HAL
open science

Vers l'élaboration d'un matériau holographique de dimension centimétrique pour l'enregistrement de réseaux de phase en volume à pas variable (réseaux de Bragg chirpés) : Application à l'étirement d'impulsions laser ultra-courtes.

Sébastien Laux

To cite this version:

Sébastien Laux. Vers l'élaboration d'un matériau holographique de dimension centimétrique pour l'enregistrement de réseaux de phase en volume à pas variable (réseaux de Bragg chirpés) : Application à l'étirement d'impulsions laser ultra-courtes.. Optique [physics.optics]. Ecole Polytechnique X, 2010. Français. NNT : . pastel-00503043

HAL Id: pastel-00503043

https://pastel.hal.science/pastel-00503043

Submitted on 16 Jul 2010

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

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

THALES Research and Technology France
Laboratoire d'optique Appliquée - ENSTA - École Polytechnique

THÈSE

pour obtenir le titre de

Docteur de l'École Polytechnique

Spécialité : Optique

présentée par

Sébastien LAUX

Vers l'élaboration d'un matériau holographique de dimension centimétrique pour l'enregistrement de réseaux de phase en volume à pas variable (réseaux de Bragg *chirpés*) : Application à l'étirement d'impulsions laser utra-courtes

---

Thèse dirigée par Gilles Cheriaux

soutenue le 20 Avril 2009 devant le jury composé de

Laurent Sarger	Professeur au CPMOH Bordeaux	Rapporteur
Jean-Marc Fournier	Professeur à l'Ecole polytechnique fédérale Lausanne	Rapporteur
Jean-Pierre Huignard	Expert Scientist THALES R&T France Palaiseau	
Antoine Rousse	Directeur du LOA, Ecole Polytechnique Palaiseau	
Vincent Rachet	Professeur invité à ENS Cachan	
Gilles Chériaux	Directeur de thèse	

"Pour réussir sa vie, un homme doit faire un enfant, écrire un livre et planter un arbre"

Compay Segundo

J'ignore la manière de planter un arbre !

Table des matières

Remerciements **ix**

Introduction générale **3**
0.1 Introduction . . . 3
0.1.1 Un peu d'histoire . . . 3
0.1.2 Plan de l'étude . . . 5

1 Exploration des concepts, valorisation de la recherche **7**
1.1 Exploration des concepts . . . 8
1.1.1 Concept d'amplification à dérive de fréquence . . . 8
1.1.2 Concept de séparateur temporel compact de longueurs d'onde . . . 8
1.1.3 Notion de compacité . . . 10
1.1.4 Figure de mérite . . . 14
1.1.5 Concept de matériau holographique centimétrique . . . 16
1.2 Valorisation de la recherche . . . 19
1.2.1 Multiplexeur / Démultiplexeur optique . . . 19
1.2.2 Spectromètre / Spectro-colorimètre . . . 20
1.2.3 Correcteur de phase spectrale . . . 22
1.2.4 Amplification par étalement spectral spatio-temporel . . . 22

2 Les réseaux de Bragg **23**
2.1 Introduction . . . 23
2.2 Diffraction, interférences, réseaux minces (2D) . . . 24
2.2.1 Diffraction par une fente . . . 24
2.2.2 Diffraction par N fentes . . . 24
2.2.3 Interférences dans le plan d'observation . . . 25
2.2.4 Loi des réseaux . . . 28
2.3 Effets d'épaisseur dans les réseaux, réseaux épais (3D) . . . 29
2.3.1 Critère d'épaisseur pour un réseau . . . 29
2.3.2 Réseaux épais en transmission et en réflexion . . . 31
2.3.3 Réseau en réflexion, Théorie des ondes couplées . . . 32
2.3.4 Réseau en réflexion, cas des réseaux à pas fixe . . . 34
2.4 Modélisation des réseaux de volumes . . . 37
2.4.1 Réseau en réflexion à pas variable . . . 37
2.4.2 Modélisation des réseaux de Bragg à pas variable en réflexion . . . 38
2.5 Simulations et ordres de grandeur . . . 42

2.5.1 Réseau linéairement chirpé 42
2.5.2 Réseau symétrique à un compresseur de Treacy 44
2.6 Conclusion 45

3 Matériaux pour l'holographie 47
3.1 Introduction 49
3.2 Les matériaux holographiques conventionnels 51
3.2.1 Mode de fonctionnement des matériaux holographiques conventionnels 51
3.2.2 Mise en oeuvre expérimentale 57
3.2.3 Résultats expérimentaux, état de l'art des matériaux existants 62
3.2.4 Discussion, bilan de l'exploration expérimentale 72
3.3 Conception d'un matériau holographique centimétrique 73
3.3.1 Mise en oeuvre expérimentale 73
3.3.2 Résultats expérimentaux sur le nouveau matériau holographique . . 80
3.3.3 Modélisation de la diffusion généralisée dans le système 89
3.4 Conclusion 101

4 Réalisation d'un composant test 103
4.1 Introduction 103
4.2 Montage holographique 103
4.2.1 Enregistrement 104
4.2.2 Lecture 104
4.3 Calculs de la dispersion de la période du réseau 105
4.4 Modélisation assistée par ordinateur 107
4.5 Caractérisation du composant test réalisé 108
4.5.1 Rendement de diffraction 108
4.5.2 Dispersion temporelle 110
4.5.3 Distorsion causée par les filaments 113
4.6 Conclusion 113

5 Mise en œuvre expérimentale 115
5.1 Introduction 115
5.2 Chaîne laser de Test 115
5.2.1 Conception du compresseur 116
5.3 Résultats expérimentaux 118
5.3.1 Mesure de l'impulsion comprimée, autocorrelation 2ω 118
5.3.2 Calcul du profil d'intensité temporelle 120

6 Conclusion et perspectives 123

Annexes 127
6.1 Interférences d'une fente dans le plan d'observation 127
6.2 Application du modèle de la réflexion ponctuelle 130
6.3 Algorithme "Layer Peeling" 132
6.4 Point de fonctionnement du Polyuréthane dopé Acrylate 135
6.5 mode opératoire 139
6.6 Modèle quantitatif basé sur le formalisme d'Onsager 142

Bibliographie 150

Table des figures

1 Chronologie partielle des systèmes d'étirement et de compression 4

1.1 Illustration de la technique d'amplification CPA 8
1.2 Concepts possibles pour la séparation des composantes spectrales. 9
1.3 Exploration des concepts de séparation temporelle 9
1.4 Exploration des concepts de séparation temporelle 10
1.5 Réseaux perpendiculaires. 11
1.6 Grismes en réflexion. 12
1.7 Réseau acousto-optique. 12
1.8 miroir de bragg diélectrique à pas variable (chirpé). 13
1.9 miroir holographique de Bragg à pas variable. 14
1.10 Représentation de la figure de mérite de chacune des solutions techniques . 15
1.11 Exploration des concepts de matériaux holographiques épais 17
1.12 Exploration des concepts de matériaux holographiques 18
1.13 Exploration des applications 19
1.14 Configuration possible pour la séparation compacte 20
1.15 Réalisation possible d'un multiplexeur 20
1.16 Réalisation possible d'un spectromètre compact. 21
1.17 Démonstration d'un prototype de spectrocolorimètre 21
1.18 Réalisation possible d'un correcteur de phase spectrale 22
1.19 Réalisation possible d'un amplificateur linéaire 22

2.1 Diffraction par une fente. 24
2.2 Diffraction par N fentes. 25
2.3 interférences *à l'infini* de N fentes. 27
2.4 Diffraction d'un réseau 28
2.5 Diffraction par un réseau épais suivant la direction x. 30
2.6 Réseau de Bragg en transmission et en réflexion 31
2.7 miroir holographique de Bragg à pas variable. 32
2.8 Réseau de Bragg en réflexion. 32
2.9 Réseau de Bragg en réflexion pour différents couples $(\Delta n, \Delta z)$. 36
2.10 discrétisation du réseau de Bragg en section uniformes. 39
2.11 modélisation du réseau en une série de miroirs 41
2.12 paramètre d'un réseau linéairement chirpé 43
2.13 Compresseur à réseaux gravés dans la configuration de Treacy 44
2.14 Réseau de Bragg étireur pour compresseur de Treacy 46

3.1 Exploration des matériaux holographiques épais 48
3.2 Mécanisme du $LiNbO_3$ 52
3.3 Mécanisme du changement de conformation 53
3.4 Mécanisme des matériaux photopolymères 55
3.5 Montage expérimental du banc d'enregistrement. 57
3.6 Photo du montage à pas fixe 57
3.7 Diagramme vecteur d'un réseau à pas fixe en lecture. 58
3.8 Diagramme vecteur d'un réseau à pas fixe lors de l'enregistrement. 59
3.9 Tracé de rayons de l'enregistrement du réseau avec couplage par un prisme. 60
3.10 Méthode de mesure de l'efficacité de diffraction. 61
3.11 Echantillon de $LiNbO_3$. 62
3.12 Transmission d'un échantillon de $LiNbO_3$ dopé MgO 63
3.13 Indices du $LiNbO_3$ dopé MgO à 9-mol. %. 63
3.14 Mélange à deux ondes dans le $LiNbO_3$ dopé MgO 64
3.15 Faning dans le $LiNbO_3$ dopé MgO 65
3.16 Echantillon de PMMA-PQ réalisé au laboratoire. 67
3.17 Transmission d'un échantillon de $PMMA$ dopé PQ 68
3.18 Efficacité en fonction de la période spatiale 69
3.19 Effacement à 55°c 69
3.20 Echantillon de photopolymère DuPont 70
3.21 Absorption d'un échantillon de DuPont HR-734 71
3.22 Formule chimique de l'irgacure 784. 74
3.23 Spectre d'absorption d'un échantillon test de 170-μm 74
3.24 Evolution de la concentration en Irgacure 75
3.25 Formule chimique de l'acrylate. 77
3.26 Formule chimique de l'anisole. 77
3.27 Formation de la fonction uréthane 78
3.28 Disparition de la fonction isocyanate 79
3.29 Echantillons de polyuréthane réalisés au laboratoire. 80
3.30 Transmission d'un échantillon de Polyuréthane 80
3.31 Evolution de la modulation d'indice Δn en fonction du taux d'acrylate. . . 82
3.32 Cinétique des enregistrements en fonction de l'épaisseur. 83
3.33 Bilan des modulations d'indice obtenues en fonction de l'épaisseur. 84
3.34 Mesure de l'efficacité transverse d'un échantillon de 5-mm d'épaisseur. . . . 84
3.35 Effet de la filamentation. 86
3.36 Montage utilisé pour mesurer la filamentation en fonction du taux d'acrylate. 87
3.37 Diffraction de la filamentation fonction du rapport monomère/plastifiant . . 88
3.38 Variation de la concentration $\Phi_{\dot{M}}$ en fonction du pas d'enregistrement . . . 92
3.39 Réponse spatiale du matériau en fonction des temps caractéristiques 96
3.40 Efficacité de diffraction du réseau en fonction du rapport Acrylate/Anisole . 98
3.41 Simulation de l'efficacité du réseau en fonction du rapport Acrylate/Anisole 98
3.42 Exemple de réponse spatiale typique d'un matériau. 99
3.43 Transformée de Fourier de la réponse spatiale du matériau. 100

4.1 Montage expérimental du banc d'enregistrement. 103
4.2 Diagramme des vecteurs d'ondes d'enregistrement et de lecture 104
4.3 Relations d'optique géométrique du montage. 105
4.4 Loi de dispersion attendue $T(\lambda)$. 106
4.5 Simulation des lentilles commerciales utilisées. 107

4.6 Simulation de la distribution du pas du réseau 107
4.7 Réseau avant découpe et polissage 108
4.8 Prototype une fois mis en forme et poli 108
4.9 Montage utilisé pour mesurer à la fois l'efficacité du réseau et du composant. 109
4.10 efficacité du réseau de Bragg et du composant 109
4.11 Mesure de l'efficacité transverse d'un échantillon 110
4.12 Montage utilisé pour mesurer la dispersion temporelle du composant. 110
4.13 Résultats expérimentaux de la mesure du chemin optique 111
4.14 Dispersion du délai de groupe 111
4.15 Amplitude et dispersion du composant étireur. 112
4.16 Illustration de la dispersion spatiale dûe à la filamentation. 113

5.1 Montage du laser de test. 116
5.2 Compresseur à réseaux holographiques dans la configuration de Treacy . . . 117
5.3 Retard produit par l'étireur et le compresseur 117
5.4 Spectre de l'impulsion étirée et amplifiée. 118
5.5 Spectre et loi de dispersion de l'impulsion étirée et amplifiée 119
5.6 Profil d'autocorrelation optimisée mesuré. 120
5.7 Amplitude et phase calculées de notre impulsion en sortie du compresseur. . 121
5.8 A gauche, profil d'impulsion calculé. A droite, Autocorrelation calculée. . . 121
5.9 Présentation des deux systèmes d'étirement Offner et HCBR 122

6.1 Diffraction par une fente. 127
6.2 interférences *à l'infini* d'une fente. 129
6.3 Schéma logique de l'algorithme DLP 134
6.4 Evolution de la modulation d'indice, acrylate à 6% en masse 135
6.5 Evolution de la modulation d'indice, acrylate à 8% en masse 136
6.6 Evolution de la modulation d'indice, acrylate à 10% en masse 136
6.7 Evolution de la modulation d'indice, acrylate à 12% en masse 137
6.8 Evolution de la modulation d'indice, acrylate à 14% en masse 137
6.9 Evolution de la modulation d'indice, acrylate à 16% en masse 138
6.10 Formulation de la recette finale du matériau holographique 140
6.11 Cuves fines utilisées pour la réalisation d'échantillons 140
6.12 Cuves épaisses utilisées pour la réalisation d'échantillons 141
6.13 Conformations possibles du système polymère /solvant 145

Remerciements

Les travaux décrits dans ce mémoire ont été réalisés à Thales Research and Technology France (TRT), et au Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA) de l'école polytechnique. Je remercie les directeurs de ces deux établissements de m'y avoir accueilli : Bertrand Demotes-Mainard pour TRT ; Gérard Mourou puis Antoine Rousse pour le Laboratoire d'Optique Appliquée.

J'ai eu la chance d'être encadré, tout au long de mes travaux de thèse, par des personnalités exceptionnelles, qui m'ont fait largement profiter de leurs qualités humaines et scientifiques. Parmi celles-ci, je voudrais remercier tout d'abord Brigitte Loiseaux. Après avoir guidé mes premiers pas dans le monde des hologrammes, elle m'a offert l'opportunité de réaliser ma thèse au sein de son laboratoire. J'en profite pour remercier tous les membres du laboratoire pour le très bon accueil qu'ils m'ont réservé. Je pense que ma décision de prolonger mon stage à TRT par une thèse sur les matériaux holographiques a été largement due au plaisir et à l'épanouissement personnel que j'ai retiré dans cette équipe. Un grand merci à Brigitte Loiseaux, Anne Delboulbé, Laure Lee, Patrick Feneyrou, Guiseppe Belomonte, Thierry Lamarque et Vincent Rachet ainsi qu'à Pierre Lebarny, Françoise Soyer, Evelyne Chastaing, Marie Vergnoles, et Laurent Divay.

J'ai été encadré tout au long de ma thèse et lors de mon séjour dans le groupe étude des Lasers Femtosecondes du Laboratoire d'Optique Appliquée, par Gilles Chériaux, mon directeur de Thèse. Je le remercie de n'avoir jamais hésité à me consacrer des parts importantes de son temps, d'avoir toujours manifesté un grand intérêt pour tous les aspects de mon travail de thèse (et pas seulement pour ceux qui le concernaient directement) et d'avoir eu le souci constant de la cohérence de l'ensemble de mes travaux. J'en profite également pour remercier l'ensemble des membres du LOA pour leur accueil et en particulier pour les excellents moments partagés aux journées du LOA.

Je remercie également les personnes que j'ai côtoyées lors de mon passage au Laboratoire d'Optique Appliquée. Un grand merci en particulier à Sophie Kazamias-Moucan qui m'a très gentiment aidé à rédiger mon second chapitre de thèse et surtout qui a partagé de nombreuses discussions toujours très intéressantes et très amusantes.

Un grand nombre de mes collègues de Thales Research and Technology France ont contribué, de près ou de loin, au bon déroulement de mes travaux. Je remercie tout d'abord Jean-Paul Castéra responsable d'unité de programme et Gilbert Quilghini responsable du département technologies et mesures.

