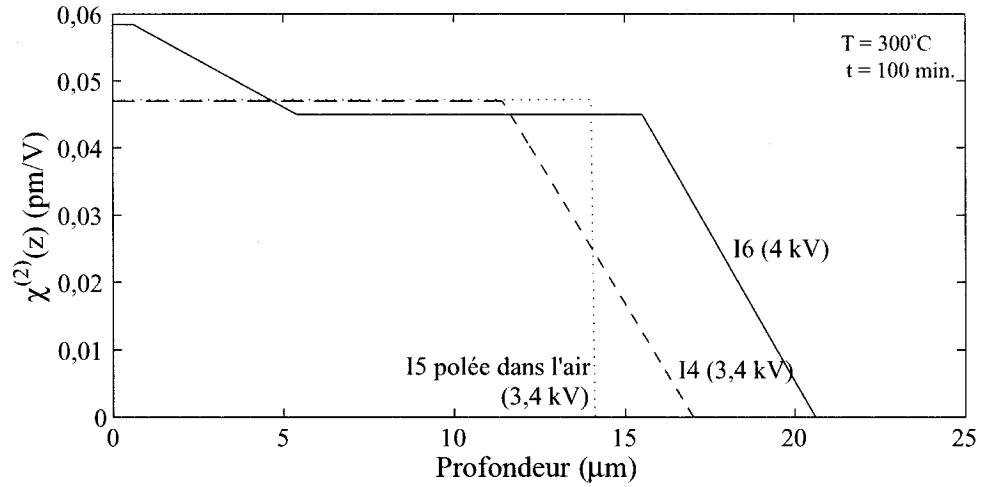


FIG. 3.52 – *Comparaison du poling thermique effectué sous vide et dans l'air pour les lames d'Infrasil. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I4, I5 et I6 mesurées entre lentilles hémicylindriques.*

de cette surmodulation est importante car ceci peut permettre de vérifier une des hypothèses du modèle de migration ionique tel que vu à la section 1.2.2. En effet, ce modèle suppose que l'aire sous la courbe de la susceptibilité de second ordre située sous la surface anodique et celle située en profondeur sont égales afin que la lame polée soit électriquement neutre. Les distributions obtenues des lissages sont présentées à la figure 3.52. La lame I6 présente une épaisseur plus grande et une susceptibilité d'amplitude plus grande que celles des deux autres lames ce qui est normal puisque la tension appliquée était plus élevée. Les profils des lames I4 et I5 sont similaires avec seulement de légères différences d'épaisseur ce qui semble indiquer que le poling sous vide affecte peu le processus de migration ionique dans les lames. Il serait intéressant d'approfondir cette étude en l'appliquant à un plus grand nombre d'échantillons et en effectuant des mesures de Maker entre lentilles hémicylindriques.

3.2.3 Etude de l'effet de la température sur la distribution de la nonlinéarité

Les lames I1, I2 et I3 qui sont d'épaisseurs comparables, ont été polées thermiquement sous vide durant 30 minutes avec une tension appliquée de 8 kV à des températures variant de 250 à 350 °C. Les courbes de franges de Maker mesurées sont présentées aux figures 3.3 à 3.7 avec leur représentation Fourier-Maker. Les distributions de la non-linéarité obtenues du lissage de ces courbes sont présentées à la figure 3.53.

Nous voyons que l'épaisseur de la couche non-linéaire et l'amplitude de la susceptibilité augmentent lorsque la température à laquelle est effectué le poling augmente : ceci est en désaccord avec la littérature où il a été montré que la température optimale de poling est plutôt de 300 °C. Même si il y a une grande incertitude sur la détermination des valeurs du lissage, on voit néanmoins en comparant les amplitudes des signaux que la lame I3 présente un signal expérimental plus élevé que les deux autres lames polées. Également, nous remarquons que ces lames polées ne présentent qu'une couche non-linéaire située sous la surface anodique et n'ont pas de non-linéarité distribuée dans l'ensemble de l'échantillon. Ceci est typique des lames de type Infrasil.

Afin de vérifier ces observations, nous avons mesurés les lames I2 et I3 entre lentilles. Il nous a été impossible d'effectuer la mesure des franges de Maker entre lentilles pour la lame I1. Néanmoins, les données provenant des lames I2 et I3 polées respectivement à 300 et 350 °C nous permettront de tirer des informations intéressantes. La température de poling est un paramètre particulièrement important parce que la mobilité ionique dépend directement de la température ce qui peut changer considérablement la distance parcourue par ces ions durant la migration et par conséquent l'épaisseur de la couche non-linéaire induite. Les courbes expérimentales obtenues sont présentées aux figures 3.5 à 3.9 avec leur représentation Fourier-Maker.

Nous voyons toujours que l'accord entre les résultats expérimentaux et les courbes simulées est très bon malgré quelques petites erreurs. Lorsque l'on compare les signaux Fourier-Maker des deux lames, on constate que les amplitudes sont similaires mais que par contre les périodes sont très différentes indiquant un effet important de la température. Les distributions obtenues des lissages sont présentées à la figure 3.54.

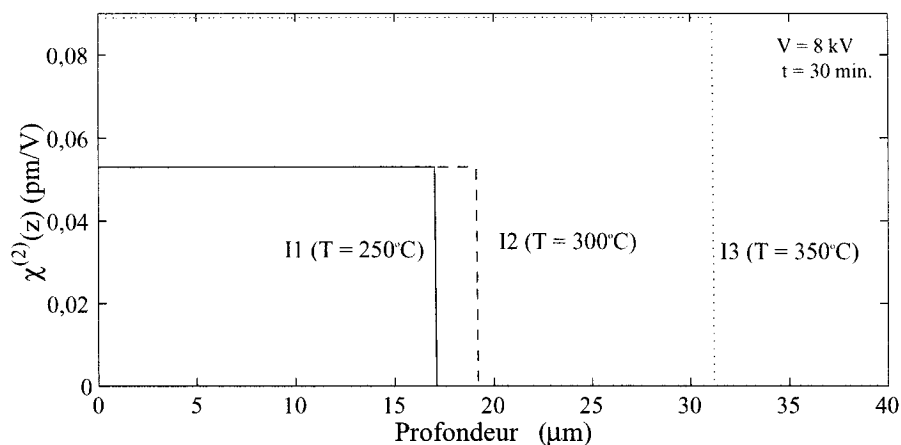


FIG. 3.53 – Etude de l'effet de la température de poling pour les lames d'Infrasil I1, I2 et I3 polées respectivement à 250, 300 et 350°C. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I1, I2 et I3 mesurées dans l'air.

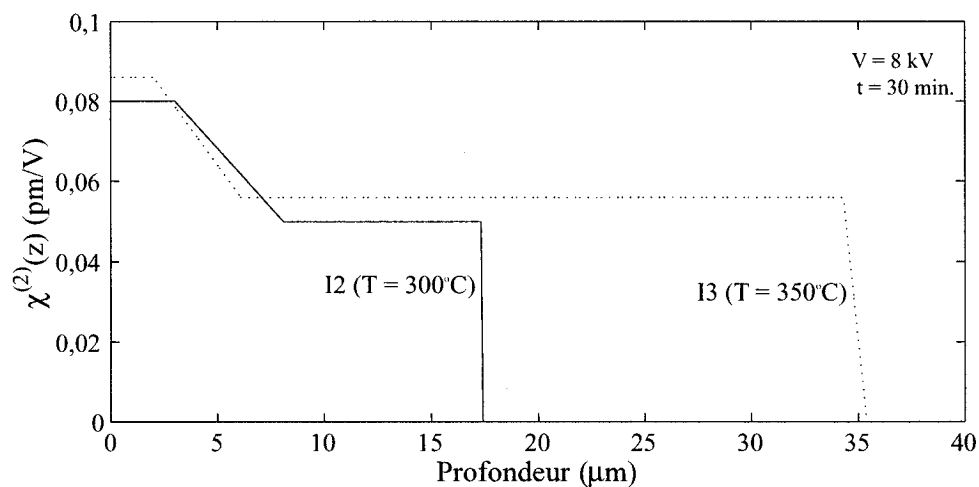


FIG. 3.54 – Etude de l'effet de la température de poling pour les lames d'Infrasil I2 polée à 300°C et I3 polée à 350°C. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I2 et I3 mesurées entre lentilles hémicylindriques.

Nous constatons que jusqu'à une profondeur de 15 μm sous la couche anodique, les deux distributions sont très proches. Par contre, l'épaisseur totale de I3 est environ deux fois plus grande que celle de I2 : il semble donc qu'au-dessus de 350°C, la mobilité ionique augmente de façon telle que les ions se déplacent plus loin. Le fait que l'amplitude de la susceptibilité reste la même malgré l'épaisseur accrue indique la présence d'au moins deux porteurs. En effet, si il n'y avait qu'un seul porteur de charge, une augmentation de température (ou de mobilité) entraînerait la baisse de la susceptibilité et une plus grande épaisseur. Ici, le porteur lent reste dans les premiers micromètres sous la surface maintenant l'amplitude de la nonlinéarité alors que le porteur rapide se déplace et augmente l'épaisseur de la couche. Cette observation est particulièrement intéressante puisque les études effectuées dans la littérature [5] visant à déterminer une température optimale de poling ont toutes été exécutées sans lentilles ce qui ne permet pas de distinguer cet effet à cause de l'importante incertitude sur l'épaisseur. Néanmoins, il faudrait étendre cette étude à une vaste plage de température afin de déterminer la température optimale.

3.2.4 Etude de l'effet de la tension appliquée sur la distribution de la nonlinéarité

Nous allons maintenant étudier des lames de Suprasil polées avec des tensions variées afin d'en voir l'effet sur les distributions de la nonlinéarité. Deux lames de Suprasil de 0,684 mm d'épaisseur ont été sélectionnées qui ont été polées sous vide à 300 °C pendant 90 minutes : la tension appliquée était de 3 kV sur la lame S1 alors qu'elle était de 5 kV sur la lame S2. Les franges de Maker obtenues sont présentées aux figures 3.27 et 3.31 avec les distributions de lissage présentés à la figure 3.55. Nous observons que la susceptibilité de la couche de surface augmente de moitié mais que celle de volume ne change que très légèrement alors que l'épaisseur de la couche

reste constante.

Les courbes expérimentales obtenues entre lentilles hémicylindriques sont présentées aux figures 3.29 à 3.33 avec leur représentation Fourier-Maker. Les courbes expérimentales et simulées sont très similaires et symétriques. Nous remarquons la présence de la surmodulation sur toutes les courbes et qui est typique de la nonlinéarité distribuée dans l'épaisseur de l'échantillon et qui est toujours observé dans les lames de Suprasil. Nous remarquons sur les courbes de la représentation Fourier-Maker que le contraste de cette surmodulation diminue progressivement pour $k > 450 \text{ mm}^{-1}$. Ceci est dû à l'angle minimal de rotation du moteur qui est de $0,05^\circ$ ce qui pour de grands angles est supérieur à la période de la surmodulation empêchant de la détecter à ces angles. Les distributions obtenues des lissages sont présentés à la figure 3.56.

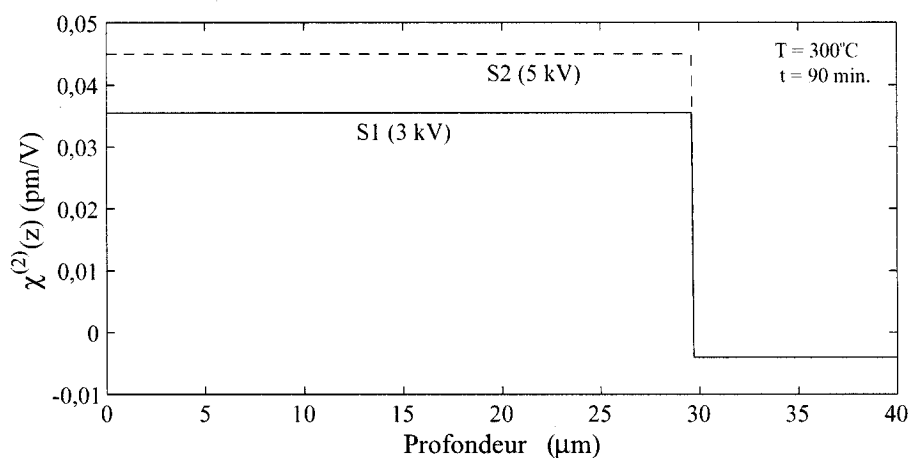


FIG. 3.55 – Etude de l'effet de la tension de poling pour les lames de Suprasil S1 polée à 3 kV et S2 polée à 5 kV. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S1 et S2 mesurées dans l'air.

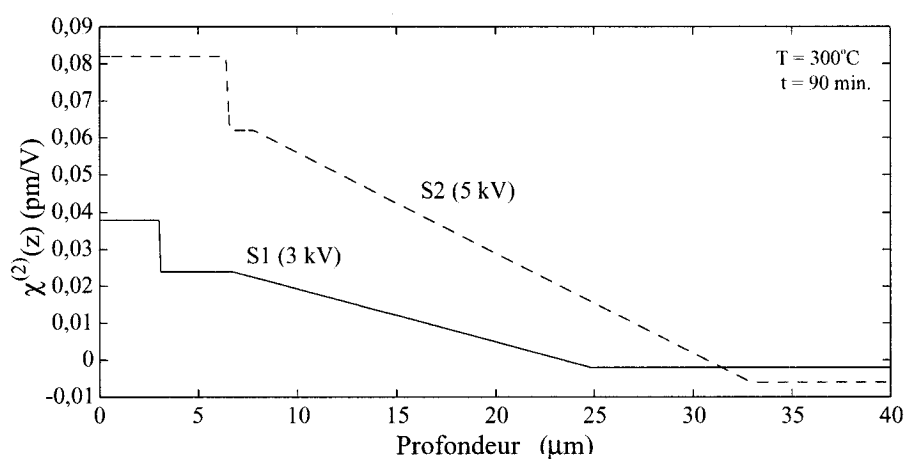


FIG. 3.56 – Etude de l'effet de la tension de poling pour les lames de Suprasil S1 polée à 3 kV et S2 polée à 5 kV. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S1 et S2 mesurées entre lentilles hémicylindriques.

Nous voyons que les profils calculés ont la même allure avec des épaisseurs et des amplitudes plus importantes pour la lame S2 polée à plus haute tension appliquée. La tension appliquée étant plus élevée pour la lame S2, les ions sont repoussés en profondeur ce qui explique l'épaisseur supérieure. L'amplitude de la susceptibilité des trois palliers présents ici est environ deux fois plus élevée que pour celle de la lame S1 : si l'on suppose que le modèle de migration ionique présenté au Chapitre 1 est valide, l'amplitude de la nonlinéarité est fonction de \sqrt{V} ce qui suppose que si l'on passe de 3 à 5 kV, l'amplitude devrait être $\sqrt{5/3} \approx 1,29$ fois supérieure. Cette différence a également été observée par d'autres auteurs [113] et peut s'expliquer par un mauvais contact électrique et donc une tension effective plus basse pour la lame S1.

Les lames S4, S6, S7 et S8 ayant une épaisseur d'environ 1,15 mm ont été polées sous vide à des tension allant de 2 à 8 kV. En ce qui concerne ce second groupe de lames, les franges de Maker obtenues dans l'air sont présentées aux figures 3.35 et 3.41 à 3.43 avec les distributions provenant des lissages présentées à la figure 3.57. Nous constatons que comme pour les lames plus minces, les susceptibilités des couches non-linéaires augmentent avec une tension croissante. L'épaisseur de la couche de surface augmente aussi pour une tension de poling accrue ce qui est en accord avec la littérature et avec l'équation 1.13 issue du modèle simplifié de Von Hippel.

Nous avons mesuré entre lentilles les lames S4 et S8 qui ont été polées à 4 et 8 kV dans les mêmes conditions que précédemment. Les courbes expérimentales obtenues sont présentées aux figures 3.36 à 3.45 avec leur représentation Fourier-Maker. Nous remarquons que les signaux provenant des deux lames sont très différents. En particulier, si l'on se réfère à la représentation Fourier-Maker pour ces deux échantillons, nous voyons que l'amplitude des deux signaux est similaire et la période est similaire mais que leur nature est totalement différente. Le signal de la lame S4 est proche d'un sinus carré alors que celui de la lame S8 est un sinus carré amorti. Ceci est plus facile

à analyser si l'on observe les distributions obtenues des lissages qui sont présentées à la figure 3.58.

A première vue, il peut sembler paradoxal que l'amplitude de la susceptibilité de la lame S8 polée à 4 kV soit supérieur à celle de la lame S4 polée à 8 kV : la distribution de la lame S8 est purement triangulaire ce qui fait que en moyenne elle est inférieure à celle de S4. Par ailleurs, cette moyenne vaut environ 0,02 pm/V alors que celle de la lame S4 vaut 0,028 pm/V : ceci est proche du rapport $\sqrt{2}$ prévu par le modèle de Von Hippel.

Nous ne pouvons comparer les profils des lames S1, S2 et S4, S8 qui ont des épaisseurs différentes. Néanmoins, une tendance se dégage quelle que soit l'épaisseur des lames étudiées. Pour une tension appliquée supérieure à 5 kV, la distribution de la susceptibilité non-linéaire s'approche d'une couche uniforme alors que pour des tensions inférieures cette distribution ressemble à un triangle écranté. Même si les distributions obtenues sont plus complexes que celle prévue par le modèle de Von Hippel, l'amplitude de la nonlinéarité augmente avec la tension tout en suivant approximativement une loi \sqrt{V} .

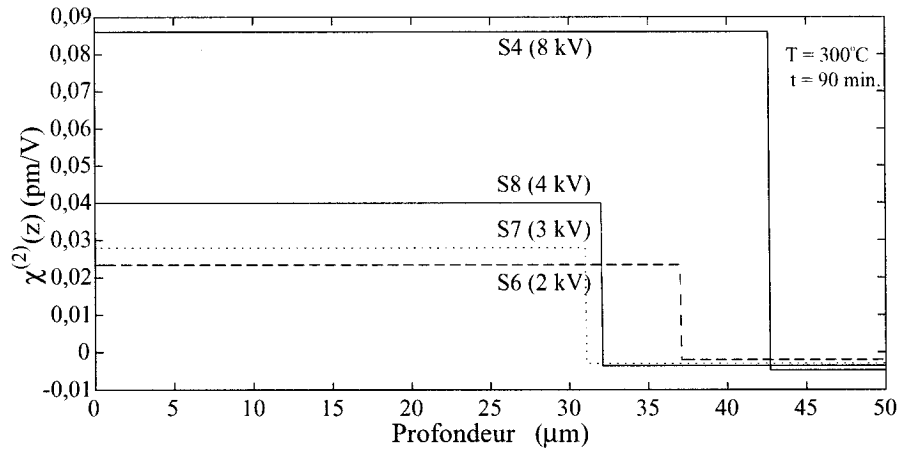


FIG. 3.57 – Etude de l'effet de la tension de poling pour les lames de Suprasil S_4 (8 kV), S_6 (2 kV), S_7 (3 kV) et S_8 (4 kV). Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S_4 , S_6 , S_7 et S_8 mesurées dans l'air.

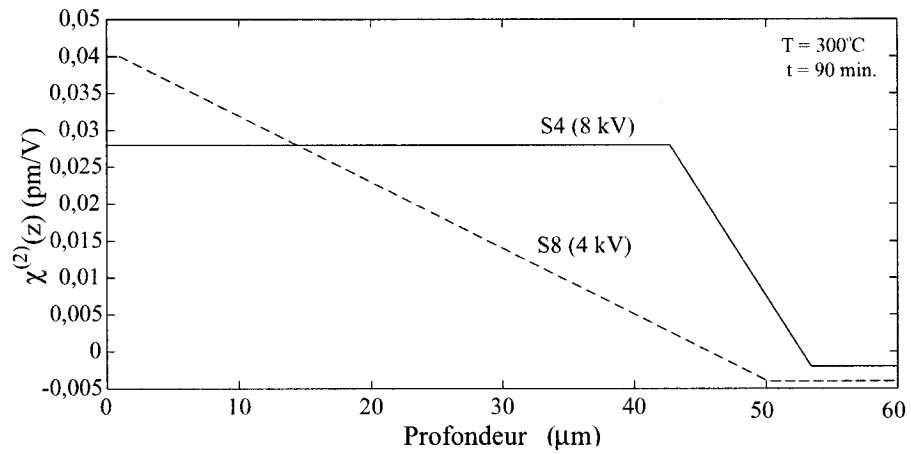


FIG. 3.58 – Etude de l'effet de la tension de poling pour les lames de Suprasil S_4 et S_8 polées à 8 et 4 kV. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S_4 et S_8 mesurées entre lentilles hémicylindriques.

3.2.5 Dynamique du poling thermique dans les verres de SuprasilTM et d'InfrasilTM

Jusqu'à présent nous avons étudié l'effet de l'environnement, de la température et de la tension appliquée sur le poling thermique des lames de silice. Nous avons vu que pour ces paramètres, le comportement des verres de Suprasil et d'Infrasil était sensiblement le même, c'est-à-dire qu'une augmentation de température dans une certaine plage ou de tension augmentait à la fois l'épaisseur totale de la couche non-linéaire mais aussi l'amplitude de sa susceptibilité du deuxième ordre. Il reste un dernier paramètre à étudier qui est la durée du poling. Comme nous allons le voir, le contrôle durant le poling thermique de la période de temps où la mobilité des ions est grande, essentiellement à partir de 200–250°C, est critique lors de l'optimisation de ce procédé d'induction de second harmonique. Afin de comparer le comportement des deux types de lames employées dans cette thèse nous avons choisi de traiter 3 lames de Suprasil et 2 lames d'Infrasil.

Pour cette étude, trois lames d'épaisseur similaires ont été polées à une température de 300°C sous une tension appliquée de 8 kV et pour des durées de poling de 15, 30 et 90 minutes. Les franges de Maker de ces trois lames mesurées dans l'air sont présentées aux figures 3.35 à 3.46 avec le lissage effectué. Les distributions issues de ce lissage sont présentées à la figure 3.59.

Nous remarquons tout d'abord que les franges de Maker pour ces trois lames présentent toutes deux oscillations de périodes différentes : la première, de grande période, correspond à la couche non-linéaire créée sous la surface de l'échantillon comme pour les lames d'Infrasil, la seconde, de courte période, correspond à la non-linéarité créée dans le volume de l'échantillon. Cette constatation n'est pas nouvelle et a déjà été faite par W. Margulis [82] et Y. Quiquempois [111]. De plus, l'hypothèse qui associe l'oscillation rapide à une nonlinéarité distribuée en volume a été vérifiée

par ce dernier auteur. La couche cathodique de lames de Suprasil a été polie afin de réduire l'épaisseur de la lame [111]. Si cette surmodulation était due à une fine couche cathodique, cette oscillation rapide devrait après un certain temps de polissage disparaître. Ceci n'a pas été le cas : en effet, la période des oscillations a été changée puisque l'épaisseur de la lame se trouvait modifiée et la surmodulation ne s'est jamais annulée. Cette expérience confirme donc la présence d'une nonlinéarité distribuée dans l'échantillon.

Nous avons repris ces lames et les avons mesurées entre lentilles hémicylindriques afin de vérifier les observations précédentes. Les franges de Maker théoriques ainsi que leur représentation Fourier-Maker sont présentées aux figures 3.36, 3.37 et 3.39 à 3.48. Une fois de plus, nous constatons que les courbes lissées sont très proches des données expérimentales. La lame S5 présente quand à elle une allure inusitée : si l'on se réfère à la représentation Fourier-Maker correspondante, on voit que cela provient d'une période très longue et donc d'une couche très mince. Pour la première fois, nous avons affaire à une période si longue que l'on n'en voit qu'une partie : il n'est donc pas possible d'évaluer cette période directement sur la figure mais il faut avoir recours à la valeur issue du lissage. Les distributions de la nonlinéarité qui représentent le meilleur lissage possible sont présentées à la figure 3.60.

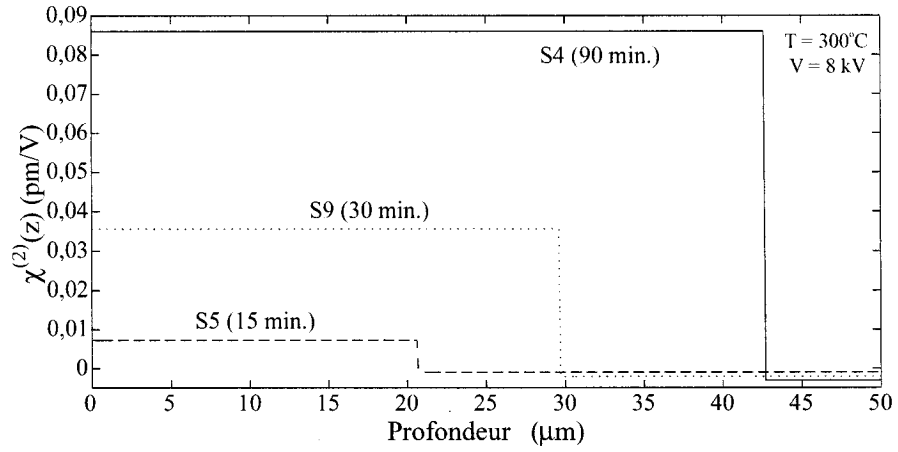


FIG. 3.59 – Etude de l'effet de la durée du poling pour les lames de Suprasil S4 (90 minutes), S5 (15 minutes) et S9 (30 minutes). Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S4, S5 et S9 mesurées dans l'air.

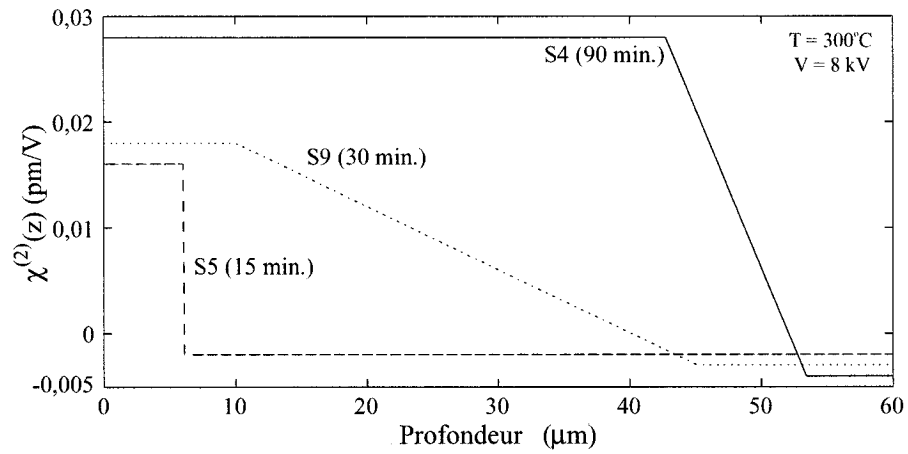


FIG. 3.60 – Etude de l'effet de la durée du poling pour les lames de Suprasil S4 (90 minutes), S5 (15 minutes) et S9 (30 minutes). Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S4, S5 et S9 mesurées entre lentilles hémicylindriques.

Nous voyons sur cette figure très clairement l'effet de la durée du poling sur la distribution de la nonlinéarité dans les lames de Suprasil. Pour un temps de poling de 15 minutes, l'épaisseur de la couche induite est d'environ $6\text{ }\mu\text{m}$ avec une valeur de $\chi_{\text{surf}}^{(2)}$ d'environ $0,016\text{ pm/V}$. Ensuite, au bout de 30 minutes, l'épaisseur augmente beaucoup ce qui semble indiquer que le temps de poling devient suffisamment long pour permettre la migration ionique. Cet effet s'accroît au bout de 90 minutes, où l'épaisseur totale de la couche atteint plus de $50\text{ }\mu\text{m}$ avec un $\chi_{\text{surf}}^{(2)}$ qui a pratiquement doublé. Notons la présence dès les premières minutes du poling d'une nonlinéarité distribuée dans l'épaisseur de l'échantillon et qui augmente légèrement sa valeur tout au long du processus. Encore une fois, à cause de la faible épaisseur de la couche non-linéaire de la lame S5, il nous est impossible de déterminer si le profil réel est bien un carré ou encore si il y a présence d'une pente ce qui rapprocherait ce profil de celui des lames S4 et S9. Néanmoins, tel que vu à la figure 2.15, l'incertitude sur cette épaisseur est de $0,8\text{ }\mu\text{m}$ si l'on suppose un profil uniforme ce qui est raisonnable. Enfin, si nous comparons ces résultats à ceux obtenus dans les mesures sans lentilles et dont les distributions sont présentées à la figure 3.59, nous voyons que la tendance générale est la même bien que la grande incertitude sur la détermination de l'épaisseur entraîne des différences dans les épaisseurs et donc dans l'amplitude de la non-linéarité. En particulier, pour la lame S5, il avait été prévu une couche d'épaisseur 4 fois plus importante que celle obtenue pour les mesures entre lentilles mais avec une amplitude bien plus faible : nous voyons donc l'importance des mesures entre lentilles.

Nous avons également étudié deux lames d'Infrasil afin de pouvoir comparer leur comportement par rapport à celui observé chez les lames de Suprasil. Les lames choisies d'épaisseur similaire, ont été polées à 300°C : la lame I7 a été polée à 8 kV pendant 15 minutes alors que la lame I6 a été polée à 4 kV pendant 100 minutes. Bien que la seconde lame ait été polée à une tension deux fois plus faible, il nous

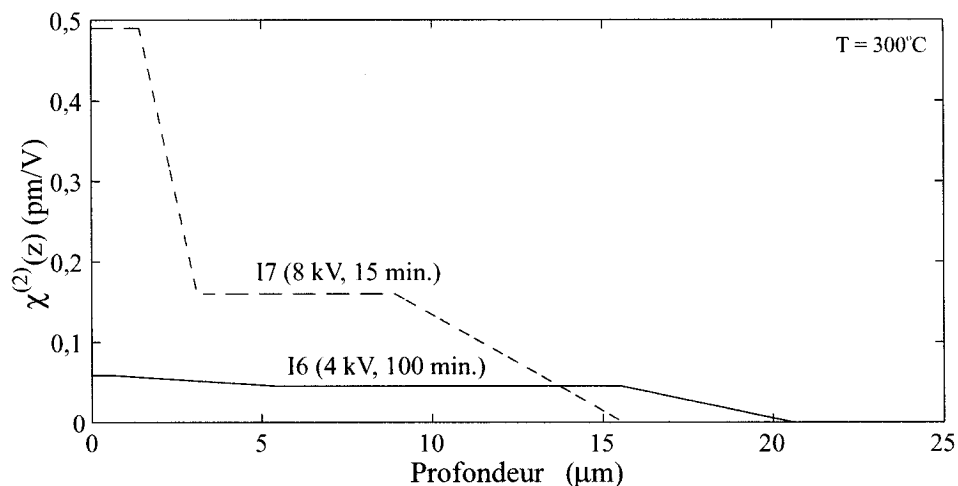


FIG. 3.61 – *Etude de l'effet de la durée du poling pour les lames d'Infrasil I6 et I7 polées pendant 100 et 15 minutes. La lame I6 a été polée sous une tension de 4 kV alors que la lame I7 a été polée à 8 kV. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I6 et I7.*

sera quand même possible de comparer les résultats obtenus. Comme nous l'avons déjà vu, le modèle de migration ionique implique que l'amplitude de la susceptibilité dépend comme la racine carrée de la tension appliquée. Par conséquent, en supposant la validité de ce modèle, si l'on veut utiliser 8 kV comme tension fixée dans l'étude, il suffit de multiplier par $\sqrt{8 \text{ kV}/4 \text{ kV}} = 1,41$ la susceptibilité obtenue pour la lame I6. Les franges de Maker expérimentales obtenues pour ces lames sont présentées aux figures 3.14, 3.15 et 3.18, 3.19 avec leur représentation Fourier-Maker. Ces courbes ayant déjà été étudiées plus tôt, nous nous intéresserons surtout aux distributions obtenues par les lissages effectués sur les résultats expérimentaux. Ces distributions sont illustrées à la figure 3.61. Comme pour les lames de Suprasil, une augmentation de la durée du temps de poling fait augmenter l'épaisseur de la couche non-linéaire mais cette fois-ci l'amplitude de la susceptibilité est diminuée drastiquement. Même

si l'on multiplie l'amplitude de I6 par 1,41 tel que vu précédemment, elle est toujours très inférieure à celle de I7. On voit que pour une faible durée de poling (lame I7) il y a présence de deux structures dont une susceptibilité sous la surface de la lame qui est presque de 0,5 pm/V ce qui est proche de la limite de 0,6 pm/V prévue par le modèle de migration ionique. Nous verrons les implications de cette observation au chapitre 5. Lorsque de la durée de poling atteint 100 minutes, cette structure disparaît presque totalement et l'amplitude de la deuxième structure diminue jusqu'à approcher 0,075 pm/V (puisque'il faut multiplier l'amplitude lue sur la distribution de la lame I6 par 1,41 afin de pouvoir comparer les lames I6 et I7 polées à des tensions différentes). L'épaisseur est alors supérieure à 20 μm ce qui semble être la limite maximale de l'épaisseur atteinte dans les lames d'Infrasil. Pour la lame I7, la couche mince de très grande amplitude était impossible à détecter dans les mesures sans lentilles ce qui fait que l'amplitude est très sous évaluée.