J'ai eu la chance d'avoir été assisté par deux stagiaires, en la personne de Cécile et Romain. J'ai eu beaucoup de plaisir à travailler avec eux. L'efficacité dont ils ont fait preuve pendant leur stage ont permis de déboucher sur la validation d'un modèle numérique, qui est un des résultats principaux de ce travail. Je les remercie bien sincèrement pour cela, et

leur souhaite bonne chance dans la suite de leur carrière.

Merci aux responsables de la bibliothèque de TRT, qui ont toujours réussi à me procurer avec bonne humeur et efficacité toute la littérature dont j'ai eu besoin.

Merci également à Yves Gourdel dont les mains en or ont su mettre en valeur mon travail en polissant les échantillons bruts de matériau pour en faire des composants.

Et merci à Vincent Sincholle pour le travail de valorisation réalisé autour de mon travail de thèse qui a donné naissance à mon premier chapitre. Cette vision complémentaire du travail de recherche m'a permis de réorganiser mes idées pour leur donner plus de sens et en extraire la propriété industrielle indispensable à la recherche moderne.

Un grand merci à Jean-Christophe Mielnik et Jhos Lican pour avoir immortalisé ma soutenance de thèse. Je crois que ce film va constituer un gros dossier à l'occasion d'un de mes anniversaires.

Merci enfin à tous les collègues du département optique (ou assimilés) pour les discussions techniques, et surtout pour tous les petits détails du quotidien qui rendent l'ambiance de travail à TRT des plus agréables. J'en profite pour souhaiter également plein de succès professionnels comme personnels à tous les heureux doctorants de ma "génération". Merci et bonne route donc à Johan Dhose, Nicolas Millet, Edouard Obert, Céline Ribot, Noémie Seguin, Bastien Steinhauser et Vincent Sincholle.

Je pense également à toute l'équipe de Jean-Pierre Boilot du laboratoire de PMC pour son accueil chaleureux et merci en particulier à Mathieu pour son aide précieuse.

Enfin, j'ai en particulier eu la chance de profiter des lumières de Vincent Rachet et Thierry Lamarque. Je remercie Vincent d'avoir partagé l'étendue de ses connaissances et je le remercie pour la clarté avec laquelle il les a partagées. Je lui suis infiniment reconnaissant de m'avoir pris sous son aile, de m'avoir toujours soutenu et encouragé et d'avoir su mettre en valeur mes qualités personnelles. Sa simplicité et sa modestie font de lui un exemple pour moi. Je remercie Thierry pour son honnêteté et son franc parler associés à sa grande générosité. Je le remercie pour son soutien tout au long de ma thèse et pour son aide précieuse pour la suite de ma vie professionnelle. J'ai beaucoup appris à leur contact, et je suis heureux de les compter parmi mes amis.

Que tous ceux qui ont apporté leur contribution à ce travail et que j'aurais oublié de citer ici veuillent bien me le pardonner !

Enfin, je remercie mes proches, dont la présence autour de moi rend ma vie exceptionnelle. Je remercie mes amis, que je ne me risquerai pas à tenter d'énumérer. Ils se reconnaîtront. Je remercie mes parents, qui m'ont apporté, parmi tant d'autres belles choses, le goût du travail bien fait et du plaisir au travail. Je remercie également le reste de ma famille, et notamment mes grands parents, mes oncles et tantes, grands-oncles et grandes-tantes, mes cousins et cousines et ma belle-famille. Merci enfin à Carole-Laure, qui est la femme de ma vie, et à Estelle ma fille. Merci en particulier de m'avoir soutenu dans tous les moments de mon travail de thèse (et surtout la période de rédaction). Merci aussi pour tout le reste.

Introduction générale

0.1 Introduction

Dès sa première réalisation expérimentale par Théodore Maiman en 1960, le laser a fonctionné en régime impulsionnel. Même si les puissances misent en jeu à cette époque étaient très faibles, la brillance de cette source rivalisait déjà avec un million de soleils. De ce fait, il était facile de voir l'intérêt de pouvoir placer une fraction d'énergie lumineuse dans des impulsions de durée les plus courtes possibles.

0.1.1 Un peu d'histoire

Forte puissance donc, généreusement associée avec les durées les plus courtes mesurables. Cette résolution temporelle était tout d'abord nanoseconde (10^{-9}-s) grâce aux lasers déclenchés mais la volonté de caractériser des événements de plus en plus rapides a motivé la réalisation de lasers délivrant des impulsions dont la durée est de plus en plus courte. Dès 1965, les lasers à modes bloqués ont permis d'obtenir des impulsions de durée picoseconde (10^{-12}-s). Dès lors, les ingénieurs et chercheurs du monde entier redoublent d'imagination pour compenser la dispersion "naturelle" de leur chaîne laser et comprimer au plus court les impulsions picosecondes. C'est ainsi qu'en 1969, E.B. Treacy met en oeuvre la "grating pair" [51]. En 1984, pour atteindre le régime solitonique dans les oscillateurs, R.L. Fork aidé de O.E. Martinez et J.P. Gordon utilisent une paire de prisme [47]. Les impulsions deviennent alors femtosecondes (10^{-15}-s). Aujourd'hui, la course aux courtes durées se poursuit avec les impulsions attosecondes (10^{-18}-s) voire même zeptosecondes (10^{-21}-s).

Avec les impulsions lasers femtosecondes, des puissances et des densités de puissance colossales deviennent accessibles. Dans ces conditions, les seuils de dommage des matériaux sont rapidement atteints. En 1985, D. Strickland et G. Mourou, appliquent habilement la technique d'amplification à dérive de fréquence (communément appelée Chirped Pulse Amplification ou CPA) à l'optique [11]. Cette technique, issue du concept de "séparation temporelle", tire parti de la largeur spectrale associée aux impulsions courtes. L'impulsion est donc allongée temporellement (étirement) en retardant les composantes spectrales les unes par rapport aux autres. L'impulsion étirée est alors amplifiée sans atteindre l'intensité de dommage des matériaux. Enfin, les impulsions sont regroupées temporellement (compression).

Avec la technique d'amplification à dérive de fréquence, l'exploration des système d'étirement et de compression commence. Deux philosophies entrent en compétition. Faire un couple étireur-compresseur parfaitement linéaire ou parfaitement symétrique. En 1987, O.E. Martinez réalise une ligne à dispersion positive [45]. En faisant l'image d'un des réseaux du compresseur de E.B. Treacy via un système optique afocal, il obtient une loi de dispersion symétrique, en première approximation, au compresseur. Alors que C. Fiorini décrit l'importance de la symétrie entre l'étireur de Martinez et le compresseur de Treacy [4], P. Tournois propose de nouvelles configurations d'étireur et de compresseur. Son but était de trouver des couples étireur-compresseur très linéaires justifiant que l'accord parfait de ces couples est moins critique compte tenu de l'invariance par translation. Ainsi, en 1993, P. Tournois introduit un nouveau système utilisant une paire de réseaux de diffraction avec une dispersion linéaire. Ce système, composé d'une paire de prisme et d'une paire de réseau en transmission porte aujourd'hui le nom de "Grism" [50]. Il propose également un système composé de réseaux en transmission disposés perpendiculairement [25]. A cette même période, d'autres systèmes "exotiques" sont mis en œuvre ou suggérés [10]. En 1995, P. Tournois résume sa réflexion concernant les nouveaux systèmes propices à la technique CPA en ajoutant un concept fort, les miroirs de Bragg "chirpés" (Chirped Bragg Reflector) [26]. Ce dernier système est très séduisant car il offre des efficacités très

élevées (supérieures à 90%) associées a une loi de dispersion complètement personnalisée. Cependant dans son article, le miroir de Bragg simulé était composé d'un empilement de couches minces d'indice (plus d'un millier) avec des épaisseurs aussi fines que 7-nm. Même si cette solution était vraiment prometteuse, P. Tournois conclut lui-même son étude en nous mettant en garde sur les modes de réalisation. De tels miroirs sont aujourd'hui disponibles sous la forme de miroirs diélectriques "chirpés". Ils sont très efficaces mais très coûteux et leur pouvoir de dispersion est relativement faible compte tenu de leur épaisseur. En parallèle, A. Galvanauska bénéficie des progrès des télécommunications pour réaliser une chaîne laser femtoseconde, en utilisant des réseaux de Bragg fibrés [1]. Cette fois les grandes longueurs de fibre permettent une dispersion très importante mais leur coût reste élevé et surtout la puissance maximum pouvant être injectée dans ces fibres sans effet non linéaire est plutôt faible.

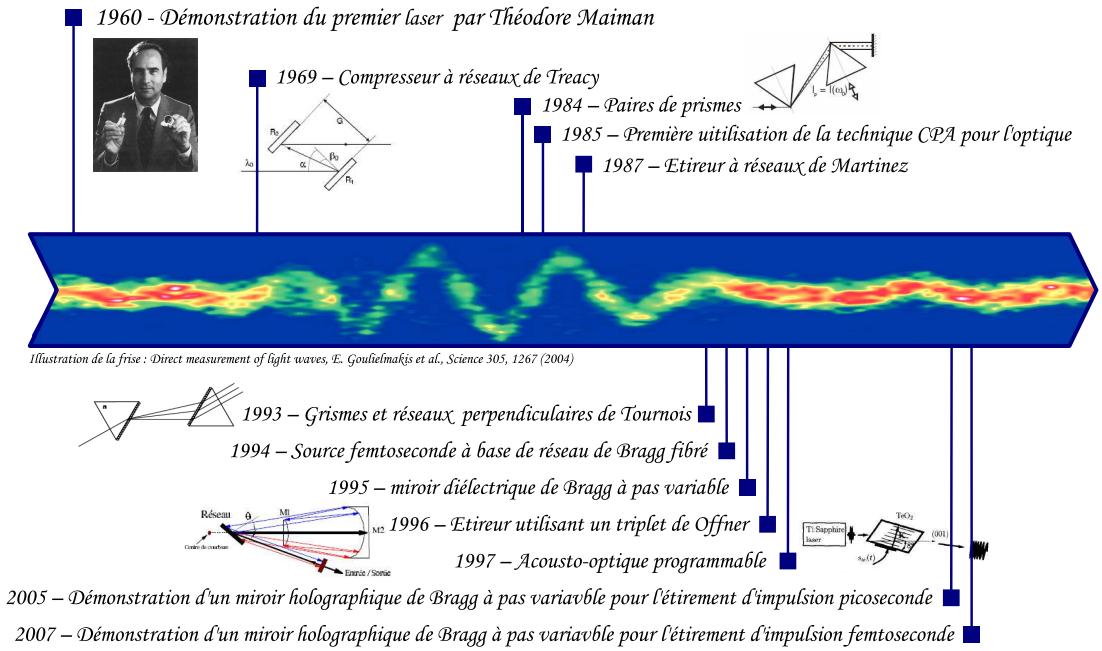

Fig. 1 – Chronologie partielle des systèmes d'étirement et de compression dans le contexte des lasers ultra-courts.

Malgré une diversité de solutions pour les étireurs et les compresseurs, le système de Treacy va dominer complètement les architectures lasers en raison de son très haut niveau de dommage essentiel pour les applications très haute énergie. Et ce, d'autant plus que l'utilisation d'un étireur de Martinez utilisant un triplet de Öffner [37] en tant que système d'imagerie associé à un filtre dispersif acousto-optique [46] permet de compenser la dispersion totale de chaînes laser et de produire des lasers commerciaux avec des impulsions supérieures à 40-TW en quelques 20-fs. Pourtant, cette solution est loin d'être facile à mettre en œuvre et le système est associé à de nombreux défauts. Le coût des optiques (réseaux de diffraction et optiques réflectrices du triplet de Öffner) est très élevé en raison des très grandes dimensions et des qualités de surface nécessaires pour l'obtention d'impulsion de 20-fs. La réalisation nécessite plusieurs heures de réglage de précision. De plus, la robustesse est facile à remettre en cause en raison de l'aspect "multi-composant" du système. D'autre part, la séparation temporelle des composantes spectrales se fait en deux

étapes. Le réseau de diffraction produit une séparation angulaire des longueurs d'ondes. Il est nécessaire de convertir ensuite cette séparation angulaire en séparation temporelle via d'importantes distances de propagation (parfois supérieures au mètre). Ainsi le système est extrêmement volumineux. Enfin, le rendement du système est faible. Malgré les efforts importants des fabricants de réseaux pour augmenter leur efficacité, un système utilisant un réseau avec 90% de diffraction dans le premier ordre, offre un rendement global au mieux de 65% à cause des quatre passages sur le réseau. En dépit de tous ces défauts, l'industrie exploite cette solution pour proposer des chaînes laser toujours plus puissantes.

0.1.2 Plan de l'étude

C'est dans ce contexte scientifique et économique que s'inscrit ma thèse. Les systèmes d'étirement et de compression ont été clairement identifiés comme verrous technologiques pour le développement des lasers femtosecondes tant dans le cadre scientifique, qu'industriel. A cet effet, nous avons mené une étude pour la réalisation d'un système étireur compact, proposant une rupture technologique. Son utilisation dans une chaîne d'amplification classique conduit à une démonstration de faisabilité claire d'un tel système.

Le premier chapitre propose une rétrospective succincte sur le travail d'exploration et d'innovation à l'origine de la solution technologique retenue. Deux concepts majeurs sont décrits : le concept de séparation temporelle compacte de longueur d'onde et le concept de matériaux holographiques épais.

Je présente brièvement dans le second chapitre la théorie des réseaux de Bragg. Je décris ensuite la méthode de modélisation et je présente les résultats des simulations et les ordres de grandeur nécessaires à la réalisation d'un composant.

Le chapitre trois, est quant à lui, consacré au concept des matériaux holographiques très épais (dimensions centimétriques) et relativement sensibles (faible fluence $1,2J/cm^2$, forte modulation d'indice $\Delta n = 10^{-3}$). A nouveau, je décris la modélisation des matériaux holographiques à migration de matière sans séparation de phase et je présente des simulations d'enregistrement d'hologramme en donnant quelques ordres de grandeur.

La réalisation d'un composant est présentée au chapitre quatre en utilisant les connaissances acquises lors des travaux présentés dans les deux chapitres précédents. La réalisation expérimentale de ce composant met en évidence les difficultés technologiques inhérentes aux matériaux holographiques et celles associées au choix pratique lié à cette étude.

Dans le dernier chapitre, je présente la mise en œuvre expérimentale du composant étireur dans une chaîne laser CPA classique ce qui permet d'obtenir à iso-performance en terme d'énergie, une chaîne laser plus compacte, plus facile à aligner, moins chère et plus robuste car mono-composant.

Chapitre 1

Exploration des concepts, valorisation de la recherche

Il est d'usage dans les thèses de physique de faire l'état de l'art des techniques, ou technologies utilisées permettant de réaliser la même fonction que celle visée à l'occasion du travail de thèse. Si cette étape est indispensable pour comparer et mesurer les avancées réalisées au cours de la période de recherche, elle a tendance à être présentée de manière chronologique, en énumérant les avantages et inconvénients de chacune des solutions. C'est d'ailleurs naturel, puisque cette présentation suit la démarche scientifique *classique* consistant en une exploration des solutions de type essais-erreurs. Au cours de ma thèse dans le groupe de R&D de THALES, j'ai eu l'opportunité de travailler avec une nouvelle cellule chargée de l'innovation pour faire du centre de recherche un centre de RID (Recherche Innovation Développement) [41]. Les méthodes d'exploration de cette cellule sont complémentaires de la méthode dite *classique* et consistent à diriger ou réorganiser le travail de recherche en terme de concepts et de connaissances. La théorie C-K (Concept-Knowledge) repose sur la distinction formelle entre concept et connaissance [40]. Cette distinction n'est pas usuelle et nous devons la préciser.

Une connaissance (K) est une proposition ayant un statut logique pour le concepteur ou pour le destinataire de la conception. Les connaissances sont le fruit de la recherche classique, pendant laquelle on acquière du savoir et du savoir-faire.

Un concept (C) est une notion ou une proposition sans statut logique : on ne peut dire d'un concept, par exemple celui d' *un bateau qui vole*, qu'il est vrai, faux, incertain, ou indécidable. Les concepts sont le fruit de l'invention et se rattachent à la définition : une idée abstraite et générale. L'exemple, *un bateau qui vole* est un concept (nous ne décrivons pas la réalisation technique) qui peut être réalisé physiquement de différentes manières à partir de briques de connaissances (K) de l'aéronautique, de l'architecture navale et autres...