Des études similaires sur la durée du poling thermique ont été présentées dans la littérature mais sans l'utilisation de lentilles afin d'enlever les réfractions. Les conclusions de ces études indiquaient que le temps de poling optimal pour les lames de Suprasil et d'Infrasil était d'environ 30 minutes. De plus, elles démontraient que l'épaisseur typique des couches ainsi créées était de 10 μm pour l'Infrasil et de 30 μm au plus pour le Suprasil. Les résultats que nous avons présenté ici indiquent plutôt que la dynamique dans ces deux types de verre de silice est en fait totalement différente puisque les temps de poling optimaux pour les lames d'Infrasil sont courts alors que les temps optimaux pour les lames de Suprasil sont longs. Il est vrai que pour ce qui concerne les épaisseurs, les autres auteurs effectuant des polings dans l'air ne pouvaient dépasser une tension de 5 kV ce qui implique des épaisseurs plus faibles que celles trouvées ici. Malgré cela, les verres de Suprasil nécessitent une durée de poling plus importante afin d'atteindre un $\chi_{\text{surf}}^{(2)}$ maximal alors que les verres d'Infrasil eux

atteignent cet optimum pour un temps de poling très court.

3.2.6 Etude de l'effet de la polarisation du faisceau laser

Lors de l'étude de la symétrie du tenseur de la susceptibilité de second ordre dans les verres de silice polés thermiquement à la section 2.1.2, nous avons vu que la symétrie imposait :

$$\chi_S^{(2)} = \frac{1}{3} \cdot \chi_P^{(2)} \quad (3.1)$$

c'est-à-dire que la susceptibilité mesurée avec un faisceau polarisé linéairement S sera 3 fois plus petite que celle mesurée avec une polarisation P. Cette relation découle du modèle de migration ionique : son invalidation expérimentale permettrait d'écarter la migration ionique comme processus à l'origine de l'apparition d'une nonlinéarité du second ordre dans les verres de silice polée. Afin de vérifier cette hypothèse, nous avons effectué systématiquement des mesures avec un état de polarisation linéaire P et S successivement et ce, pour tous les échantillons présentés dans cette thèse. Nous allons nous limiter dans cette section à l'étude d'une lame d'Infrasil I7 et une lame de Suprasil S1. Les résultats obtenus sont présentés aux figures 3.17 à 3.28.

Selon la relation 3.1, la susceptibilité mesurée selon la polarisation P est 3 fois celle de la polarisation S : puisque la puissance mesurée est proportionnelle au carré de l'amplitude de la susceptibilité, il en découle :

$$P_S^{(2\omega)} = \frac{1}{9} \cdot P_P^{(2\omega)}. \quad (3.2)$$

Sur les figures 3.17 à 3.28, les signaux pour la polarisation S ont été multipliés par 9. Egalement, afin de faciliter la comparaison entre les deux polarisations, nous avons multiplié les signaux correspondants à la polarisation S par $T_{tot,P}/T_{tot,S}$ afin que les deux courbes soient multipliées par le même facteur de transmission $T_{tot,P}$. Ces facteurs sont donnés par les équations 2.42 et 2.43 à la section 2.1.3. Nous voyons que

les amplitudes des signaux pour la lame d'Infrasil et celle de Suprasil pour les deux polarisation sont proches ce qui indique que la condition est respectée. Nous avons vérifié ceci pour toutes les lames en évaluant le rapport entre la susceptibilité obtenue du lissage des courbes pour les deux états de polarisation orthogonaux.

Nous avons également vu que certaines lames d'Infrasil mesurées entre lentilles hémicylindriques présentaient des susceptibilités $\chi^{(2)}(z)$ élevées de l'ordre de 0,5 pm/V ce qui est proche de la limite théorique prévue par le modèle de migration ionique (section 1.1.2. Nous avons mesuré la lame I9 entre lentilles pour les deux polarisations orthogonales P et S. Les courbes ainsi obtenues sont présentées à la figure 3.24. La courbe pour la polarisation S a été multipliée par 9 et l'on constate immédiatement que les deux courbes sont très proches pour toute la plage angulaire. Le facteur 9 étant établi pour toutes nos mesures, nous ne pouvons pas écarter la migration ionique comme origine principale de la nonlinéarité de second ordre induite dans les verres de silice polés.

3.2.7 Irrégularités dans les franges de Maker

Plusieurs des courbes de franges de Maker (lames I4, I7 et I9) que nous avons étudiées jusqu'ici présentent des bosses qui ne sont pas prévues par la théorie. Ces bosses sont placées symétriquement de part et d'autre de l'angle d'incidence normale (figures 3.10, 3.18 et 3.25). En observant ces mêmes données en représentation Fourier-Maker, (figures 3.11, 3.19 et 3.26), on constate mieux la symétrie de ces accidents : ces mesures ayant été répétées avec le même résultat, on peut donc écarter le montage expérimental comme source du problème. En effet, si il y avait eu présence d'une bulle d'air au lieu du liquide d'indice entre les lentilles hémicylindriques et l'échantillon, les bosses ne se seraient pas retrouvées au même endroit pour chaque mesure et ce symétriquement.

TAB. 3.3 – *Condition de poling des lames I4, I7 et I9 d'épaisseur 1 mm et position des irrégularités observées dans les signaux expérimentaux.*

Échantillon	Tension (kV)	Température (°C)	Durée (min.)	Angle (degrés)
I4	3,4	300	100	± 70
I7	8	300	15	± 45
I9	8	300	15	± 50

De plus, tous les échantillons présentant cette irrégularité sont des lames d'Infrasil : les lames de Suprasil étudiées en sont en effet exemptes. Ceci pourrait impliquer que la composition de la lame est liée à cet effet puisque les lames d'Infrasil présentent plus d'impuretés que les lames de Suprasil. Un porteur pourrait être lié à l'apparition de ces bosses: cette explication est en accord avec l'observation d'un signal symétrique et le fait que ces bosses soient observées à des positions angulaires différentes. Le tableau 3.3 résume les conditions de poling de ces lames ainsi que la position angulaire des bosses observées.

Nous constatons que les lames I7 et I9 ont été polées dans des condition similaires et présentent des bosses à des angles similaires. Par contre, la lame I4 polée sous une plus faible tension mais beaucoup plus longtemps présente une bosse située à 70° . La présence d'un pic sur la courbe en représentation Fourier-Maker (figures 3.11, 3.19 et 3.26) pour une gamme de fréquences spatiales limitée implique la présence d'une structure périodique dans la distribution de la nonlinéarité transversalement ou longitudinalement dans la profondeur de la lame. Par conséquent, la position angulaire des pics est reliée à la période de la structure périodique. Nous ne pouvons pas expliquer l'effet de la durée du poling sur cette période pas plus que nous pouvons déterminer si la structure périodique est longitudinale ou transverse. Notons enfin que la lame I9 a été mesurée pour les deux polarisations (figure 3.24 et que les bosses sont visibles pour ces deux cas. Par contre, nous ne pouvons pas expliquer pourquoi les

irrégularités ne sont pas visibles pour toutes les lames d'infrasil polées et en particulier pour les lames polées dans les mêmes conditions que I4, I7 et I9. Qui plus est, ces lames provenant toutes du même lot, la composition des lames ne peut expliquer ces différences.

Nous avons également rencontré des lames d'infrasil polées par un étudiant du laboratoire [39] présentant des bosses bien plus importantes que celles observées ici. Ces lames ont été polées à haute température (750°C) et pour des durées de poling très grandes (3 heures). Il est à noter que les conditions de poling de ces lames n'ont pas été contrôlées convenablement puisqu'il a été observé que les lames et l'ensemble de la cloche de poling présentaient un dépôt noirâtre. Dans le cas des lames, il n'a pas été possible d'enlever ce dépôt : nous voyons à la figure 3.62 pour une de ces lames que nous avons baptisé "batman", que la zone polée est plus pâle que la zone non-polée ce qui indique que dans cette zone l'absorption est plus faible puisqu'il y a ce dépôt.

Le spectre optique mesuré pour ces deux zones est présenté à la figure 3.63 ainsi que celui d'une lame vierge d'Infrasil. Ces mesures ont été effectuées à incidence normale : par conséquent, les transmissions pour les polarisations P et S sont les mêmes. Nous constatons que le coefficient de transmission pour la zone polée et pour la zone non-polée est proche pour des longueurs d'onde de supérieures à $1,1\ \mu\text{m}$ alors que pour les longueurs d'onde inférieures à $1,1\ \mu\text{m}$, la transmission est beaucoup plus faible ce qui est cohérent avec notre observation d'une zone plus foncée à la surface de la lame. Les oscillations situées autour de $1,4\ \mu\text{m}$ sont un effet de l'appareil et ne représentent pas un signal réel.

Les lames I4, I7 et I9 ont également été mesurées et le spectre obtenu pour les zones polées et non-polées sont très proches. La lame "batman" a donc subi un changement et ce sur toute sa surface. Il peut s'agir soit d'une augmentation de l'absorption ou encore d'un changement d'indice de réfraction ou encore les deux. Pour la zone non-

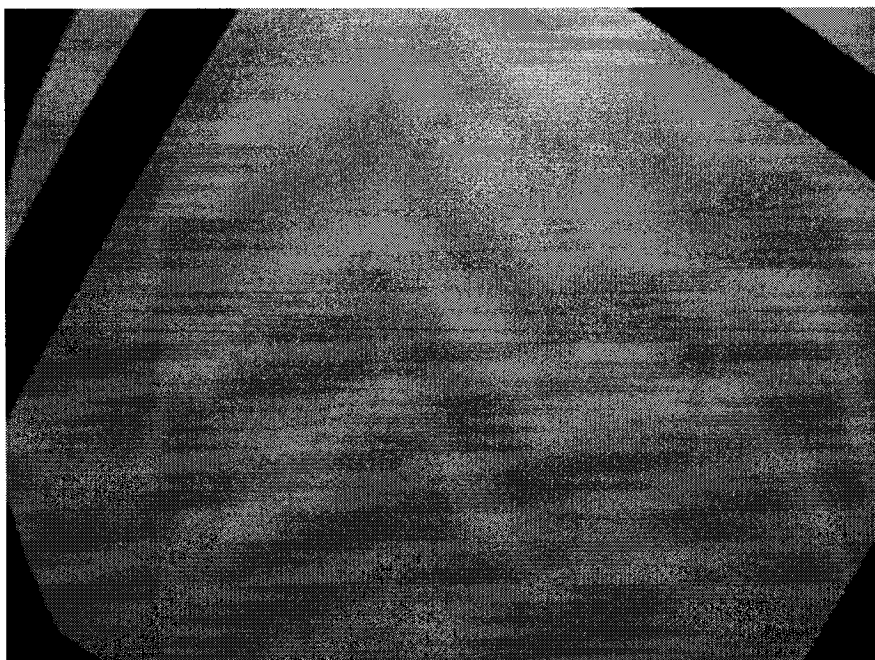


FIG. 3.62 – Photographie de la zone polée de la lame “batman” : la zone polée, située au centre, présente une coloration plus pâle que la zone non-polée située en périphérie.

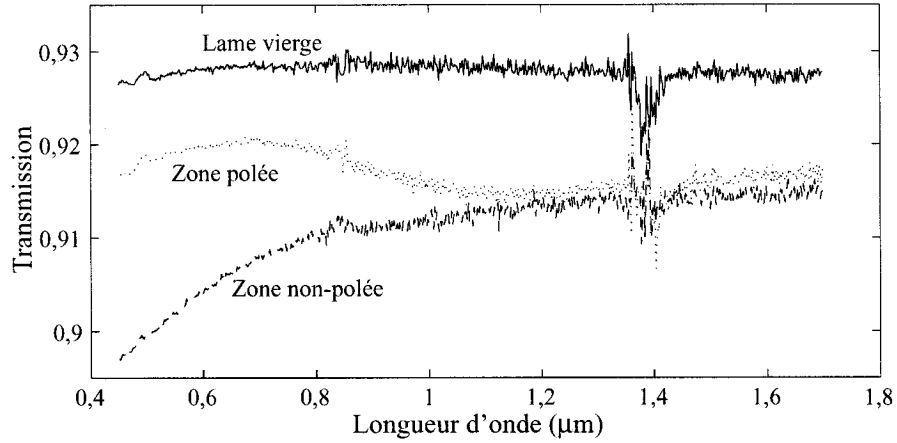


FIG. 3.63 – Spectre de transmission pour la lame “batman” dans la zone non-polée (trait tireté) et zone polée (trait pointillé) ainsi que pour une lame vierge d’infrasil (trait continu).

polée, l’absorption est augmentée surtout aux basses longueurs d’onde à cause du dépôt noirâtre. Pour la zone polée, on remarque que la transmission a beaucoup plus baissé pour les longueurs d’ondes supérieures à $1,1 \mu\text{m}$ que pour les basses longueur d’onde. Les différences de transmission entre la zone polée et la lame vierge sont suffisamment faibles (0,1) pour être dues à une augmentation de l’indice de réfraction de 0,02. Le calcul effectué pour obtenir cette valeur est présenté à la figure A.4 de l’annexe A. Le fait que la transmission soit plus faible à haute longueur d’onde semble indiquer qu’un changement d’absorption s’est également produit. Ici, la contribution imaginaire de l’indice de réfraction est donc aussi modifiée.

Les franges de Maker obtenues pour les deux polarisations orthogonales sont présentées à la figure 3.64. Pour des raisons expérimentales, il n’a pas été possible de mesurer cet échantillon entre lentilles hémicylindriques.

Nous constatons tout d’abord que les franges de Maker sont très asymétriques : ceci indique que la couche non-linéaire induite est peu homogène. Le signal pour la

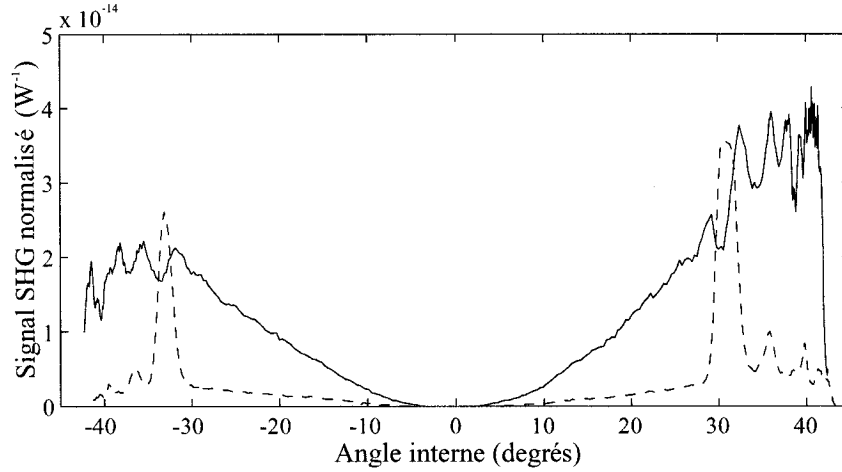


FIG. 3.64 – *Franges de Maker pour la lame “batman” avec un faisceau incident d’état de polarisation P (trait continu) et de polarisation S (traits tiretés). Les mesures ont été effectuées sans lentilles hémicylindriques.*

polarisation P est bien neuf fois plus élevé que celui de la polarisation S sauf autour de ± 30 degrés où la polarisation S est bien plus élevée que celle de la polarisation P entrant en contradiction avec le modèle de migration ionique présenté au chapitre 1 qui suppose que la symétrie de $\chi^{(2)}$ est la même que celle de $\chi^{(3)}$. Il est donc possible que cet effet soit dû à l’orientation dipolaire : ceci ne se produit que pour une zone de la lame alors que le reste de la couche non-linéaire est dû à la migration ionique. Nous pouvons rapprocher ce résultat de ceux obtenus pour les lames I4, I7 et I9. Par contre, dans le cas de l’échantillon “batman”, la grande asymétrie des courbes de Maker semble indiquer que la structure périodique est distribuée transversalement et pourrait provenir d’un poling asymétrique.

3.2.8 Validité du modèle de Von Hippel

Nous venons de présenter les distributions de la non-linéarité de second ordre pour des lames de Suprasil et d’Infrasil polées dans des conditions expérimentales

diverses. Nous allons maintenant vérifier si le modèle simple de Von Hippel présenté au chapitre 1 est valide ou non.

Le modèle de migration ionique implique que

$$\chi^{(2)}(z) = 3\chi^{(3)}E_{DC}(z). \quad (3.3)$$

Si maintenant on intègre cette équation par rapport à la variable d'espace z , nous obtenons le résultat suivant

$$V_{DC} = \frac{\int_0^{d_a} \chi^{(2)}(z) \cdot dz}{3\chi^{(3)}}. \quad (3.4)$$

où d_a est l'épaisseur de la couche anodique et V_{DC} est la chute de tension sous la surface anodique.

Nous avons tracé aux figures 3.65 et 3.66 ces tensions calculées en fonction de la tension de poling pour des lames d'Infrasil et de Suprasil respectivement. Ces tensions ont été calculées à partir des distributions de $\chi^{(2)}(z)$ obtenues lors des mesures entre lentilles hémicylindriques. Nous avons choisi ces résultats car l'incertitude sur l'épaisseur et l'amplitude est plus faible que pour des mesures effectuées dans l'air (section 2.1.4). Pour les lames d'Infrasil, rappelons que les lames I4 à I6 ont été polées durant 100 minutes alors que les lames I7 à I9 ont été polées 15 minutes. Pour le Suprasil, les lames S1, S2, S4 et S8 ont été polées 90 minutes alors que S5 a été polée 15 minutes et S9 a été polée 30 minutes. Nous avons ajusté pour ces deux types de lames une droite pour les lames polées 100 et 90 minutes qui ont donc des conditions de poling similaires en dehors de la tension appliquée.

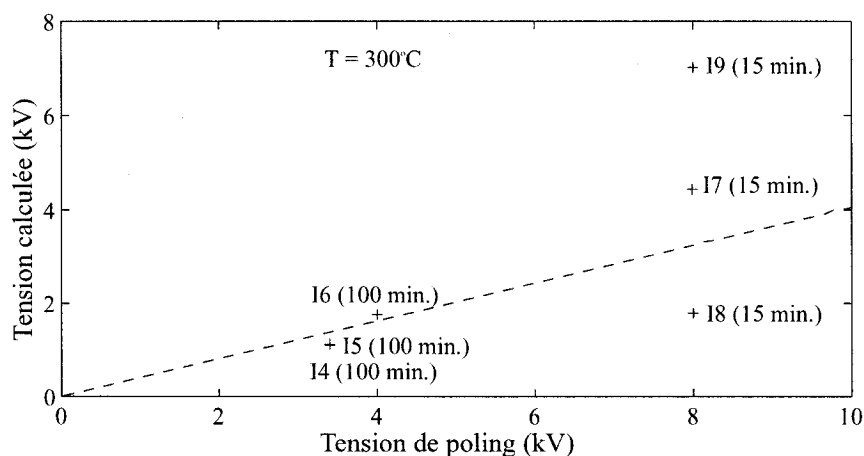


FIG. 3.65 – *Tension calculée pour les lames d’Infrasil (croix). Ces tensions ont été calculées à partir des distributions de la susceptibilité déterminées lors des mesures entre lentilles hémicylindriques. La courbe tiretée a été ajustée aux données des lames I4 à I6 qui ont été polées dans des conditions similaires avec une pente de 0,4. Il est à noter que les données pour les lames I4 et I5 sont superposées alors que la lame I5 a été polée dans l’air.*

Nous constatons pour ces deux lames que la chute de tension est inférieure à la tension de poling de l’échantillon sauf pour la lame I9. Egalement, nous voyons que pour des lames polées pendant le même temps, la chute de tension dépend linéairement de la tension de poling avec une pente de 0,4 pour l’Infrasil et de 0,3 pour le Suprasil alors que selon le modèle nous aurions dû obtenir une pente de 1 pour les deux types de lames. Ces résultats illustrent bien les différences de composition des deux types de lames : l’Infrasil qui contient un plus grand nombre d’impuretés que le Suprasil présente une chute de tension sous la surface anodique deux fois plus importante. L’effet de la durée du poling est également mis en évidence pour les deux types de lames : on obtient un résultat très différent pour des durées de poling différentes ce qui n’est pas prévu par le modèle de Von Hippel puisqu’il ne tient pas compte du

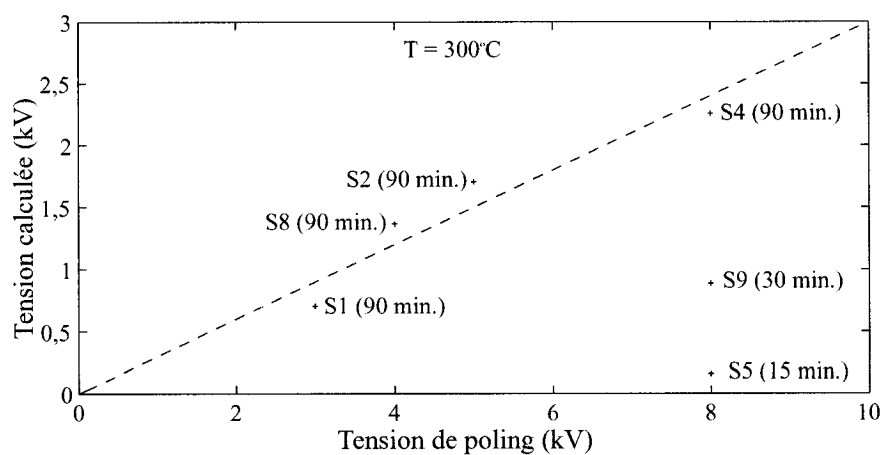


FIG. 3.66 – Tension calculée pour les lames de Suprasil (croix). Ces tensions ont été calculées à partir des distributions de la susceptibilité déterminées lors des mesures entre lentilles hémicylindriques. La courbe tiretée a été ajustée aux données des lames S1, S2, S4 et S8 qui ont été polées dans des conditions similaires avec une pente de 0,3.

temps de poling. Ce modèle n'est donc pas utilisable afin de prédire l'effet de la durée du poling.

3.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons appliqué la technique expérimentale présentée au chapitre 2 qui consiste à placer la lame à caractériser entre lentilles hémicylindriques. Cette approche permet d'augmenter significativement la plage angulaire mesurée : nous pouvons ainsi déterminer avec plus de précision les distributions $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames polées.

Ceci nous a en particulier permis de réaliser que les temps de poling indiqués dans la littérature ne sont pas optimaux : les lames d'Infrasil et de Suprasil présentent une dynamique de migration très différente puisque ces dernières nécessitent de longs poling alors que les premières bénéficient de poling très courts. Néanmoins, à cause de la résolution de la méthode, il n'est pas possible d'analyser des lames présentant des épaisseurs de couche non-linéaire inférieure à $5\text{ }\mu\text{m}$.

Le modèle simple de migration ionique présenté au Chapitre 1 ne permet pas d'expliquer les distributions de $\chi^{(2)}$ que nous avons obtenues car elles sont beaucoup plus complexes et semblent indiquer que plusieurs porteurs sont impliqués dans ce processus. En particulier, nous avons vu l'importance de la durée du poling sur cette distribution alors que le modèle suppose que l'épaisseur totale de la couche non-linéaire induite est la même quel que soit le temps de poling.

Nous présentons au chapitre suivant une méthode permettant de retrouver la phase du signal de second harmonique généré par la lame de silice polée. Ceci mène donc à la détermination complète de la distribution de $\chi^{(2)}(z)$ induite.

Chapitre 4

Localisation non-destructive de la couche non-linéaire

4.1 Méthode interférométrique

Nous venons de présenter au chapitre précédent une méthode d'analyse qui nous a permis de déterminer avec précision la distribution spatiale de la nonlinéarité de second ordre. Comme nous l'avons déjà observé, les mesures effectuées ne nous permettent que d'obtenir le carré de l'amplitude de la transformée de Fourier. Par conséquent, la phase du signal est perdue empêchant de déterminer la localisation de la couche non-linéaire dans l'échantillon. Ce paramètre est particulièrement crucial lors de la caractérisation de guides d'ondes puisqu'il est nécessaire de maximiser le recouvrement entre l'onde optique guidée et la distribution de la nonlinéarité $\chi^{(2)}$ de la couche guidante.

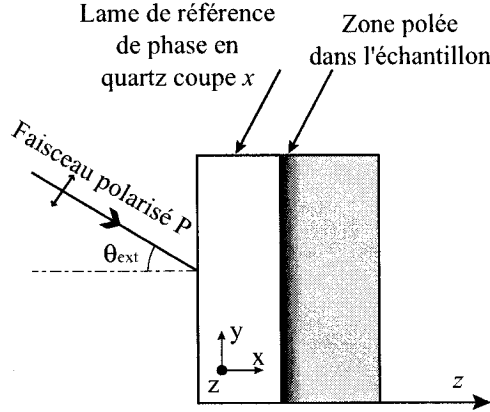


FIG. 4.1 – *Configuration expérimentale pour les mesures interférométriques. Une lame de quartz de coupe x sert de référence de phase : l'axe y est dans le plan d'incidence alors que l'axe z sort du plan. Dans le cadre de nos expériences, l'axe x de la lame est dirigé vers les z positifs ou négatifs du référentiel du montage.*

4.1.1 Principe de la méthode

La technique que nous proposons permet de retrouver la phase du signal de second harmonique en créant une interférence entre le signal émis par une lame de référence dont la phase est connue et celui de l'échantillon à caractériser : les signaux provenant de chacune des lames interfèrent ce qui laisse une trace de la phase dans le signal interférométrique mesuré. La configuration expérimentale est présentée à la figure 4.1. L'assemblage des deux lames est placé entre lentilles hémicylindriques de la même façon qu'au chapitre 2 afin d'augmenter la plage des mesures et d'ainsi améliorer la précision de la détermination de la profondeur de la couche non-linéaire. Notons la transformée de Fourier de la lame de référence de phase B et la transformée de Fourier de l'échantillon A . Le signal mesuré est le carré de la somme de ces signaux

qui s'exprime comme

$$|A + B|^2 = |A|^2 + |B|^2 + 2|A||B|\cos(\varphi_A - \varphi_B) \quad (4.1)$$

où φ_A et φ_B sont les phases des transformées de Fourier de chacune des lames. Puisque la distribution spatiale de la lame de référence de phase est complètement déterminée, sa phase φ_B est donc connue. Par conséquent, il suffit de mesurer séparément le signal de la lame à caractériser ainsi que celui provenant de l'empilement afin de déterminer la phase φ_A .

Afin d'obtenir un contraste satisfaisant pour l'interféromètre ainsi créé, les deux signaux (A et B) doivent avoir des amplitudes du même ordre de grandeur. Plusieurs alternatives se présentent dans le choix de la lame de référence de phase : un autre échantillon polé bien caractérisé [17, 98], le même échantillon coupé en deux [97] ou encore un cristal générant la SH [126].

Le premier choix suppose que la phase de la lame de référence est parfaitement connue ce qui n'est pas le cas dans les lames polées. La seconde option est quant à elle destructive ce qui pose problème lorsque l'échantillon doit servir à nouveau. Qui plus est, ces deux approches reposent sur l'hypothèse que le poling des lames est uniforme sur la surface ce qui dans la plupart des cas n'est pas vérifié augmentant ainsi l'incertitude dans les mesures. Corbari [17] a d'ailleurs obtenu des variations d'amplitude des franges de Maker de 15 pourcent pour des mesures effectuées en différents points de la surface de l'échantillon. De plus la logique employée dans ces deux approches est circulaire : la lame de référence de phase qui est une lame polée thermiquement est caractérisée par la technique des franges et ces données servent de base à la détermination de la distribution de la susceptibilité de second ordre de la deuxième lame. Or, les mesures effectuées sur la lame de référence et la lame à caractériser sont effectuées sans lentilles (hémicylindriques ou hémisphériques) ce qui, comme nous l'avons vu au chapitre 2, ne permet pas de caractériser adéquatement les

lames polées thermiquement.

A. Ozcan et al. [97] ont par la suite repris leur technique mais en plaçant l'assemblage des deux moitiés de l'échantillon entre lentilles hémicylindriques augmentant ainsi la plage de données disponibles. Ils effectuent ensuite la transformée de Fourier inverse du signal mesuré : pour ce faire ils ont extrapolé les données pour les $k < \Delta k$ puisque comme nous l'avons vu à la section 2.1.5 ces données ne sont pas disponibles. Ceci revient à supposer une distribution de la non-linéarité et implique que les deux moitiés de l'échantillon sont identiques. Cette approche présente les désavantages des techniques précédentes en plus de supposer une distribution : l'incertitude sur la détermination de la susceptibilité est donc encore plus grande.

Nous avons donc proposé la troisième approche car c'est la seule façon d'avoir une lame de référence de phase dont la distribution de la susceptibilité de second ordre est totalement déterminée. Elle présente toutefois un désavantage : les lames de silice polée génèrent des signaux faibles comparativement aux cristaux générant la SH. Cette contrainte empêcherait de déterminer la phase de lames polées dont la susceptibilité induite est faible : ceci n'a pas été le cas dans les études présentées dans la suite de ce chapitre.

Nous avons employé comme lame de référence de phase une mince lame de quartz de coupe x de $450 \mu\text{m}$: cet axe est perpendiculaire aux faces de la lame. Cette lame présente une symétrie similaire à celle des lames polées de silice mais a comme avantages contrairement aux lames de silice polée thermiquement de présenter une non-linéarité uniforme en différents points de la surface et l'épaisseur de cette couche non-linéaire est bien connue puisqu'elle correspond à l'épaisseur de la lame. En particulier, ces deux lames génèrent un signal de SH nul à incidence normale. L'orientation de la lame de quartz telle qu'illustrée à la figure 4.1 a été choisie afin de simplifier l'analyse des données. En effet, le quartz de coupe x présente de l'activité optique

lorsque la polarisation du faisceau optique incident est orientée selon l'axe z du quartz (c'est-à-dire S sur la figure 4.1) : l'importance de cet effet dépend de l'épaisseur de la lame ce qui complique les calculs. Nous avons déjà déterminé au chapitre 2 la susceptibilité effective d'une telle lame de quartz (Eq. 2.38) : nous constatons qu'il est possible de changer le signe de $\chi^{(2)}$ de la lame de quartz par rapport à celui de la lame à caractériser, modifiant ainsi le signe de B par rapport A .

En appliquant cette observation à l'équation 4.1, nous obtenons deux équations selon que le signe de B est positif ou négatif :

$$|A + B|^2 = |A|^2 + |B|^2 + 2|A||B| \cos(\varphi_A - \varphi_B) \quad (4.2)$$

$$|A - B|^2 = |A|^2 + |B|^2 - 2|A||B| \cos(\varphi_A - \varphi_B) \quad (4.3)$$

Soustrayons maintenant la seconde équation de la première, ce qui mène à

$$|A + B|^2 - |A - B|^2 = 4|A||B| \cos(\varphi_A - \varphi_B). \quad (4.4)$$

Le terme de gauche est ce que nous appelons le signal interférométrique. B étant complètement connu, il reste deux paramètres à déterminer : $|A|$ et φ_A . La norme au carré de $|A|$ peut être mesurée en employant la technique présentée au chapitre précédent ; seul φ_A demeure inconnu. En inspectant la relation précédente, on peut être amené à penser qu'il est possible avec ces informations d'effectuer la transformée de Fourier inverse et donc de déterminer directement la distribution spatiale de A . En prenant le \cos^{-1} de l'équation précédente, il n'est pas possible d'extraire la phase $\varphi_A - \varphi_B$ lorsque $|A|$ ou $|B|$ est nul : la détermination de la phase φ_A serait entachée d'une grande incertitude. La représentation Maker-Fourier que nous avons introduite au chapitre 2 et qui permet de visualiser les franges de Maker dans l'espace de Fourier a mis en évidence le fait que le signal n'est pas disponible pour tout k entre $-\infty$ et $+\infty$ puisque seul le signal compris entre Δk et k_{max} est présent. Rappelons que $k = \frac{\Delta k}{\cos \theta}$ ce qui pour des θ compris entre 0 et 80° implique que k est compris entre

Δk et $5,759 \cdot \Delta k$.

Malgré les observations précédentes, il est quand même possible de tirer de l'information des mesures sur les deux empilements réalisés en modifiant l'orientation de la lame de référence. La mesure du signal de Maker normalisé provenant de l'échantillon seul sert à déterminer le profil de $\chi^{(2)}$ dans la lame comme nous l'avons fait au chapitre 3. En utilisant ce profil afin de lisser le signal interférométrique mesuré (Eq. 4.4), il ne reste plus qu'à déterminer la position de la couche non-linéaire dans l'échantillon. Ceci permet donc malgré tout une meilleure détermination de la distribution de $\chi^{(2)}$ dans l'échantillon.

4.1.2 Exemples numériques

Nous venons de proposer une technique non-destructive basée sur les franges de Maker qui permet de mesurer l'influence de la phase du signal de GSH et d'en déduire la localisation de la couche non-linéaire. Afin d'illustrer ceci, nous allons présenter des résultats de simulation pour des empilements de quartz-quartz et de quartz-silice.

Les franges de Maker théoriques pour un assemblage de deux lames de quartz de coupe x de $500 \mu\text{m}$ d'épaisseur placé entre lentilles hémicylindriques sont présentées à la figure 4.2. Nous constatons l'effet important de l'orientation des lames sur le signal: nous voyons donc l'effet de la phase dans le cas où les lames génèrent des signaux de même grandeur. Lorsque l'axe x des lames est orienté de la même façon (ligne continue), le signal de l'empilement est identique à celui d'une seule lame de quartz d'épaisseur double. L'autre signal est quand à lui très différent.