L'objectif de cette distinction est de faciliter la rencontre entre la technologie (les connaissances issues de la recherche) et les marchés (les concepts innovants propres au commerce et nécessaire pour l'industrie). Le travail avec cette cellule m'a permis de réorganiser mon travail de recherche autour des concepts forts à l'origine de cette thèse. Ils seront donc présentés en première partie de ce chapitre. Le second intérêt de ce type de raisonnement est de chercher d'autres sources de valorisation du travail de recherche afin de protéger efficacement ce travail (Propriété Intellectuelle) et de découvrir d'éventuels nouveaux marchés utilisant la technologie développée dans ce travail de thèse.

1.1 Exploration des concepts

1.1.1 Concept d'amplification à dérive de fréquence

Depuis 1985, le développement de sources laser ultra-intenses repose sur le concept d'amplification à dérive de fréquence ou concept CPA (pour Chirped Pulse Amplification). Ce concept permet d'amplifier des impulsions brèves sur plusieurs ordres de grandeur, de la gamme d'énergie nanojoule jusqu'au kilojoule. Grâce à cette méthode, l'amplification se fait en conservant une intensité laser inférieure au seuil d'apparition de phénomènes non-linéaires qui pourraient amener des distorsions de l'impulsion et endommager les matériaux optiques du système laser. La méthode CPA peut se décomposer en trois étapes principales. Tout d'abord, les impulsions générées par un oscillateur femtoseconde sont étirées temporellement, c'est à dire que les différentes composantes spectrales (ou longueurs d'ondes) de l'impulsion sont décalées en temps ce qui allonge la durée de l'impulsion. Ensuite, ces impulsions étirées sont amplifiées par passages successifs dans des milieux lasers puis re-comprimées à leur durée initiale. L'étirement et la compression des impulsions nécessitent l'utilisation de systèmes dispersifs que nous verrons tout au long de ce premier chapitre.

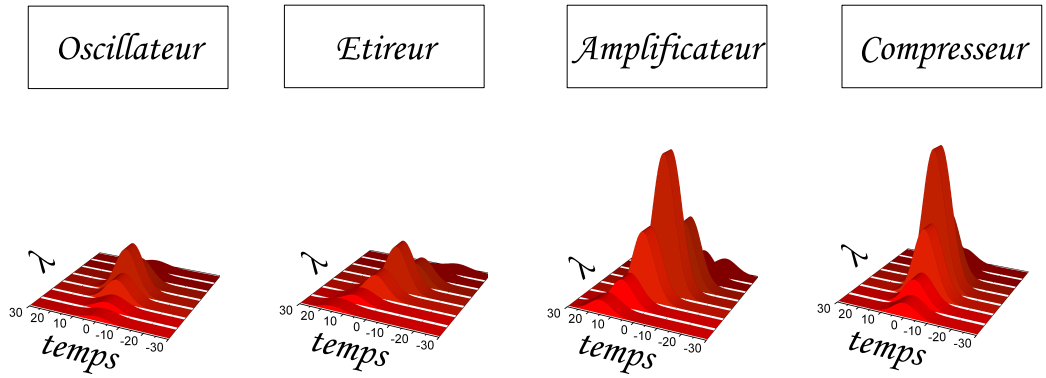

Fig. 1.1 – Illustration de la technique d'amplification CPA, l'impulsion est d'abord étirée temporellement (chaque composante spectrale (λ) subit un retard différent), puis amplifiée et enfin comprimée.

Ce concept fait appel à la séparation temporelle des composantes spectrales. Une séparation spatiale des composantes spectrales ou une séparation spatio-temporelle peut également être envisagée (La figure 1.2 présente une illustration très basique de type C-K de ce concept).

1.1.2 Concept de séparateur temporel compact de longueurs d'onde

Dans le cadre de cette étude nous ne remettons pas en cause le choix de la séparation temporelle car cette solution est bien maîtrisée dans le monde industriel des lasers ultra-courts. Cependant la séparation spatiale, qui constitue une modification profonde de la conception des systèmes, propose de nombreux avantages dont celui d'éviter la saturation par le gain, effet connu dans l'amplification utilisant la séparation temporelle. La séparation spatio-temporelle peut en principe réunir le meilleur des deux concepts précédents. D'autre part, nous nous intéresserons uniquement au système fonctionnant en espace libre pour faciliter la compatibilité avec les lasers à base de technologie $Ti:Sa$.

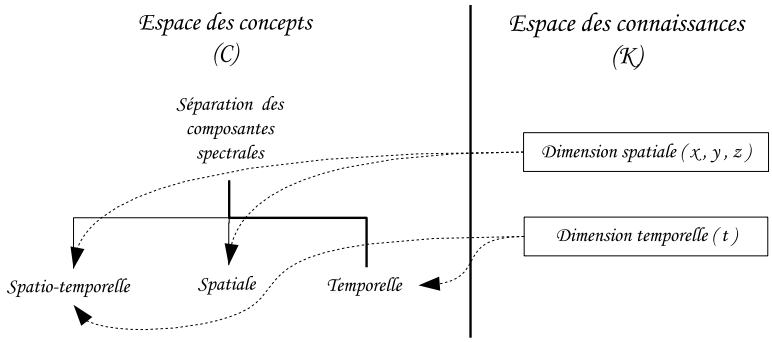

FIG. 1.2 – Concepts possibles pour la séparation des composantes spectrales.

Si le concept de séparateur temporel des composantes spectrales est retenu on peut alors descendre d'un niveau conceptuel à un niveau un peu plus concret. La séparation de composantes spectrales peut être réalisée à l'aide de la réfraction, de la diffraction et des interférences ou d'une combinaison des deux. On peut descendre à nouveau dans la zone d'exploration en considérant que ces deux effets physiques peuvent séparer suivant l'axe de propagation (séparation coaxiale), c'est le cas d'un barreau de verre, ou suivant un angle qui est fonction de la composante spectrale (séparation angulaire), c'est le cas d'un prisme. Notons que la séparation angulaire doit être convertie en séparation temporelle ce qui implique un système de conversion avec des propagations plus ou moins grandes des faisceaux. On peut ensuite classer l'ensemble des solutions techniques à l'extrémité de chacune des branches de notre exploration (voir figure 1.3).

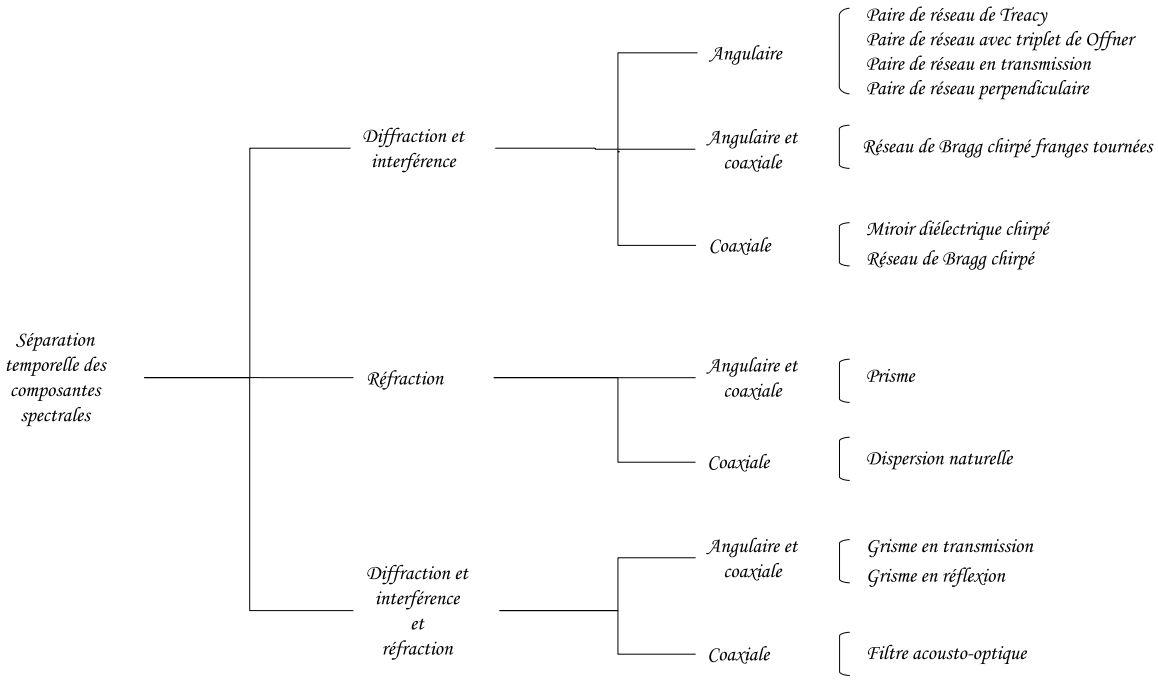

FIG. 1.3 – Exploration des concepts de séparation temporelle des composantes spectrales et descente jusqu'aux solutions technologiques.

1.1.3 Notion de compacité

Parmi les critères de choix qui ont guidés notre étude, la compacité était un point très important. En effet, les systèmes actuels sont très volumineux ce qui les pénalisent en terme d'industrialisation. Le concept de base de notre étude est réduit à la notion de *séparateur temporel compact de longueur d'onde* ce qui réduit encore le champ des solutions possibles. Le nouvel espace exploré est présenté sur la figure 1.4.

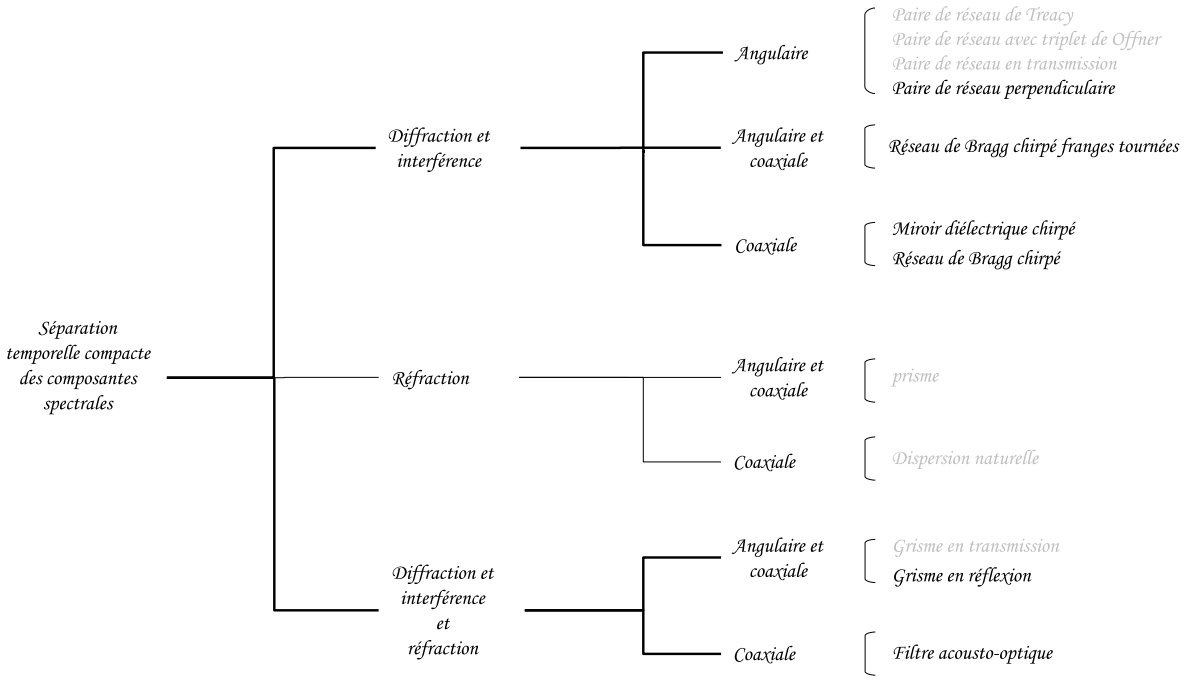

FIG. 1.4 – Exploration des concepts de séparation temporelle des composantes spectrales et descente jusqu'aux solutions technologiques permettant la réalisation d'un système compact.

1.1.3.1 Paire de réseaux perpendiculaires

Le montage utilisant une paire de réseaux disposés perpendiculairement a été proposé par P. Tournois pour obtenir un système d'étiremement linéaire. Ce montage est, à priori, une manière très intuitive d'obtenir une loi de dispersion temporelle décroissante en fonction de la longueur d'onde. En effet, la figure 1.5 met clairement en évidence le fait que les courtes longueurs d'ondes parcourent un chemin optique plus important que les grandes. D'autre part, cette solution technique offre des avantages dans deux cas distincts.

Pour les faisceaux très étendus, ce montage évite brillamment les problèmes liés à la dimension finie des faisceaux. Ainsi l'utilisation de ce système en double passage offre un système sans aucun "chirp" spatial [25].

Pour un faisceau très fin, en sortie du système on se trouve dans un plan de Fourier. Les différentes composantes spectrales sont toutes distinctement séparées spatialement. Ansi, on peut envisager dans cette zone une correction dynamique de la phase spectrale via un système de valve ou piston optique.

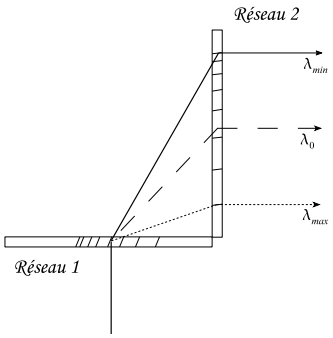

FIG. 1.5 – Réseaux perpendiculaires.

Dans la configuration vue précédemment, ce système à la faculté inédite de créer une dispersion purement linéaire en fonction de la fréquence [25]. Paradoxalement, cette propriété ne constitue pas un avantage car tous les autres éléments dans la chaîne laser ne sont pas linéaires. Il faut donc compenser les distorsions qu'ils induisent. Cependant, l'utilisation d'un système d'optique adaptative permet d'envisager une correction en temps-réel de la chaîne laser même si la majeure partie de la dynamique sera exploitée pour compenser une distorsion constante.

Si ce dispositif de dispersion trouve difficilement sa place dans les systèmes de séparation temporelle des composantes spectrales, il est certainement une des meilleures voies de solutions pour les systèmes de séparation spatiale et spatio-temporelle...

1.1.3.2 Grismes en réflexion

C'est à nouveau P. Tournois qui le premier a introduit la notion de GRISME (association de GRating, réseau, et prISME). A l'origine, cette solution technique consistait en l'association d'un réseau en transmission et d'une paire de prismes [50]. Le but était de réaliser un système de compression linéaire, permettant d'être couplé au système étireur à base de réseaux perpendiculaires.

Mais aujourd'hui, c'est dans une autre forme que le système de grismes a trouvé un intérêt industriel. Dans son mode de réalisation en réflexion, la paire de grismes permet de réaliser une dispersion d'ordre deux et trois opposée à la dispersion des matériaux. La

dernière démonstration expérimentale a permis l'étirement d'une impulsion de 35-fs à 15-ps avec une efficacité de l'ordre de 90% suivit d'une compression à 35-fs dans 2-m de matériau [38]. Ce système d'étirement était très compact puisque les deux grismes étaient séparés de seulement 7-cm.

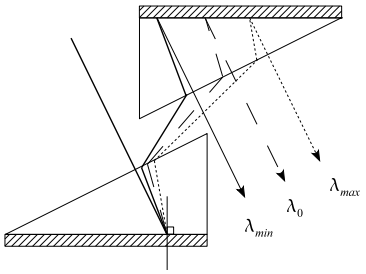

FIG. 1.6 – Grismes en réflexion.

Les grismes présentent l'avantage du contrôle de la dispersion cubique permettant ainsi de compenser la dispersion des différents matériaux traversés dans la chaîne laser. D'autre part, ils produisent une dispersion ϕ_2 opposée au système classique. Il est à noter que la dispersion d'ordre 4 des réseaux des grismes est toujours négative et ne peut pas compenser la dispersion d'ordre 4 des matériaux. Enfin, la bande passante des grismes est aujourd'hui limitée à une centaine de nanomètres.

1.1.3.3 Filtre programmable acousto-optique

Le filtre acousto-optique programmable consiste à faire interagir l'onde optique incidente avec une onde acoustique produisant au sein du matériau une modulation d'indice permettant de faire passer chaque composante spectrale de l'impulsion incidente de l'axe ordinaire du cristal vers l'axe extraordinaire (figure 1.7) [46]. On peut ainsi faire varier le chemin optique de chaque longueur d'onde de manière totalement contrôlée en temps-réel (boucle de rétroaction réalisable jusqu'à 32 KHz).

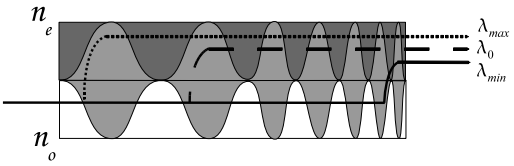

FIG. 1.7 – Réseau acousto-optique.

Cet élément qui fonctionne en transmission permet de corriger les faibles effets de dispersion jusqu'à l'ordre 4. Malheureusement son pouvoir de dispersion est faible. Ce système est donc utilisé pour une correction fine des défauts de compression. Cependant, c'est à l'avant de la chaîne laser que le système se positionne car il a une faible tenue aux flux et une faible ouverture.

1.1.3.4 Miroir diélectrique à pas variable

Les miroirs multicouches diélectriques classiques de type Bragg, sont constitués d'une alternance de couches haut et bas indices pour lesquelles l'épaisseur optique est égale à $\lambda/4$. Ceci permet d'avoir une réflexion totale par interférences constructives. Si maintenant, l'épaisseur optique des couches diélectriques est croissante avec la profondeur, les longueurs d'onde rouges vont pénétrer dans le miroir plus profondément que les longueurs d'onde bleues (figure 1.8).

Ces miroirs (ou CBR pour Chirped Bragg Reflectors) étaient à l'origine constitués d'un empilement de plus de 40 couches diélectriques (SiO_2/TiO_2) et pouvaient présenter une réflectivité de 99.5% et une dispersion de vitesse de groupe constante d'environ ±45-fs^2 sur une gamme de longueur d'onde de 710 à 900-nm centrée à 800-nm [49]. Depuis, la technologie des miroirs chirpés s'est améliorée et permet maintenant de produire une dispersion contrôlée des différents ordres : une dispersion de vitesse de groupe constante sur une gamme spectrale de 650-nm à 950-nm, une dispersion cubique et du 4ème ordre sur une gamme spectrale de 740-nm à 840-nm [54]. Le but étant à terme de pouvoir compenser la dispersion sur une octave optique de l'infra-rouge au visible (> 500-nm au voisinage de 800-nm).

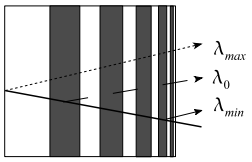

FIG. 1.8 – miroir de bragg diélectrique à pas variable (chirpé).

Les miroirs chirpés présentent comme avantage majeur de pouvoir contrôler la dispersion sur une grande bande spectrale, ce qui les rend très utiles dans des systèmes CPA de durée d'impulsions sub 30-fs. L'inconvénient majeur de ce dispositif vient de la faible dispersion de délai de groupe introduite par les miroirs chirpés ($\phi_2 \sim 50 - 100$-fs^2), ce qui nécessite plusieurs dizaines de réflexions pour compenser la dispersion de seulement quelques centimètres de matériaux. De plus, les miroirs chirpés présentent des coûts de fabrication très élevés.

1.1.3.5 Miroir holographique de Bragg en volume à pas variable

Les miroirs holographiques de Bragg à pas variable, ou Holographic Chirped Bragg Reflectors (HCBR) [26], sont similaires aux miroirs diélectriques chirpés. Ils présentent en effet une modulation d'indice qui varie le long de l'axe de propagation. Cette modulation est sinusoïdale et non de type créneau, et l'amplitude de la modulation d'indice est de l'ordre de 10^{-3} et non $0,85$ comme pour les miroirs diélectriques. Par conséquent, la longueur de ces miroirs est nécessairement plus grande (une seule "strate" ne suffit plus) pour une même efficacité de réflexion (90% par exemple). Ainsi, les différentes composantes spectrales parcourent un chemin optique largement plus grand (figure 1.9) ce qui confère un pouvoir de dispersion bien plus important que les miroirs diélectriques chirpés.

Le fait d'utiliser une méthode d'enregistrement holographique de la modulation d'indice permet d'envisager des réseaux ayant une loi de dispersion complètement personnalisable. Cette solution a donc l'avantage de pouvoir être adaptée à n'importe quel type de compresseur. L'autre avantage de l'holographie est la possibilité d'enregistrer des miroirs de

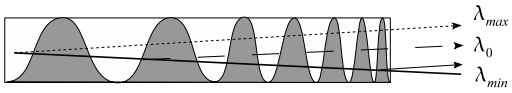

FIG. 1.9 – miroir holographique de Bragg à pas variable.

dimensions relativement grandes (raisonnablement 1 à 2-cm de section et une dizaine de centimètres de long). On peut alors envisager d'utiliser le système comme compresseur pour des niveaux de puissance crête faibles à moyens.

1.1.4 Figure de mérite

Nous pouvons alors déterminer des critères pertinents pour établir une figure de mérite pour chaque dispositif. La figure 1.10 présente les performances de chacun des systèmes envisages pour réaliser un étireur compact en terme de :

- bande passante ;
- d'efficacité ;
- facteur d'étirement ;
- tenue aux flux ;
- dimension.

Toutes les valeurs sont normalisées par rapport à l'étireur classique (Triplet de Öffner) sauf le critère de dimension en raison de la forte différence entre l'étireur à triplet de Öffner et les autres solutions. Pour les dimensions une note de 1 à 3 est donnée. 1 correspond aux dimensions du Öffner (environ 1-m^2), 2 correspond aux systèmes inférieurs à 50-cm^2 et 3 aux systèmes inférieurs à 10-cm^2. Les critères de sélection sont trop arbitraires pour définir un dispositif largement plus performant que les autres. En revanche, on se positionne dans un cas de rupture technologique, face à la solution classique (le couple : Triplet de Öffner / paire de Treacy), bien implantée dans le paysage des lasers ultra-courts à base de technologie Ti :Sa. Il est donc très intéressant de vérifier s'il y a compatibilité ascendante, c'est à dire si la solution technique envisagée fait mieux dans certains domaines mais surtout si elle fait aussi bien dans tous les autres. Dans ce cas, sur la figure 1.10, les solutions à envisager sont celles qui entourent la surface couverte par le système classique. La solution à base de miroirs de Bragg holographiques chirpés (HCBR) est dans ce cas clairement mise en avant.

Les valeurs brutes réalisées ou potentiellement réalisables sont présentées sur le tableau 1.1. Elles sont accompagnées d'autres critères non-chiffrables tels que la possibilité de rendre le système adaptatif ou de personnaliser la loi de dispersion.

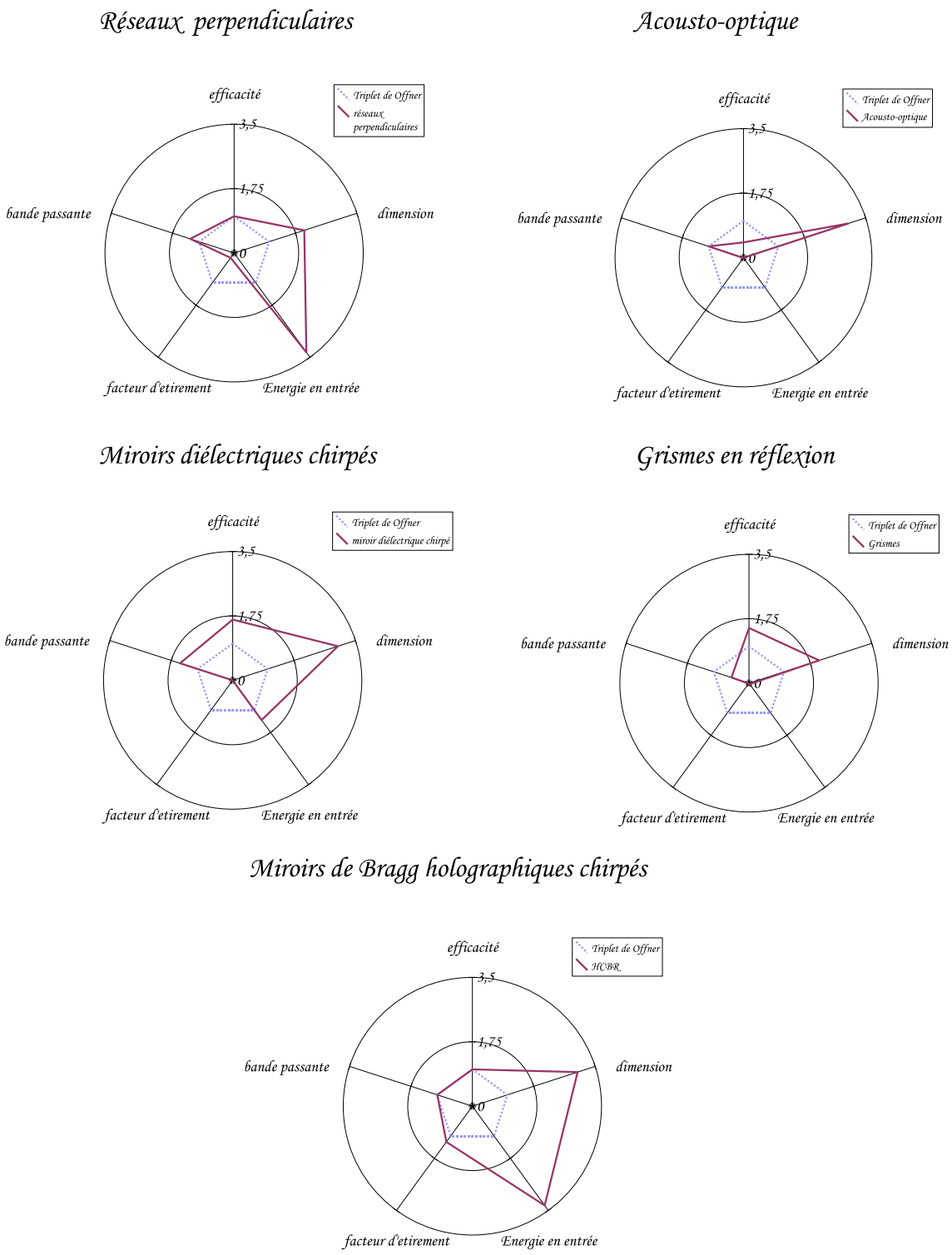

FIG. 1.10 – Représentation de la figure de mérite de chacune des solutions techniques compactes pour l'étirement d'impulsion. La solution à base de miroirs holographiques de Bragg chirpés (HCBR) entoure clairement le "périmètre de jeu" de l'étireur de Öffner. Elle constitue à la fois une innovation majeure tout en restant compatible avec les systèmes précédents.

système	ϕ_3	ϕ_n	bande passante	encombrement	efficacité	durée d'impulsion E/S	Énergie max en entrée	adaptatif
Öffner	< 0	Fixe	200-nm	1-m^2	60%	20-fs / 400-ps (× 25000)	10-mJ	non
R. Perp.	~ 0	~ 0	250-nm	25-cm^2	>60%	20-fs / 120-ps (× 4000)	100-mJ	potentiellement
HCBR	perso.	perso.	150-nm	10-cm^2	>60%	20-fs / 600-ps (× 30000)	100-mJ	non
M.D.C.	perso.	perso.	300-nm	2-cm^2	>99%	20-fs / 300-fs (× 15)	40-mJ	non
Grisms	perso.	Fixe	100-nm	14-cm^2	>60%	35-fs / 15-ps (× 400)	1-mJ	non
A.O.	perso.	perso.	200-nm	2-cm^2	25%	20-fs / 6-ps (× 200)	1-nJ	oui

Tab. 1.1 – Tableau de comparaison des systèmes de séparation temporelle compacte de longueurs d'onde. Öffner : système classique utilisant un triplet de Öffner ; R. Perp. : paire de réseaux perpendiculaires ; HCBR : miroir holographique de Bragg à pas variable ; M.D.C. : miroir diélectrique à pas variable ; Grisms : grisms en réflexion ; A.O. : acousto-optique programmable.

1.1.5 Concept de matériau holographique centimétrique

On voit progressivement la transformation des afficheurs, des télécommunications, des transferts de données numériques et du stockage d'information évoluer d'un système purement électronique vers un système hybride ou purement optique. Pour cela, de nouveaux matériaux sont mis au point pour des applications très diversifiées. Il y a une dizaine d'année, la société DuPont a développé divers matériaux photopolymères [52] pour réaliser des masques pour des circuits imprimés, des colles, des matériaux pour l'enregistrement d'hologrammes ou encore des matériaux pour la réalisation de circuits optiques. Aujourd'hui, la recherche concernant les matériaux holographiques continue avec des matériaux hybrides (organiques/inorganiques) pour la réalisation de micro-lentilles [43], d'afficheurs statiques ou dynamiques, ou encore de filtres optiques.

Dans le cadre de cette thèse, un temps important du travail de recherche a été consacré à l'élaboration d'un *matériau holographique centimétrique à modulation d'indice*. A l'origine de ce travail, compte tenu de l'historique du laboratoire, on distinguait trois possibilités de réaliser un tel matériau :

- ≻ modulation d'indice par modification de la conformation de la matière ;
- ≻ modulation d'indice par migration et densification de la matière ;
- ≻ la combinaison des deux précédentes.

Dans le chapitre consacré à l'élaboration du matériau holographique, nous verrons que nous avons exploré les trois voies expérimentales. L'objectif étant de réaliser un composant fonctionnant en espace libre, nous avons éliminé les matériaux utilisant une séparation de phase. En effet, ces matériaux ne peuvent pas être réalisés sur des épaisseurs supérieures à quelques centaines de micromètres. La figure 1.11 présente le schéma exploratoire parcouru avec les différentes solutions techniques exploitées.

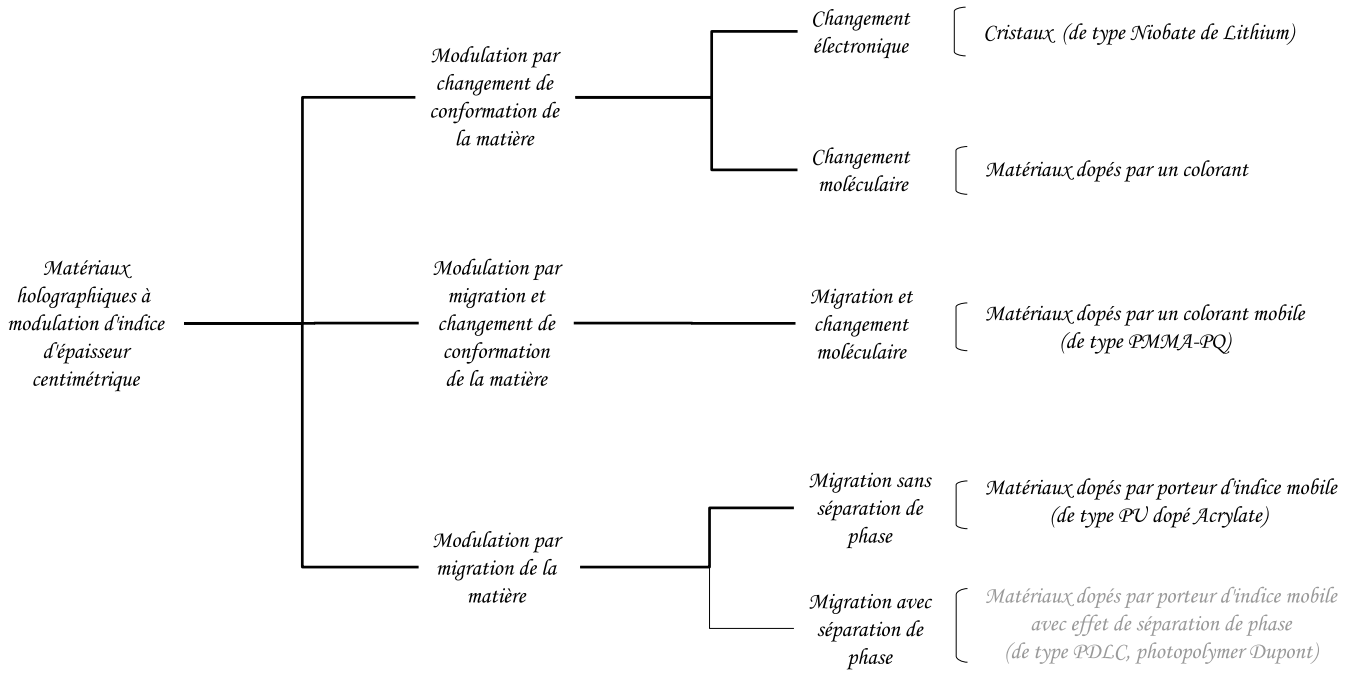

FIG. 1.11 – Exploration des concepts de matériaux holographiques d'épaisseur centimétrique.