Dans le cas qui nous intéresse, la lame à caractériser génère un signal de SH d'un ordre de grandeur inférieur à celui de la lame de référence de phase. Afin de nous assurer que la technique proposée puisse s'appliquer aux lames que nous avons étudiées au chapitre 2, nous avons simulé le cas d'empilements de quartz avec des lames de

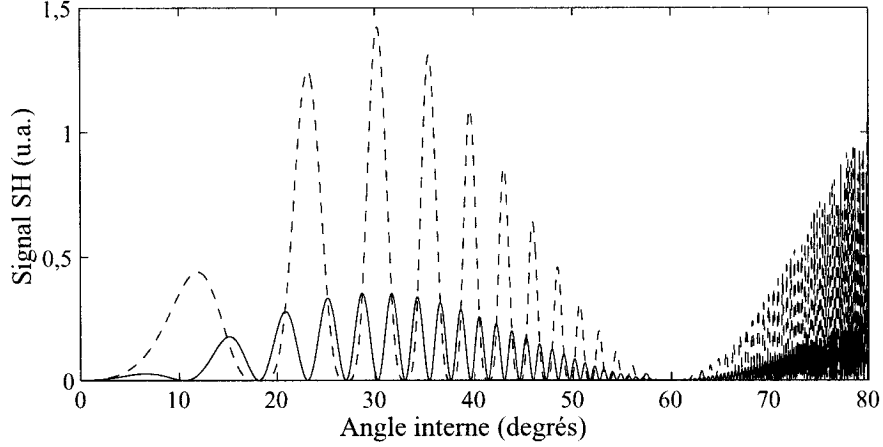


FIG. 4.2 – *Franges de Maker simulés pour un empilement de deux lames de quartz de même épaisseur : le sens de l'axe x est le même (ligne continue) ou opposé (ligne tirée).*

silice polées. Nous avons supposé que les lames de silice présentent une susceptibilité $\chi^{(2)}$ de 0,5 pm/V distribuée selon un profil carré de 20 μm d'épaisseur. Les résultats de ces simulations pour des couches enterrées de 0 à 5 μm sont présentés à la figure 4.3 : le signal interférométrique issu de l'équation 4.4 y est présenté. Les signaux interférométriques présentés sont très différents que ce soit la position des zéros ou encore leurs amplitudes. En particulier, il est possible de discriminer des profondeurs aussi faibles que 1 et 2 μm . L'intérêt des mesures entre lentilles hémicylindriques est encore évident puisqu'il permet une précision accrue sur la détermination de la profondeur de la couche enterrée en donnant accès à une plus grande plage angulaire. Ces résultats semblent indiquer que la technique que nous proposons afin de déterminer complètement la distribution de la susceptibilité de second ordre est prometteuse.

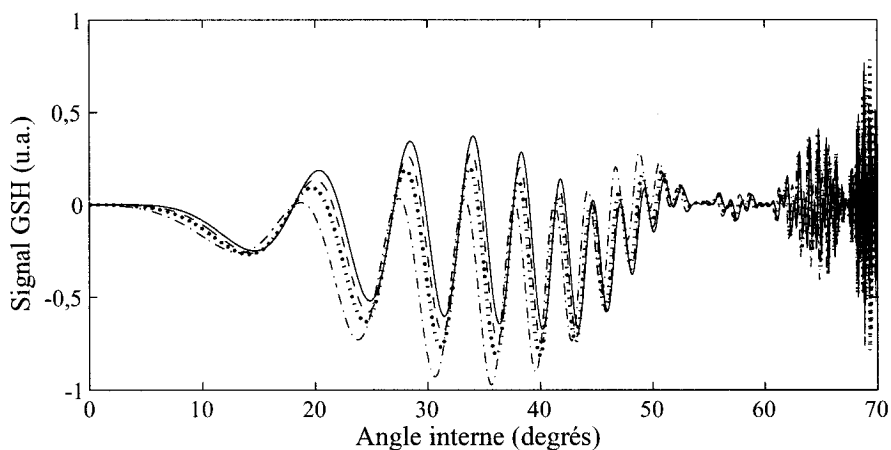


FIG. 4.3 – *Signal interférométrique simulé pour un empilement de lames de quartz et de silice. Ce signal a été calculé en utilisant l'équation 4.4. La couche non-linéaire est enterrée de $0\ \mu\text{m}$ (ligne continue), $1\ \mu\text{m}$ (ligne tiretée), $2\ \mu\text{m}$ (ligne pointillée) et $5\ \mu\text{m}$ (ligne tiretée-pointillée). La lame de quartz de $500\ \mu\text{m}$ d'épaisseur présente une susceptibilité de $0,6\ \text{pm/V}$ alors que la lame de silice présente une susceptibilité de $0,5\ \text{pm/V}$ sur une couche de $20\ \mu\text{m}$ d'épaisseur.*

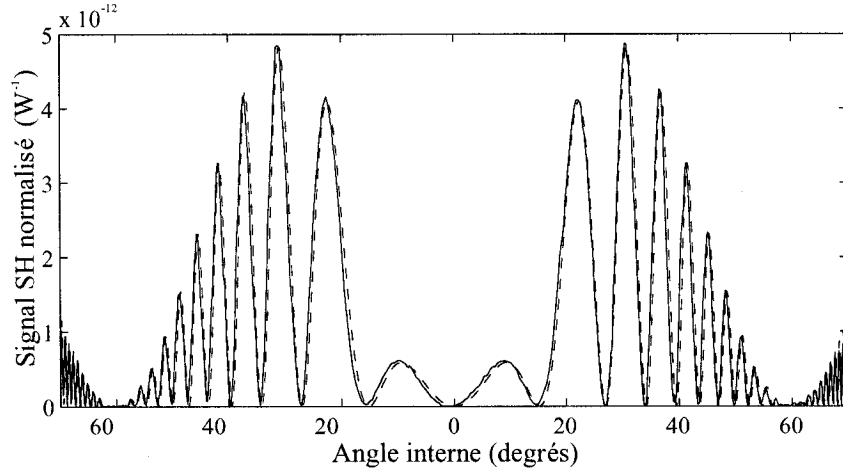


FIG. 4.4 – *Franges de Maker obtenues expérimentalement pour la lame de référence de phase en quartz coupe x (trait continu) et simulées (trait tireté).*

4.2 Résultats expérimentaux

Lors des mesures effectuées précédemment sur les échantillons, nous avons employé du liquide d'indice afin d'éliminer les espaces d'air entre les lentilles et la lame à mesurer et ainsi minimiser les réflexions. Pour le cas présent, le liquide d'indice a été utilisé aux interfaces entre les lentilles et le sandwich quartz-silice mais nous n'avons pas appliqué de liquide entre la lame de silice et la lame de référence de phase. En effet, la phase additionnelle provenant du liquide d'indice se serait ajoutée à celle de la lame échantillon empêchant ainsi la détermination de la localisation de la couche non-linéaire. Nous avons en conséquence pressé les deux lames l'une contre l'autre jusqu'à l'obtention d'un contact optique suffisant.

Comme nous l'avons expliqué précédemment, il est nécessaire de mesurer successivement l'échantillon ainsi que les deux sandwiches afin de pouvoir retrouver la phase provenant du signal de l'échantillon. Il est également nécessaire de connaître complètement l'amplitude et la phase de la lame de référence de phase. La lame que

nous avons utilisée pour l'ensemble de cette étude est une lame de quartz coupe x dont l'épaisseur est de $477\ \mu\text{m}$ et a été mesurée à l'aide d'un vernier électronique. Afin de déterminer sa susceptibilité de second ordre, cette lame a été caractérisée par franges de Maker. Le résultat est présenté à la figure 4.4 : le lissage y est également présenté et a permis de déterminer que $\chi^{(2)} = 0,56\ \text{pm/V}$ ce qui est proche des résultats trouvés dans la littérature qui sont compris entre $0,50$ et $0,70\ \text{pm/V}$. Ces écarts s'expliquent en partie par les différences dans la procédure de caractérisation qui est plus ou moins précise.

Nous avons repris les lames de silice polée déjà étudiées au chapitre 2 afin de déterminer la localisation et le signe de leur couche non-linéaire. L'étude porte en particulier l'effet de la durée du poling, l'effet de l'environnement lors du poling, l'influence de la tension appliquée ainsi que la reproductibilité du processus de poling thermique. Les résultats expérimentaux sont présentés dans la suite de cette section. Ils sont analysés à la section 4.3. Nous avons tracé le signal pour les angles positifs et négatifs de la lame I7 afin de bien montrer que le signal est symétrique et que l'on obtient le même résultat. Ceci est également valable pour les autres mesures : nous ne traçons que les angles positifs afin de mieux distinguer les signaux aux grands angles.

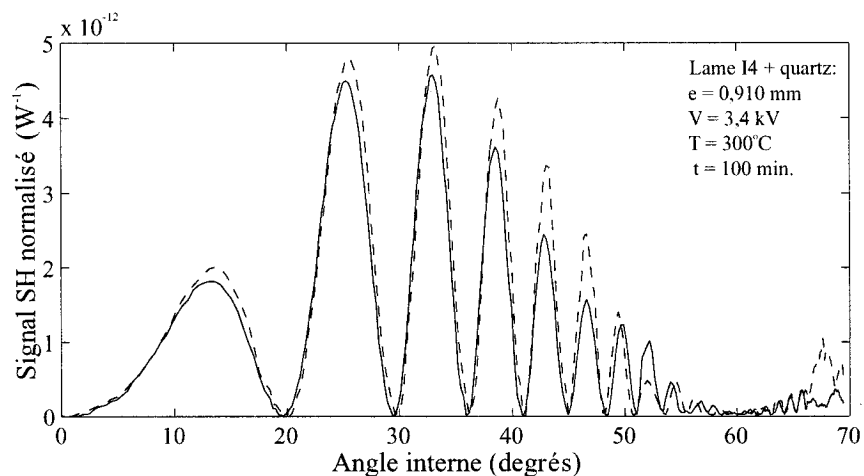


FIG. 4.5 – *Franges de Maker interférométriques pour la lame I4 : l'orientation de l'axe x du quartz est positif (ligne continue) ou négatif (ligne tiretée). La lame a été polée 100 minutes à 300°C sous une tension de 3,4 kV.*

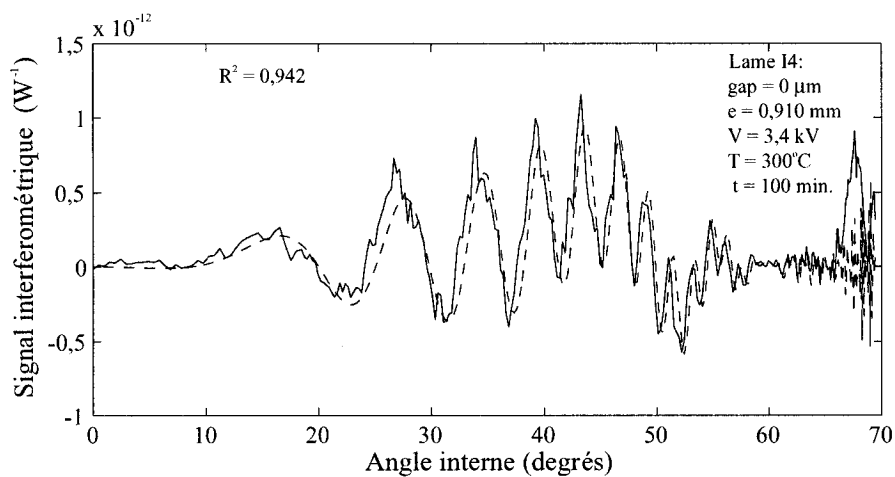


FIG. 4.6 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I4 (ligne continue) et simulé (ligne tiretée).*

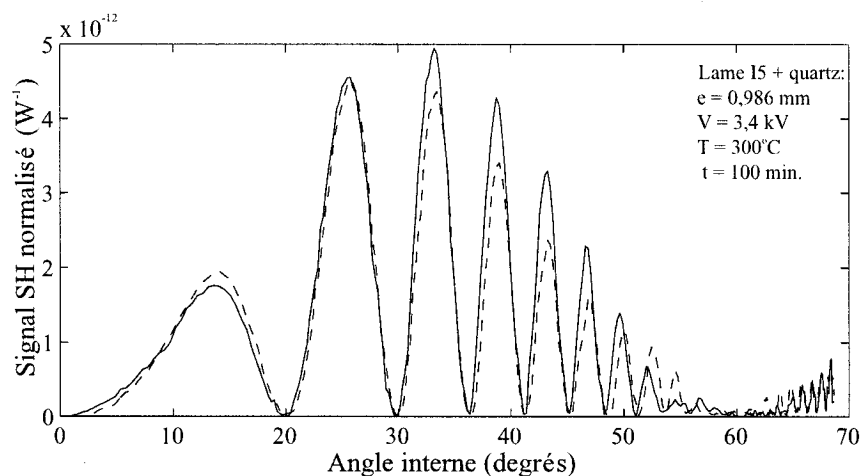


FIG. 4.7 – *Franges de Maker interférométriques pour la lame I5 : l'orientation de l'axe x du quartz est positif (ligne continue) ou négatif (ligne tiretée). La lame a été polée dans l'air pendant 100 minutes à 300 °C sous une tension de 3,4 kV.*

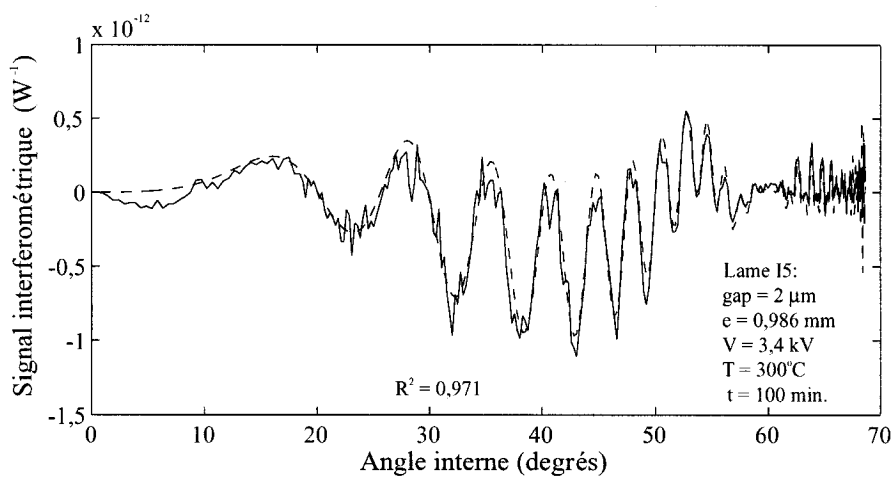


FIG. 4.8 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I5 (ligne continue) et simulé (ligne tiretée).*

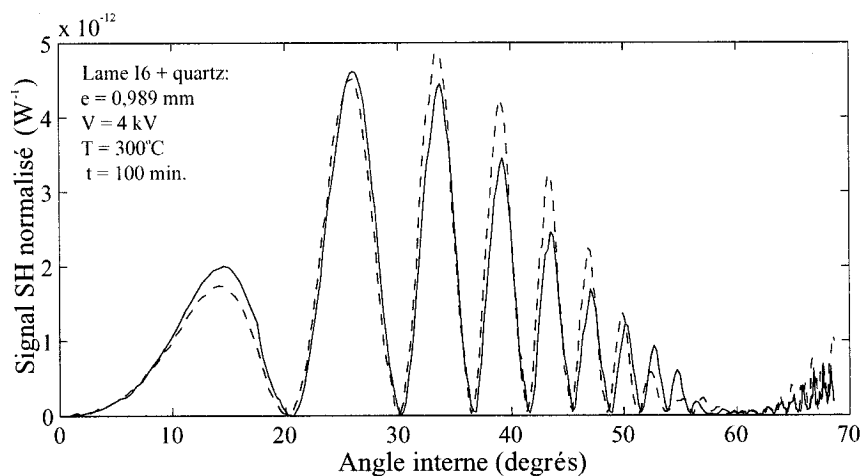


FIG. 4.9 – *Franges de Maker interférométriques pour la lame I6 : l'orientation de l'axe x du quartz est positif (ligne continue) ou négatif (ligne tiretée). La lame a été polée 100 minutes à 300°C sous une tension de 4 kV .*

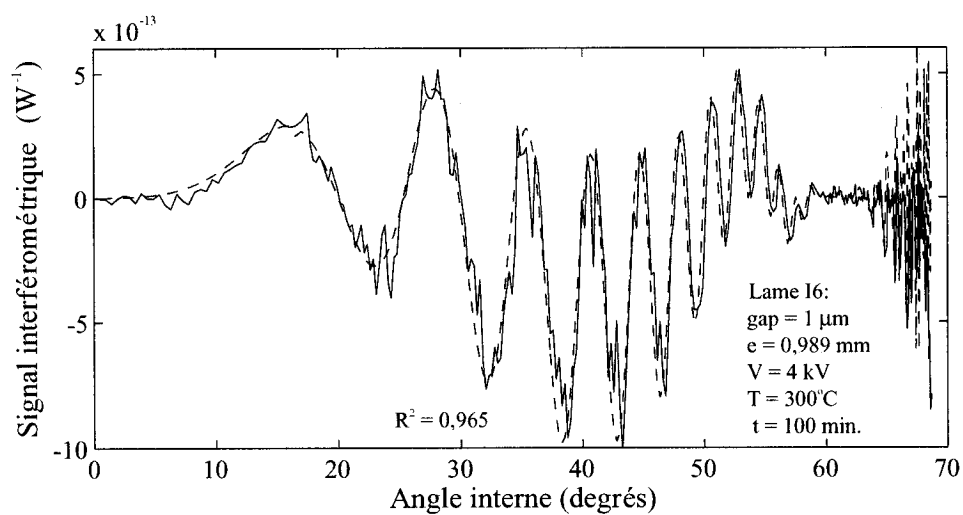


FIG. 4.10 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I6 (ligne continue) et simulé (ligne tiretée).*

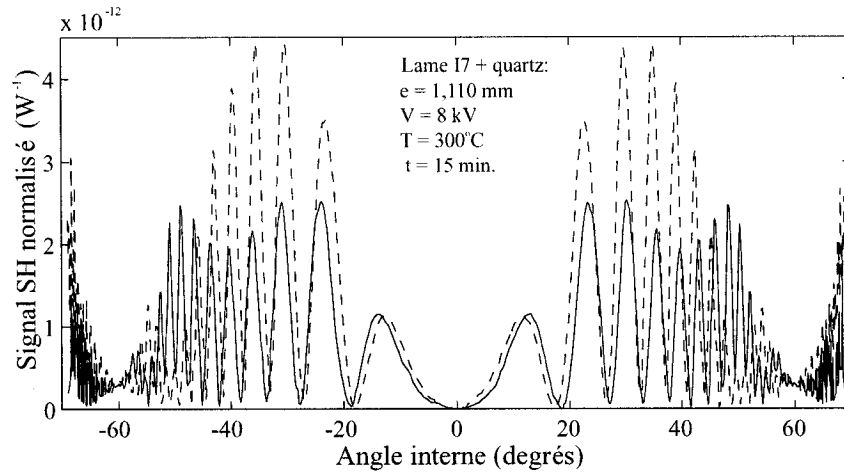


FIG. 4.11 – *Franges de Maker interférométriques pour la lame I7: l'orientation de l'axe x du quartz est positif (ligne continue) ou négatif (ligne tiretée). La lame a été polée 15 minutes à 300 °C sous une tension de 8 kV.*

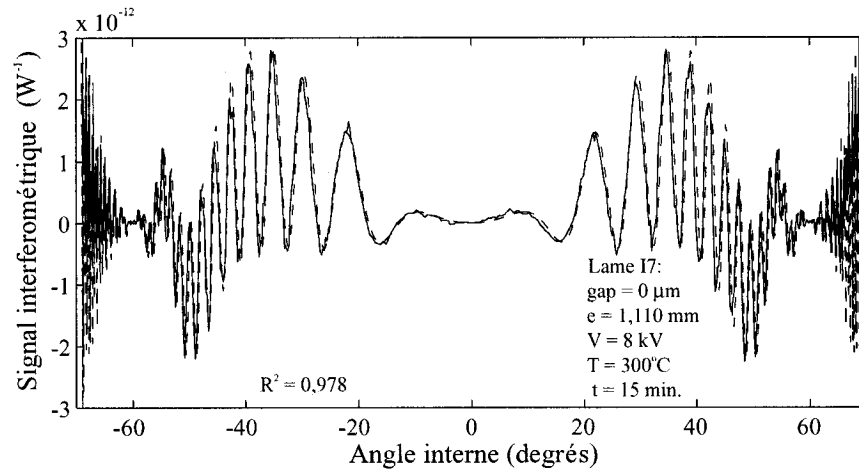


FIG. 4.12 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I7 (ligne continue) et simulé (ligne tiretée).*

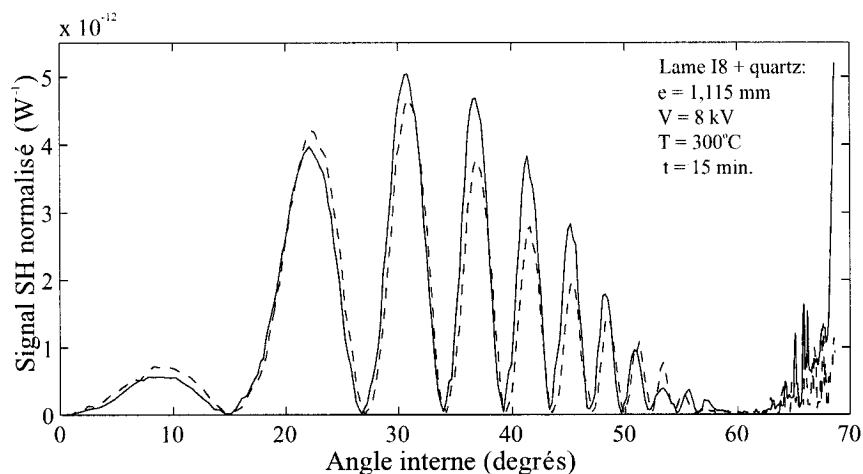


FIG. 4.13 – *Franges de Maker interférométriques pour la lame I8: l'orientation de l'axe x du quartz est positif (ligne continue) ou négatif (ligne tiretée). La lame a été polée 15 minutes à 300°C sous une tension de 8 kV .*

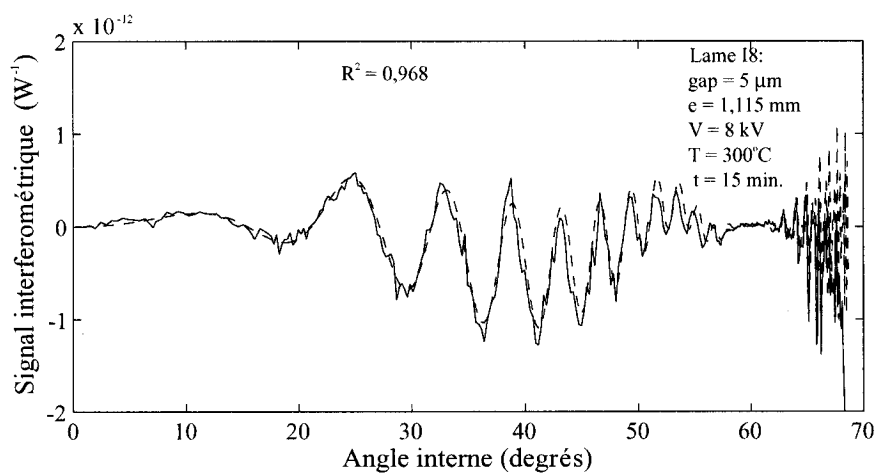


FIG. 4.14 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I8 (ligne continue) et simulé (ligne tiretée).*

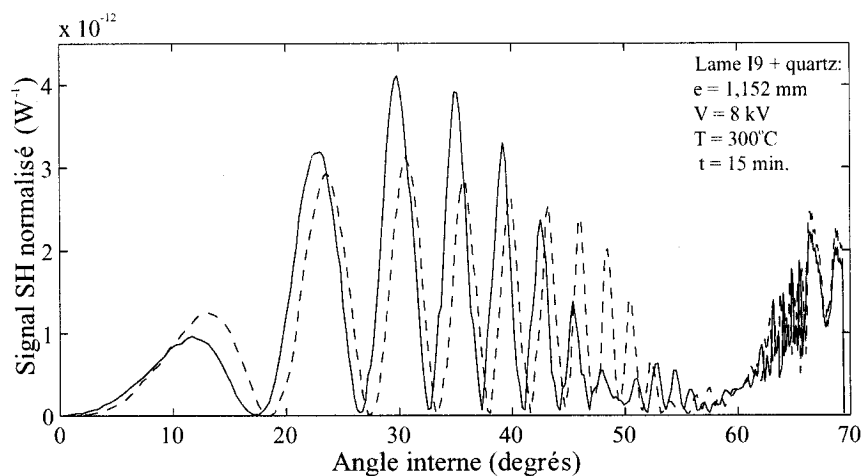


FIG. 4.15 – *Franges de Maker interférométriques pour la lame I9: l'orientation de l'axe x du quartz est positif (ligne continue) ou négatif (ligne tiretée). La lame a été polée 15 minutes à 300°C sous une tension de 8 kV.*

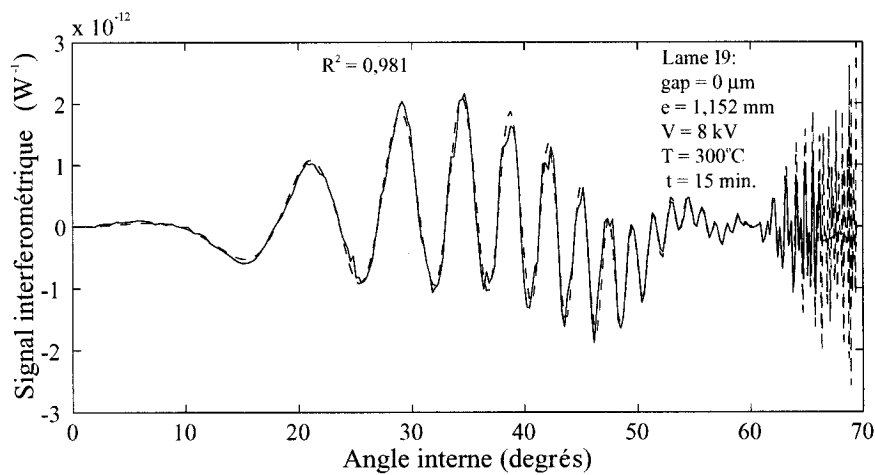


FIG. 4.16 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I9 (ligne continue) et simulé (ligne tiretée).*

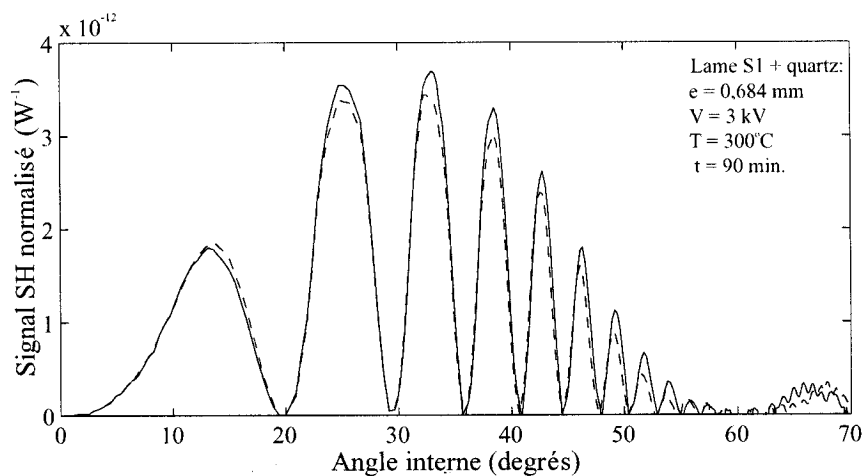


FIG. 4.17 – *Franges de Maker interférométriques pour la lame S1 : l'orientation de l'axe x du quartz est positif (ligne continue) ou négatif (ligne tiretée). La lame a été polée 90 minutes à 300°C sous une tension de 3 kV.*

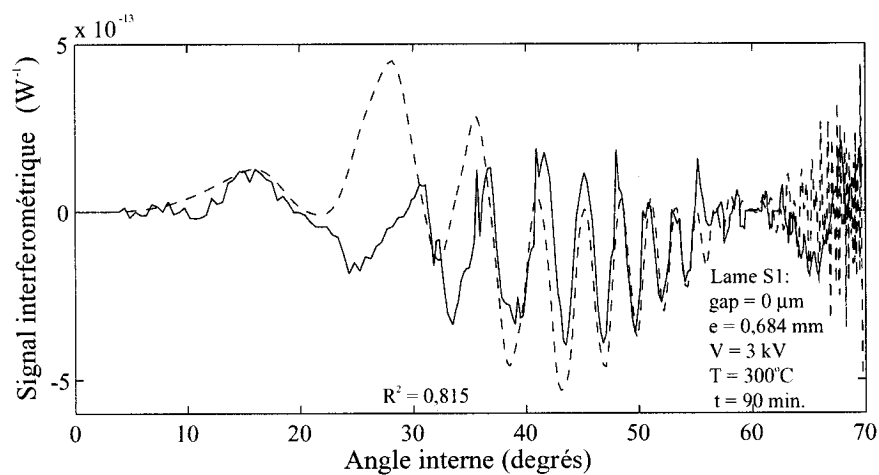


FIG. 4.18 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S1 (ligne continue) et simulé (ligne tiretée).*

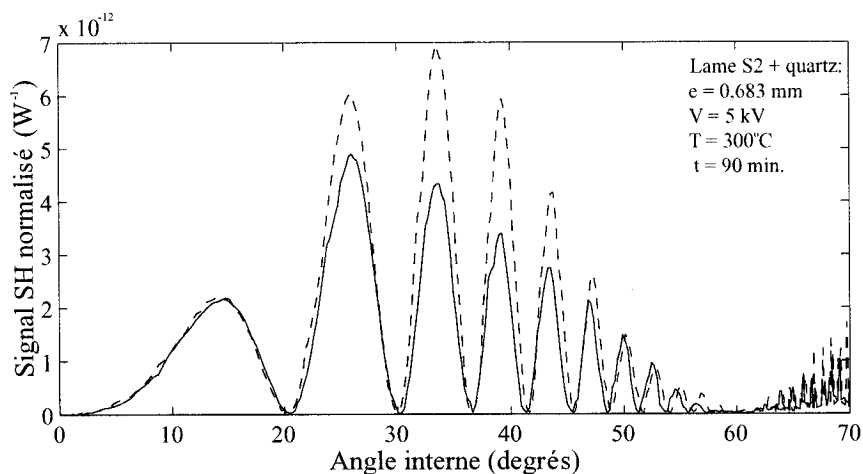


FIG. 4.19 – *Franges de Maker interférométriques pour la lame S2: l'orientation de l'axe x du quartz est positif (ligne continue) ou négatif (ligne tiretée). La lame a été polée 90 minutes à 300°C sous une tension de 5 kV .*

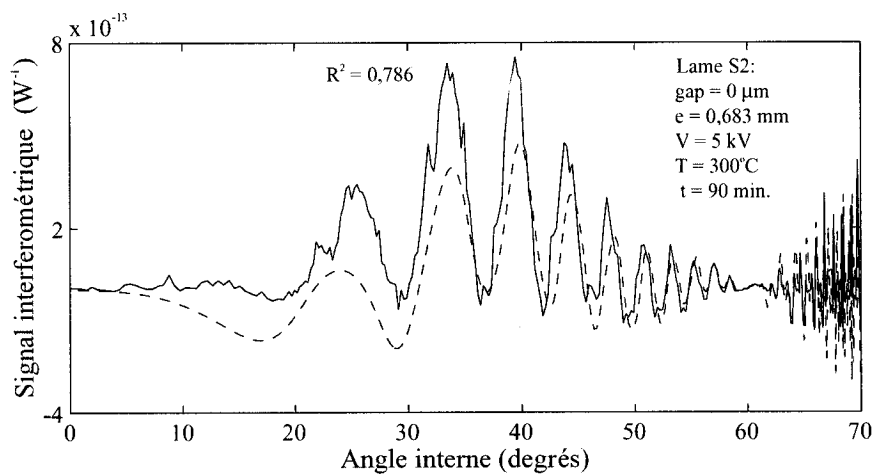


FIG. 4.20 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S2 (ligne continue) et simulé (ligne tiretée).*

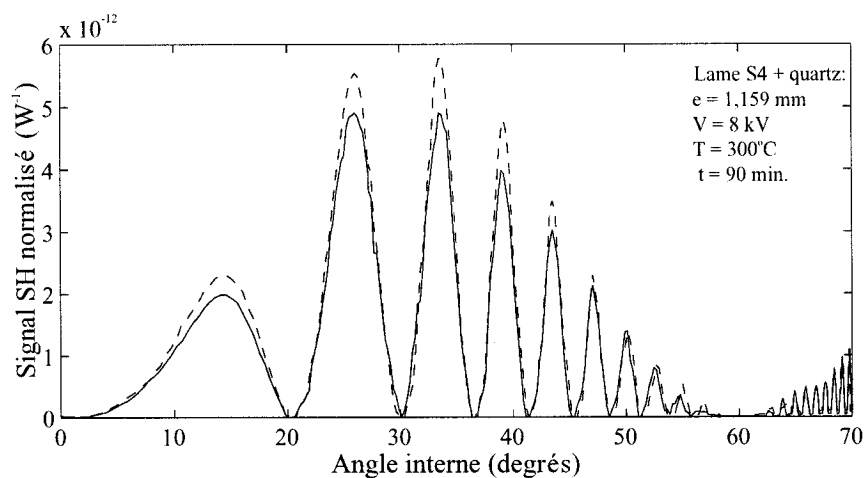


FIG. 4.21 – *Franges de Maker interférométriques pour la lame S4 : l'orientation de l'axe x du quartz est positif (ligne continue) ou négatif (ligne tiretée). La lame a été polée 90 minutes à 300°C sous une tension de 8 kV .*