Des problèmes liés à l'enregistrement dans les réseaux très épais (épaisseur centimétrique) ont permis d'élaborer une autre démarche d'exploration. En effet, comme décrit dans le chapitre III, lors de la phase d'enregistrement, un effet de filamentation se produit, ce qui interdit la réalisation de réseau épais dans notre matériau. Même si nous ne connaissons toujours pas l'ensemble des raisons de cet effet de filamentation, il est raisonnable de l'attribuer à des effets non-linéaires thermiques, optiques ou autres. Effectivement, nous avons développé un matériau dont l'indice varie fortement et rapidement en fonction de l'intensité lumineuse, observer des effets d'auto-guidages n'est donc pas une surprise. Une question se pose alors, comment éviter les effets d'auto-guidages et de filamentation dans des matériaux à forte modulation d'indice ? Ce qui se traduit par le concept *un matériau holographique à forte modulation d'indice qui n'introduit pas d'effet non linéaire*. Cette exploration n'a pas été effectuée mais la figure 1.12 présente une esquisse de la démarche que l'on peut prévoir.

Dans cette esquisse, on voit clairement deux démarches. La première consiste à interdire les effets non-linéaires soit par un filtrage spatial (exemple : le diamètre des filaments est incompatible avec les propriétés de la matrice), temporel (exemple : la cinétique de création des filaments est très lente devant celle d'enregistrement du réseau) ou spatio-temporel (une combinaison des deux précédentes).

La seconde consiste à séparer la fonction enregistrement de la fonction augmentation de la modulation d'indice. Ainsi, on enregistre un réseau de faible modulation d'indice (effet non-linéaire négligeable) puis on provoque l'augmentation de la modulation d'indice via un processus non optique : par effet thermique, on provoque à haute température la migration d'une espèce stable à basse température et dont la migration sera guidée par la concentration liée à la modulation d'indice ou encore une création de "trous", un solvant guidé par la modulation d'indice (via la concentration) s'évapore créant une absence de

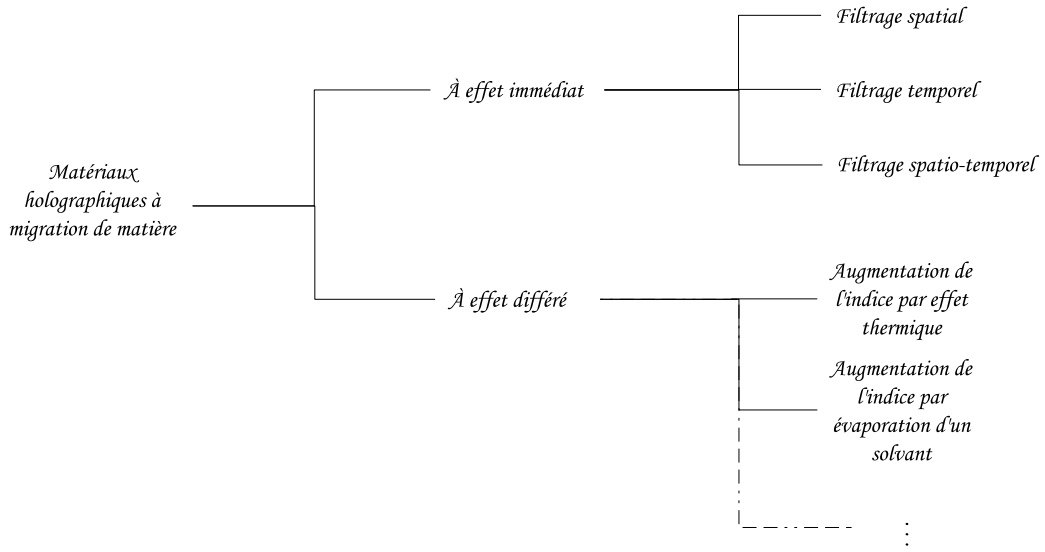

FIG. 1.12 – Exploration des concepts de matériaux holographiques d'épaisseur centimétrique sans effet non linéaire.

matière et donc une chute brutale de l'indice.

1.2 Valorisation de la recherche

Le second intérêt de l'exploration par concept et par cellule de connaissance est de pouvoir valoriser le travail de recherche via des innovations non envisagées au commencement du travail de recherche [41]. Dans ce cadre, plusieurs séances de travail ont été consacrées à l'investigation de nouvelles formes d'objets en se basant sur le concept de *séparateur de longueur d'onde compact*. La figure 1.13 présente un ensemble d'applications potentielles pour notre séparateur spectral compact et un de ses dérivés très proche.

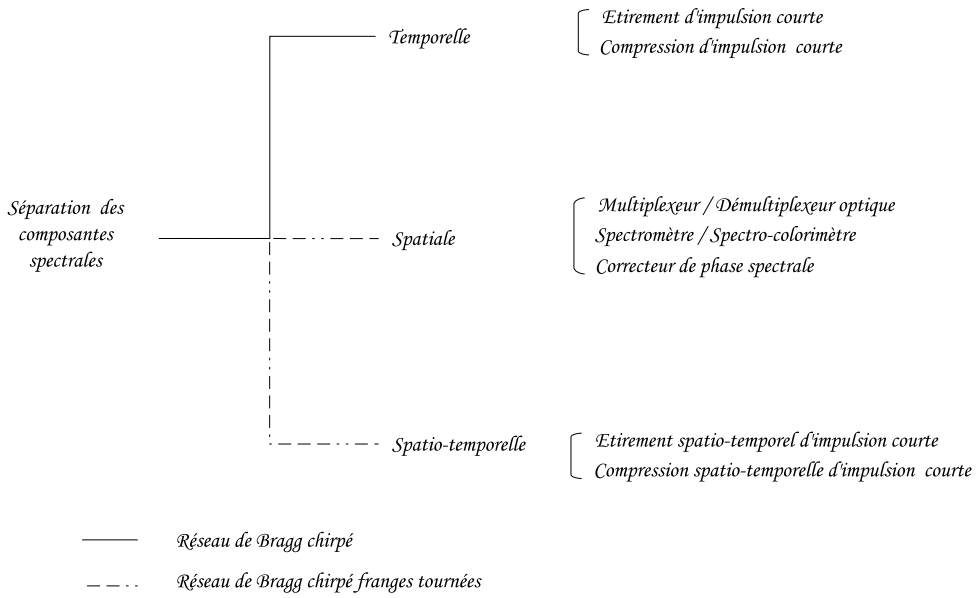

FIG. 1.13 – Exploration des applications possibles utilisant un séparateur spectral.

La figure 1.14 présente les deux configurations utilisées pour les applications. Le premier système correspond au système que nous avons vu précédemment. Le second consiste à tourner les franges de 45°, de manière à ce que les composantes spectrales soient séparées temporellement et spatialement. Cette nouvelle configuration ouvre un grand nombre de possibilités d'applications.

1.2.1 Multiplexeur / Démultiplexeur optique

Avec l'augmentation constante des débits de transfert de données, les télécommunications sont rapidement passées d'un système hybride électronique-optique vers un système tout optique. Pour augmenter encore la bande passante, on a exploité le concept de multiplexage en longueur d'onde (WDM : Wavelength Division Multiplexing), mais le but était de desservir les gros opérateurs et non l'utilisateur final. C'est d'ailleurs en partie cette discordance de débit entre l'utilisateur final et les opérateurs qui a conduit à la récession de l'année 2000. Aujourd'hui les contenus téléchargés sont de plus en plus volumineux, la vidéo à la demande utilise des débits très élevés pour permettre la lecture immédiate (12Mbps uniquement pour la video HD). En parallèle, les contenus s'enrichissent, la vidéo haute définition (HD) accompagne les canaux audio 7.1 (8 canaux audio en tout). Mais ce n'est plus seulement les connexions internet qui nécessitent du débit. Tous les appareils numériques (lecteurs multi-format portables, les appareils photo et caméscopes numériques, disque dur

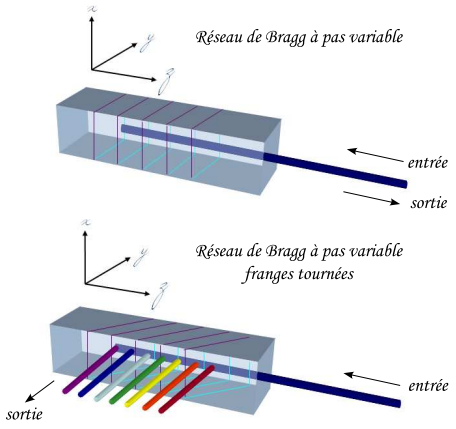

FIG. 1.14 – Configuration possible pour la séparation compacte, spatiale et/ou temporelle, des composantes spectrales. Dans le premier cas, les composantes spectrales restent toutes colinéaires. Dans le second, les composantes spectrales sont dispersées spatialement dans un plan.

externes ...) sont consommateurs de bande passante (la prise HDMI peut transporter jusqu'à 5 Gbps !). On peut donc entrevoir l'avènement du transfert par voies optiques entre "serveurs" et "périphériques". A titre d'exemple, dans les futurs avions gros porteurs le débit de la vidéo à la demande des 400 passagers est tel que l'utilisation de liaisons fibres avec multiplexage en longueur d'onde peut être envisagée avec sortie fibre pour chaque passager. La réalisation de guide polymère pour le multiplexage / démultiplexage pourrait s'avérer être une solution avantageuse et peu coûteuse.

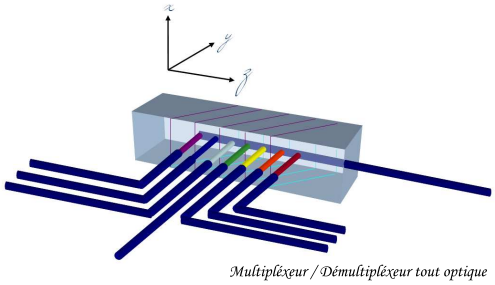

FIG. 1.15 – Réalisation possible d'un multiplexeur, démultiplexeur tout optique.

1.2.2 Spectromètre / Spectro-colorimètre

"L'humanité est intimement liée à la couleur". Ces mots de Jacques Livage, professeur de chimie au Collège de France confirment à quel point la nature et le vivant émerveillent par la richesse et la variété des effets colorés qu'ils offrent à notre regard. L'art s'en est longtemps inspiré, mais aussi la mode, et de nos jours, le marketing.

La vue est, et de loin, le sens le plus exploité par l'être humain. Il est donc naturel que les industriels, de l'automobile, du textile, de la publicité et autres, attachent un tel intérêt à mesurer les couleurs. De même la biologie, la chimie (pour le contrôle de l'environnement

par exemple) ont besoin d'outils compacts pour réaliser des mesures sur site. La réalisation de spectromètres ou spectro-colorimètres aussi petit qu'une clé USB pourrait se révéler très utile pour toutes ces applications exigeantes.

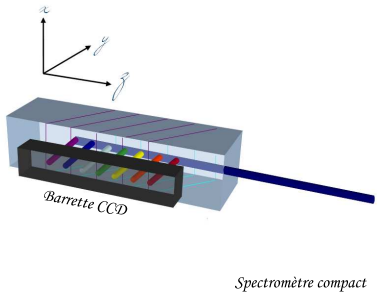

Fig. 1.16 – Réalisation possible d'un spectromètre compact.

Dans le marketing et l'infographie la couleur se doit d'être toujours juste. L'écran d'un graphiste doit être en principe calibré toutes les deux semaines. Le vieillissement du backlight, des filtres de couleurs et autres éléments d'un écran LCD modifient au cours du temps la température de couleur et le blanc ce qui nécessite des opérations de réglages relativement fastidieuses. L'intégration dans les écrans d'un système de calibration automatique permettrait de simplifier les opérations de maintenance.

Dans le monde de l'affichage et de la capture d'image, pour les professionnels comme pour le grand public, un standard (le sRGB) normalise l'espace colorimétrique. Les imprimantes, les appareils photo numériques, les caméscopes doivent se plier à cette norme tout comme les périphériques d'affichages (LCD, Plasma, CRT, ...). Les écrans sont donc calibrés en sortie d'usine mais (comme pour les professionnels) il vieillissent et perdent leur rendu de couleur. Pour conserver toujours un rendu juste, là aussi, un système de calibration automatique faciliterait bien des choses.

En ajoutant un ou plusieurs séparateurs spectraux compacts sur les écrans, on pourrait ajuster la colorimétrie des écrans automatiquement et ce, à n'importe quel moment. Cette invention a d'ailleurs fait l'objet d'un brevet THALES (Brevet 07 03246).

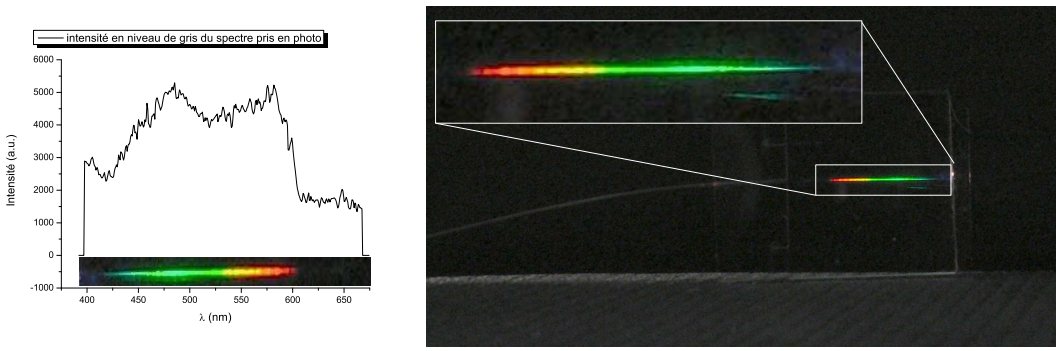

Fig. 1.17 – Démonstration d'un prototype de spectrocolorimètre

1.2.3 Correcteur de phase spectrale

Dans bon nombre d'applications, la mise en phase de différentes sources est recherchée. C'est le cas pour les lasers à impulsions courtes ou le large spectre a besoin d'être contrôlé en phase pour conserver toujours les plus courtes durées d'impulsions. Il est donc nécessaire de pouvoir adapter la phase de chaque composante spectrale individuellement afin de rétro-agir sur les perturbations environnementales. Mais le contrôle de la phase spectrale est également très utile, lorsque l'on veut mettre en phase plusieurs sources indépendantes (des diodes lasers par exemple) pour produire des interférences constructives et obtenir des sources très énergétiques. Dans ces deux cas, le séparateur spectral compact associé à un système de contrôle de la phase (piston ou valve optique) peut probablement répondre aux attentes liées à ces applications.

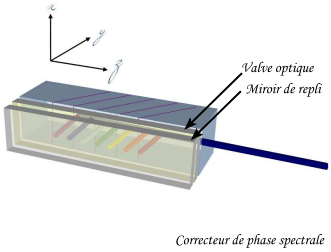

Fig. 1.18 – Réalisation possible d'un correcteur de phase spectrale pour la mise en phase de sources.

1.2.4 Amplification par étalement spectral spatio-temporel

L'amplification d'un signal temporellement étiré produit des effets de distortions. On peut en particulier soulever le problème du rétrécissement par le gain. En effet, le spectre de l'impulsion à une forme de cloche et l'énergie à la longueur d'onde centrale est plus intense que sur les bords. Lors de l'amplification, le milieu à gain transfère alors préférentiellement l'énergie à la longueur d'onde centrale plutôt qu'aux longueurs d'ondes latérales. Le spectre s'affine alors et diminue la durée de l'impulsion. Cet effet est une limitation pour maintenir des courtes durées d'impulsions. En utilisant habilement le séparateur spectral compact pour disperser les longueurs d'onde dans un plan, on peut envisager d'amplifier les longueurs d'ondes individuellement avec un gain personnalisable et ainsi éviter l'effet de rétrécissement par le gain.

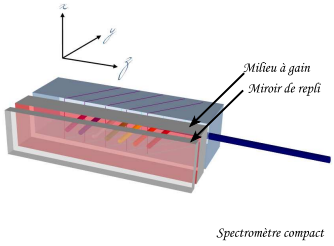

Fig. 1.19 – Réalisation possible d'un amplificateur linéaire permettant potentiellement d'éviter le rétrécissement par le gain.

Chapitre 2

Les réseaux de Bragg

2.1 Introduction

Ce chapitre a pour but de présenter les réseaux de volume à pas variable, dit réseaux de Bragg "chirpés". Les réseaux de volume ont la propriété de diffracter la lumière dans deux ordres uniquement, l'ordre 0 et l'ordre -1. De plus, dans certaines conditions il est possible d'obtenir une intensité nulle dans l'ordre zéro. La lumière est alors dispersée sans perte dans l'ordre -1. Enfin, en contrôlant correctement l'enregistrement du réseau de Bragg, il est possible de s'assurer que l'ordre -1 se propage dans la direction opposée au faisceau incident. On obtient alors le comportement d'un miroir, on appelle ce type de réseau des miroirs de Bragg.

Pour comprendre comment fonctionnent ces réseaux nous rappellerons tout d'abord comment fonctionnent les réseaux fins (en 2 dimensions). En considérant ensuite qu'il y a diffraction et interférence dans la troisième dimension, nous comprendrons comment fonctionnent les réseaux de volume. Ces bases permettront de modéliser les réseaux de Bragg utilisés pour l'étirement d'impulsions femtosecondes et de calculer les ordres de grandeur nécessaires à la réalisation d'un composant.

A l'issue de ce chapitre, nous disposerons d'un outil de modélisation complet pour concevoir le réseau de Bragg à pas variable le mieux adapté pour réaliser un étireur sur une chaîne laser femtoseconde classique. Ce réseau devra remplacer un étireur classique de type Offner et montrer ainsi l'interopérabilité entre les étireurs classiques et ce nouveau type d'étireur. Mais cet outil de modélisation et de simulation pourra être exploité au delà du "simple" remplacement d'étireur de type étireur de Offner. En effet, il pourra être utilisé pour réaliser des étireurs plus exotiques ayant des réponses en phases personnalisées mais également des réponses en amplitude. Modifier la réponse en amplitude spectrale d'un étireur permet par exemple de compenser les effets de rétrécissement par le gain toujours pour atteindre les durées les plus courtes possibles en conservant le spectre le plus large possible.

2.2 Diffraction, interférences, réseaux minces (2D)

2.2.1 Diffraction par une fente

La *diffraction par une fente* est un modèle théorique utilisé pour modéliser les phénomènes de diffraction et d'interférences en optique.

Une fente est une ouverture de largeur a et de longueur infinie, centrée sur l'origine (la fente s'étend de $-\frac{a}{2}$ à $\frac{a}{2}$ suivant l'axe z). Du fait de la symétrie par translation du problème, on ne considère les variations d'intensité que sur un seul axe z (voir fig. 2.1).

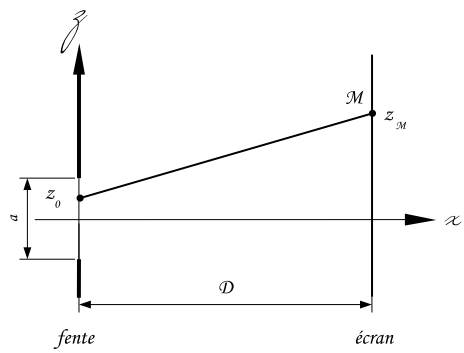

FIG. 2.1 – Diffraction par une fente.

On se place dans le cas où l'écran est situé à l'infini (diffraction de Fraunhoffer), c'est-à-dire que les rayons qui arrivent en un point M sont considérés comme parallèles. C'est le cas si l'écran est placé à plusieurs mètres de la fente.

Si l'on appelle D la distance entre l'écran et la fente, alors l'intensité $I(z)$ en un point z de l'écran s'écrit [1] :

$$I(z) = I_0 \cdot sinc^2\left(\frac{\pi a}{\lambda D} \cdot z\right)$$

où *sinc* est la fonction sinus cardinal définie par $sinc(z) = \sin(z)/z$. I_0 est l'intensité incidente et λ est la longueur d'onde incidente.

2.2.2 Diffraction par N fentes

La *diffraction par un réseau de fentes* est un modèle théorique qui nous permet de rappeler la loi des réseaux minces.

Un réseau de N fentes est constitué de N ouvertures de largeur a et de longueur infinie, espacées d'une distance Λ que l'on appelle période du réseau. Du fait de la symétrie par translation du problème, on ne considère les variations d'intensité que sur un seul axe z (voir fig. 2.2).

On se place dans le cas où l'écran est situé *à l'infini* , c'est-à-dire que les rayons qui arrivent en un point M sont considérés comme parallèles. Supposer que l'écran est *à l'infini* revient à poser que la distance D entre l'écran et les fentes est grande devant la distance Λ ($D \gg \Lambda$).

[1] La démonstration est faite en annexe

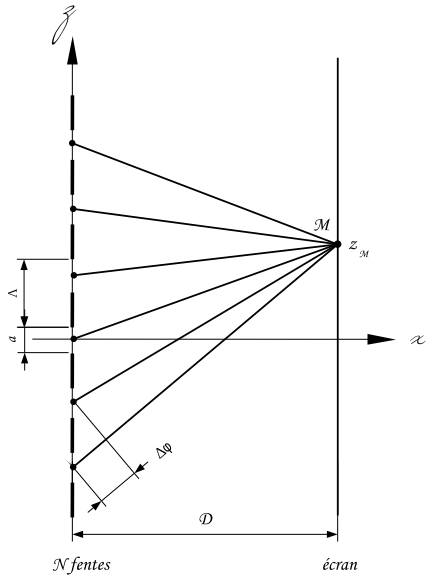

FIG. 2.2 – Diffraction par N fentes.

L'intensité $I(z)$ en un point z de l'écran s'écrit :

$$I(z) = I_0.\frac{\sin^2\left(\frac{N\pi\Lambda}{\lambda D}.z\right)}{N^2 sin^2\left(\frac{\pi\Lambda}{\lambda D}.z\right)}.sinc^2\left(\frac{\pi a}{\lambda D}\cdot z\right)$$

2.2.3 Interférences dans le plan d'observation

L'ensemble des rayons parallèles qui frappe l'écran au point M sont tous déphasés d'un multiple du retard :

$$\Delta\varphi = 2\pi\frac{\Lambda}{\lambda D}$$

Au point M, le champ total est la somme d'une série de N champs :

$$\begin{aligned}
E(z,t) &= \sum_{s=0}^{N} E_k \\
&= \frac{E_0}{N}.\sum_{s=0}^{N} e^{j(\omega t - k.\Delta\varphi z)} \\
&= \frac{E_0}{N}.e^{j(\omega t - N.\Delta\varphi z)}.\sum_{s=0}^{N-1} e^{j(-k.\Delta\varphi z)} \\
&= \frac{E_0}{N}.e^{j(\omega t - N.\Delta\varphi z)}.\Sigma
\end{aligned}$$

Le dernier membre vaut :

$$\begin{aligned}\Sigma &= \sum_{s=0}^{N-1} e^{j(-k.\Delta\varphi z)} \\ &= e^{-j(\frac{N-1}{2}.\Delta\varphi z)}.\frac{\sin(\frac{N\Delta\varphi z}{2})}{\sin(\frac{\Delta\varphi z}{2})}\end{aligned}$$

donc :

$$E(z,t) = \frac{E_0}{N}.e^{j(\omega t+N.\Delta\varphi z-\frac{N-1}{2}.\Delta\varphi z)}.\frac{\sin(\frac{N\Delta\varphi z}{2})}{\sin(\frac{\Delta\varphi z}{2})}$$

L'intensité lumineuse est le flux d'énergie, soit :

$$I_{fentes}(z) = E(z,t)\cdot E^*(z,t) = E_0^2.\left[\frac{\sin(\frac{N\Delta\varphi z}{2})}{N\sin(\frac{\Delta\varphi z}{2})}\right]^2 = I_0.\left[\frac{\sin(\frac{N\Delta\varphi z}{2})}{N\sin(\frac{\Delta\varphi z}{2})}\right]^2$$

Cette répartition d'énergie des fentes est modulée par la réponse spatiale d'une fente. L'intensité après un réseau de N fentes s'écrit alors :

$$I(z) = I_0.\left[\frac{\sin(\frac{N\Delta\varphi z}{2})}{N\sin(\frac{\Delta\varphi z}{2})}\right]^2.sinc^2\left(\frac{\pi a}{\lambda D}\cdot z\right)$$

On appelle ordre p de diffraction l'énergie diffractée dans la direction pour laquelle l'entier p est solution de $\frac{\Delta\varphi z}{2} = p[2\pi]$. Dans ces conditions, le dénominateur tend vers 0 et $I(z)$ est maximum.

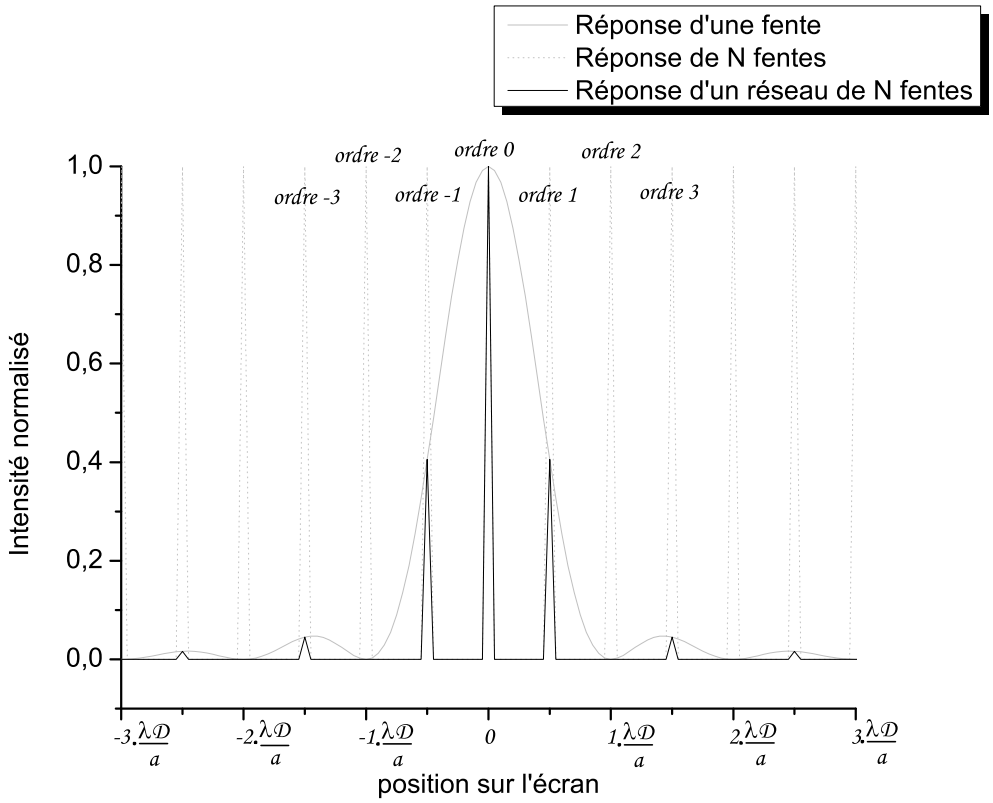

FIG. 2.3 – interférences *à l'infini* de N fentes.

2.2.4 Loi des réseaux

Les fentes de notre réseau étant disposées de manière régulière, on a une alternance d'interférences constructives et destructives selon l'angle de diffraction. On peut ainsi calculer, pour une longueur d'onde λ donnée, l'ensemble des angles θ pour lesquels on aura une interférence constructive (ordre de diffraction du réseau).

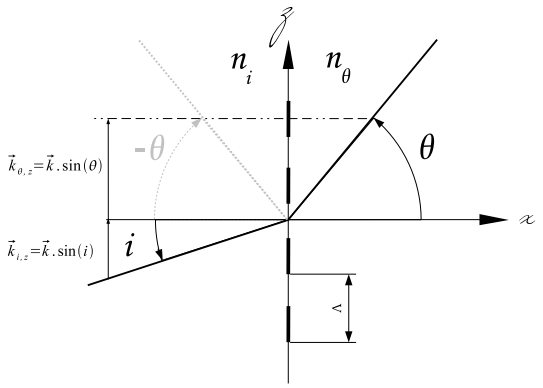

FIG. 2.4 – Diffraction d'un réseau dans la direction θ. Il est important de préciser que θ est une valeur algébrique. Cela signifie qu'en réflexion, l'angle de diffraction θ est négatif, ce qui permet de retrouver la loi des réseaux en réflexion.

La fonction de transmission du réseau $T(z)$ peut être très diversifiée (réseaux sinusoïdaux, réseaux binaires, réseaux de phase...). Cependant, elle restera toujours périodique de période Λ et sera donc de la forme suivante :

$$T(z) \propto \sum_{p=0}^{P} \alpha_p e^{j\frac{2\pi pz}{\Lambda}}$$

L'onde plane, monochromatique, de longueur d'onde λ, de vecteur d'onde $\overrightarrow{k}$ et d'amplitude U est incidente dans le milieu d'indice n_i avec un angle i sur le réseau (voir figure 2.4). La projection du champ sur l'axe z nous permet d'écrire que l'onde résultante est proportionnelle à l'expression suivante :

$$u \propto Ue^{-j\frac{2\pi n_i z}{\lambda}sin(i)}.e^{j\frac{2\pi pz}{\Lambda}}$$

Les ondes diffractées dans le milieu d'indice n_θ et dans la direction définie par l'angle θ s'écrivent sous la forme :

$$v \propto Ve^{-j\frac{2\pi n_\theta z}{\lambda}sin(\theta)}$$

A l'aide des deux relations précédentes et en ne tenant compte que de l'argument des exponentielles on obtient la relation suivante :

$$-\frac{2\pi n_i z}{\lambda}sin(i) + \frac{2\pi pz}{\Lambda} = -\frac{2\pi n_\theta z}{\lambda}sin(\theta)$$

Ce qui nous donne la loi des réseaux :

$$(n_\theta sin(\theta) - n_i sin(i)) = -p\frac{\lambda}{\Lambda}$$

Dans la suite, on prendra $n_i = n_\theta = n$. Cela revient à considérer que nous nous trouvons dans un milieu d'indice n égal à l'indice moyen du réseau. Il suffit ensuite pour connaître la direction de propagation en dehors du réseau (dans l'air par exemple), d'utiliser la loi de Snell-Descarte.

2.3 Effets d'épaisseur dans les réseaux, réseaux épais (3D)

Les propriétés de diffraction d'un réseau se modifient de façon significative lorsque sa période est bien plus petite que l'épaisseur du matériau dans lequel il est enregistré. Dans un réseau épais, l'angle d'incidence du faisceau de lecture est fixé par le pas du réseau et par la longueur d'onde du faisceau de lecture, et ne peut pas être choisi de façon arbitraire comme c'est le cas pour un réseau mince. De plus il existe seulement une onde diffractée principale et toute l'énergie du faisceau de lecture peut être transférée à cette onde. Nous établirons tout d'abord la condition sous laquelle on peut considérer que le réseau est épais et négliger tous les ordres diffractés sauf le principal. Nous traiterons ensuite de la théorie des ondes couplées de Kogelnik [44] et donnerons les formules du rendement de diffraction et de la sélectivité spectrale pour des réseaux en réflexion.

2.3.1 Critère d'épaisseur pour un réseau

Les matériaux photosensibles utilisés en holographie sont d'épaisseur non-nulle et il est très important d'étudier les effets d'épaisseur sur les propriétés de la diffraction. Par exemple un film holographique ayant une épaisseur d'environ 20 microns avec un pas des franges incidentes sur le film de l'ordre d'un micron possède une épaisseur 20 fois plus grande que le pas des franges. Dans de telles situations nous devons tenir compte de l'aspect tridimensionnel du matériau. Dans la suite nous considérons le cas simple d'un hologramme élémentaire, un réseau produit par l'interférence de deux ondes planes dans le matériau induisant des variations spatiales de permittivité et/ou de conductivité. Lorsque c'est la permittivité qui varie, le réseau est appelé réseau de phase. Lorsque c'est la conductivité, le réseau est dit d'absorption (ou d'amplitude). Dans certains cas on peut avoir un réseau mixte présentant à la fois des variations périodiques de permittivité et de conductivité. Dans la pratique ce sont les réseaux de phase qui sont les plus intéressants (pas de perte d'énergie).