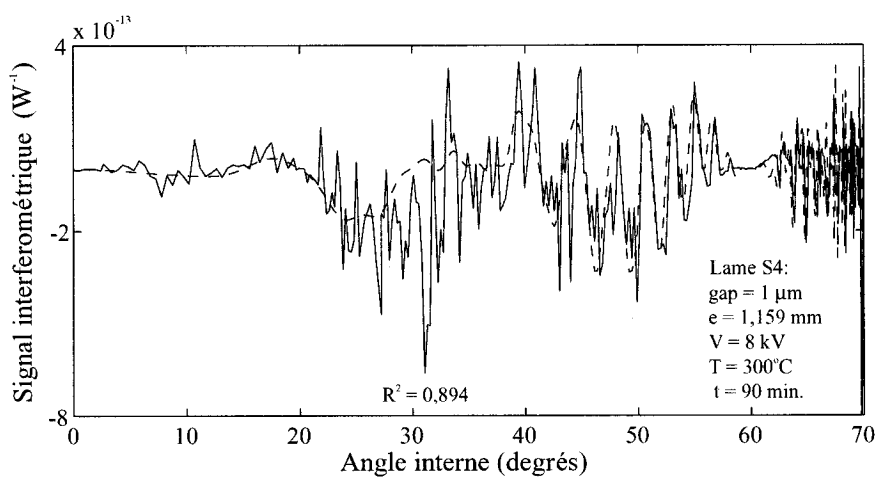


FIG. 4.22 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S4 (ligne continue) et simulé (ligne tiretée).*

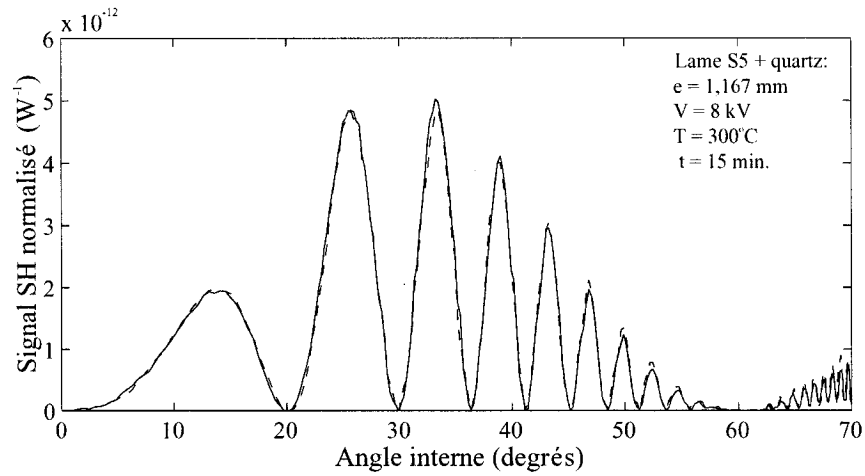


FIG. 4.23 – *Franges de Maker interférométriques pour la lame S5: l'orientation de l'axe x du quartz est positif (ligne continue) ou négatif (ligne tiretée). La lame a été polée 15 minutes à 300°C sous une tension de 8 kV .*

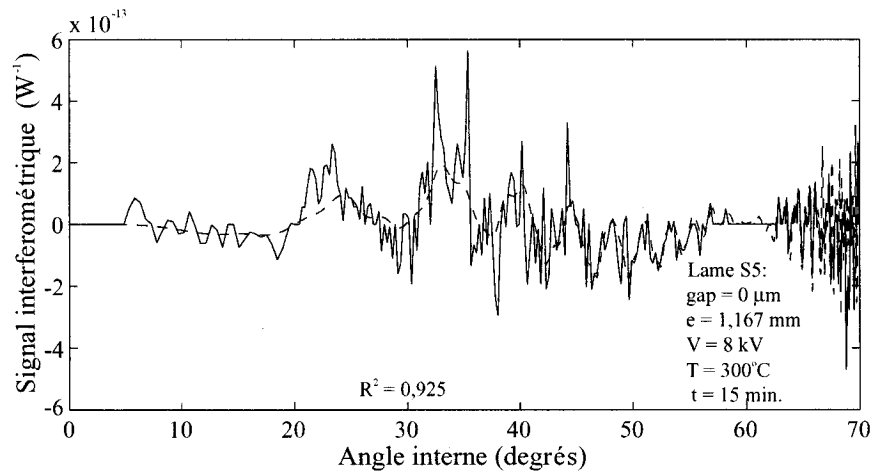


FIG. 4.24 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S5 (ligne continue) et simulé (ligne tiretée).*

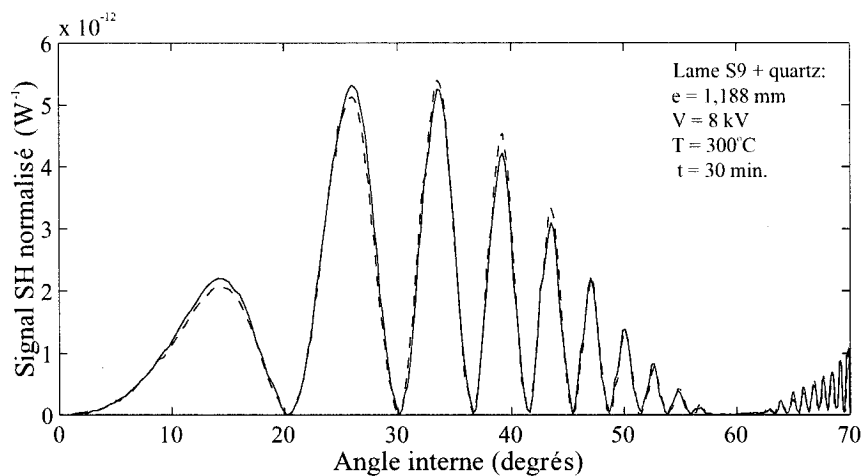


FIG. 4.25 – *Franges de Maker interférométriques pour la lame S9: l'orientation de l'axe x du quartz est positif (ligne continue) ou négatif (ligne tiretée). La lame a été polée 30 minutes à 300 °C sous une tension de 8 kV.*

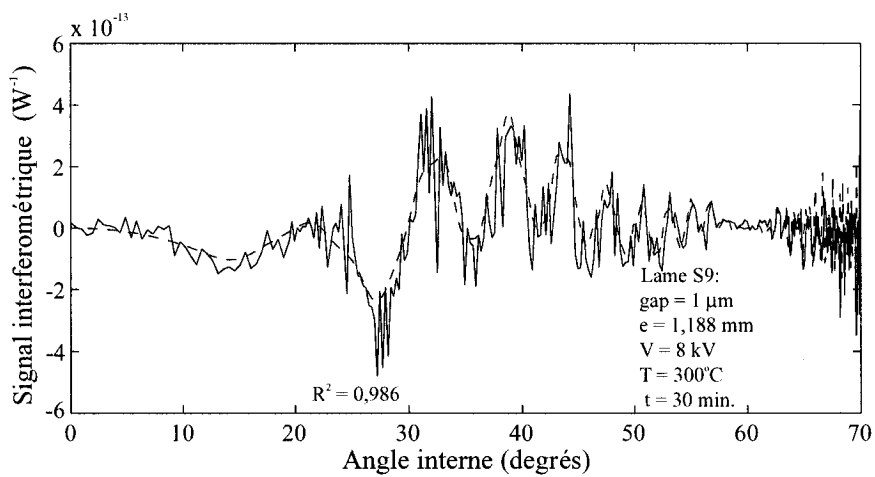


FIG. 4.26 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S9 (ligne continue) et simulé (ligne tiretée).*

4.3 Analyse des résultats

4.3.1 Etude de l'effet de la tension appliquée

Nous avons repris les lames de Suprasil S1 et S2 étudiées à la section 3.2.4 pour nos mesures interférométriques afin de déterminer si la tension appliquée avait un effet sur la localisation de la couche. Les courbes de Franges de Maker obtenues ainsi que les signaux interférométriques qui en ont été déduits sont présentés aux figures 4.17 à 4.20.

Les courbes simulées correspondent bien aux courbes mesurées sauf pour les régions où le signal est faible. Il est vrai que les échantillons mesurés sont des lames de Suprasil et génèrent un faible signal en comparaison de la lame de référence de phase en quartz, ce qui augmente l'incertitude. On voit que pour la lame S2 qui a une non-linéarité plus élevée que celle de S1, l'accord est meilleur. Malgré tout, nous disposons d'une vaste plage angulaire où l'accord est bon. Les distributions qui ont servi au lissage des signaux interférométriques sont présentées à la figure 4.27. Ici, la profondeur de la couche est le paramètre qui est lissé.

Nous constatons que la tension appliquée ne semble pas avoir d'effet sur l'entassement de la couche non-linéaire : elle demeure adjacente à la surface quelle que soit la tension appliquée. Il est néanmoins possible que pour des tensions supérieures la couche commence à se déplacer.

4.3.2 Etude de l'effet de la durée du poling

Nous avons vu à la section 3.2.5 l'effet de la durée du poling sur le profil de $\chi^{(2)}$ pour les lames de silice de type Suprasil et Infrasil. La dynamique de migration ionique dans ces matériaux aux compositions distinctes est totalement différente puisque dans le cas du Suprasil la nonlinéarité maximale est atteinte pour des polings d'une durée

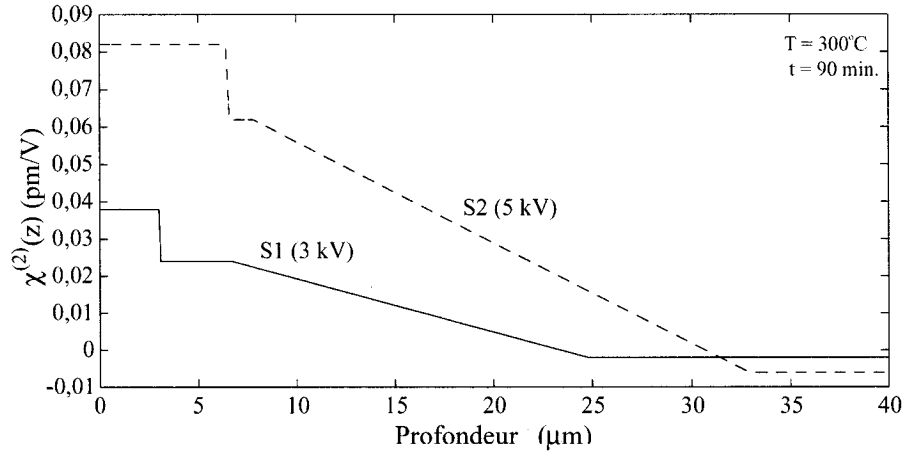


FIG. 4.27 – Etude de l'effet de la tension de poling pour les lames de Suprasil S1 polée à 3 kV et S2 polée à 5 kV. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S1 et S2 obtenue des mesures interférométriques.

de 100 minutes alors que pour l'Infrasil, elle est atteinte pour des polings d'une durée de 15 minutes. Nous avons également constaté que la migration ionique dans les verres d'Infrasil implique plusieurs porteurs de charges et ce dès le début du processus alors que pour le Suprasil un seul porteur migre pendant les premières minutes où la tension est appliquée. Nous allons donc en reprendre l'étude afin de voir l'effet de la durée du poling sur la localisation de la couche non-linéaire.

Les lames de Suprasil S4, S5 et S9 polées respectivement 90, 15 et 30 minutes ont été mesurées accolées à la lame de référence. Les franges de Maker interférométriques ainsi que les signaux interférométriques obtenus pour ces échantillons sont présentés aux figures 4.21 à 4.26.

Nous remarquons que la différence entre les empilements avec la référence de phase positive (trait continu) et négative (trait tireté) est très faible ce qui est évident lorsque l'on observe les signaux interférométriques : la contribution de la lame de référence de phase $|B|$ est plus importante que celle des lames de silice $|A|$ ce qui a pour effet de

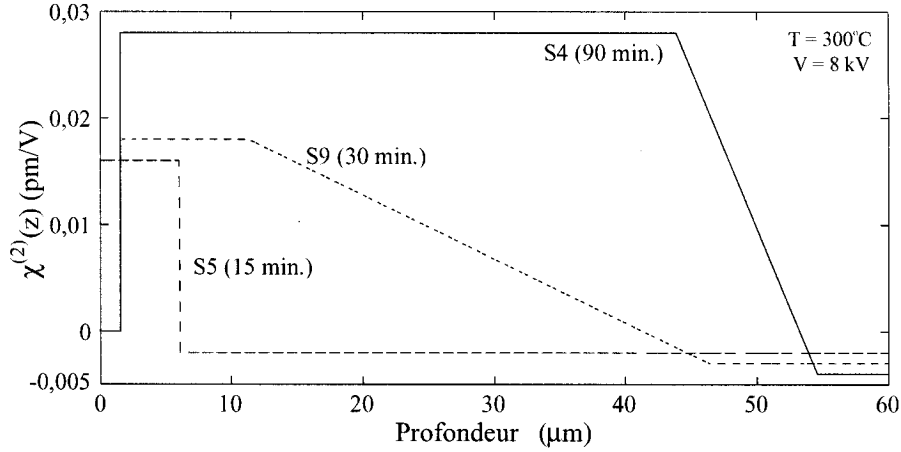


FIG. 4.28 – *Etude de l'effet de la durée du poling pour les lames de Suprasil S4 (90 minutes), S5 (15 minutes) et S9 (30 minutes). Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames S4, S5 et S9 obtenue des mesures interférométriques.*

rendre plus difficile le discernement du signal interférométrique. Néanmoins, l'utilisation de lentilles hémicylindriques lors des différentes mesures permet l'obtention d'une plus grande plage de données ce qui en retour permet l'analyse de ces signaux. Nous avons précédemment déterminé le profil de la nonlinéarité pour ces lames : les profils présentés à la figure 3.60 ont été utilisés afin de calculer les signaux interférométriques théoriques des figures 4.22, 4.24 et 4.26. Les distributions résultantes sont présentées à la figure 4.28. L'accord entre les signaux mesurés et simulés est bon même si les signaux expérimentaux sont entachés de bruit : cela est dû au fait qu'ils sont obtenus de la soustraction de deux signaux ce qui augmente l'incertitude et aussi parce que ces deux signaux sont très proches. Nous constatons que la couche non-linéaire tend à se déplacer de $1 \mu\text{m}$ sous la surface de la lame pour des polings plus longs cette observation sera discutée à la section 4.4.

Les lames d'Infrasil I6 et I7 ont également été caractérisées avec cette technique : les franges de Maker interférométriques et les signaux interférométriques correspon-

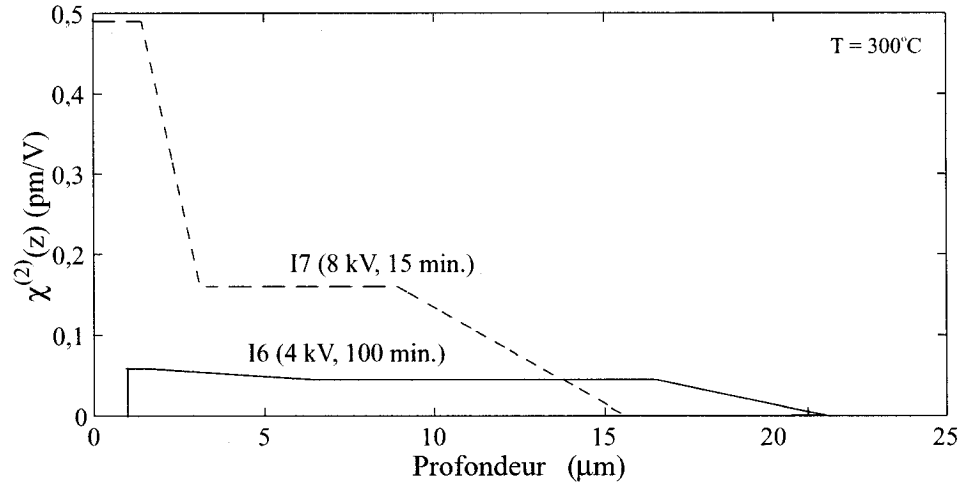


FIG. 4.29 – *Etude de l'effet de la durée du poling pour les lames d'Infrasil I6 et I7 polées 100 et 15 minutes. La lame I6 a été polée sous une tension de 4 kV alors que la lame I7 a été polée à 8 kV. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I6 et I7 obtenue des mesures interférométriques.*

dants sont présentés aux figures 4.9 à 4.12. Rappelons que ces lames ont été polées respectivement à 8 et 4 kV.

Nous remarquons sur les courbes des franges de Maker que la différence entre les deux empilements est très visible par rapport au cas précédent des lames de Suprasil: nous avons affaire à des lames d'Infrasil qui laissent une trace importante dans le signal mesuré. Cela est bien visible sur les signaux interférométriques qui sont d'ailleurs d'un ordre de grandeur plus importants que précédemment. L'accord entre les signaux mesurés et simulés est particulièrement bon y compris pour les grands angles. Nous avons utilisé les distributions de la non-linéarité obtenues à la figure 3.61 afin de simuler les signaux interférométriques. Les distributions provenant du lissage de ces courbes sont présentés à la figure 4.29.

Comme pour les lames de Suprasil, la couche non-linéaire tend à se déplacer de

1 μm sous la surface anodique pour des polings très longs. Nous avons vu à la section 3.2.5 que ces deux types de verre avaient un comportement très différent en fonction de la durée : par contre, l'enterrement semble suivre la même tendance. Cet aspect surprenant semble indiquer que la localisation de la couche ne soit pas une propriété du matériau polé mais provienne d'un effet externe.

4.3.3 Comparaison air-vide

Nous avons vu à la section 3.2.2 que le fait d'effectuer des poling sous vide ou dans l'air n'affecte pas la distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}$. Ce fait a d'ailleurs été vérifié par des méthodes différentes [57]. Evidemment, dans le cas présent, nous nous sommes assurés que les durée des polings étaient identiques de façon à ce que les résultats soient comparables. Nous allons maintenant vérifier que la couche non-linéaire est localisée au même endroit quel que soit l'environnement lors du poling.

La lame I4 polée dans le vide et la lame I5 polée dans l'air ont été soumises à des mesures interférométriques dont les résultats sont présentés aux figures 4.5 à 4.8. La différence entre les deux empilements est bien visible pour ces deux lames puisque, encore une fois, les lames mesurées sont faites d'Infrasil et génèrent un signal important.

Les distributions déterminées à la figure 3.52 ont été utilisées afin d'obtenir les courbes simulées des figures 4.6 et 4.8. Les distributions totales lissées sont résumées à la figure 4.30. Nous constatons que les résultats expérimentaux et simulés sont en bon accord y compris pour les grands angles. Bien que nous ayons indiqué précédemment que l'environnement n'avait que peu d'effet sur la distribution de la non-linéarité, il semble à l'examen de ces résultats que l'effet soit important sur la localisation de la couche. En effet, la lame polée dans l'air présente une couche enterrée de 2 μm sous la surface anodique alors que la couche non-linéaire de la lame polée sous vide est

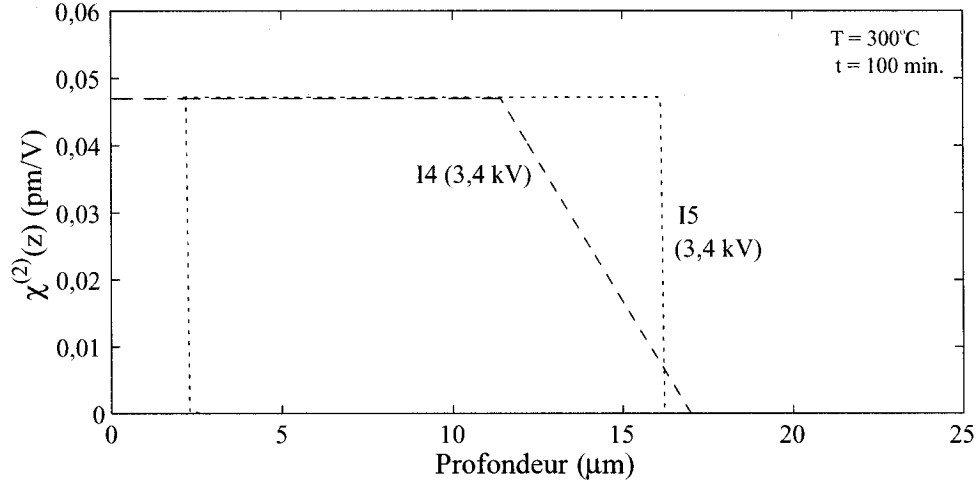


FIG. 4.30 – Comparaison du poling thermique effectué sous vide et dans l'air pour les lames d'Infrasil I4 (vide) et I5 (air). Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I4 et I5 obtenue des mesures interférométriques.

située directement sous la surface. Ce résultat est intéressant car il pourrait expliquer la raison pour laquelle il a été observé que le poling sous vide donne des résultats plus reproductibles que le poling dans l'air. Nous discuterons de cette observation à la section 4.4.

4.3.4 Etude de reproductibilité

A la section 3.2.1 nous avons constaté que le poling thermique effectué sous vide était raisonnablement reproductible mais qu'un des points faibles de cette technique est le contact entre les électrodes qui servent à appliquer la tension. Nous avons mesuré ces lames accolées à la lame de référence afin de vérifier plus en détail la reproductibilité de la technique de poling et les résultats sont présentés aux figures 4.11, 4.12 et 4.13 à 4.16. Nous remarquons pour les figures 4.11 et 4.15 que le signal provenant de la lame polée est particulièrement visible à partir de 45° : cela est normal car ces

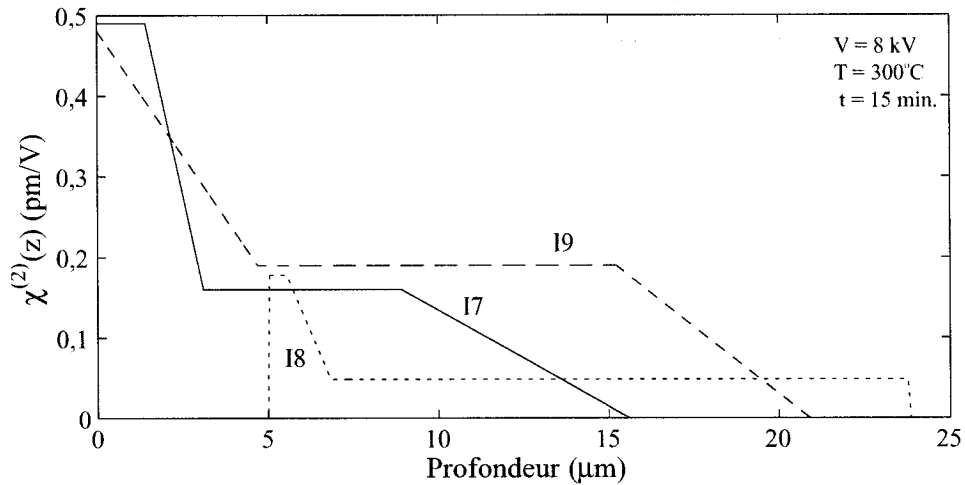


FIG. 4.31 – *Etude de reproductibilité du montage de poling thermique pour les lames d'Infrasil. Ces lames ont été polées dans des conditions identiques soit à 300 °C sous une tension de 8 kV pendant 15 minutes. Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames I7, I8 et I9 obtenue des mesures interférométriques.*

lames présentent des susceptibilités proches de celle de la lame de référence de phase. En effet, le signal de l'échantillon devient supérieur à celui de la lame de référence autour de 45°.

Les profils représentés à la figure 3.50 ont été utilisés afin de réaliser les simulations des figures 4.12, 4.14 et 4.16. Nous constatons que pour ces trois lames, l'accord entre les simulations et les résultats expérimentaux est bon pour l'ensemble de la plage angulaire. Les deux signaux sont même en certaines régions difficiles à distinguer. Les distributions obtenues sont présentées à la figure 4.31.

Les lames I7 et I9 ont leur couche non-linéaire sous la surface anodique alors que pour la lame I8 elle est profondément enterrée 5 μm sous la surface. Ce résultat pour la lame I8 confirme notre hypothèse au sujet de la plus faible susceptibilité et nous donne une information supplémentaire. En effet, la susceptibilité faible générée dans

cette lame est expliquée par un mauvais contact entre la lame et les électrodes. Ce mauvais contact à la fin du poling peut s'expliquer par un claquage pendant le poling : nous tenterons d'expliquer cet enfouissement important à la section 4.4.

Puisque le poling a été effectué sous vide et que les deux autres lames ne présentent pas ce problème, la raison de cet enfouissement pour cette lame est difficilement explicable mais pourrait provenir d'une erreur lors de la préparation de l'échantillon ou lors de l'application de la tension. De plus, comme pour toutes les mesures de franges de Maker présentées dans cette thèse, la mesure a été effectuée à trois reprises afin d'en vérifier la reproductibilité.

4.3.5 Vérification de la méthode

Afin de déterminer la validité de la technique interférométrique proposée dans ce chapitre, nous allons maintenant présenter une technique simple permettant de vérifier les résultats expérimentaux. Au lieu d'analyser la différence des deux signaux interférométriques de l'équation 4.4 (avec la lame de référence de phase avec $\chi^{(2)}$ positif ou négatif), nous allons étudier leur somme

$$|A + B|^2 + |A - B|^2 = 2|A|^2 + 2|B|^2 \quad (4.5)$$

Nous constatons que selon cette représentation, la somme des franges de Maker interférométrique est proportionnelle à la somme des franges de Maker de la lame de référence de phase et de l'échantillon. Nous pouvons en déduire les critères de validité suivants

- Lorsque le signal B provenant de la lame de référence de phase est nul, le signal de la somme devrait être égal à deux fois le signal provenant de l'échantillon seul A .
- Si l'on soustrait deux fois les franges de Maker provenant de la lame de référence de phase de la somme, on devrait retrouver le signal de l'échantillon.

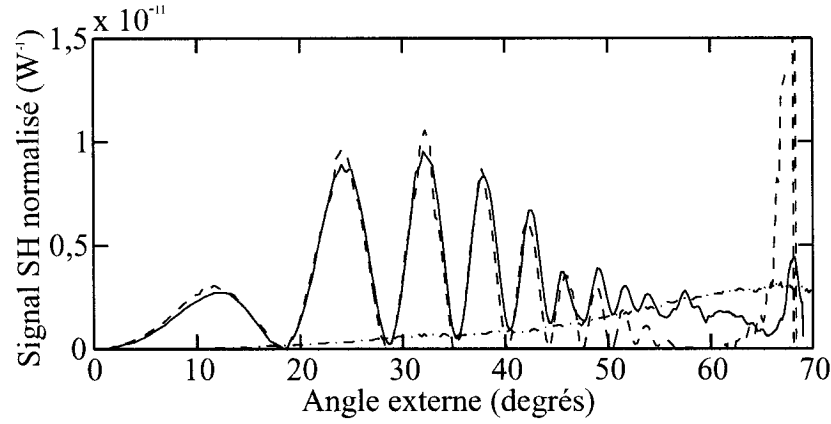


FIG. 4.32 – Somme des deux signaux interférométriques ($|A + B|^2 + |A - B|^2$) pour la lame I7 (ligne continue), deux fois le signal de la lame de référence de phase ($2|B|^2$) (ligne tiretée) et deux fois le signal de l'échantillon ($2|A|^2$) (ligne pointillée).

Nous avons effectué cette analyse pour l'ensemble des résultats expérimentaux présentés dans ce chapitre : nous ne présenterons ici qu'un exemple, celui de la lame I7 illustré à la figure 4.32. Les différentes quantités présentes dans l'équation 4.5 sont tracées sur cette figure : la somme des signaux de franges de Maker interférométrique ($|A + B|^2 + |A - B|^2$), deux fois les franges de Maker de la lame de référence de phase $2|B|^2$ et deux fois les franges de Maker de l'échantillon $2|A|^2$. Afin de comparer ces quantités, nous avons tracé les différents signaux en fonction de l'angle externe. En effet, l'angle de propagation interne est défini à l'interface entre la lame mesurée et la lentille hémicylindrique : il est donc différent pour la lame de référence de phase en quartz et l'échantillon de silice.

En inspectant cette figure et en appliquant les critères présentés précédemment, nous constatons que ces derniers sont bien respectés ce qui valide nos mesures et notre technique. Ceci se vérifie également pour les autres lames présentées dans cette thèse.

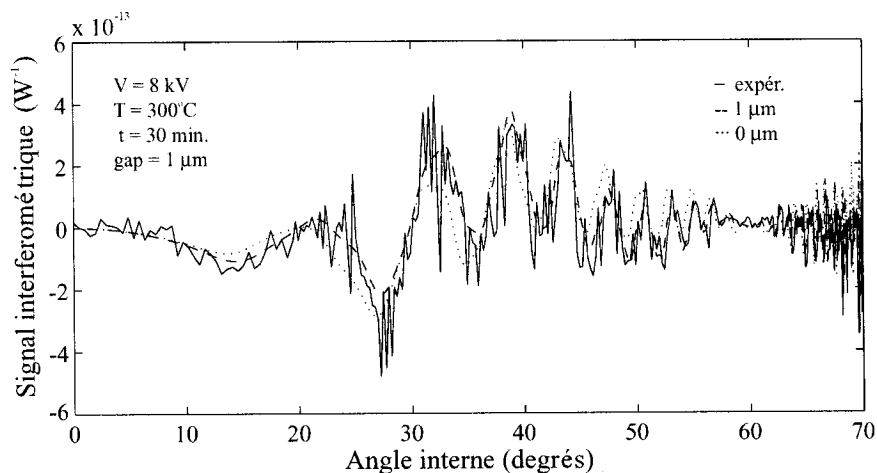


FIG. 4.33 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S9 (ligne continue), simulé avec un enfouissement de $1\ \mu\text{m}$ (ligne tiretée) et simulé avec un enfouissement de $0\ \mu\text{m}$ (ligne pointillée).*

Nous avons observé pour les différentes distributions présentées aux sections 4.3.1 à 4.3.4 que certaines lames présentaient un enfouissement. Pour l'ensemble des lissages, nous avons obtenu un coefficient de corrélation élevé comme indiqué sur les figures de la section 4.2. Néanmoins, afin de confirmer les enfouissements obtenus, nous avons tracé sur la même figure la mesure expérimentale, le lissage retenu et un lissage avec un enfouissement différent. Les résultats obtenus pour les lames S9 et I9 sont présentés aux figures 4.33 et 4.34.

Nous constatons pour ces lames la différence marquée entre les deux lissages que ce soit pour les amplitudes mais surtout pour les positions angulaires bien que les enfouissements soient similaires ($1\ \mu\text{m}$). Les coefficients de corrélation élevés et ces vérifications confirment donc la validité de nos lissages. Nous avons effectué la même vérification pour le reste des lames étudiées par notre technique interférométrique. Les résultats sont présentés à l'annexe D. Notons néanmoins pour les assemblages de lames de Suprasil avec une lame de quartz présentant un signal interférométrique

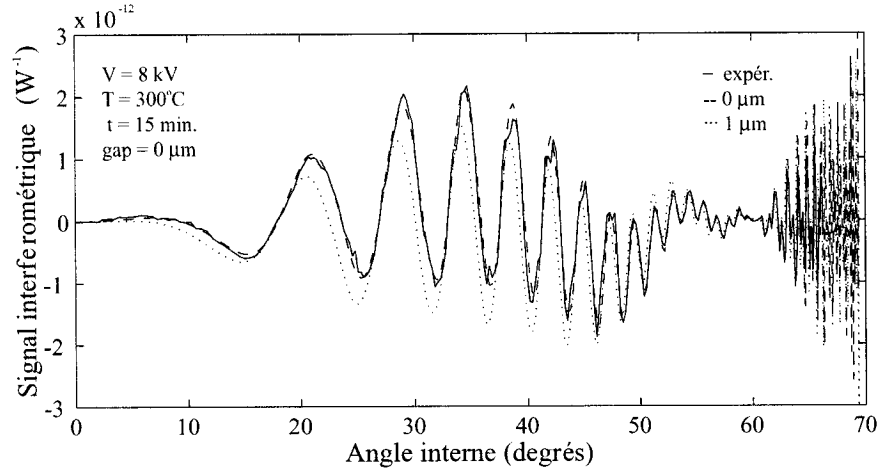


FIG. 4.34 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame 19 (ligne continue), simulé avec un enfouissement de $0 \text{ }\mu\text{m}$ (ligne tiretée) et simulé avec un enfouissement de $1 \text{ }\mu\text{m}$ (ligne pointillée).*

faible et fortement bruité, en particulier les lames S4 et S5. Afin de confirmer ces résultats, il serait nécessaire de reprendre les mesures avec une lame de référence de phase générant un signal plus faible ce qui évitera de noyer le signal des lames de Suprasil.

4.4 Justification des distributions obtenues

Nous avons constaté que pour certains échantillons la couche non-linéaire est enterrée sous la surface anodique et que en général les distributions obtenues sont très différentes d'une distribution triangulaire telle qu'obtenue par le modèle de migration de charges à un porteur (section 1.2.2). En plus, à la section 3.2.8, nous avons observé que le modèle de Von Hippel n'était pas valide. Ces profils semblent donc indiquer que plusieurs porteurs participent à la migration ionique et que de l'injection de charges peut survenir. Nous avons également observé que le comportement

des lames de Suprasil et d'Infrasil était différent, l'Infrasil présentant plus de dopants que le Suprasil.

Dans cette section, nous allons tenter d'expliquer l'origine de ces distributions afin de mieux comprendre les phénomènes se produisant lors du poling thermique de lames de silice. Puisque que lors du poling, il y a migration ionique, ce qui est notre hypothèse initiale, il faudrait pouvoir visualiser la distribution des ions dans la lame polée. Puisque nous avons déterminé la distribution de la susceptibilité non-linéaire de second ordre, en vertu de l'équation 4.6 et en supposant que $\chi^{(3)}$ est inchangé par le poling (cet aspect fait l'objet du chapitre 5), nous pouvons déterminer la distribution du champ électrique statique induit dans l'échantillon par le poling.

$$\chi^{(2)} = 3\chi^{(3)}E_{DC} \quad (4.6)$$

où $\chi_P^{(3)}$ est de $2 \cdot 10^{-22} \text{m}^2/\text{V}^2$ pour un faisceau laser incident de polarisation P. De cette observation il nous est possible de retrouver la distribution de la charge nette dans l'échantillon.

En effet, le respect de l'équation de Gauss implique que

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \frac{e}{\varepsilon}(p - n) \quad (4.7)$$

où e est la charge de l'électron ($1,60217733 \cdot 10^{-19} \text{C}$), $\varepsilon = 3.7 \varepsilon_o$ la permittivité du matériau avec $\varepsilon_o = 8.85419 \cdot 10^{-12} \text{F/m}$, p la densité de charges positives et n la densité de charges négatives. En combinant les équations 4.6 et 4.7, il est possible de calculer la distribution de la densité de charge nette dans l'échantillon ($n - p$) avec

$$(n - p) = -\frac{\varepsilon}{3e\chi_P^{(3)}} \frac{\partial \chi^{(2)}}{\partial z} \quad (4.8)$$

Cette relation à les implications suivantes :

- $(n - p) \neq 0$ et constante implique une distribution de $\chi^{(2)}$ triangulaire.
- $(n - p)$ implique une distribution de $\chi^{(2)}$ uniforme.

- $\chi^{(2)} = 0$ sous la surface anodique implique l'absence de champ électrique dans cette zone et donc l'absence de charges.

Nous allons maintenant reprendre les distributions obtenues pour les lames d'Infrasil et de Suprasil aux sections 4.3.1 à 4.3.4 et calculer la distribution de charge nette $n - p$ dans chacun des cas. Les résultats sont présentés aux figures 4.35 à 4.44.

Les distributions de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ et de la charge nette $n - p$ pour les lames de Suprasil S1 et S2 sont présentées aux figures 4.35 et 4.36. Nous remarquons que pour ces deux lames la charge nette est positive indiquant une zone de déplétion de charges positives : pour le Suprasil, ces charges peuvent être Na, Li ou Ca (se référer au tableau 1.1). Néanmoins, si cette distribution était uniquement due à la migration des charges présentes dans l'échantillon, la charge nette devrait être immédiatement sous la surface anodique. La zone neutre $(n - p) = 0$ peut être due à l'injection de charges positives externes par la face anodique qui ont pour effet de neutraliser cette zone. Les deux plateaux présents dans la distribution de $\chi^{(2)}$ semblent indiquer l'injection de deux porteurs de charges avec des mobilités ioniques différentes puisque le porteur plus rapide se déplace en premier.

Si l'on additionne la concentration totale des principaux porteurs de charges positives dans le Suprasil obtenues du tableau 1.1 on obtient une concentration d'environ $5,3 \cdot 10^{14} \text{cm}^{-3}$. Si l'on suppose que cette distribution est uniquement due à la migration des charges présentes dans la lame et que la déplétion est totale, la densité de charge nette dans cette zone de déplétion devrait donc être de $5,3 \cdot 10^{14} \text{cm}^{-3}$. Or, on observe une densité de $5 \cdot 10^{14} \text{cm}^{-3}$ pour la lame S1 et de $9,5 \cdot 10^{14} \text{cm}^{-3}$ pour la lame S2 : ces valeurs sont du même ordre de grandeur que la concentration totale des ions positifs et même supérieure pour S2. Il est possible que les concentrations indiquées par le manufacturier soient sous-estimées : il a déjà été observé de grandes variations de lot en lot et ces mesures sont nominales et non effectuées sur nos lames.

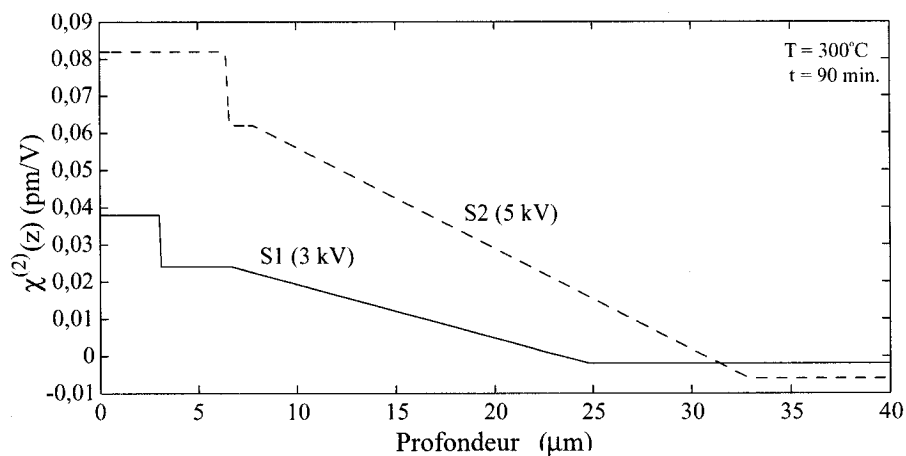


FIG. 4.35 – Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames de Suprasil S1 polée à 3 kV et S2 polée à 5 kV obtenue des mesures interférométriques.

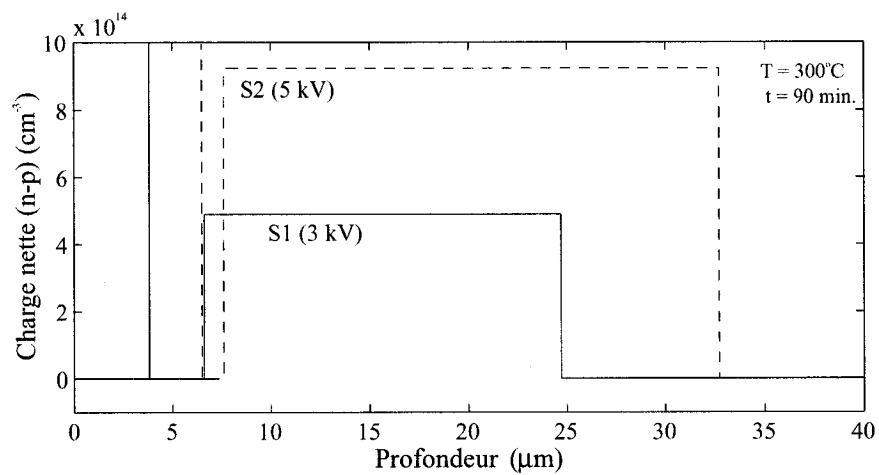


FIG. 4.36 – Distribution de la charge nette calculée à partir de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ de la figure 4.35 pour les lames S1 et S2.

On s'attendait bien à ce que l'injection soit plus forte dans le cas de S2 car la tension de poling est plus importante augmentant la quantité de charges injectées. T. Alley [3] a introduit un modèle décrivant l'injection de charges dans les verres polés et plus récemment A. Kundlinski [67]. Ces résultats montrent que la distribution de $\chi^{(2)}$ est triangulaire sans injection de charges et que sous l'effet de l'injection des plateaux apparaissent comme pour nos résultats expérimentaux.

Etudions maintenant les lames S4, S5 et S9, elles aussi en Suprasil, dont les distributions de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ et de la charge nette $n - p$ pour les lames de Suprasil S1 et S2 sont présentées aux figures 4.37 et 4.38. Nous remarquons tout d'abord que les distributions ne présentent qu'un seul plateau indiquant qu'un seul type d'ion est injecté contrairement au cas précédents. Ceci est concevable pour la lame S9 qui a été polée moins longtemps (30 minutes) mais est plus surprenant pour ce qui est de la lame S4 polée 90 minutes comme les lames S1 et S2 : on peut supposer que la tension effective a été plus faible que la tension appliquée pour la lame S4 et donc qu'il peut y avoir eu claquage lors du poling. Notons également que cette lame présente une zone où $\chi^{(2)}$ est nulle sur $1 \mu\text{m}$ ce qui revient à dire que cette zone est neutre. Notre hypothèse est que tous les ions positifs ont quitté cette zone lors de la migration ionique alors que plus tard, lors du claquage, les charges négatives ont été arrachées. L'émission de charges négatives a déjà été observée pour les lames massives de silice par C. Matos [85] qui a mesuré les charges éjectées avec une coupe de Faraday et D. Wong [134] a observé le déplacement de charges négatives sous l'anode dans les fibres optiques polées. La lame S9 qui présente aussi un enterrement de la couche non-linéaire a sans doute aussi subi un claquage. L'enterrement de la couche non-linéaire pour ces deux lames se traduit également par la présence d'une très grande quantité de charges positives sur une très fine couche. Il n'est pas possible de déterminer cette épaisseur car elle est inférieure à la résolution de notre technique.

Sur les courbes de distribution de charge nette, on constate également que l'injection de charges a été plus importante pour la lame S4 que pour S9 ce qui est cohérent avec un temps de poling de 90 minutes contre un temps de 30 minutes.

Le cas de la lame S5 est plus délicat car l'épaisseur de la couche non-linéaire est proche de la limite de précision de notre méthode de mesures de franges de Maker entre lentilles, limite dont nous avons déjà fait état à la section 3.2.5. Il est assez surprenant d'obtenir un profil carré (qui se traduit par une zone de déplétion de charge nette très élevée sur une fine couche) mais notre méthode ne permet pas dans ce cas de discriminer entre un profil carré et un profil triangulaire. On peut simplement affirmer que l'épaisseur de la zone de déplétion est inférieure à $5\text{ }\mu\text{m}$. Afin de pouvoir conclure sur cet échantillon, il faudrait pouvoir l'analyser avec une autre technique (gravure au HF [82]).

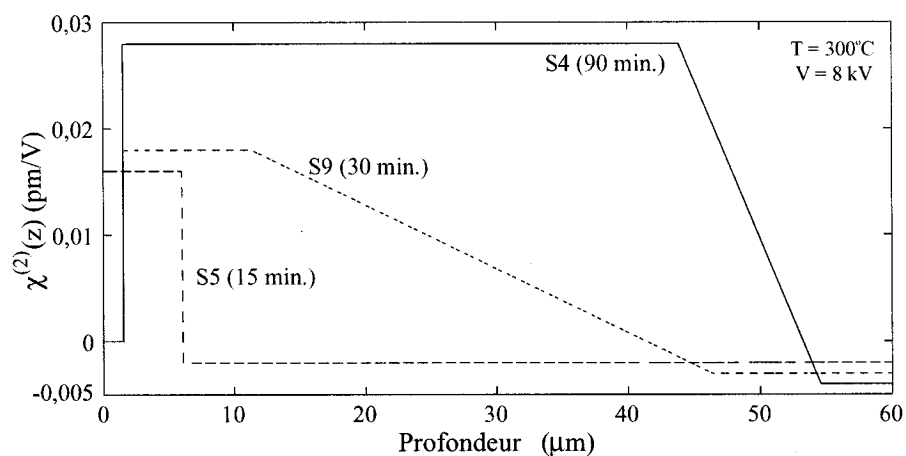


FIG. 4.37 – Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames de Suprasil S4 polée 15 minutes, S5 polée 30 minutes et S9 polée 90 minutes obtenue des mesures interférométriques.

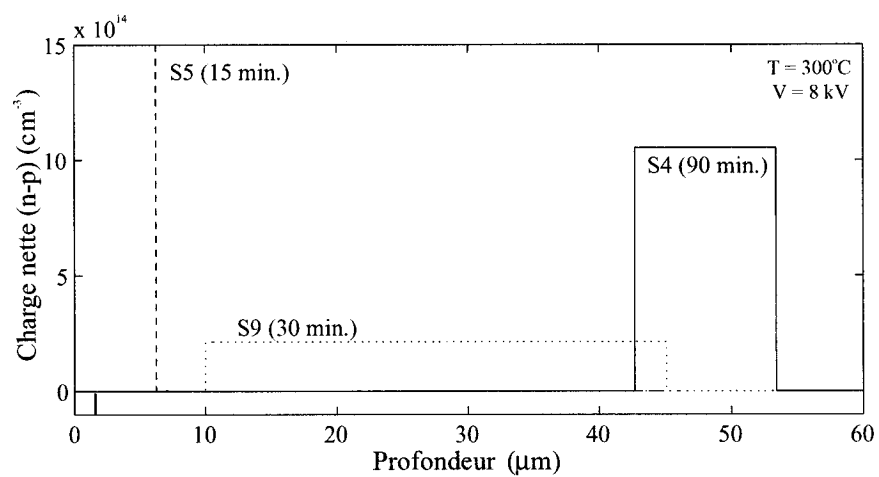


FIG. 4.38 – Distribution de la charge nette calculée à partir de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ de la figure 4.37 pour les lames S4, S5 et S9.

Les lames d'Infrasil présentent une grande quantité d'ions comparativement aux lames de Suprasil. En consultant à nouveau le tableau 1.1, on constate que la densité de charges est ici de $5 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-3}$ ce qui est près de deux ordres de grandeurs supérieur aux lames de Suprasil. Il faut donc s'attendre ici à une déplétion plus importante et aussi à plusieurs zones de déplétions car plusieurs porteurs peuvent participer au processus de poling : leur mobilité n'est pas changée mais leur quantité est telle que l'effet de leur migration est visible.

Les distributions de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ et de la charge nette $n - p$ pour les lames d'Infrasil I6 et I7 sont présentées aux figures 4.39 et 4.40. Ici, le processus est beaucoup plus rapide que pour les lames de Suprasil : on observe que dès 15 minutes, deux porteurs sont présents (I7) se traduisant par deux zones de déplétion. Remarquons que la densité de charge nette est plus importante près de la surface qu'en profondeur pour I7 alors que c'est le contraire pour I6. Nous allons tenter de décrire ce qui passe lors du poling : ceci est plus difficile pour l'Infrasil où le nombre de porteurs de charge est important. Initialement, le premier porteur plus rapide se déplace et crée une zone de déplétion. Cette zone est progressivement remplie par les charges injectées et les porteurs lents. Le porteur rapide se déplace en profondeur et crée une seconde zone de dépletion alors que les charges qui ont rempli la première zone de dépletion la quittent progressivement laissant derrière elles la seconde zone visible sur la figure 4.40. La densité de charge nette est 6 fois plus importante pour la zone de dépletion de surface que pour celle en profondeur : ceci veut dire que la zone en profondeur a été remplie par les porteurs plus lents et les charges injectées. Le total de la densité de charge nette du total des deux zones étant supérieure à la densité de charge nette présente dans l'Infrasil vierge, on peut encore une fois penser que les concentrations sont erronées.

Pour des poling longs dans l'Infrasil, lorsque il n'y a plus de charges à injecter,

les zones de déplétions devraient tendre à diminuer avant de disparaître. C'est ce que l'on observe pour la lame I6 dont la susceptibilité $\chi^{(2)}$ est faible et dont la densité de charge nette est inférieure à la densité de charge nette d'une lame d'Infrasil vierge. Les ions tendent donc à se déplacer en profondeur dans l'échantillon le neutralisant : cet effet est l'inverse de ce qui est observé pour le Suprasil montrant bien l'importance des concentrations d'impuretés dans les verres soumis au poling. La présence d'une zone de $1\text{ }\mu\text{m}$ avec un $\chi^{(2)}$ nul peut s'expliquer par l'éjection de charges négatives se qui est conforme à l'observation que la densité de charge nette est plus importante en profondeur qu'en surface.

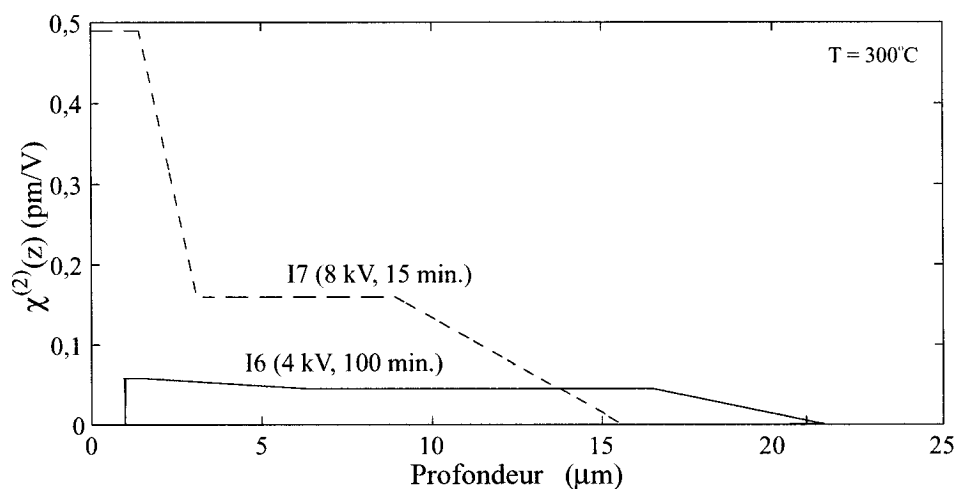


FIG. 4.39 – Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames d'Infrasil I6 polée à 4 kV pendant 100 minutes et I7 polée à 8 kV pendant 15 minutes obtenue des mesures interférométriques.

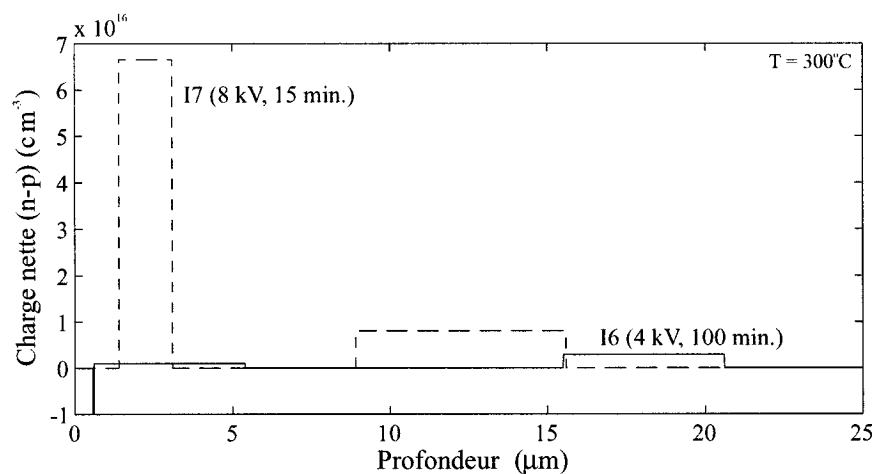


FIG. 4.40 – Distribution de la charge nette calculée à partir de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ de la figure 4.39 pour les lames I6 et I7.

Les distributions de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ et de la charge nette $n - p$ pour les lames d'Infrasil I4 et I5 sont présentées aux figures 4.41 et 4.42. Les distributions présentées ici sont à rapprocher de ce qui a été obtenu pour la lame I6 polée dans des conditions similaires.

Notons également, que les lames I5 et I6 présentent toutes deux un enterrement (2 et 1 μm alors que I5 a été polée dans l'air et I6 sous vide. L'éjection de charges est toujours considérée comme responsable de ces zones enfouies et il semble possible que le claquage du montage en soit responsable car ces lames ont toutes deux été polées longtemps. Il a d'ailleurs été observé expérimentalement qu'il y a eu claquage lors du poling de la I5 et c'est pour cela que l'on n'a limité la tension de poling de la lame I4 à 3,4 kV afin d'éviter le claquage. Ainsi, la lame I4 ne présente pas cet enfouissement et le poling s'est passé sans claquage. Ces observations semblent donc lier claquage diélectrique et zone où les ions négatifs sont arrachés. Ceci reste néanmoins à confirmer. La lame I5 présente une distribution de $\chi^{(2)}$ qui tout comme pour la lame S5 est uniforme ce qui implique une charge nette très élevée sur une faible couche. On ne peut pas supposer comme pour la lame S5 la présence d'une pente car l'épaisseur de la couche non-linéaire est largement supérieure à la limite de la méthode des franges de Maker entre lentilles. On peut toutefois observer la présence d'une pente très abrupte se traduisant en une densité de charge nette très élevée sur une épaisseur très faible (moins de 0,5 μm), donc une zone de déplétion très mince.

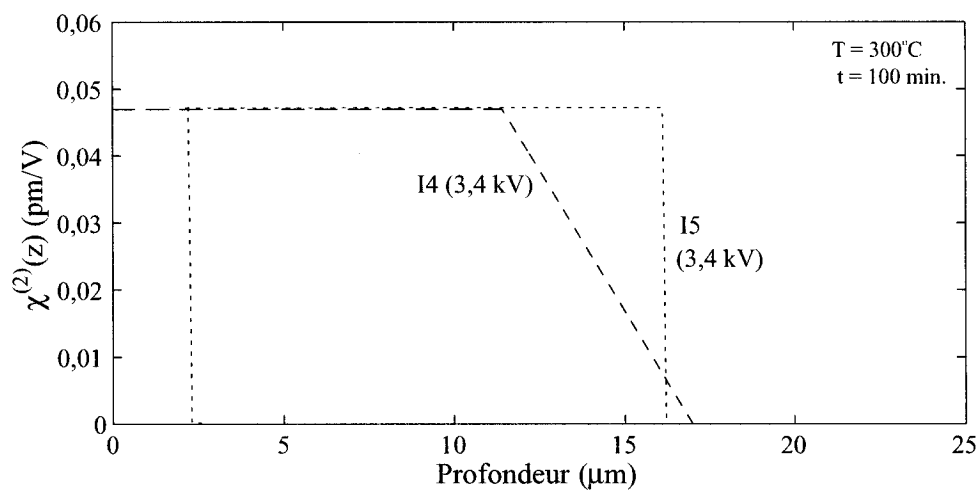


FIG. 4.41 – Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames d'Infrasil I4 polée sous vide et I5 polée dans l'air obtenue des mesures interférométriques.

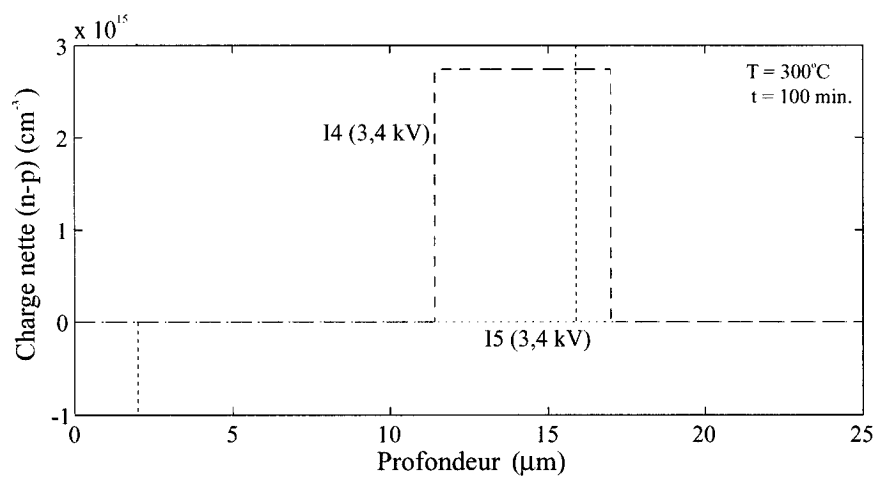


FIG. 4.42 – Distribution de la charge nette calculée à partir de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ de la figure 4.41 pour les lames I4 et I5.

Les distributions de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ et de la charge nette $n - p$ pour les lames d'Infrasil I7, I8 et I9 sont présentées aux figures 4.43 et 4.44. Ces trois lames ont été polées dans les même conditions mais présentent des résultats différents. Nous allons d'abord traiter des lames I7 et I9 qui semblent plus proches. Nous avons déjà traité la lame I7 précédemment mais la comparaison avec la I9 est intéressante puisque les conditions de poling sont identiques. Nous avons précédemment expliqué la densité de charge nette nulle de la zone immédiatement sous la surface comme étant due à l'injection de charges. Si l'on observe les distributions de $\chi^{(2)}$ et de charge nette pour la lame I9, présente deux pentes et un plateau se traduisant en deux zones de déplétion dont la première se trouve immédiatement sous la surface. Comme pour la lame I7, la densité de charge nette est plus faible en profondeur qu'en surface. Egaleme nt, la densité de charge nette en surface est plus faible que pour I7. Il y a donc eu moins d'injection de charges ici. Par contre, à la lumière de ces observations et en remarquant que $\chi^{(2)}$ (ou le champ électrique induit) est particulièrement élevé, on peut proposer une autre explication à la présence de la densité de charge nette nulle pour la zone sous la surface anodique pour la lame I7.

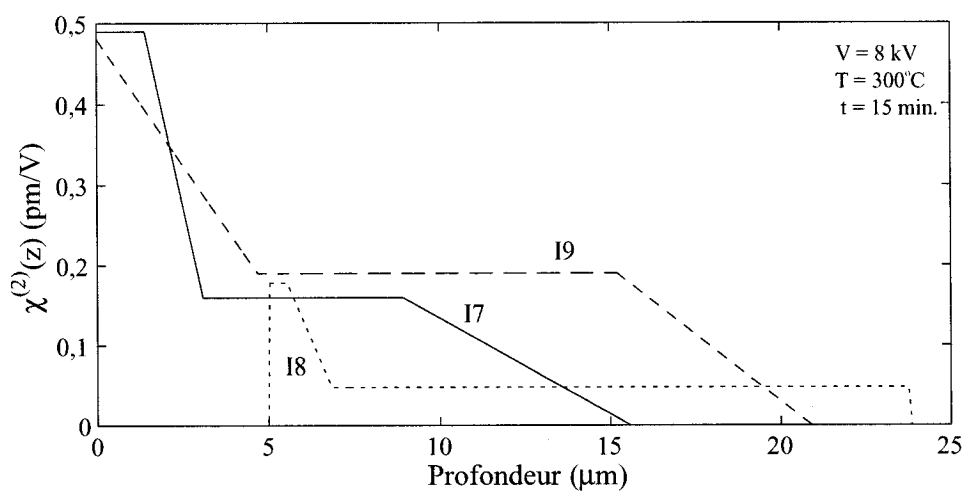


FIG. 4.43 – Distribution de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ pour les lames d'Infrasil I7, I8 et I9 polées à 300°C sous une tension de 8 kV pendant 15 minutes obtenue des mesures interférométriques.

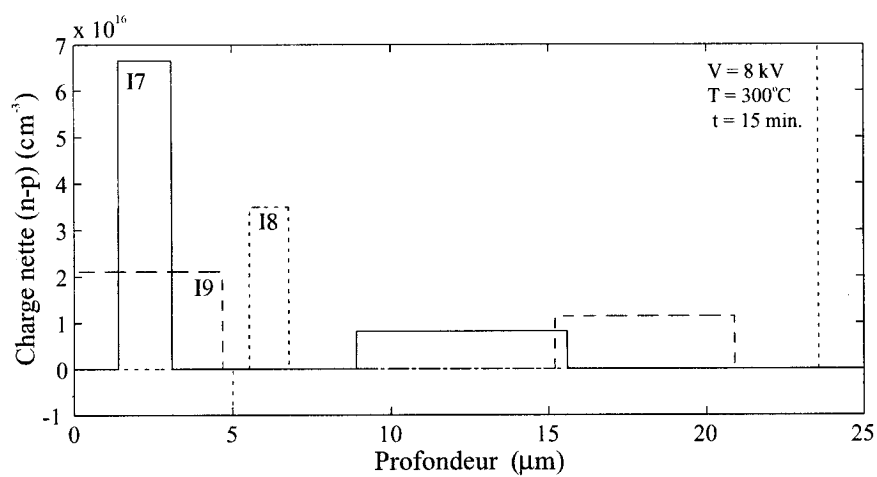


FIG. 4.44 – Distribution de la charge nette calculée à partir de la susceptibilité $\chi^{(2)}(z)$ de la figure 4.43 pour les lames I7, I8 et I9.

Si ce champ électrique interne dépasse celui de I9 (si l'on prolonge la pente sur la courbe de $\chi^{(2)}$ pour I7, le maximum est proche de 0,8 pm/V au lieu de 0,5 pm/V), on peut imaginer que des charges soient éjectées car le champ électrique interne devient supérieur au champ de claquage diélectrique. Ceci a pour effet d'écranter le profil et de positionner la zone de déplétion en profondeur.

L'échantillon I8 est un peu particulier puisqu'il présente un enterrement très important (5 μm). Le claquage ici a dû être très important que dans les cas précédents. Nous ne pouvons expliquer pourquoi cet échantillon a subi un tel claquage car les conditions de poling étaient similaires à celles des lames I7 et I9.

4.5 Conclusion

Nous avons proposé une technique expérimentale ainsi qu'une méthode d'analyse qui permet de localiser la couche non-linéaire induite sous la surface anodique par le poling thermique. Cette information, ajoutée à celle déjà obtenue au chapitre 3 permet de complètement déterminer la distribution de la non-linéarité de second ordre créée dans des échantillons plans.

Nous avons également vu que pour certaines des lames étudiées, la couche non-linéaire est enterrée sous la surface anodique : nous avons émis l'hypothèse que cela provenait de l'éjection de charges négatives par la surface anodique ce qui a déjà été observé dans la littérature.

Chapitre 5

Nature de la non-linéarité de second ordre induite

Nous avons proposé aux chapitres 2 et 3 une méthode qui permet de surmonter les limites provenant de la technique des franges de Maker et de déterminer précisément la distribution de la non-linéarité de second ordre induite dans les verres de silice. Nous avons pu retrouver l'amplitude de $\chi^{(2)}$ avec son signe, le profil de la couche non-linéaire distribuée dans l'échantillon et la localisation de cette couche. Cette méthode, bien qu'appliquée ici aux verres de silice polés thermiquement, est applicable à tout matériau présentant une susceptibilité de second ordre et peut même être étendue aux matériaux biréfringents et aux matériaux absorbants.

Les observations effectuées lors de nos différentes études sont compatibles avec l'hypothèse que la migration ionique est responsable de l'apparition d'une susceptibilité de second ordre lors du poling thermique de lames de silice. L'hypothèse de rectification de $\chi^{(3)}$ par un champ statique semble donc tenir et l'équation 1.1 serait valide. Par contre, plusieurs résultats publiés indiquent une modification de $\chi^{(3)}$ lors du poling ce qui a des conséquences importantes sur le modèle de migration ionique.

Tel que déjà discuté à la section 1.1.2, le tenseur de symétrie de la susceptibilité

non-linéaire de troisième ordre implique que $\frac{\chi_P^{(3)}}{\chi_S^{(3)}} = 3$. Néanmoins, il a été observé par certains auteurs que dans les guides d'ondes plans non-polés (A. Liu et al. [72]) ou polés (C. Marckmann et al. [83]) ainsi que dans les fibres optiques [37] ce rapport était plutôt près de 1,1. Ces mesures ont été effectuées en plaçant le guide dans un interféromètre et en appliquant un champ électrique. Il s'agit donc de mesures de $\chi^{(3)}$ à fréquence électrique. A. Liu et al. [72, 74] ainsi que N. Godbout et al. [37] ont identifié l'électrostriction comme étant responsable de ce phénomène. C. Marckmann et al. [83] ont d'ailleurs fait les mêmes observations dans les guides d'ondes plans polés.

Récemment, R. Kashyap et al. [51, 52, 53] ont observé que la susceptibilité $\chi^{(3)}$ était doublée lors du poling d'un guide d'onde plan. Ceci avait également été observé par D. Wong et al. [133] et W. Xu et al. [135] pour les fibres optiques polées thermiquement où la susceptibilité avait également doublé. T. Fujiwara et al. [34] ont observé un effet encore plus important lors du poling ultraviolet de fibres optiques hautement dopées au germanium alors que la susceptibilité était multipliée par 15. Il semble donc que le poling thermique change $\chi^{(3)}$ lorsque mesuré à fréquence électrique. Nous allons maintenant vérifier cette observation par des mesures de troisième harmonique par franges de Maker donc à fréquence optique.

5.1 Génération de troisième harmonique

Au chapitre 2, nous avons présenté le processus menant à l'équation 2.16 qui permet de calculer la puissance de second harmonique en fonction de l'angle de propagation dans la lame. La démarche menant à l'équation modélisant la conversion de l'onde de pompe en sa troisième harmonique étant similaire, nous ne présenterons que les résultats les plus importants.