Considérons un modèle simplifié de réseau épais. La lumière incidente est diffractée par les strates du réseau qui sont perpendiculaires à l'axe des z (Fig.2.5). Les rayons tels que (1) et (2) diffractés par deux points homologues situés sur deux strates consécutives sont en phase si la différence de marche entre eux est égale à un nombre entier de longueurs d'onde.

$$n\Lambda(\sin\theta - \sin i) = p.\lambda; \qquad p \in [0, \pm 1, \pm 2, ...] \tag{2.1}$$

Où n est l'indice de réfraction moyen du réseau et, aussi, celui du milieu extérieur au réseau ; λ est la longueur d'onde de la lumière dans le vide. Cette équation, en fait, est l'équation d'un réseau mince, elle ne tient pas compte de l'épaisseur du réseau. Dans un réseau épais, l'angle de diffraction θ doit satisfaire, en plus, une autre condition : des rayons tels que (2) et (3) diffractés par la même strate mais à différentes profondeurs (Fig.2.5) doivent être en phase ou presque en phase pour que l'amplitude totale diffractée par une strate sur toute sa longueur soit maximale.

La différence de marche entre les rayons (2) et (3) vaut $\Delta\varphi = nx(\cos i - \cos\theta)$. Si r est l'amplitude diffractée par unité de longueur d'une strate, l'amplitude diffractée par toute

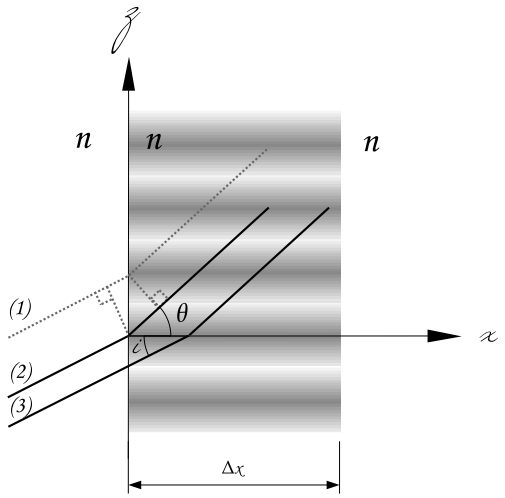

FIG. 2.5 – Diffraction par un réseau épais suivant la direction x.

la strate d'épaisseur Δx est :

$$\begin{aligned} R &= \int_0^{\Delta x} r \exp\left[j\frac{2\pi n x}{\lambda}(\cos i - \cos\theta)\right] dx \\ &= r\Delta x \exp\left[j\frac{\pi n \Delta x}{\lambda}(\cos i - \cos\theta)\right] sinc\left[\frac{\pi n \Delta x}{\lambda}(\cos i - \cos\theta)\right] \end{aligned} \tag{2.2}$$

$|R|$ est maximal pour $\theta = \pm i$; $\theta = i$ correspond a l'ordre zéro ($p = 0$) dans l'équation (2.1) ; c'est le faisceau transmis directement. $\theta = -i$ correspond à l'ordre -1 et il est le plus intense parmi les faisceaux diffractés. La condition $\theta = -i$ correspond à la réflexion du faisceau incident sur la strate du réseau, les rayons réfléchis à différentes profondeurs parcourant le même chemin optique. Substituant $\theta = -i$ et $p = -1$ dans l'équation (2.1), nous obtenons une relation entre l'angle d'incidence et le pas du réseau :

$$\sin i = \frac{\lambda}{2n\Lambda} \tag{2.3}$$

Le faisceau de lecture doit satisfaire cette condition appelée condition de Bragg. Contrairement à un réseau mince, l'angle d'incidence dans un réseau épais ne peut pas être choisi indépendamment de λ.

A l'aide des équations (2.1) à (2.3) nous pouvons calculer les intensités relatives des ordres par rapport à l'ordre principal, $p = -1$, lorsque le faisceau de lecture obéit à la condition de Bragg. Calculons par exemple, l'intensité relative dans l'ordre $+1$. L'angle θ pour $p = 1$ est donné par :

$$\sin\theta = \frac{3}{2}\frac{\lambda}{n\Lambda} \tag{2.4}$$

En substituant les équations (2.3) et (2.4) dans (2.2), l'intensité relative dans l'ordre $+1$ devient :

$$\frac{I_{p=1}}{I_0} = sinc^2\left[\frac{\pi n \Delta x}{\lambda}\left\{\left(1 - \frac{\lambda^2}{4n^2\lambda^2}\right)^{\frac{1}{2}} - \left(1 - \frac{9\lambda^2}{4n^2\lambda^2}\right)^{\frac{1}{2}}\right\}\right] \tag{2.5}$$

Pour $\lambda = 0{,}5$-μm, $n = 1,5$, $\Lambda = 1$-μm, $\Delta x = 15$-μm, l'intensité relative dans l'ordre $+1$ est 3.10^{-3}. Pour des angles i, θ petits, ($< 45^\circ$), par un développement limité, la formule (2.5) se réduit à :

$$sinc^2\left(\frac{\pi\lambda\Delta x}{n\Lambda^2}\right) \tag{2.6}$$

Lorsque le paramètre $\frac{\pi\lambda\Delta x}{n\Lambda^2}$ est supérieur à 10 (ce paramètre est appelé le facteur Q du réseau), l'intensité relative dans les ordres supérieurs ne dépasse pas 1% et l'on peut considérer que seulement l'ordre zéro et l'ordre -1 existent dans le volume du réseau.

2.3.2 Réseaux épais en transmission et en réflexion

On distingue parmi les réseaux épais deux types particuliers :

1. les réseaux en transmission ;
2. les réseaux en réflexion.

On parle de réseaux en transmission lorsque l'onde incidente E_+ et l'onde diffractée E_- se trouvent de part et d'autre du réseau (figure 2.6 à gauche). Les réseaux en réflexion sont, au contraire, les réseaux pour lesquels l'onde incidente E_+ et l'onde diffractée E_- se trouvent du même côté du réseau (figure 2.6 à droite). La figure 2.6 montre qu'un même réseau épais peut-être utilisé à la fois en réflexion et en transmission. Cette bivalence dépend de la longueur d'onde incidente et de son angle d'incidence sur le réseau. Dans tous les cas, si $\overrightarrow{K}$ est le vecteur d'onde du réseau défini par $\|\overrightarrow{K}\| = \frac{2\pi}{\Lambda}$ et dont la direction est perpendiculaire aux strates d'indice et $\overrightarrow{\beta_+}$ et $\overrightarrow{\beta_-}$ les vecteurs d'onde, respectivement de l'onde incidente et l'onde diffractée, alors la relation de Bragg, $\overrightarrow{K} = \overrightarrow{\beta_+} - \overrightarrow{\beta_-}$ doit être vérifiée.

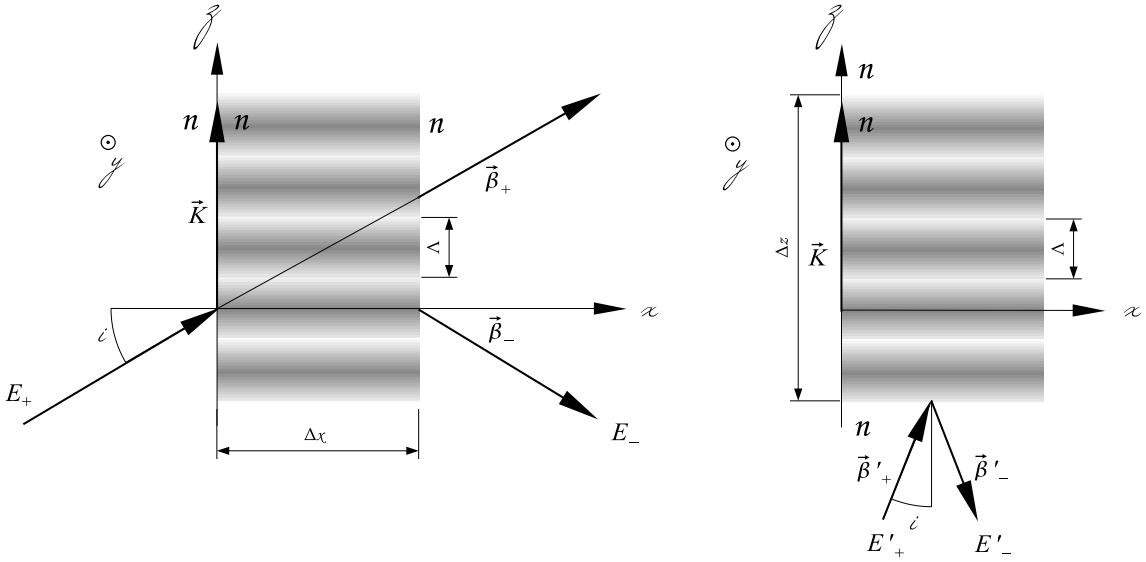

FIG. 2.6 – Réseau de Bragg en transmission (gauche). Réseau de Bragg en réflexion (droite).

Dans la suite, nous nous intéresserons tout particulièrement aux réseaux en réflexion car ce type de réseaux se comporte comme des miroirs (d'où le nom *réseau en réflexion*). En

effet, chaque strate du réseau réfléchit partiellement l'onde incidente E_+ et un phénomène d'interférences constructives permet de mettre en phase chacune de ces réflexions. Le principe est identique aux miroirs diélectriques à pas variable utilisé dans les systèmes lasers femtosecondes. La figure 2.7 montre comment tirer parti de ce type de réseau pour étirer des impulsions. En pratique, chaque composante spectrale de l'impulsion courte parcourt au sein du réseau un chemin optique différent et est donc décalée temporellement en sortie du réseau par rapport au reste du spectre.

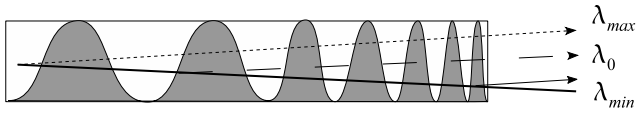

FIG. 2.7 – miroir holographique de Bragg à pas variable.

2.3.3 Réseau en réflexion, Théorie des ondes couplées

Le réseau épais que nous allons étudier est représenté sur la figure 2.8.

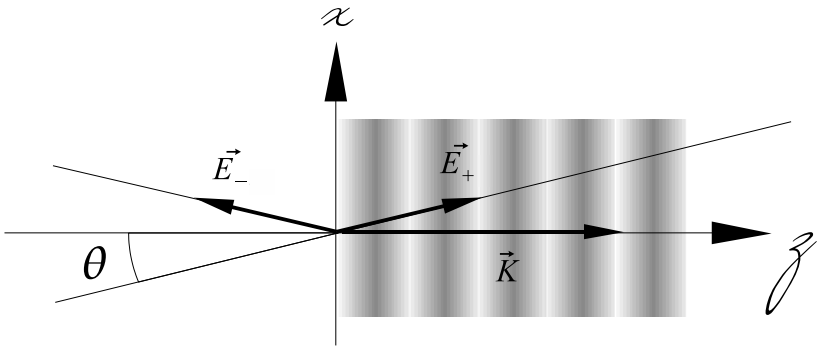

FIG. 2.8 – Réseau de Bragg en réflexion.

L'axe des z est perpendiculaire aux surfaces limitant le milieu diélectrique. Les strates sont perpendiculaires au plan d'incidence xz. Le réseau a une longueur totale L. Le vecteur réseau $\overrightarrow{K}$, de module $\frac{2\pi}{\Lambda}$ est perpendiculaire aux strates. Pour simplifier l'analyse nous prenons la permittivité moyenne du milieu formant le réseau égale à celle du milieu extérieur. Cela implique que toute l'analyse se fait "à l'intérieur" du réseau. Pour connaître les angles de diffraction des différentes ondes il suffit d'appliquer les lois de Snell-Descartes . Soit une onde plane E_+, polarisée parallèlement à l'axe des y, arrivant à incidence normale sur le réseau ($\theta = 0$). L'onde incidente E_+ donne naissance à une onde réfléchie E_- et il y a échange d'énergie entre ces deux ondes tout au long de leurs trajets dans le volume du réseau. Pour étudier la propagation de ces ondes dans le réseau de volume, nous devons résoudre l'équation d'onde scalaire :

$$\triangle\tilde{E}(\omega) + k^2(z,\omega)\tilde{E}(\omega) = 0 \tag{2.7}$$

Le champ électrique est la somme des champs se propageant en sens inverse l'un de l'autre :

$$\tilde{E}(x,y,z,\omega) = \tilde{E}_+(x,y,z,\omega).e^{j(\beta(\omega)z)} + \tilde{E}_-(x,y,z,\omega).e^{-j(\beta(\omega)z)} \tag{2.8}$$

Le module du vecteur d'onde $k(z,\omega)$ s'écrit sous la forme :

$$k(z,\omega) = \frac{\omega.n(z,\omega)}{c} = \frac{\omega}{c}.(n(\omega) + \Delta n) \tag{2.9}$$

La variation de l'indice de réfraction induite par l'inscription du réseau de Bragg est modélisée sous la forme :

$$\Delta n = \Delta n(z)\cos(2k_B z + \psi(z)) = \Delta n(z)\cos(Kz + \psi(z)) \tag{2.10}$$

On obtient alors :

$$k^2(z,\omega) = \beta + 2\beta\kappa\left\{e^{j\Upsilon(z)} + e^{-j\Upsilon(z)}\right\} \tag{2.11}$$

Dans le calcul de $k^2(z,\omega)$ la contribution Δn^2 est négligeable car la modulation d'indice est très faible. Nous avons écrit $\beta(\omega)$ pour $\frac{\omega n_0(\omega)}{c}$ et $\kappa = \frac{\omega\Delta n}{2c} = \frac{\pi\Delta n}{\lambda}$. κ est appelée la constante de couplage. Elle joue un rôle fondamental dans la théorie des ondes couplées puisque si celle-ci est nulle il n'y a pas de réseau et pas de diffraction. $\Upsilon(z)$ quant-à lui vaut $2k_B z + \psi(z)$. D'un point de vue physique il est important de détailler la contribution de chacun des termes qui décrivent la modulation d'indice.

- $\succ$ $\Delta n(z)$ est l'enveloppe de la modulation d'indice
- $\succ$ k_B est le vecteur d'onde de Bragg principal
- $\succ$ $\Upsilon(z)$ rend compte de la variation longitudinale de la période (chirp)

A partir de $\Upsilon(z)$ l'argument du cosinus de (2.10) on peut définir le vecteur d'onde de Bragg du réseau par :

$$K(z) = \frac{d\Psi}{dz} = 2k_B + \frac{d\psi(z)}{dz} \tag{2.12}$$

La période spatiale Λ de la variation d'indice peut alors s'exprimer en fonction de la fonction $\psi(z)$:

$$\Lambda(z) = \frac{2\pi}{K(z)} = \frac{2\pi}{2k_B + \frac{d\psi(z)}{dz}}$$

En injectant (2.8) et (2.11) dans l'équation de propagation (2.7) on obtient :

$$\begin{aligned}
&\left[\frac{d^2\tilde{E}_+}{dz^2} + 2j\beta\frac{dE_+}{dz} + (\beta^2 - \beta^2)\tilde{E}_+\right]e^{j\beta z} \\
&+ \left[\frac{d^2\tilde{E}_-}{dz^2} - 2j\beta\frac{d\tilde{E}_-}{dz} + (\beta^2 - \beta^2)\tilde{E}_-\right]e^{-i\beta z} \\
&+2\beta\kappa\left[\tilde{E}_+\left(e^{-j(\beta z - 2\delta kz + \psi(z))} + e^{j(3\beta z - 2\delta kz + \psi(z))}\right)\right] \\
&+ 2\beta\kappa\left[\tilde{E}_-\left(e^{j(\beta z - 2\delta kz + \psi(z))} + e^{-j(3\beta z - 2\delta kz + \psi(z))}\right)\right] = 0
\end{aligned} \tag{2.13}$$

En utilisant l'approximation de l'enveloppe lentement variable à l'échelle de la longueur d'onde :

$$\left|\frac{d^2\tilde{E}_\pm}{dz^2}\right| \ll \left|\beta\frac{d\tilde{E}_\pm}{dz}\right| \tag{2.14}$$

on trouve :

$$\begin{aligned}&\left[j\frac{d\tilde{E}_+}{dz}\right]e^{j\beta z} + \left[j\frac{d\tilde{E}_-}{dz}\right]e^{-j\beta z}\\ &+2\beta\kappa\left[\tilde{E}_+\left(e^{-j(\beta z-2\delta kz+\psi(z))} + e^{j(3\beta z-2\delta kz+\psi(z))}\right)\right]\\ &+2\beta\kappa\left[\tilde{E}_-\left(e^{j(\beta z-2\delta kz+\psi(z))} + e^{-j(3\beta z-2\delta kz+\psi(z))}\right)\right] = 0\end{aligned} \tag{2.15}$$

avec :

$$\delta k = \beta - k_B \tag{2.16}$$

exprimant le désaccord de Bragg par rapport au vecteur d'onde de Bragg du réseau k_B. Dans cette nouvelle équation, on s'aperçoit qu'il y a des termes oscillant rapidement en $3\beta(\omega)z$. Ces termes sont moyennés à 0 dans l'approximation dite synchrone. Une condition nécessaire pour que la théorie des ondes couplées soit valable est donc que $\delta k \ll \beta(\omega)$. En isolant le facteur des exponentielles en $\pm j\beta(\omega)z$, on obtient les équations couplées pour chaque enveloppe :

$$\pm j\frac{d\tilde{E}_\pm}{dz} + \kappa\tilde{E}_\mp e^{\mp j(2\delta kz-\psi(z))} = 0 \tag{2.17}$$

2.3.4 Réseau en réflexion, cas des réseaux à pas fixe

On se place maintenant dans le cas où $\psi(z)$ est constant (pour simplifier les calculs on prendra $\psi(z) = 0$), le réseau est alors à pas fixe. Nous allons étudier phénoménologiquement la "brique élémentaire" de tout réseau. L'objectif est de connaître la solution des équations couplées suivantes.

$$j\frac{d\tilde{E}_+}{dz} + \kappa\tilde{E}_- e^{-j(2\delta kz)} = 0 \tag{2.18}$$

$$-j\frac{d\tilde{E}_-}{dz} + \kappa\tilde{E}_+ e^{+j(2\delta kz)} = 0 \tag{2.19}$$

On obtient alors pour $\tilde{E}_-$ l'équation du second ordre suivante :

$$\frac{d^2\tilde{E}_-}{dz^2} - 2j\delta k\frac{d\tilde{E}_-}{dz} - \kappa^2\tilde{E}_- = 0 \tag{2.20}$$

Pour trouver la solution de cette équation on prend comme conditions initiales :
- $\tilde{E}_+(0^-) = 1$, juste avant l'entrée dans le réseau, seul $\tilde{E}_+$ existe ;
- $\tilde{E}_-(d) = 0$, Après une distance d, $\tilde{E}_+$ ne transfert plus d'énergie à $\tilde{E}_-$.