5.1.1 Calcul de la puissance de troisième harmonique pour un verre de silice

Nous allons reprendre le formalisme [12] déjà utilisé au chapitre 2. Dans l'hypothèse où le taux de conversion de l'onde de pompe en sa troisième harmonique est considéré faible, on peut donc poser que la variation de l'amplitude de l'onde de pompe est nulle menant à $E^\omega = E_k^\omega = E_j^\omega = \text{constante}$. Par conséquent, les équation couplées se résument à l'équation suivante

$$\frac{dE^\omega}{dz} = \frac{i3\omega K}{2cn_{3\omega}} \chi_{\text{eff}}^{(3)}(z) (E^\omega)^3 e^{i\Delta k z} \quad (5.1)$$

où c est la vitesse de la lumière dans le vide, K est un facteur propre au processus de troisième harmonique qui vaut $1/4$ pour ce matériau, $n_{3\omega}$ est l'indice de réfraction de la lame à la longueur d'onde de troisième harmonique et $\chi_{\text{eff}}^{(3)}$ est la valeur effective du tenseur de la susceptibilité de troisième ordre. Puisque dans notre cas la polarisation de l'onde de pompe est P ou S, nous ne considérerons que les éléments du tenseur correspondants. Dans ces équations Δk est le désaccord de phase entre l'onde de pompe et son harmonique qui s'exprime :

$$\Delta k = k_{3\omega} - 3k_\omega = \frac{6\pi(n_{3\omega} - n_\omega)}{\lambda} \quad (5.2)$$

Cette expression est strictement valable dans le cas où nous supposons la propagation colinéaire des deux ondes : ceci sera le seul cas étudié dans cette thèse. Puisque nous considérons que l'onde de pompe est colinéaire à son harmonique, l'équation de Snell-Descartes s'applique :

$$n \sin \theta = n_{3\omega} \sin \theta_{3\omega} \quad (5.3)$$

où n , $n_{3\omega}$ sont les indices de l'air et du matériau à la longueur d'onde de pompe et de troisième harmonique respectivement alors que $\theta_\omega = \theta_{3\omega}$ sont les angles de réfractions dans le matériau aux longueurs d'onde de pompe et de troisième harmonique respectivement.

En suivant le même raisonnement qu'au chapitre 2, on obtient l'expression reliant la puissance crête de troisième harmonique à la puissance de pompe :

$$P_c^{3\omega}(t) = \frac{9\omega^2(P_c^\omega)^3}{4\varepsilon_0^2 c^4 n_{3\omega} n_\omega^3 \cos^2 \theta \pi^2 w_0^4} \left| \int_0^L \chi_{\text{eff}}^{(3)}(z) e^{\frac{i\Delta k z}{\cos \theta}} dz \right|^2 \quad (5.4)$$

où $P^{3\omega}$ et P^ω sont les puissances crêtes de troisième harmonique et de pompe respectivement. La silice étant un matériau amorphe, sa susceptibilité de troisième ordre est donc isotrope et respecte donc $\chi_P^3 = 3\chi_S^3$. Les facteurs de Fresnel pour les polarisations du faisceau de pompe orienté P ou S se calculent de façon similaire à ce qui a été fait au chapitre 2. Les résultats sont présentés à l'annexe E.

5.1.2 Exemples numériques de troisième harmonique

Comme nous l'indiquions en introduction, des publications récentes [51, 133] ont présenté l'hypothèse que la susceptibilité de troisième ordre présente dans la silice et valant $2 \cdot 10^{-22}$ pm/V était doublée lors du poling thermique et pouvait contribuer à l'amplitude de $\chi^{(2)}$. Bien que ces résultats aient été obtenus par des mesures électro-optiques, il est intéressant de prolonger notre étude détaillée des propriétés optiques de la susceptibilité de second ordre induite par poling thermique.

Nous avons vu au chapitre 2 que certains de nos échantillons d'Infrasil présentent une amplitude de $\chi^{(2)}$ proche de la limite théorique prévue par le modèle de migration ionique de 0,6 pm/V et ce sur une épaisseur d'environ 1 μm . Il serait intéressant de déterminer par mesures de Franges de Maker qui est une méthode purement optique, s'il est possible de détecter ce changement supposé de $\chi^{(3)}$ dans cette couche.

Afin de vérifier s'il est possible de voir cet effet par des franges de Maker, nous avons réalisé des simulation de ce cas. Les résultats sont présentés à la figure 5.1 pour les franges de Maker et à la figure 5.2 pour la représentation Fourier-Maker. Notons que les calculs n'ont été effectués que pour une faible gamme d'angles : il n'est malheureusement pas possible d'effectuer des mesures de troisième harmonique entre

lentilles hémicylindrique tel que vu au chapitre 2. En effet, le verre de BK7 génère, tout comme les verres de silice, la troisième harmonique ce qui aurait eu pour effet de noyer le signal provenant de l'échantillon.

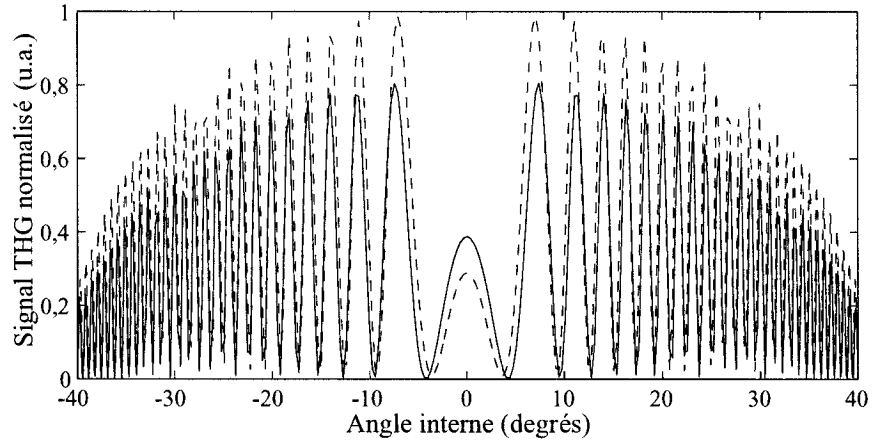


FIG. 5.1 – *Franges de Maker pour une lame de silice (ligne continue) et pour la même lame avec un $\chi^{(3)}$ doublé (ligne tiretée) sur $1\ \mu\text{m}$.*

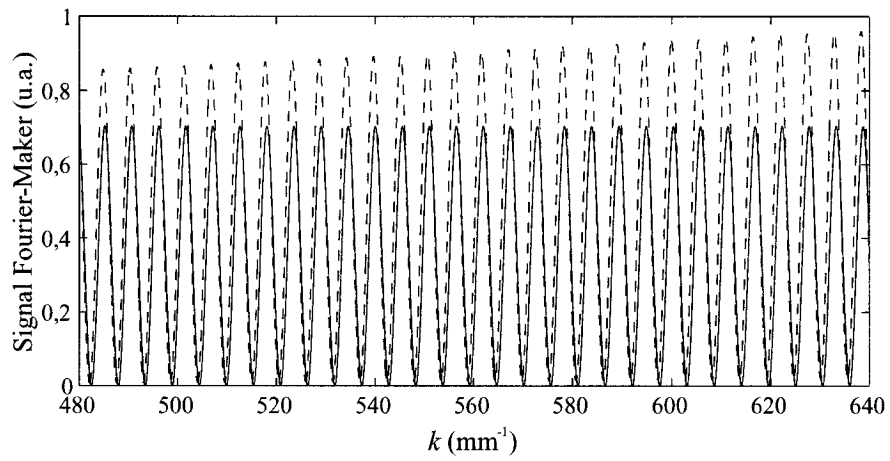


FIG. 5.2 – *Signal Fourier-Maker pour une lame de silice (ligne continue) et pour la même lame avec un $\chi^{(3)}$ doublé (ligne tiretée) sur $1\ \mu\text{m}$.*

Nous avons présenté sur ces figures les deux cas qui nous intéressent : une susceptibilité de troisième ordre uniformément distribuée dans l'échantillon et l'autre avec une couche de $1\ \mu\text{m}$ située sous la surface anodique avec une amplitude de $\chi^{(3)}$ doublée. En observant ces figures, nous constatons à première vue que l'effet de la couche avec un $\chi^{(3)}$ doublé est très visible dans les deux représentations. Les franges de Maker présentent surtout une différence d'amplitude entre les deux courbes ce qui ne constitue pas un critère permettant de conclure sur la présence de cette couche ou non puisqu'il pourrait s'agir simplement d'un facteur d'échelle. La représentation Fourier-Maker par contre, montre une différence très visible : lorsque le $\chi^{(3)}$ est uniforme, nous obtenons un sinus carré alors que dans le cas contraire, l'amplitude du signal augmente pour les grandes fréquences spatiales. La représentation Fourier-Maker démontre encore une fois son utilité. Ces résultats indiquent donc que nous devrions pouvoir détecter la présence d'une susceptibilité de troisième ordre doublée.

5.2 Mesure de la troisième harmonique dans un verre de silice

Nous avons réalisé des mesures de troisième harmonique par la technique des Franges de Maker sur la lame I7. Nous avons choisi cette lame parce que nous avons déterminé au chapitre 2 qu'elle présentait une amplitude de la non-linéarité de second ordre de $0,5\ \text{pm/V}$ ce qui est proche de la limite théorique atteignable selon le modèle de migration ionique (voir la figure 3.50). C'est donc la lame la plus susceptible de présenter un doublement de $\chi^{(3)}$ après poling thermique. Les résultats expérimentaux sont présentés aux figures 5.3 à 5.6.

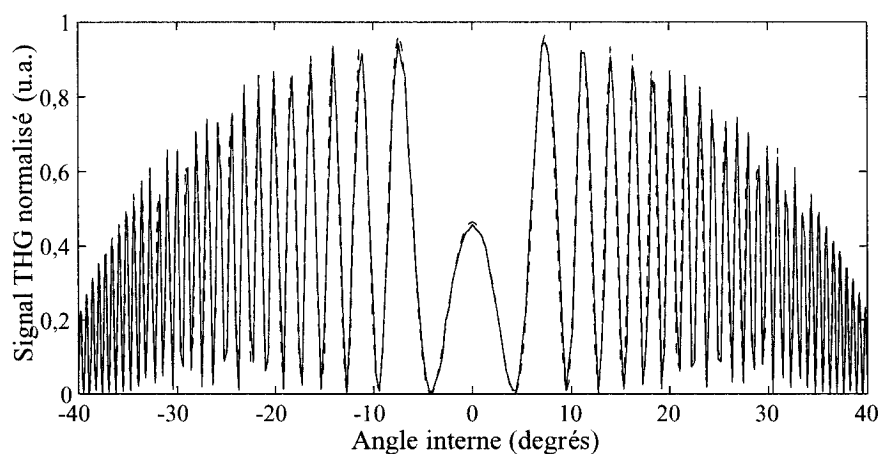


FIG. 5.3 – *Franges de Maker expérimentales (ligne continue) et simulées (ligne tiretée) pour la lame I7 dans la zone polée.*

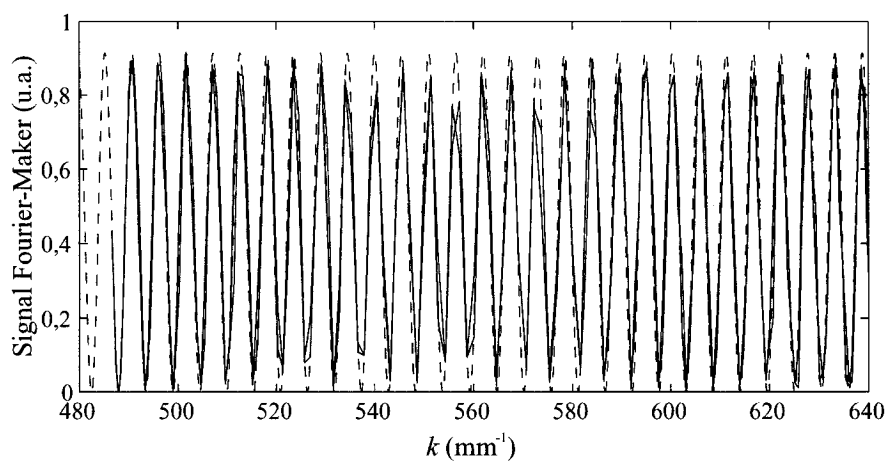


FIG. 5.4 – *Signal Fourier-Maker expérimental (ligne continue) et simulé (ligne tiretée) pour la lame I7 dans la zone polée.*

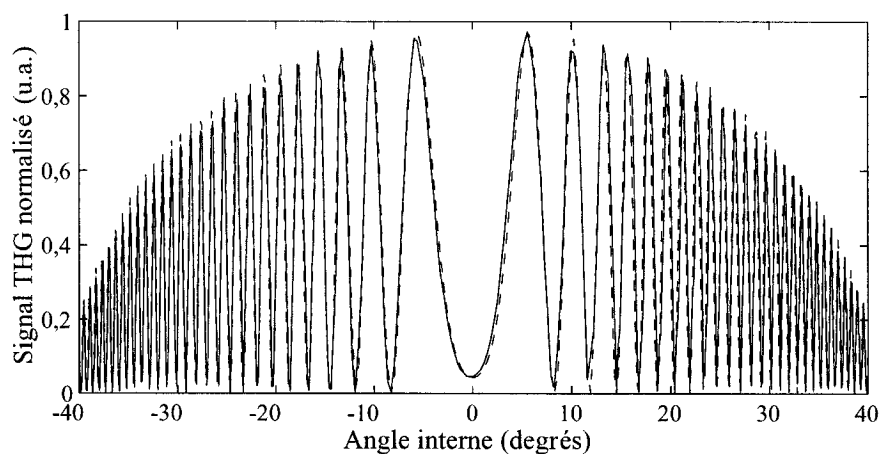


FIG. 5.5 – *Franges de Maker expérimentales (ligne continue) et simulées (ligne tiretée) pour la lame I7 dans la zone non-polée.*

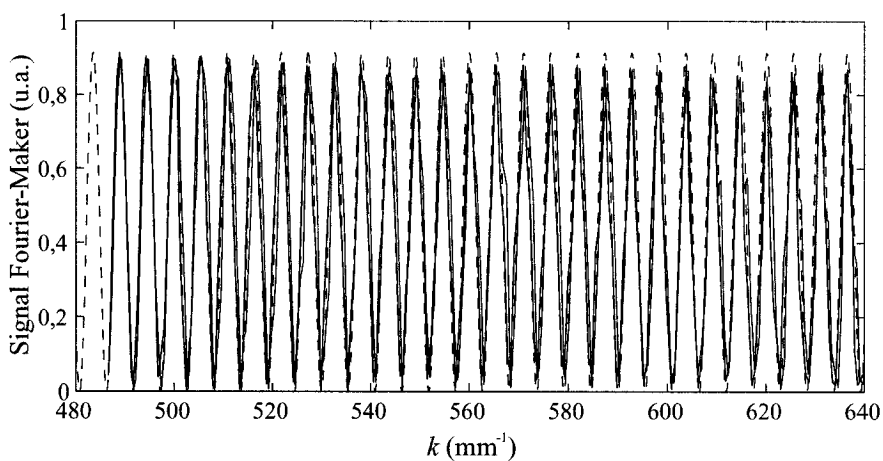


FIG. 5.6 – *Signal Fourier-Maker expérimental (ligne continue) et simulé (ligne tiretée) pour la lame I7 dans la zone non-polée.*

Les mesures ont été effectuées au centre géométrique de la lame I7, là où elle a été polée et aussi en périphérie où le poling n'a pas eu lieu. Nous remarquons que les signaux mesurés dans les deux zones sont similaires sauf pour les maxima et minima des franges qui sont déplacés : ceci provient de la différence d'épaisseur de la lame entre les zones polées et non polées évaluée à environ $3 \mu\text{m}$. Cette différence est suffisante pour générer la différence entre les signaux. Les lissages effectués sur ces courbes (ligne tiretée) ont déterminé qu'il n'y avait aucun changement dans la valeur de $\chi^{(3)}$. Il suffit d'ailleurs d'observer les signaux de Fourier-Maker pour ces deux mesures : on obtient bien un sinus carré tel que vu précédemment. Cette vérification a été effectuée sur les autres lames présentant d'importantes non-linéarités de second ordre et a mené aux mêmes conclusions.

Nous avons enfin effectué une dernière vérification afin de nous assurer que la symétrie du tenseur de $\chi^{(3)}$ était bien maintenue après le poling thermique (Equation 1.2). Nous avons effectué des mesures de franges de Maker pour les zones polées et non-polées avec un faisceau incident polarisé P ou S. Ces courbes sont présentées aux figures 5.7 et 5.8.

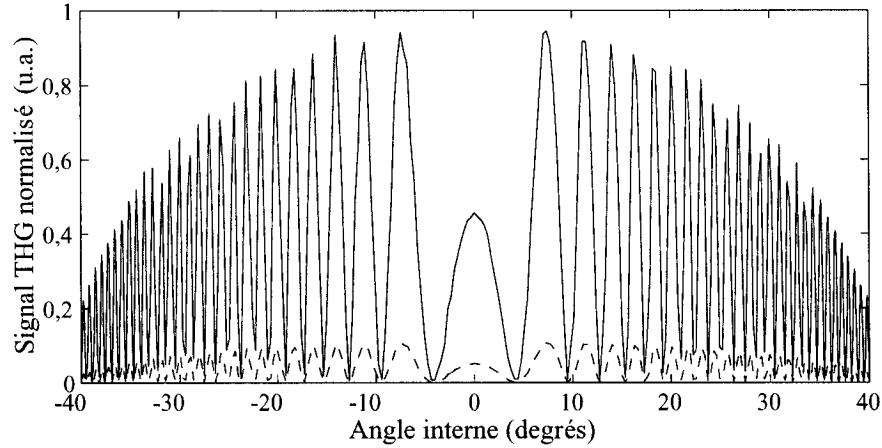


FIG. 5.7 – *Franges de Maker en polarisation P (ligne continue) et en polarisation S (ligne tiretée) pour la lame I7 dans la zone polée.*

Par inspection, nous constatons immédiatement que le rapport des amplitudes des signaux obtenus en polarisation P et S est proche de 9 ce qui respecte bien la symétrie du tenseur de $\chi^{(3)}$. Nous pouvons donc conclure de cette étude sur la génération de troisième harmonique que le poling thermique n'induit pas de changement dans l'amplitude de la susceptibilité de troisième ordre $\chi^{(3)}$. Il est néanmoins possible qu'une modification soit survenue sur une couche de moins de $0,5 \mu\text{m}$ qui est la plus petite couche détectable par cette méthode.

5.3 Mesure de la troisième harmonique pour la lame “batman”

Nous avons rencontré à la section 3.2.7 une lame présentant des pics importants lorsque mesurée en polarisation S par la méthode des franges de Maker. Nous avons alors conclu que l'indice de réfraction et l'absorption avaient été notablement changés lors du poling à haute température. Nous avons émis l'hypothèse qu'une structure

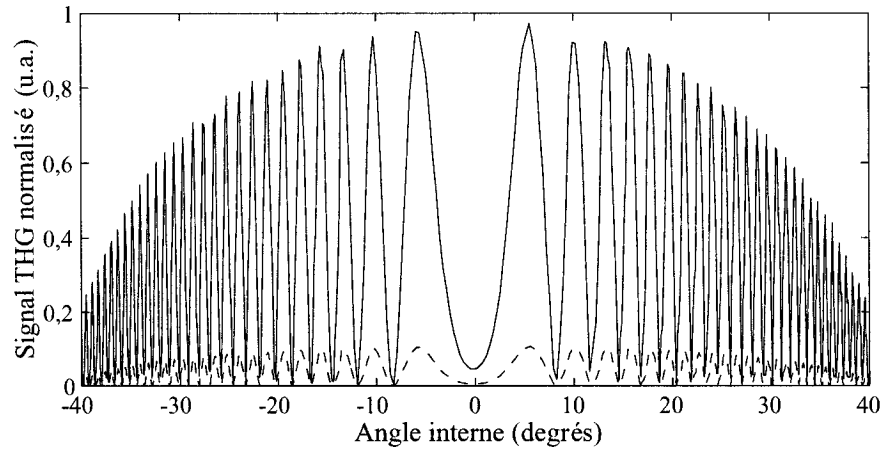


FIG. 5.8 – *Franges de Maker en polarisation P (ligne continue) et en polarisation S (ligne tiretée) pour la lame I7 dans la zone non-polée.*

périodique distribuée transversalement et pouvant provenir d'un poling asymétrique était responsable de cette asymétrie. Cette hypothèse demeure à confirmer. Nous avons repris cet échantillon et avons effectué des mesures de génération de troisième harmonique. Les résultats expérimentaux sont présentés aux figures 5.9 et 5.10.

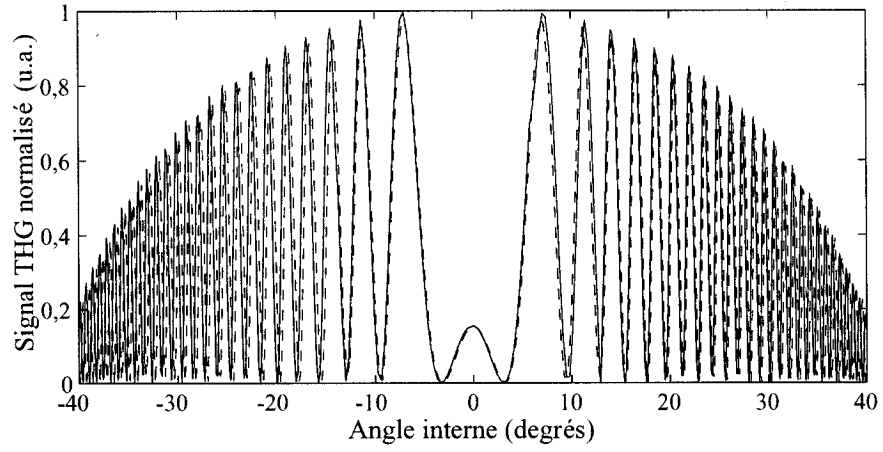


FIG. 5.9 – *Franges de Maker expérimentales (ligne continue) et simulées (ligne tiretée) pour la lame "batman" dans la zone polée.*

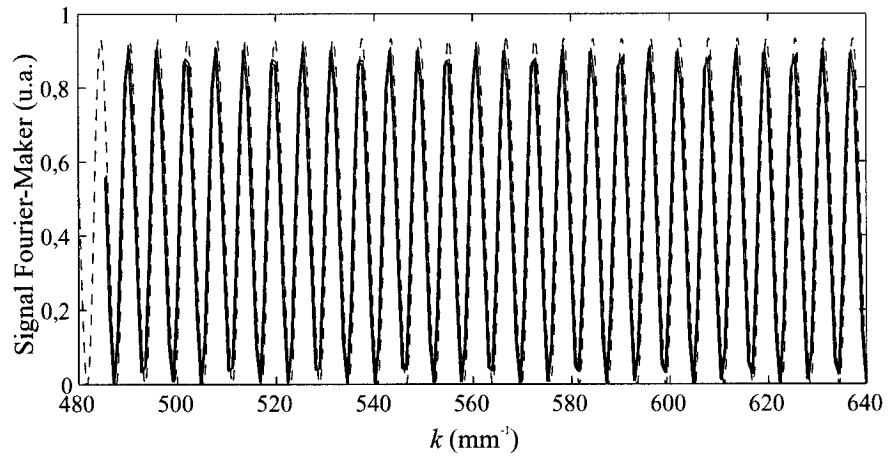


FIG. 5.10 – *Signal Fourier-Maker expérimental (ligne continue) et simulé (ligne tiretée) pour la lame "batman" dans la zone polée.*

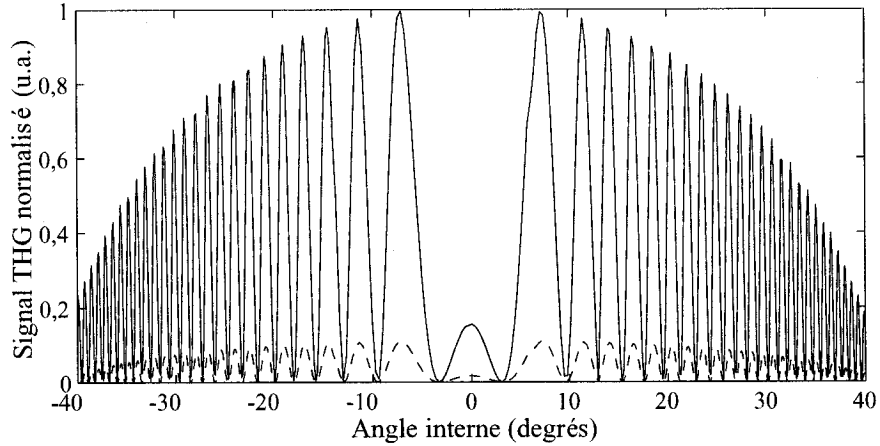


FIG. 5.11 – *Franges de Maker en polarisation P (ligne continue) et en polarisation S (ligne tiretée) pour la lame “batman” dans la zone polée.*

Nous avons effectué le même lissage qu’à la section précédente et avons obtenu que $\chi^{(3)}$ n’était pas modifié sur $1\ \mu\text{m}$. Puisque nous avons observé un fort effet de l’état de polarisation du faisceau de pompe sur le signal de second harmonique mesuré, nous avons également effectué des mesures pour les polarisations P et S. Les résultats sont présentés à la figure 5.11. On remarque que les deux signaux sont similaires et nous avons vérifié que le signal de troisième harmonique généré en polarisation P est bien neuf fois supérieur à celui généré en polarisation S. Donc, $\chi^{(3)}$ est bien demeuré inchangé pour cet échantillon tout comme pour les précédents. Il est toujours permis de supposer qu’une modification peut avoir eu lieu dans zone d’épaisseur inférieure à la limite de résolution de notre méthode ($0,5\ \mu\text{m}$). Ces observations renforcent donc notre hypothèse imputant l’apparition d’un signal asymétrique pour la génération de second harmonique à une structure périodique transversale (ou réseau de $\chi^{(2)}$) puisque cette structure est due au champ statique induit (E_{DC}) plutôt qu’à un changement de la non-linéarité de troisième ordre.

5.4 Conclusion

Nous avons vérifié dans ce chapitre que la non-linéarité de troisième ordre présente dans la silice n'est pas affectée par le processus de poling thermique dans nos échantillons. Nous avons modifié le montage de franges de Maker que nous avons établi afin de mesurer le signal de troisième harmonique. Nos résultats expérimentaux indiquent qu'il n'y a aucune modification de la susceptibilité de troisième ordre et que même la symétrie de son tenseur est maintenue. Le poling thermique n'induit donc pas de changements structuraux à la matrice vitreuse. Il est néanmoins possible qu'un changement soit survenu dans une zone dont l'épaisseur est inférieure à la résolution de notre technique (moins de $0,5 \mu\text{m}$). Ces résultats sont en contradiction avec ceux publiés dans la littérature qui rapportent un doublement de la susceptibilité non-linéaire de troisième ordre lors de mesures à fréquence optique. La nature de la mesure peut être responsable de cette différence car il a été déjà observé des différences lors de mesures de la susceptibilité non-linéaire de deuxième ordre à fréquence optique et électrique.

Cette observation nous permet de conclure que le modèle de migration ionique introduit succinctement au chapitre 1 ne peut être écarté comme origine de l'apparition d'une susceptibilité de second ordre dans les verres de silice qui en sont pourtant dépourvus.

Conclusion

La principale contribution de cette thèse consiste en l'introduction d'une technique expérimentale et d'une méthode d'analyse des données qui permettent de déterminer de façon précise la distribution spatiale de la susceptibilité non-linéaire de second ordre d'échantillons plans. Cette méthode a été appliquée à des lames de silice polées thermiquement.

Dans un premier temps, nous avons modifié la technique conventionnelle des franges de Maker en plaçant la lame à mesurer entre lentilles hémicylindriques : cette amélioration a permis d'augmenter considérablement l'angle interne jusqu'à un maximum de 83 degrés. Ceci permet de mesurer des couches d'environ $5\text{ }\mu\text{m}$ avec une précision de $0,75\text{ }\mu\text{m}$ et d'ainsi réduire l'incertitude sur la détermination de l'amplitude de la susceptibilité de second ordre. Nous avons également proposé de représenter les données expérimentales en fonction de la fréquence spatiale au lieu de l'angle interne. Cette représentation de Fourier-Maker permet de discriminer par simple inspection du signal expérimental si la distribution de la couche non-linéaire est uniforme ou pas. Dans le cas où elle est uniforme, il est possible de déterminer l'épaisseur de la couche et l'amplitude de la susceptibilité directement du signal expérimental. Qui plus est, cette représentation permet de déterminer de façon unique l'épaisseur de la couche non-linéaire ce qui réduit encore l'incertitude sur ces mesures.

Lors de l'application de cette technique expérimentale et de cette méthode d'analyse à des lames polées thermiquement d'Infrasil et de Suprasil, nous avons obtenu

des signaux beaucoup plus complexes que ce qui a pu être rapporté jusqu'à maintenant dans la littérature à l'exception d'un auteur [114] qui a utilisé une technique destructive. Ces résultats indiquent que le modèle simple à un porteur est inadéquat mettant en évidence l'effet de plusieurs porteurs.

En particulier, nous avons observé que la dynamique du poling thermique dans les verres de Suprasil et d'Infrasil était très différente. En effet, le temps de poling optimal pour le Suprasil est supérieur à 100 minutes alors qu'il est plutôt de moins de 15 minutes pour l'Infrasil. Ce résultat est en contradiction avec ce que l'on retrouve dans la littérature puisqu'il y est supposé que les temps de poling optimaux sont similaires. Il est vrai que les études effectuées dans la littérature ont généralement été effectuées sans lentilles et rarement pour le Suprasil.

Egalement, nous avons observé sur le signal des franges de Maker lames de Suprasil et sur certaines lames d'Infrasil la présence d'une surmodulation de courte période qui est due à la non-linéarité créée dans le volume de l'échantillon. Lors du lissage des signaux expérimentaux, il a été déterminé que le signe de la non-linéarité de surface et celui de la non-linéarité de volume sont opposés. Ce résultat est cohérent avec une des hypothèses du modèle migration ionique.

Nous avons aussi vérifié une autre hypothèse de ce modèle en effectuant des mesures de franges de Maker avec un faisceau polarisé P et S. L'amplitude de la susceptibilité de second ordre mesuré en polarisation P est 3 fois supérieure à celle mesurée en polarisation S : ceci supporte l'hypothèse du modèle de migration ionique selon laquelle la susceptibilité de second ordre est due à la rectification de celle de troisième ordre par le champ statique induit puisque la symétrie de la susceptibilité de troisième ordre est maintenue.

Nous avons proposé une technique expérimentale ainsi qu'une méthode d'analyse permettant de localiser la couche non-linéaire induite sous la surface anodique de

l'échantillon par le poling thermique. Cette technique consiste à accoler à l'échantillon à mesurer une lame de quartz dont la susceptibilité de second ordre est complètement déterminée, le tout étant placé entre lentilles hémicylindriques. Cette mesure interférométrique conserve l'information sur la phase du signal provenant de l'échantillon polé. En combinant ces mesures avec les mesures obtenues pour la lame polée et la lame de quartz séparément, il devient possible de localiser la position de la couche non-linéaire par rapport à la surface.

Afin de simplifier l'analyse des distributions de $\chi^{(2)}$ obtenues, nous avons calculé pour chacune d'elles la densité de charge nette. Nous avons observé la présence pour les lames d'Infrasil de deux zones de déplétion montrant la contribution d'au moins deux porteurs et ce même pour des poling courts de 15 minutes alors qu'une seule zone de déplétion est visible pour les lames de Suprasil. Cette constatation s'explique par la plus grande concentration de porteurs de charges pour l'Infrasil. Pour ces deux types de lames, nous avons observé l'injection de charges qui se traduit par l'enfouissement de la zone de déplétion et donc l'écrantage du champ statique induit. Pour les lames d'Infrasil polées longtemps (plus de 100 minutes), les zones de déplétion devraient tendre à disparaître puisque les charges injectées positives vont les neutraliser. C'est ce que l'on observe pour la lame I6 polée 100 minutes dont la densité de charge nette est inférieure à la densité de charge nette d'une lame d'Infrasil vierge.

De nombreuses lames présentent un enterrement plus ou moins sévère de la susceptibilité non-linéaire de second ordre sous la surface anodique. Le fait que $\chi^{(2)}$ est nul implique l'absence d'un champ statique et donc que cette zone est électriquement neutre. Notre explication est que tous les ions positifs ont quitté cette zone lors de la migration ionique alors que plus tard les charges négatives ont été arrachées. Cette hypothèse d'éjection de charges expliquerait à la fois la faible valeur de $\chi^{(2)}$ mesurée et son enterrement. L'origine de cette éjection est plus difficile à expliquer et nous

supposons qu'elle provient d'un claquage diélectrique lors du poling ou encore d'un champ statique induit proche de la limite théorique dans les verres de silice. Nous avons polé trois lames d'Infrasil dans des conditions similaires et nous avons observé expérimentalement un claquage lors du poling de deux de ces lames. La lame n'ayant pas subi de claquage présente une susceptibilité de second ordre située immédiatement sous la surface anodique alors que les deux autres lames présentent un enfouissement de leur susceptibilité.

Nous avons également observé que les lames d'Infrasil ayant subi des polings d'environ 15 minutes présentaient une susceptibilité de près de 0,5 pm/V sur une couche non-linéaire de 2 μm sous la surface anodique. Ce résultat est très proche de la limite théorique prévue par le modèle de migration ionique que nous avons supposé valide lors du traitement et de l'analyse des données. Ce modèle impliquant entre autres que la susceptibilité de second ordre présente la même symétrie que celle de troisième ordre et que l'amplitude de cette dernière demeure inchangée, nous avons entrepris de vérifier cette hypothèse par des mesures de troisième harmonique par la méthode des franges de Maker. Une modification de la susceptibilité de troisième ordre impliquerait qu'un processus autre que la migration ionique, l'orientation dipolaire, pourrait être responsable de l'apparition d'une susceptibilité de second ordre lors du poling thermique.

L'analyse des résultats expérimentaux obtenus a mis en évidence le fait que la susceptibilité de troisième ordre est inchangée après poling thermique et que la symétrie de son tenseur est maintenue. Ces résultats sont en contradiction avec ceux publiés dans la littérature qui rapportent un doublement de $\chi^{(3)}$ lors de mesures à fréquence électrique. Notre méthode ne pouvant permettre de détecter des modifications sur des couches de moins de 0,5 μm , il est possible que des modifications soient survenues dans cette région qui est d'ailleurs celle où le champ statique induit est le plus

élevé. Cette zone est donc plus susceptible de subir des modifications. Par ailleurs, il est possible que ces différences proviennent du fait que les mesures de la susceptibilité de troisième ordre soient effectuées à fréquence optique alors que les mesures électro-optiques sont effectuées à fréquence électrique. De telles différences ont déjà été observées lors de mesures de la susceptibilité de second ordre à fréquence optique et électrique.

L'objectif principal de cette thèse qui était de développer une technique permettant de déterminer avec précision la distribution et la localisation de la susceptibilité non-linéaire de second ordre dans des lames de silice polées à été atteint. Cette technique est néanmoins limitée car il n'est pas possible de mesurer des couches d'épaisseur inférieure à $5\text{ }\mu\text{m}$. On ne peut déterminer avec précision la forme de la non-linéarité dans cette zone située près de la surface anodique où le champ statique induit est le plus élevé alors que c'est précisément la zone la plus probable où d'autres mécanismes que la migration ionique peuvent entrer en jeu. Des techniques destructives ont été proposées permettant d'avoir une résolution submicronique : il serait intéressant de confirmer nos résultats avec ces techniques.

Deux améliorations peuvent être apportées à notre montage expérimental. La première consiste à augmenter l'angle interne maximal atteignable en remplaçant les lentilles de BK7 par des lentilles de silice éliminant la réfraction aux interfaces lentilles-lames. Ensuite, en étudiant des lames minces ($200\text{ }\mu\text{m}$), on réduira le déplacement du faisceau laser dans l'échantillon ce qui augmentera aussi la plage angulaire mesurable. En mettant en place ces deux modifications, il est possible d'ouvrir l'angle interne de 5° ce qui permettrait de pouvoir mesurer des couches aussi fines que $2\text{ }\mu\text{m}$. Pour ce qui est des mesures interférométriques, la technique ne nous permet pas de localiser la couche non-linéaire induite lorsque l'enfouissement est trop faible (moins de $0,5\text{ }\mu\text{m}$) où lorsque le signal généré par l'échantillon est faible en comparaison de

celui de la lame de référence de phase. Il faudrait utiliser une lame de référence dont la distribution de la non-linéarité est totalement déterminée et générant un faible signal.

Les observations expérimentales effectuées dans le cadre de cette thèse ne nous permettent pas d'écarter la migration ionique comme origine de l'apparition d'une susceptibilité non-linéaire d'ordre deux dans les verres de silice polée. En effet, au vu de nos résultats, $\chi^{(2)}$ présente la même symétrie que $\chi^{(3)}$ et l'amplitude de $\chi^{(3)}$ demeure inchangé. De plus, nous avons observé la présence d'une susceptibilité $\chi^{(2)}$ distribuée dans le volume de l'échantillon et dont le signe est l'inverse du signe de $\chi^{(2)}$ situé sous la surface anodique confirmant le modèle de migration ionique. Un doute subsiste toutefois sur la modification de l'amplitude de $\chi^{(3)}$ lors du poling thermique puisque nos observations sont contraires à ce qui est publié. Etant donné que les deux techniques de mesures sont différentes, il serait intéressant d'effectuer les expériences de génération de troisième harmonique et les mesures électro-optiques sur le même échantillon. La géométrie des fibres optiques n'étant pas propice à l'expériences des franges de Maker, l'échantillon adéquat serait un guide d'onde plan ou encore une lame avec des électrodes transparentes.

Enfin, afin de vérifier notre hypothèse d'éjection de charges négatives comme explication de l'enfouissement de $\chi^{(2)}$, il faudrait reprendre les mesures de courant d'émission de C. Matos et mesurer ensuite les lames à l'aide de notre méthode interférométrique. Également, afin de confirmer la corrélation entre $\chi^{(2)}$ éjection de charges et claquage diélectrique, la mesure systématique des courants lors du poling est nécessaire.

Les suggestions que nous faisons ici permettront d'améliorer la qualité et la quantité des informations disponibles sur les lames de silice polées thermiquement ce qui aide à la compréhension du processus de poling et donc à son optimisation.

Bibliographie

- [1] G. P. Agrawal, *Nonlinear fiber optics*, Optics and Photonics, Academic Press, San Diego, E.-U., 1995.
- [2] T. G. Alley, R. A. Myers et S. R. J. Brueck, "Temporal response of the second-order nonlinearity in poled bulk-fused silica under field reversal," SPIE **2841**, 202-208 (1996).
- [3] T. G. Alley, S. R. J. Brueck et R. A. Myers, "An ion exchange model for extended duration thermal poling of bulk fused silica," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals*, 293-295 (Williamsburg 1997).
- [4] T. G. Alley, et S. R. J. Brueck, "Visualisation of the nonlinear optical space-charge region of bulk thermally poled fused-silica glass," Opt. Lett. **23**, 1170-1172 (1998).
- [5] T. G. Alley, S. R. J. Brueck, et R. A. Myers, "Space charge dynamics in thermally poled fused silica," J. of Non-Cryst. Solids **242**, 165-176 (1998).
- [6] T. G. Alley, S. R. J. Brueck, et M. Wiedenbeck, "Secondary ion mass spectroscopy study of space-charge formation in thermally poled fused silica," J. of Appl. Phys. **86**, 6634-6640 (1999).
- [7] D. Z. Anderson, V. Mizrahi, et J. R. Sipe, "Model for second harmonic generation in glass optical fibers based on assymetric photoelectron emission from defect

- sites,” *Opt. Lett.* **16**, 786-788 (1991).
- [8] M. V. Bergot, M. C. Farries, M. E. Fermann, L. Liu, L. J. Poyntz-Wright, P. St-J. Russell et A. Smithson, “Generation of permanent optically induced second-order nonlinearities in optical fibers by poling,” *Opt. Lett.* **13**, 592-594 (1998).
 - [9] R. W. Boyd, *Nonlinear optics*, Academic Press, San Diego, E.-U., 1992.
 - [10] D. Braga, B. Poumellec, V. Cannas, G. Blaise, Y. Ren et M. Kristensen, “Secondary electron emission yield on poled silica based thick films,” *J. Appl. Phys.*, **96** 2390-2397, (2004).
 - [11] S. R. J. Brueck, X. C. Long, et T. G. Alley, “Second-order nonlinearities in poled fibers,” in *Proceedings of ECOC* (Madrid 1998).
 - [12] P. N. Butcher, et D. Cotter, *The elements of nonlinear optics*, Cambridge University Press, Cambridge, R.-U., 19.
 - [13] A. Le Calvez, E. Freysz, et A. Ducasse, “Experimental and theoretical study of the origin of the second order nonlinearities induced in thermally poled glasses,” in *OSA Technical Digest Series* (Williamsburg 1997).
 - [14] A. Le Calvez, E. Freysz, et A. Ducasse, “Second harmonic field generated in reflection by an inhomogeneous nonlinear polarization,” *Opt. Comm.*, **145** 135-140 (1997).
 - [15] A. Le Calvez, E. Freysz, et A. Ducasse, “A model for second harmonic generation in poled glasses,” *Eur. Phys. J. D* **1**, 223-226 (1998).
 - [16] D. E. Carlson, K. W. Hang, et G. F. Stockdale, “Ion depletion of glass at a blocking anode: properties of ion-depleted glass,” *J. Am. Ceram. Soc.* **57**, 295-300 (1974).
 - [17] C. Corbari, O. Deparis, B. G. Klappauf, et P. G. Kazansky, “Practical technique for measurement of second-order nonlinearity in poled glass,” *Electron. Lett.* **39**, 197-198 (2003).

- [18] C. M. B. Cordeiro, A. L. C. Triques, V. Balestrieri, P. M. P. Gouvea, W. Margulis, I. C. S. Carvalho, et B. Lesche, "Dependence of depletion-layer thickness on applied voltage in thermally poled fused silica," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals*, 112-114 (1999).
- [19] C. M. B. Cordeiro, C. Borges, L. C. G. Valente, I. C. S. Carvalho, B. Lesche, et W. Margulis, "Interferometric measurements of ionic diffusion in soda-lime glass," *J. Non-Cryst. Solids* **247**, 183-188 (1999).
- [20] O. Deparis, C. Corbari, P. G. Kazansky, et K. Sakaguchi, "Stability of the second-order optical nonlinearity in poled glasses," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals*, 216-217 (Stuart 1999).
- [21] E. M. Dianov, A. M. Prokhorov, V. O. Sokolov et V. B. Sulimov, "Theory of photoinduced second-harmonic generation in optical fibers," *Sov. Phys. JETP Lett.* **50**, 13-19 (1989).
- [22] E. M. Dianov, P. G. Kazansky, D. S. Starodubov, et D. Y. Stepanov, "Photoinduced second harmonic generation: observation of charge separation due to photovoltaic effect," *Sov. Light. Comm. Lett.* **2**, 83-88 (1991).
- [23] E. M. Dianov, P. G. Kazansky, D. S. Starodubov, et D. Y. Stepanov, "Photoinduced second harmonic generation: observation of motion of space charge regions," *Sov. Light. Comm. Lett.* **2**, 269-274 (1992).
- [24] E. M. Dianov, et D. S. Starodubov, "Photoinduced second harmonic generation in glasses and glass optical fibers," *Opt. Fib. Techn.* **1**, 3-16 (1994).
- [25] V. Dominic, et J. Feinberg, "High resolution map of the DC electric field in second harmonic generating glass," *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 2016-2022 (1994).
- [26] S. C. Fleming, T. Fujiwara, et D. Dong, "UV excited poling of germanosili-

- cate fibers,” in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals*, 180-183 (Portland 1995).
- [27] T. Fujiwara, M. Takahashi, et A. Ikushima, “Second-harmonic generation in UV poled germanosilicate glass,” in *Proceedings of ECOC* 119-122 (1997).
 - [28] T. Fujiwara, D. Wong, Y. Zhao, S. Fleming et M. Sceats, “Electro-optic modulation in germanosilicate fibre with UV-excited poling,” *Electron. Lett.* **31**, 573-575 (1995).
 - [29] T. Fujiwara, D. Wong, et S. Fleming, “Large electrooptic modulation in a thermally poled germanosilicate fiber,” *IEEE Phot. Techn. Lett.* **7**, 1041-1135 (1995).
 - [30] T. Fujiwara, D. Wong, Y. Zhao, S. Fleming, V. Grishina, et S. Poole, “UV-excited poling and electrically tunable Bragg gratings in a germanosilicate fiber,” in *OFC postdeadline papers*, (1995).
 - [31] T. Fujiwara, M. Takahashi, et A. Ikushima, “Large SHG in UV poled silica glass,” in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals*, 290-292 (Williamsburg 1997).
 - [32] T. Fujiwara, M. Takahashi, et A. Ikushima, “Second-harmonic generation in germanosilicate glass poled with ArF laser irradiation,” *Appl. Phys. Lett.* **71**, 1032-1034 (1997).
 - [33] T. Fujiwara, M. Takahashi, et A. Ikushima, “Decay Behaviour of second order nonlinearity in germanosilicate glass poled with UV irradiation,” *Electron. Lett.* **33**, 980-982 (1997).
 - [34] T. Fujiwara, S. Matsumoto, M. Ohama et A. J. Ikushima, “Origin and properties of second-order optical nonlinearity in ultraviolet-poled germanium glass,” *J. Non-Crystal. Sol.* **273**, 203-206 (2000).

- [35] F. C. Garcia, I. C. S. Carvalho, E. Hering, et W. Margulis, "Inducing a large second-order optical nonlinearity in soft glasses by poling," *Appl. Phys. Lett.* **72**, 3252-3254 (1998).
- [36] N. Godbout, *Effets non-linéaires de second ordre dans les verres de silice*, Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique de Montréal, 2000.
- [37] N. Godbout, S. Lacroix, Y. Quiquempois, G. Martinelli, et P. Bernage, "Measurement and calculation of electrostrictive effects in a twin-hole silica glass fiber," *J. Opt. Soc. Am. B* **17**, 1-5 (2000).
- [38] N. Godbout, et S. Lacroix, "Characterization of thermal poling in silica glasses by current measurements," *J. of Non-Cryst. Solids* **316**, 338-348 (2003).
- [39] N. Godbout, E. Nerat, V. Tréanton, et S. Lacroix, 'High-temperature poling of bulk silica glass: measurements of poling current and Maker fringes', in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals*, 510-512 (Monterey 2003).
- [40] E. Hecht, *Optics*, Addison Wesley, Reading, E.-U., 1998.
- [41] L. J. Henry, A. DeVilbiss, et T. E. Tsai, "Effect of water on the generation of second harmonic in poled fused silica," *SPIE* **2289**, 177-184 (1994).
- [42] L. J. Henry, A. D. DeVilbiss, and T. E. Tsai, "Effect of preannealing on the level of second-harmonic generation and defect sites achieved in poled low-water fused silica," *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 2037-2045 (1995).
- [43] L. J. Henry, B. V. McGrath, T. G. Alley, et J. Kester, "Optical nonlinearity in fused silica by proton implantation," *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 827-836 (1996).
- [44] W. N. Herman, and L. M. Hayden, "Maker fringes revisited: second harmonic generation from birefringent or absorbing materials," *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 416-427 (1995).

- [45] S. Horinouchi, H. Imai, G. J. Zhang, K. Mito, et K Sasaki, "Optical quadratic nonlinearity in multilayer corona poled glass film," *App. Phys. Lett.* **68**, 3552-3554 (1996).
- [46] H. Hosono, H. Kawazoe, et J. Nishii, "Defect formation in germanosilicate glasses studied by irradiation with excimer laser light," *Phys. Rev.* **53**, 921-924 (1996).
- [47] H. Imai, S. Horinouchi, N. Asakuma, et K. Fukao, "Effects of doping of H₂O and Na on second order nonlinearity in poled silica glass," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals* 203-206 (Williamsburg 1997).
- [48] H. Imai, S. Horinouchi, N. Asakuma, K. Fukao, D. Matsuki, H. Hirashima, et K. Sasaki, "Effects of introduction of sodium and water on second order nonlinearity in poled synthetic silica glass," *J. Appl. Phys.* **84**, 5415-5418 (1998).
- [49] R. Kashyap, G. D. Maxwell, et D. L. Williams, "Photoconduction in germanium and phosphorous doped silica waveguides," *Appl. Phys. Lett.* **62**, 214-216 (1993).
- [50] R. Kashyap, G. J. Veldhuis, D. C. Rogers, et P. F. Mckee, "Phase matched second-harmonic generation by periodic poling of fused silica," *Appl. Phys. Lett.* **64**, 1332-1334 (1994).
- [51] R. Kashyap, F. C. Garcia, et L. Vogelaar, "Nonlinearity of the electro-optic effect in poled waveguides," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals*, 210-212 (Monterey 2003).
- [52] R. Kashyap, "Why the $\chi^{(3)}$ of silica increases after poling," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals*, (Monterey 2003).
- [53] L. Vogelaar, F. C. Garcia, et R. Kashyap, "Poling of a channel waveguide," *Opt. Express.* **11**, 3041-3047 (2003).

- [54] P. G. Kazansky, et P. St-J. Russell, "High second order nonlinearities induced in lead silicate glass by electron beam irradiation," *Opt. Lett.* **18**, 693-695 (1993).
- [55] P. G. Kazansky, A. Kamal, et P. St-J. Russell, "Erasure of thermally poled second order nonlinearity in fused silica by electron implantation," *Opt. Lett.* **18**, 1141-1143 (1993).
- [56] P. G. Kazansky, L. Dong, et P. St-J. Russell, "High second order nonlinearities in poled silica fibers," *Opt. Lett.* **19**, 701-703 (1994).
- [57] P. G. Kazansky, L. Dong, et P. St. J. Russell, "Vacuum Poling: an improved technique for effective thermal poling of silica glass and germanosilicate optical fibres," *Electron. Lett.* **30**, 1345-1347 (1994).
- [58] P. G. Kazansky, et P. St. J. Russell, "Thermally poled glass: frozen-in electric field or oriented dipoles?," *Electron. Lett.* **30**, 1345-1347 (1994).
- [59] P. G. Kazansky, A. R. Smith, et P. St-J. Russell, "Laser induced pressure pulse probe of charge distribution in thermally poled glass: evidence of dipole polarization," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals* 175-178 (Portland 1995).
- [60] P. G. Kazansky, P. St-J. Russell, L. Dong, et C. N. Pannell, "Pockels effect in thermally poled silica optical fibres," *Electron. Lett.* **31**, 62-63 (1995).
- [61] P. G. Kazansky, A. R. Smith, P. St-J. Russell, G. M. Yang et G. M. Sessler, "Thermally poled silica glass: laser induced pressure pulse probe of charge distribution," *Appl. Phys. Lett.* **68**, 269-271 (1996).
- [62] P. G. Kazansky, P. St-J. Russell, et H. Takebe, "Glass fiber poling and applications," *J. Lightwave. Technol.* **15**, 1484-1493 (1997).
- [63] P. G. Kazansky, et V. Pruneri, "Electric field poling of quasi-phase matched optical fibers," *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 3170-3179 (1997).

- [64] P. G. Kazansky, et V. Pruneri, "Fundamentals of glass poling: from self-organization to electric field poling," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals* 305-307 (Williamsburg 1997).
- [65] J. H. Kyung, et N. M. Lawandy, "Direct observation of the effective $\chi^{(2)}$ grating in bulk glasses encoded for second harmonic generation," *Opt. Lett.* **21**, 632-634 (1996).
- [66] S. Kielich, "Optical Second-Harmonic Generation by Electrically Polarized Isotropic Media," *IEEE J. of Quantum Electron.* **QE-5**, 562-568 (1969).
- [67] A. Kudlinski, G. Martinelli, Y. Quiquempois, et H. Zeghlache, "Microscopic model for the second-order nonlinearity creation in thermally poled bulk silica glasses," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals*, 213-215 (Monterey 2003).
- [68] A. Kudlinski, Y. Quiquempois, H Zeghlache, and G. Martinelli, "Evidence of second-order nonlinear susceptibility sign reversal in thermally poled samples," *Appl. Phys. Lett.* **83**, 3242-3244 (2003).
- [69] B. Lesche, F. C. Garcia, E. N. Hering, W. Margulis, I. C. S. Carvalho, et F. Laurell, "Etching of silica glass under electric fields," *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2172-2175 (1997).
- [70] A. C. Liu, M. J. F. Digonnet, et G. S. Kino, "Electro-optic phase modulation in a silica channel waveguide," *Opt. Lett.* **19**, 466-468 (1994).
- [71] A. C. Liu, M. J. F. Digonnet, et G. S. Kino, "Characterization of the second order nonlinearity in poled fused silica," *SPIE* **2289**, 194-206 (1994).
- [72] A. C. Liu, M. J. F. Digonnet, et G. S. Kino, "A DC Kerr measurement in a silica channel waveguide," *SPIE* **2841**, 209-218 (1996).

- [73] A. C. Liu, M. J. F. Digonnet, G. S. Kino, et E. J. Knystautas, "Improved non-linear coefficient (0.7 pm/V) in silica thermally poled at high voltage and temperature," *Electron. Lett.* **36**, 555-556 (2000).
- [74] A. C. Liu, M. J. F. Digonnet, G. S. Kino, et E. J. Knystautas, "Measurement of the dc Kerr and electrostrictive phase modulation in silica," *J. Opt. Soc. Am. B* **18**, 187-194 (2001).
- [75] X.-M. Lui, et M.-D. Zhang, "Mechanism study for thermal/electric field poling of fused silica," *Intern. J. of Infrared and Millimeter Waves* **2**, 1643-1651 (2001).
- [76] X. C. Long, R. A. Myers, et S. R. J. Brueck, "Measurement of the linear electro-optic coefficient in poled amorphous silica," *Opt. Lett.* **19**, 1819-1821 (1994).
- [77] X. C. Long, et S. R. J. Brueck, "A thermally poled electrooptic fiber," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals* 204-206 (Williamsburg 1997).
- [78] X. C. Long, S. R. J. Brueck, "Large signal phase retardation with a poled electrooptic fiber," *IEEE Photonics Tech. Lett.* **9**, 767-769 (1997).
- [79] P. D. Maker, R. W. Terhune, M. Nisenoff, et C. M. Savage, "Effects of dispersion and focusing on the production of optical harmonics," *Phys. Rev. Lett.* **8**, 21-22 (1962).
- [80] I. H. Malitson, "Interspecimen comparison of the refractive index of fused silica," *J. Opt. Soc. Am.* **55**, 1205-1209 (1965).
- [81] W. Margulis, F. Laurell, et B. Lesche, "Imaging the nonlinear grating in frequency doubling fibres," *Lett. to Nature*, **378** 699-701 (1995).
- [82] W. Margulis, et F. Laurell, "Interferometric study of poled glass under etching," *Opt. Lett.* **21**, 1786-1788 (1996).
- [83] C. J. Marckmann, Y. Ren, G. Genty, et M. Kristensen, "Strength and symmetry of the third-order nonlinearity during poling of glass waveguides," *IEEE Photo-*

- nics. Tech. Lett. **14**, 1294-1296 (2002).
- [84] G. Martinelli, Y. Quiquempois, A. Kudlinski, et H. Zeghlache, "Method to improve thermal poling efficiency in silica glasses," Electron. Lett. **38**, 570-571 (2002).
 - [85] C. J. S. Matos, I. C. S. Carvalho, E. F. da Silveira, W. Margulis, R. R. Pinho, et B. Lesche, "Charge emission in thermal poling of glasses with carbon film anode," J. of Non-Cryst. Solids **273**, 25-29 (2000).
 - [86] A. Melloni, M. Frasca, A. Tonini, et M. Martinelli, "Direct measurement of electrostriction in optical fibers," Opt. Lett. **23**, 691-693 (1997).
 - [87] V. Mizrahi, U. Osterberg, C. Krautschik, G. I. Stegeman, J. E. Sipe, et T. F. Morse, "Direct test of a model of efficient second harmonic generation in glass optical fibers," Appl. Phys. Lett. **53**, 557-558 (1988).
 - [88] N. Mukherjee, R. A. Myers, et S. R. J. Brueck, "Dynamics of second-harmonic generation in fused silica," J. Opt. Soc. Am. B **11**, 665-669 (1994).
 - [89] R. A. Myers, N. Mukherjee, et S. R. J. Brueck, "Large second-order nonlinearity in poled fused silica," Opt. Lett. **11**, 1732-1734 (1991).
 - [90] R. A. Myers, X. C. Long, S. R. J. Brueck, et R. P. Tumminelli, "Effect of hydrogen loading on temperature-electric field poling of SiO_2 based thin films on Si," Electron. Lett. **31**, 191-198 (1995).
 - [91] H. Nasu, H. Okamoto, A. Mito, J. Matsuoka, et K. Kamiya, "Influence of the OH content on second harmonic generation from electrically polarized SiO_2 glasses," Jpn. J. Appl. Phys. **32**, 406-407 (1993).
 - [92] H. Nasu, H. Okamoto, K. Kurachi, J. Matsuoka, et K. Kamiya, "Second harmonic generation from electrically poled SiO_2 glasses: effects of OH concentration, defects and poling conditions," J. Opt. Soc. Am. B **12**, 644-649 (1995).

- [93] A. Okada, K. Ishii, K. Mito, K. Sasaki, "Phase matched second harmonic generation in novel corona poled glass waveguide," *Appl. Phys. Lett.* **60**, 2853-2855 (1992).
- [94] M. Ohama, T. Fujiwara, et A. J. Ikushima, "Decay behavior of UV induced defects in Ge doped SiO₂ glass," in *Proceedings of ECOC* 141-142 (Madrid 1998).
- [95] U. Osterberg, et W. Margulis, "Dye laser pumped by Nd:YAG laser pulses frequency doubled in a glass optical fiber," *Opt. Lett.* **11**, 516-518 (1986).
- [96] A. Ozcan, M. J. F. Digonnet, et G. S. Kino, "Cylinder-assisted Maker-fringe technique," *Electron. Lett.* **39**, 1834-1835 (2003).
- [97] A. Ozcan, M. J. F. Digonnet, et G. S. Kino, "Inverse Fourier transform technique to determine second-order optical nonlinearity spatial profiles," *Appl. Phys. Lett.* **82**, 1362-1364 (2003).
- [98] A. Ozcan, M. J. F. Digonnet, et G. S. Kino, "Simplified inverse Fourier transform technique to measure optical nonlinearity profiles using a reference sample," *Electron. Lett.* **40**, 551-2 (2004).
- [99] E. Popov, M. Nevriere, G. Blau, et R. Reinisch, "Numerical optimization of grating enhanced second harmonic generation in optical waveguide," *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 2390-2397 (1994).
- [100] B. Poumellec, Y. Ren, et M. Kristensen, "Surface topography change induced by poling in Ge doped silica glass films," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals*, 165-167 (Stuart 1999).
- [101] T. M. Proctor, et P. M. Sutton, "Static space-charge distributions with a single mobile charge carrier," *J. of Chem. Physics* **30**, 212-220 (1959).
- [102] T. M. Proctor, et P. M. Sutton, "Space-charge development in glass," *J. of Am. Ceram. Soc.* **43**, 173-179 (1960).

- [103] V. Pruneri, et P.G. Kazansky, "Electric field thermally poled optical fibers for quasi-phase matched second harmonic generation," *IEEE Photonics Tech. Lett.* **9**, 185-187 (1997).
- [104] V. Pruneri, et P.G. Kazansky, "Frequency doubling of picosecond pulses in periodically poled D-shape silica fibre," *Electron. Lett.* **33**, 318-319 (1997).
- [105] V. Pruneri, F. Samoggia, G. Bonfrate, P.G. Kazansky, et G. M. Yang, "Thermal poling of silica in air and vacuum: the influence of charge transport on second harmonic generation," *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2423-2425 (1999).
- [106] D. Pureur, A. C. Liu, M. J. F. Digonnet, et G. S. Kino, "Absolute prism assisted Maker fringe measurements of the nonlinear profile in thermally poled silica," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals* 299-301 (Williamsburg 1997).
- [107] D. Pureur, A. C. Liu, M. J. F. Digonnet, et G. S. Kino, "Absolute measurement of the second-order nonlinearity profile in poled silica," *Opt. Lett.* **23**, 588-590 (1998).
- [108] Y. Quiquempois, G. Martinelli, P. Bernage, M. Douay, P. Niay, E. Delevaque, H. Poignant, B. Loisel, et J. F. Bayon, "UV and thermal poling of germanosilicates fibers," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals* 207-209 (Williamsburg 1997).
- [109] Y. Quiquempois, G. Martinelli, P. Bernage, M. Douay, P. Niay, E. Delevaque, H. Poignant, B. Loisel, et J. F. Bayon, "Study of organized $\chi^{(2)}$ susceptibility in germanosilicate optical fibers," *Opt. Mat.* **39**, 361-367 (1998).
- [110] Y. Quiquempois, G. Martinelli, P. Niay, P. Bernage, M. Douay, J. F. Bayon, et H. Poignant, "Phoinscription of Bragg gratings within a germanosilicate fiber submitted to a high static electric field," *Opt. Lett.* **24**, 139-141 (1999).

- [111] Y. Quiquempois, *Création et caractérisation d'une susceptibilité non-linéaire d'ordre deux dans les verres massifs et dans les fibres optiques à base de silice*, Thèse de doctorat, Université des sciences et technologies de Lille, 1999.
- [112] Y. Quiquempois, G. Martinelli, P. Duthé, P. Bernage, P. Niay, et M. Douay, "Localisation of the induced second-order non-linearity within Infrasil and Suprasil thermally poled glasses," *Opt. Comm.* **176**, 479-487 (2000).
- [113] Y. Quiquempois, N. Godbout, et S. Lacroix, "Model of charge migration during thermal poling in silica glasses: Evidence of a voltage threshold for the onset of a second-order nonlinearity," *Phys. Rev. A* **65**, 1-14 (2002).
- [114] Y. Quiquempois, M. Lelek, A. Kudlinski, H. Zerglache, et G. Martinelli, "Nonlinear distribution reconstruction in poled silica glasses with a sub-micron resolution," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals*, 256-258 (Monterey 2003).
- [115] H. Rabin, et C. L. Tang, *Quantum Electronics: a Treatise*, Nonlinear Optics Part B, Academic Press, San Diego, E.-U., 1975.
- [116] V. Rodriguez, et C. Sourisseau, "General Maker-fringe ellipsometric analysis in multilayer nonlinear and linear anisotropic media," *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 2650-2664 (2002).
- [117] J. E. Shelby, "Protonic species in vitreous silica," *J. of Non-Cryst. Solids*, **174**, 138-147 (1994).
- [118] R. H. Stolen, et H. W. K. Tom, "Self-organized phase-matched harmonic generation in optical fibers," *Opt. Lett.* **12**, 585-587 (1987).
- [119] M. Takahashi, T. Fujiwara, T. Kawashi, et A. J. Ikushima, "Defect formation in GeO₂-SiO₂ glass by poling with ArF laser excitation," *Appl. Phys. Lett.* **71**, 993-995 (1997).
- [120] M. Takahashi, T. Fujiwara, T. Kawashi, et A. J. Ikushima, "Thermal equili-

- brum of Ge related defects in a $\text{GeO}_2\text{-SiO}_2$ glass,” Appl. Phys. Lett. **72**, 1287-1289 (1998).
- [121] H. Takebe, P. G. Kazansky, P. St-J. Russell, et K. Morigana, “Effect of poling conditions on second harmonic generation in fused silica,” Opt. Lett. **21**, 468-470 (1995).
- [122] K. Tanaka, K. Kashima, K. Hirao, N. Soga, S. Yamagata, A. Mito, et H. Nasu, “Effect of γ irradiation on optical second harmonic intensity of electrically poled silica glass,” Jpn. Appl. Phys. **34**, 173-174 (1995).
- [123] K. Tanaka, A. Narazaki, Y. Yonezaki, et K. Hirao, “Poling-induced structural change and second order nonlinearity in Na doped $\text{Nb}_2\text{O}_5\text{-TeO}_2$ glass,” J. Phys. Condens. Matter **12**, 513-518 (2000).
- [124] R. W. Terhune, et D. A. Weinberger, “Second harmonic generation in fibers,” J. Opt. Soc. Am. B **4**, 661-668 (1987).
- [125] V. Tréanton, S. Lacroix, et N. Godbout, ‘Novel analysis technique to determine $\chi^{(2)}$ distributions in poled glass samples with Maker fringes,” in *Proceedings of Photonics North*, 510-512 (Montreal 2003).
- [126] V. Tréanton, N. Godbout, et S. Lacroix, “An interferometric Maker fringe experiment to reconstruct the $\chi^{(2)}$ profile of poled silica plates,” in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals*, 510-512 (Monterey 2003).
- [127] V. Tréanton, N. Godbout, et S. Lacroix, “An interferometric Maker fringe experiment to reconstruct the $\chi^{(2)}$ profile of poled silica plates,” J. Opt. Soc. Am. B **19**, 2650-2664 (2004).
- [128] A. L. C. Triques, C. M. B. Cordeiro, V. Balestrieri, B. Lesche, W. Margulis, et I. C. S. Carvalho, “Depletion region in thermally poled fused silica,” Appl. Phys. Lett. **76**, 2496-2498 (2000).

- [129] A. L. C. Triques, M. F. Moreira, H. R. Carvalho, I. C. S. Carvalho, B. Lesche, et W. Margulis, "Time evolution study of thermally poled silica," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals*, (Stresa 2001).
- [130] A. Von Hippel, E. P. Gross, J. G. Jelatis, et M. Geller, "Photocurrent, Space-charge buildup and field emission in alkali halide crystals," *Phys. Rev.* **91**, 568-579 (1953).
- [131] N. Wada, K. Morinaga, H. Takebe, V. Pruneri, et P. G. Kazansky, "Effect of minority species on thermal poling of fused silica glasses," in *Proceedings of Bragg Gratings, Photosensitivity and Poling in Glass Fibers and Waveguides: Applications and Fundamentals* 296-298 (Williamsburg 1997).
- [132] P. S. Weitzman, J. J. Kester, et U. Osterberg, "Electric field induced harmonic generation in germanium doped silica planar waveguides," *Elect. Lett.* **30**, 697-698 (1994).
- [133] D. Wong, W. Xu, S. Fleming, M. Janos, et K. M. Lo, "Frozen-in electrical field in thermally poled fibers," *Opt. Fibre Technol.* **65**, 235-241 (1999).
- [134] D. Wong, W. Xu, J. Arentoft, et S. Fleming, "Frozen-in electrical field in thermally poled fibers," in *OFC/IOOC'99 Technical Digest* 90-93 (San Diego 1999).
- [135] W. Xu, D. Wong, et S. Fleming, "Evolution of linear electro-optic coefficients and third order nonlinearity during prolonged negative thermal poling of silica fibre," *Electron Lett.* **35**, 922-923 (1999).

Annexe A

Paramètres physiques de la silice

L'indice de réfraction n de la silice en fonction de la longueur d'onde pour la température ambiante est donné par

$$n = \sqrt{1 + \frac{0,6961663\lambda^2}{\lambda^2 - (0,0684043)^2} + \frac{0,4079426\lambda^2}{\lambda^2 - (0,1162414)^2} + \frac{0,8974794\lambda^2}{\lambda^2 - (9,896161)^2}} \quad (\text{A.1})$$

où λ est la longueur d'onde exprimée en μm . Ce résultat est tracé à la figure A.1. La vitesse de groupe et la dispersion de vitesse groupe sont présentées aux figures A.2 et A.3 respectivement. Ces données proviennent de Malitson [80].

A la section 2.1.3, nous avons introduit les relations donnant les coefficients de transmission en intensité pour la traversée d'un dioptré (équations A.2 et A.3). Rappelons ces équations :

$$T_P = \frac{4n_i n_t \cos \theta_i \cos \theta_t}{(n_i \cos \theta_t + n_t \cos \theta_i)^2} \quad (\text{A.2})$$

$$T_S = \frac{4n_i n_t \cos \theta_i \cos \theta_t}{(n_i \cos \theta_i + n_t \cos \theta_t)^2}. \quad (\text{A.3})$$

Lors de la traversée d'une lame à face parallèles placée dans l'air, il faut tenir compte des deux interfaces. En appliquant les équations précédentes aux deux interfaces, nous obtenons les relations suivantes décrivant la transmission à la sortie de la lame pour

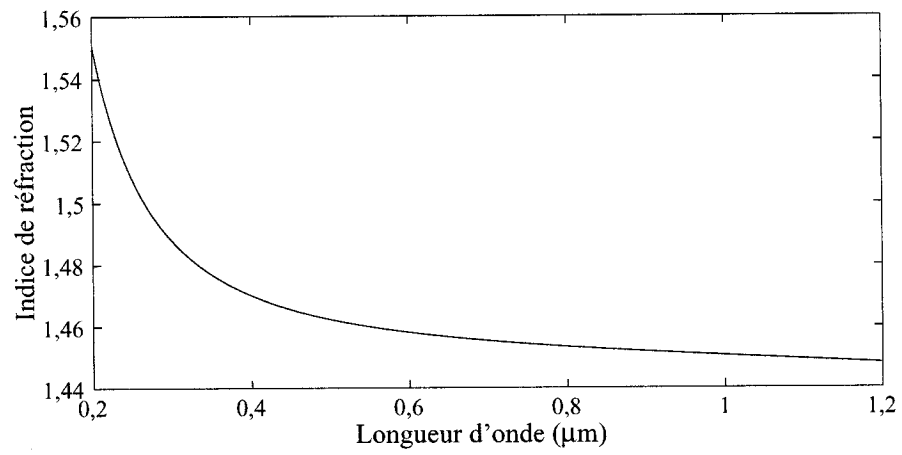


FIG. A.1 – *Indice de réfraction de la silice à 20°C selon l'équation A.1.*

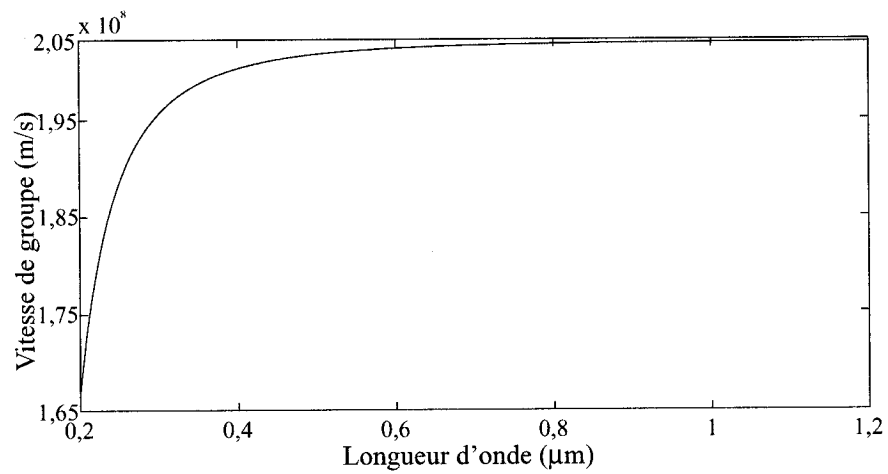


FIG. A.2 – *Vitesse de groupe de la silice à 20°C selon les données de l'équation A.1.*

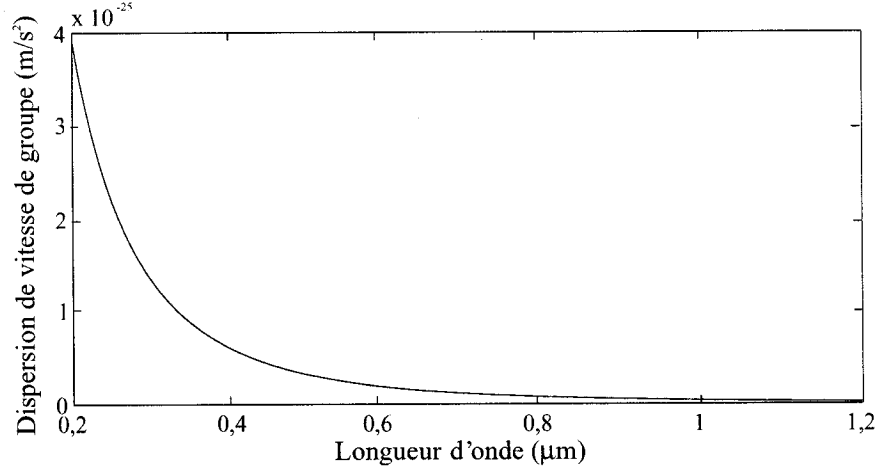


FIG. A.3 – *Dispersion de la vitesse de groupe de la silice à 20°C selon les données de l'équation A.1.*

les polarisations P et S :

$$T_P = \frac{16(n_t \cos \theta_i \cos \theta_t)^2}{(\cos \theta_t + n_t \cos \theta_i)^4} \quad (\text{A.4})$$

$$T_S = \frac{16(n_t \cos \theta_i \cos \theta_t)^2}{(\cos \theta_i + n_t \cos \theta_t)^4}. \quad (\text{A.5})$$

Si maintenant on se place à incidence normale, donc $\theta_i = \theta_t$, et que l'on fait varier l'indice de réfraction de la lame (n_t), on peut tracer la transmission en fonction de l'indice de réfraction. Evidemment, à incidence normale, la transmission est identique pour les deux polarisations.

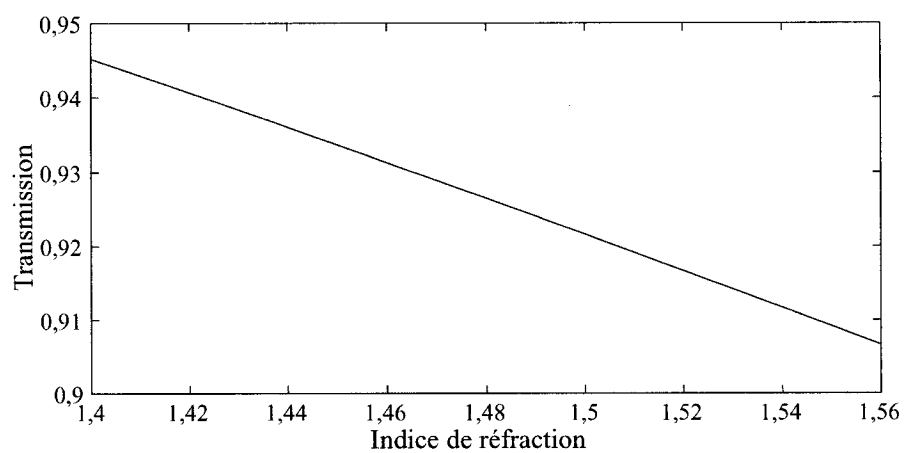


FIG. A.4 – *Facteurs de transmission en fonction de l'indice de réfraction pour la traversée d'une lame à faces parallèles à incidence normale.*

Annexe B

Notation contractée des indices

La susceptibilité de second ordre est exprimée en général comme $\chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_m - \omega_n, \omega_m, \omega_n)$ où les indices i, j et k se rapportent aux axes x, y , et z du référentiel du matériau. Les indices m et n représentent les longueurs d'ondes impliquées dans le processus. Pour un matériau sans pertes, il est possible de permuter les indices (i, j, k) si l'on permute simultanément les fréquences. Ainsi :

$$\begin{aligned}\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) &= \chi_{jki}^{(2)}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega_3) = \chi_{kij}^{(2)}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) \\ &= \chi_{ikj}^{(2)}(\omega_3 = \omega_2 + \omega_1) = \chi_{jik}^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) \\ &= \chi_{kji}^{(2)}(\omega_2 = -\omega_1 + \omega_3)\end{aligned}\quad . \quad (\text{B.1})$$

Les conditions de symétrie de Kleinman pour ce tenseur supposent que la susceptibilité non-linéaire est indépendante de la fréquence. L'expression précédente devient :

$$\begin{aligned}\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) &= \chi_{jki}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi_{kij}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) \\ &= \chi_{ikj}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi_{jik}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) \\ &= \chi_{kji}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)\end{aligned}\quad . \quad (\text{B.2})$$

Ceci constitue les conditions de symétrie de Kleinman.

Supposons maintenant que $\chi_{ijk}^{(2)}$ est symétrique pour ces deux derniers indices (jk).

Ceci est vrai si les conditions de symétrie de Kleinman sont respectées : on peut donc

TAB. B.1 – *Indices contractés.*

jk	11	22	33	23, 32	31, 13	12, 21
i	1	2	3	4	5	6

introduire une matrice contractée $\chi_{il}^{(2)}$ en utilisant les définitions de la table B.1. Le tenseur de susceptibilité de second ordre se réduit à une matrice 3 x 6 :

$$\chi_{il}^{(2)} = \begin{pmatrix} \chi_{11}^{(2)} & \chi_{12}^{(2)} & \chi_{13}^{(2)} & \chi_{14}^{(2)} & \chi_{15}^{(2)} & \chi_{16}^{(2)} \\ \chi_{21}^{(2)} & \chi_{22}^{(2)} & \chi_{23}^{(2)} & \chi_{24}^{(2)} & \chi_{25}^{(2)} & \chi_{26}^{(2)} \\ \chi_{31}^{(2)} & \chi_{32}^{(2)} & \chi_{33}^{(2)} & \chi_{34}^{(2)} & \chi_{35}^{(2)} & \chi_{36}^{(2)} \end{pmatrix} \quad (\text{B.3})$$

En appliquant les conditions de Kleinman, on réalise que seuls 10 des 18 éléments de cette matrice sont indépendants. En permutant les indices ij , on obtient

$$\begin{aligned} \chi_{12}^{(2)} &= \chi_{122}^{(2)} = \chi_{212}^{(2)} = \chi_{26}^{(2)} \\ \chi_{13}^{(2)} &= \chi_{133}^{(2)} = \chi_{313}^{(2)} = \chi_{35}^{(2)} \\ \chi_{14}^{(2)} &= \chi_{123}^{(2)} = \chi_{213}^{(2)} = \chi_{25}^{(2)} \\ \chi_{15}^{(2)} &= \chi_{131}^{(2)} = \chi_{311}^{(2)} = \chi_{31}^{(2)} \\ \chi_{16}^{(2)} &= \chi_{121}^{(2)} = \chi_{211}^{(2)} = \chi_{21}^{(2)} \\ \chi_{23}^{(2)} &= \chi_{233}^{(2)} = \chi_{323}^{(2)} = \chi_{34}^{(2)} \\ \chi_{24}^{(2)} &= \chi_{232}^{(2)} = \chi_{322}^{(2)} = \chi_{32}^{(2)} \\ \chi_{25}^{(2)} &= \chi_{231}^{(2)} = \chi_{321}^{(2)} = \chi_{36}^{(2)} \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

ce qui donne une matrice $\chi_{il}^{(2)}$ simplifiée :

$$\chi_{il}^{(2)} = \begin{pmatrix} \chi_{11}^{(2)} & \chi_{12}^{(2)} & \chi_{13}^{(2)} & \chi_{14}^{(2)} & \chi_{15}^{(2)} & \chi_{16}^{(2)} \\ \chi_{16}^{(2)} & \chi_{22}^{(2)} & \chi_{23}^{(2)} & \chi_{24}^{(2)} & \chi_{14}^{(2)} & \chi_{12}^{(2)} \\ \chi_{15}^{(2)} & \chi_{24}^{(2)} & \chi_{33}^{(2)} & \chi_{23}^{(2)} & \chi_{13}^{(2)} & \chi_{14}^{(2)} \end{pmatrix} \quad (\text{B.5})$$

Cette notation a été utilisée au Chapitre 2.

Annexe C

Facteurs de Fresnel : cas où le faisceau pompe et celui de second harmonique sont non-colinéaires

A la section 2.1.3 du chapitre 2, nous avons présenté la démarche permettant de calculer les facteurs de Fresnel pour le cas où faisceau pompe et de second harmonique sont colinéaires. Nous allons maintenant nous attarder au cas non-colinéaire qui est particulièrement utile lors de mesures de franges de Maker effectuées entre lentilles.

Les coefficients de transmission pour les deux polarisations usuelles parallèle (notée P) et perpendiculaire (notée S) au plan d'incidence sont données par les équations 2.39 et 2.40 de la section 2.1.3 où les indices i et t indiquent le milieu d'incidence et le milieu de transmission. Ces coefficients sont, pour l'interface air-verre, donnés par

$$T_{P(12)} = \frac{4n_\omega \cos \theta_i \cos \theta_\omega}{(\cos \theta_\omega + n_\omega \cos \theta_i)^2} \quad (\text{C.1})$$

$$T_{S(12)} = \frac{4n_\omega \cos \theta_i \cos \theta_\omega}{(\cos \theta_i + n_\omega \cos \theta_\omega)^2} \quad (\text{C.2})$$

où les indices 1 et 2 se rapportent respectivement à l'air et au verre. Pour la seconde

interface, verre-air, ces coefficients sont donnés par

$$T_{P(21)} = \frac{4n_{2\omega} \cos \theta_i \cos \theta_{2\omega}}{(\cos \theta_{2\omega} + n_{2\omega} \cos \theta_i)^2} \quad (\text{C.3})$$

$$T_{S(21)} = \frac{4n_{2\omega} \cos \theta_i \cos \theta_{2\omega}}{(\cos \theta_i + n_{2\omega} \cos \theta_{2\omega})^2}. \quad (\text{C.4})$$

Enfin, en vertu de l'équation 2.41, nous pouvons calculer le coefficient de transmission total pour les deux polarisations. Rappelons cette équation qui tient compte de la dépendance quadratique de la puissance de second harmonique sur la puissance de pompe :

$$T_{tot} = T_{12}^2 T_{21}. \quad (\text{C.5})$$

Enfin, en combinant ces équations, nous obtenons les coefficients de transmission totaux pour les deux polarisations dans le cas non-colinéaire :

$$T_{tot,P} = 64 \frac{n_{2\omega} n_{\omega}^2 \cos^3 \theta_i \cos^2 \theta_{\omega} \cos \theta_{2\omega}}{(\cos \theta_{\omega} + n_{\omega} \cos \theta_i)^4 (n_{2\omega} \cos \theta_i + \cos \theta_{2\omega})^2} \quad (\text{C.6})$$

$$T_{tot,S} = 64 \frac{n_{2\omega} n_{\omega}^2 \cos^3 \theta_i \cos^2 \theta_{\omega} \cos \theta_{2\omega}}{(\cos \theta_i + n_{\omega} \cos \theta_{\omega})^4 (n_{2\omega} \cos \theta_{2\omega} + \cos \theta_i)^2}. \quad (\text{C.7})$$

Annexe D

Etude de sensibilité des mesures interférométriques

Nous présentons ici les vérifications faites sur la détermination de la position de la couche non-linéaire induite par le poling. Ces comparaisons ont pour but d'évaluer la précision de la valeur de l'enterrement de la couche non-linéaire telle que déduite des mesures interférométriques. Certaines d'entre elles ont été discutées à la section 4.3.5. Pour chacune des lames étudiées, nous avons présenté sur la même figure la courbe expérimentale, une courbe simulée en utilisant l'épaisseur d'enterrement issue du meilleur lissage ainsi qu'une courbe simulée en utilisant une autre profondeur d'enterrement.

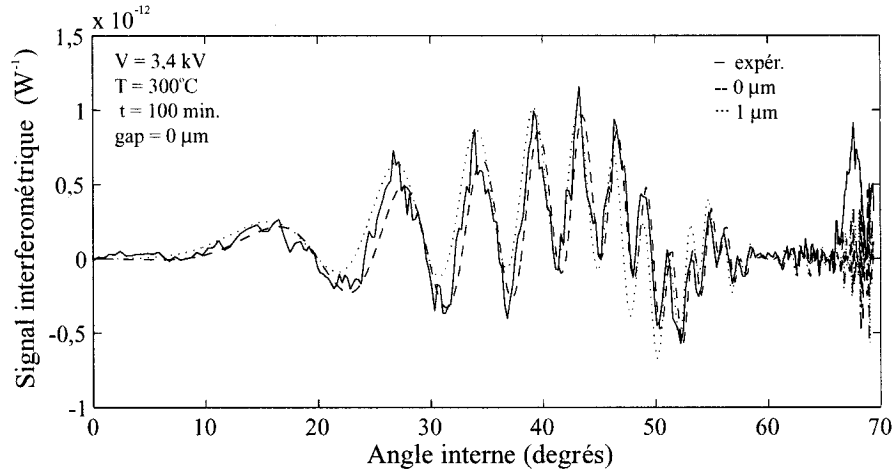


FIG. D.1 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I4 (ligne continue), simulé avec un enfouissement de 0 μm (ligne tiretée) et simulé avec un enfouissement de 1 μm (ligne pointillée).*

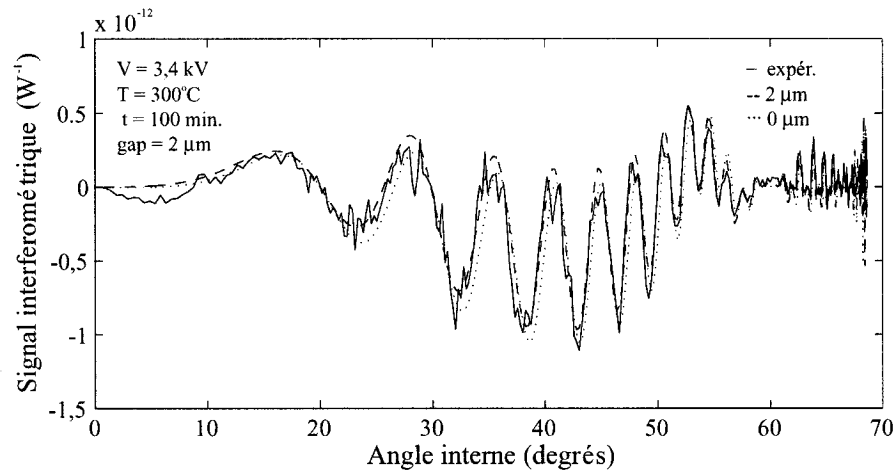


FIG. D.2 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I5 (ligne continue), simulé avec un enfouissement de 2 μm (ligne tiretée) et simulé avec un enfouissement de 0 μm (ligne pointillée).*

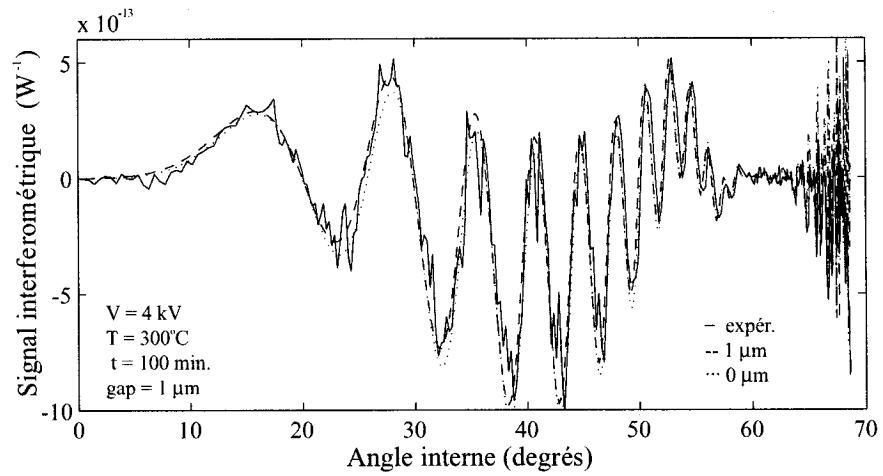


FIG. D.3 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I6 (ligne continue), simulé avec un enfouissement de 1 μm (ligne tiretée) et simulé avec un enfouissement de 0 μm (ligne pointillée).*

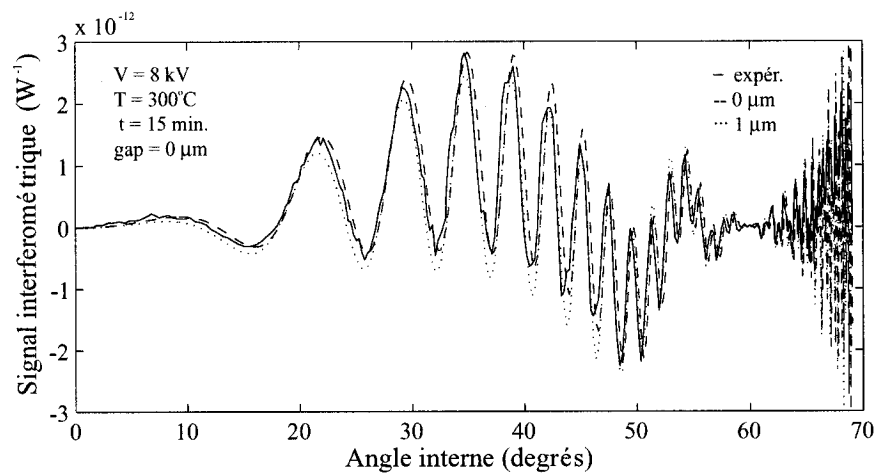


FIG. D.4 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I7 (ligne continue), simulé avec un enfouissement de 0 μm (ligne tiretée) et simulé avec un enfouissement de 1 μm (ligne pointillée).*

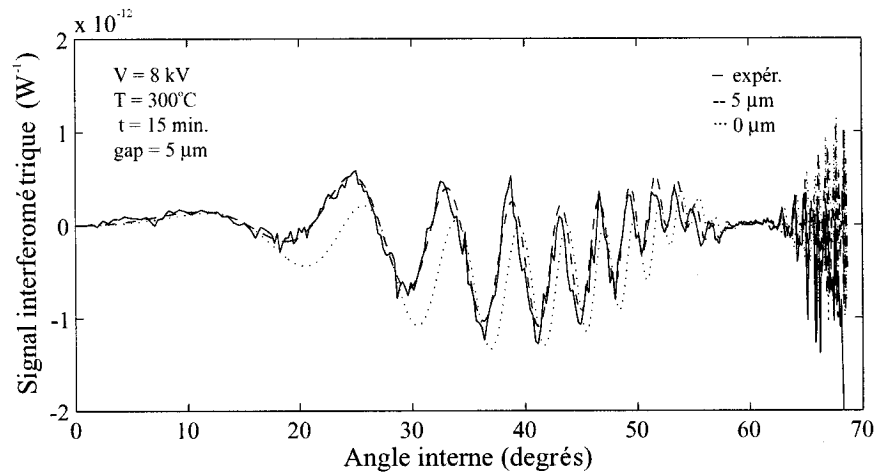


FIG. D.5 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame I8 (ligne continue), simulé avec un enfouissement de 5 μm (ligne tiretée) et simulé avec un enfouissement de 0 μm (ligne pointillée).*

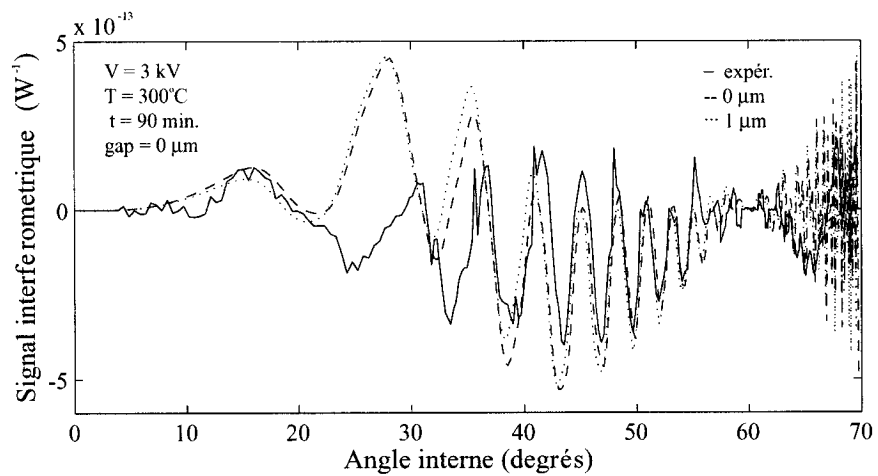


FIG. D.6 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S1 (ligne continue), simulé avec un enfouissement de 0 μm (ligne tiretée) et simulé avec un enfouissement de 1 μm (ligne pointillée).*

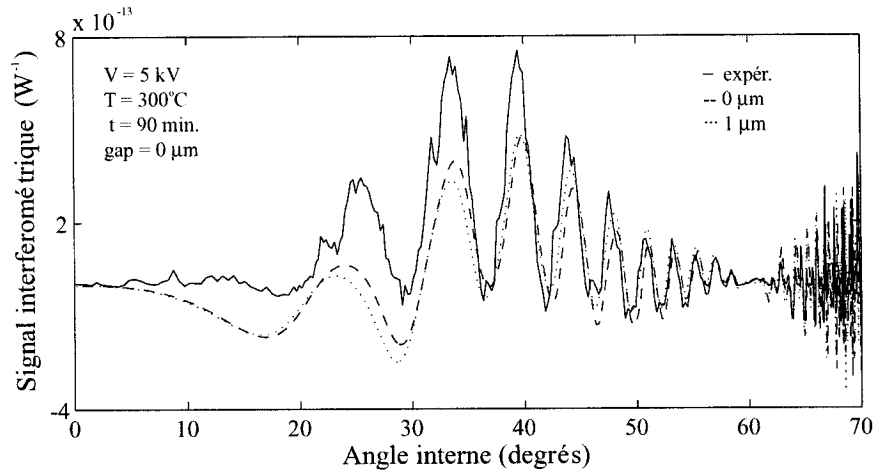


FIG. D.7 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S2 (ligne continue), simulé avec un enfouissement de $0 \mu\text{m}$ (ligne tiretée) et simulé avec un enfouissement de $1 \mu\text{m}$ (ligne pointillée).*

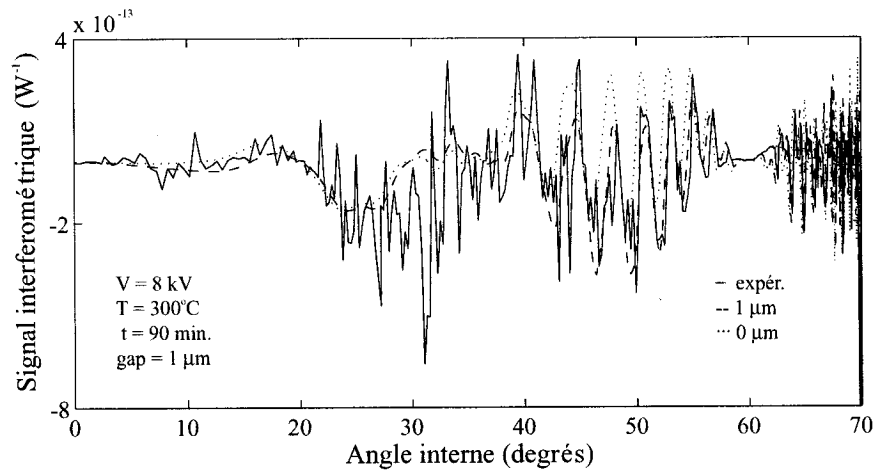


FIG. D.8 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S4 (ligne continue), simulé avec un enfouissement de $1 \mu\text{m}$ (ligne tiretée) et simulé avec un enfouissement de $0 \mu\text{m}$ (ligne pointillée).*

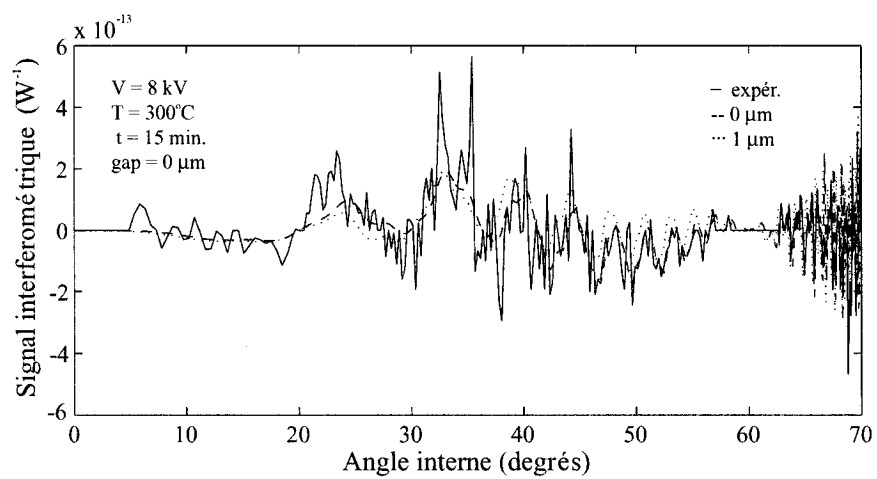


FIG. D.9 – *Signal interférométrique expérimental pour l'empilement de la lame S5 (ligne continue), simulé avec un enfouissement de $0 \mu\text{m}$ (ligne tiretée) et simulé avec un enfouissement de $1 \mu\text{m}$ (ligne pointillée).*

Annexe E

Facteurs de Fresnel pour la GTH

Dans le cas de la génération de troisième harmonique, les coefficients de transmission pour les deux polarisations sont donnés par les équations E.1 et E.2 pour l'interface air-verre et par les équations E.3 et E.4 pour l'interface verre-air. Ces facteurs sont donnés pour le cas où faisceau pompe et harmonique sont colinéaires.

$$T_{P(12)} = \frac{4n_\omega \cos \theta_i \cos \theta_\omega}{(\cos \theta_\omega + n_\omega \cos \theta_i)^2} \quad (\text{E.1})$$

$$T_{S(12)} = \frac{4n_\omega \cos \theta_i \cos \theta_\omega}{(\cos \theta_i + n_\omega \cos \theta_\omega)^2} \quad (\text{E.2})$$

$$T_{P(21)} = \frac{4n_{3\omega} \cos \theta_i \cos \theta_{3\omega}}{(\cos \theta_{3\omega} + n_{3\omega} \cos \theta_i)^2} \quad (\text{E.3})$$

$$T_{S(21)} = \frac{4n_{3\omega} \cos \theta_i \cos \theta_{3\omega}}{(\cos \theta_i + n_{3\omega} \cos \theta_{3\omega})^2}. \quad (\text{E.4})$$

L'équation 5.4 de la section 5.1.1 implique que la puissance de troisième harmonique dépend comme le cube de la puissance pompe. Par conséquent, le coefficient de transmission total est donné par

$$T_{tot} = T_{12}^3 T_{21}. \quad (\text{E.5})$$

En combinant ces équations, nous obtenons les coefficients de transmission totaux

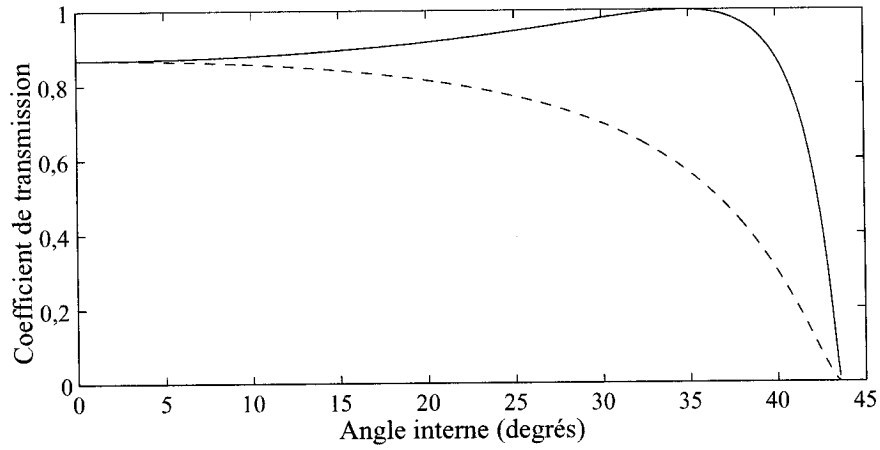


FIG. E.1 – Coefficients de transmission pour une polarisation P (ligne continue) et une polarisation S (ligne tiretée) dans une lame de silice pour la génération de la troisième harmonique. Les faisceaux pompe et de troisième harmonique sont considérés co-linéaires.

pour les deux polarisations. Ces équations sont tracées à la figure E.1.

$$T_{tot,P} = 256 \frac{n_{3\omega} n_{\omega}^3 \cos^4 \theta_i \cos^3 \theta_{\omega} \cos \theta_{3\omega}}{(\cos \theta_{\omega} + n_{\omega} \cos \theta_i)^6 (n_{3\omega} \cos \theta_i + \cos \theta_{3\omega})^2} \quad (\text{E.6})$$

$$T_{tot,S} = 256 \frac{n_{3\omega} n_{\omega}^3 \cos^4 \theta_i \cos^3 \theta_{\omega} \cos \theta_{3\omega}}{(\cos \theta_i + n_{\omega} \cos \theta_{\omega})^6 (n_{3\omega} \cos \theta_{3\omega} + \cos \theta_i)^2} \quad (\text{E.7})$$