La solution de cette équation pour les conditions initiales précédemment citées est de la forme :

$$\tilde{E}_-(z) = C.e^{j2\delta kz}\left[e^{-\sqrt{\kappa^2-\delta k^2}z} - e^{-\sqrt{\kappa^2-\delta k^2}(z-2d)}\right] \tag{2.21}$$

Pour déterminer la constante C, on calcule $\frac{d\tilde{E}_-}{dz}$ à l'aide de l'équation (2.21) en $z = 0$ qui vaut $-j\kappa$ selon l'équation (2.19). On trouve :

$$C = \frac{-j\kappa}{j\delta k(1 - e^{-2\sqrt{\kappa^2-\delta k^2}d}) - \sqrt{\kappa^2 - \delta k^2}(1 + e^{-2\sqrt{\kappa^2-\delta k^2}d})} \tag{2.22}$$

Après simplification de l'expression, on obtient le champ électrique de l'onde $\tilde{E}_-$, qui s'écrit :

$$\tilde{E}_-(z) = -j\kappa.e^{j\delta kz}\left[\frac{sinh(\sqrt{\kappa^2 - \delta k^2}(d - z))}{\delta k.sinh(\sqrt{\kappa^2 - \delta k^2}.d) - \sqrt{\kappa^2 - \delta k^2}.cosh(\sqrt{\kappa^2 - \delta k^2}.d)}\right] \tag{2.23}$$

La grandeur physique d'intérêt dans le cas que nous traitons ici est l'efficacité de diffraction η qui correspond à l'intensité normalisée de $\tilde{E}_-$ en sortie du réseau. Il est important de préciser que la sortie d'un réseau en réflexion se trouve en $z = 0$ pour l'onde réfléchie $\tilde{E}_-$. On trouve alors l'expression de η démontrée par Kogelnik [44] pour les réseaux en réflexion :

$$\eta = \tilde{E}_-(0).\tilde{E}^*_-(0) = \frac{sinh^2(\sqrt{\kappa^2 - \delta k^2}.d)}{sinh^2(\sqrt{\kappa^2 - \delta k^2}.d) + 1 - \frac{\delta k^2}{\kappa^2}} \tag{2.24}$$

2.3.4.1 Réseau en réflexion à pas fixe dans les conditions de Bragg

Lorsque les conditions de Bragg sont remplies, le déphasage δk est nul ($\beta = k_B$). Les expressions du champ et de l'efficacité de diffraction se simplifient. On obtient :

$$\tilde{E}_-(z) = j\left[\frac{sinh(\kappa.(d - z))}{cosh(\kappa.d)}\right] \tag{2.25}$$

et,

$$\eta = tanh^2(\kappa.d) = tanh^2\left(\frac{\pi\Delta nd}{\lambda}\right) \tag{2.26}$$

A ce stade, il est important de noter que l'efficacité de diffraction dépend du produit $\Delta n \times d$. En effet, pour une efficacité de diffraction donnée (par exemple : $\eta = 90\%$), il existe une infinité de couples $(\Delta n, \Delta z)$ de modulation d'indice et d'épaisseur du réseau pour lesquels $\eta(\Delta n, \Delta z) = \tanh^2(\frac{\pi\Delta n\Delta z}{\lambda}) = 0,9$.

2.3.4.2 Réseau en réflexion à pas fixe hors des conditions de Bragg

La différence entre deux réseaux à pas fixe de même efficacité se situe hors Bragg. En effet, en reprenant les équations de propagations (2.24) et en tenant compte cette fois du désaccord δk, l'efficacité de diffraction en fonction de la longueur d'onde à l'incidence de Bragg peut s'écrire sous la forme :

$$\eta(\lambda) = \frac{1}{1 + \frac{1-\delta k^2/\kappa^2}{sinh^2(\sqrt{\kappa^2-\delta k^2}.d)}}$$

avec :

$$\delta k = \pi n(\frac{2}{\lambda} - \frac{1}{\Lambda})$$

et :

$$\kappa = \frac{\pi \Delta n}{\lambda}$$

Sur la figure 2.9 on a représenté l'efficacité de diffraction en fonction de la longueur d'onde de réseaux à pas fixe pour les couples $(\Delta n, \Delta z)$ suivants qui ont la même efficacité max de 90% :

- ≻ $\Delta n = 10^{-3}$, $\Delta z = 470$-μm ;
- ≻ $\Delta n = 5.10^{-4}$, $\Delta z = 940$-μm ;
- ≻ $\Delta n = 10^{-4}$, $\Delta z = 4{,}7$-mm.

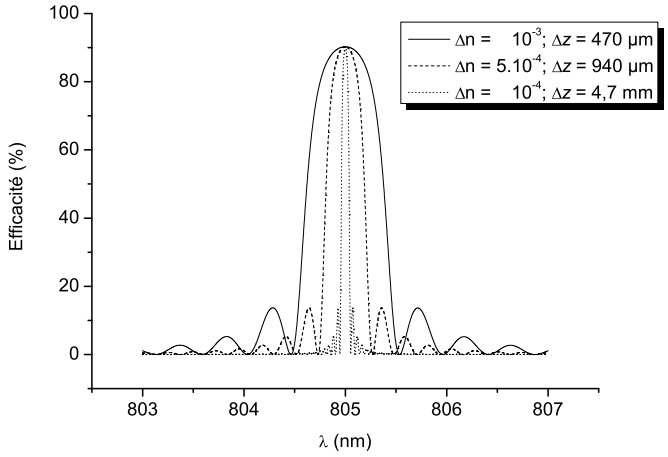

FIG. 2.9 – Réseau de Bragg en réflexion pour différents couples $(\Delta n, \Delta z)$.

La bande passante est dans ce cas une fonction croissante de Δn : elle passe de 0,1-nm (aux premiers zéros) pour $\Delta n = 10^{-4}$ à 1-nm pour $\Delta n = 10^{-3}$. Il est important de noter que, connaissant l'efficacité de diffraction en fonction de la longueur d'onde et l'efficacité maximum à Bragg il est facile de remonter au paramètre physique Δn du réseau. Cette démarche est communément appelée *problème inverse*. Dans cette première partie, nous avons donc étudié les réseaux de Bragg à pas fixe constituant la "brique élémentaire" permettant la réalisation de réseaux de Bragg à pas variable dits "réseaux chirpés".

2.4 Modélisation des réseaux de volumes

2.4.1 Réseau en réflexion à pas variable

Les réseaux de Bragg à pas fixe permettent de réaliser des miroirs dont la réflectivité est contrôlée. En revanche, ils induisent inévitablement une modification (faible) de la phase spectrale intrinsèque aux réseaux en raison d'une part de la dépendance de l'indice avec la longueur d'onde et d'autre part au fait que les chemins optiques parcourus en leur sein par les différentes longueurs d'onde sont distincts (l'accord de Bragg n'étant pas vérifié pour toutes les longueurs d'onde qui sont réfléchies, le champ pénètre plus ou moins profondément dans le réseau introduisant une variation du délai de groupe différente pour chaque longueur d'onde) . L'intérêt d'un réseau à pas variable est qu'il permet d'obtenir une phase spectrale prédéfinie. Ce réseau consiste en un empilement de réseaux élémentaires dont le pas varie en fonction de la profondeur dans le réseau. Ainsi toutes les longueurs d'onde d'une impulsion incidente sur le réseau sont réfléchies successivement. Pour illustrer cet effet, on peut utiliser la méthode de la réflexion ponctuelle. Cette méthode repose sur l'approximation selon laquelle les longueurs d'onde sont réfléchies dans le réseau à la position donnée imposée par la condition de Bragg :

$$\beta(z) = \frac{K(z)}{2} \tag{2.27}$$

Cette vision est partiellement fausse dans la mesure ou une onde donnée ne se réfléchit pas en un point mais interagit avec le réseau de diffraction tout entier pour donner naissance à une onde réfléchie issue de l'ensemble des interférences constructives sur les strates du réseau. Cependant, cette technique permet de comprendre la "physique" des réseaux de Bragg chirpés. Ainsi pour contrôler la dispersion du réseau on agit sur le paramètre Λ, pas local du réseau, pour déterminer le chemin optique parcouru pour chaque longueur d'onde de l'impulsion courte.

2.4.1.1 Principe de la réflexion ponctuelle

La technique suivante permet d'obtenir une expression analytique pour la fonction ψ dans le cas de réseaux chirpés ayant des caractéristiques relativement simples et en négligeant la dispersion du matériau. Pour des cas plus complexes, seule une résolution numérique est possible. D'autre part, le coefficient de réflectivité du réseau, lui n'est pas pris en compte.

Le *problème inverse* consiste donc à déterminer les paramètres physiques d'un réseau de Bragg chirpé en fonction de la réponse spectrale souhaitée. Nous allons dans un premier temps étudier une approche analytique : la méthode de la réflexion ponctuelle. Cette méthode repose sur l'approximation selon laquelle les longueurs d'ondes sont réfléchies dans le réseau à la position donnée par la condition de Bragg :

$$\beta(z) = \frac{K(z)}{2} \tag{2.28}$$

On se donne une réponse spectrale cible avec en particulier une phase spectrale $\psi(\omega)$. A partir de là on en déduit le délai de groupe $T(\omega)$ qui est la dérivée de ψ par rapport à ω. Ce délai de groupe peut s'exprimer en fonction de la distance parcourue dans le réseau pour chaque fréquence :

$$T(\omega) = \frac{2n(\omega)z(\omega)}{c} \tag{2.29}$$

Cette relation donne donc la position où chaque fréquence est réfléchie $z(w)$. Par inversion, on peut en déduire la relation $\omega(z)$. L'utilisation de la condition de Bragg est la dernière étape qui permet de calculer dans un premier temps la quantité $K(z)$ définie par :

$$K(z) = 2k_B + \frac{d\psi(z)}{dz} \tag{2.30}$$

La fonction $\psi(z)$ s'en déduit alors par intégration[2]. La période physique $\Lambda(z)$ est directement reliée à $\psi(z)$ par :

$$\Lambda(z) = \frac{2\pi}{K(z)} = \frac{2\pi}{2k_B + \frac{d\psi(z)}{dz}} \tag{2.31}$$

2.4.2 Modélisation des réseaux de Bragg à pas variable en réflexion

Dans les paragraphes précédents, nous avons étudié théoriquement et phénoménologiquement les *briques élémentaires* des réseaux de Bragg que nous souhaitons utiliser. Cette étude a ses limites et il est maintenant nécessaire d'utiliser un modèle numérique pour simuler les miroirs de Bragg que nous voulons réaliser. Pour cela, nous allons utiliser une méthode différentielle couramment nommée "Layer Peeling". Cette méthode s'appuie sur un argument de causalité pour les ondes se propageant dans le milieu, consistant à considérer que le couplage à l'entrée du réseau entre l'onde incidente et l'onde réfléchie est uniquement déterminé par la réponse impulsionnelle. En effet, "au tout début", la lumière n'a pas le temps de se propager profondément dans le réseau et elle ne voit que la "première couche". Une fois le coefficient de couplage déterminé numériquement dans la première couche ("layer"), on propage alors les champs vers la seconde couche. Cette propagation est calculée via l'intégration des équations couplées vues précédemment ou par la méthode des matrices de transfert présentée dans la suite. Ainsi, on se retrouve dans la même situation qu'au début de "l'exercice", mais la première couche ne contribue plus, elle a été épluchée ("peeled off"). Le gros avantage de cette technique sur d'autres algorithmes est une meilleure efficacité et surtout une complexité moindre [16].

Pour appliquer cette méthode, il est souvent d'usage de faire un changement de variable pour incorporer toute l'information des paramètres physiques du réseau dans un seul coefficient [16]. On pose ainsi :

$$\begin{cases} \tilde{E}_+(z,t) &= \tilde{u}(z,t)e^{-j\delta kz} \\ \tilde{E}_-(z,t) &= \tilde{v}(z,t)e^{j\delta kz} \end{cases} \tag{2.32}$$

Le système (2.17) devient avec les nouvelles variables :

$$\begin{aligned} \frac{d\tilde{u}}{dz} - j\tilde{u}\delta k - q\tilde{v} = 0 \\ \frac{d\tilde{v}}{dz} + j\tilde{v}\delta k - q^*\tilde{u} = 0 \end{aligned} \tag{2.33}$$

[2]Le calcul analytique pour un délai de groupe purement linéaire est présenté en annexe

où le coefficient de couplage complexe est défini par :

$$q(z) = j\kappa(z)e^{-i\psi(z)} \tag{2.34}$$

si on l'exprime en fonction des variables physiques du réseau, on trouve :

$$q(z) = \frac{\pi\Delta n(z)}{\lambda}e^{-j\left(\psi(z)+\frac{\pi}{2}\right)} \tag{2.35}$$

q contient toute l'information sur le réseau :

- son module est proportionnel à l'enveloppe du réseau ;
- sa phase donne l'information sur la fonction ψ qui donne les variations de la période du réseau en fonction de la position z.

En pratique, on obtient :

$$\Delta n(z) = \frac{|q|}{2k_B} \tag{2.36a}$$

$$\Lambda(z) = \frac{2\pi}{2k_B + \frac{d}{dz}(\arg(q))} \tag{2.36b}$$

Le système (2.33) est résolu numériquement pour chaque fréquence ce qui permet d'obtenir la réflectivité du réseau $r(\omega) = \frac{\tilde{v}(\omega)}{\tilde{u}(\omega)}$. L'amplitude spectrale de l'impulsion réfléchie est alors simplement :

$$\tilde{E}_r(x, y, z, \omega) = r(\omega)\tilde{E}_0(x, y, z, \omega) \tag{2.37}$$

Le champ électrique s'obtient alors par transformée de Fourier inverse de (2.37).

2.4.2.1 Méthode des matrices de transfert

La philosophie de la technique des matrices de transfert est de discrétiser le réseau en sections uniformes dont les caractéristiques physiques sont constantes (Fig. 2.10). En effet, dans ce cas il est facile de calculer la matrice de transfert M_i de chaque section i.

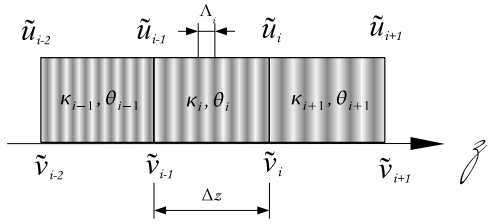

FIG. 2.10 – discrétisation du réseau de Bragg en section uniformes.

Dans le cas où q est indépendant de z, le système (2.33) se résout facilement et on peut en déduire la matrice de transfert d'une section uniforme telle que :

$$\begin{pmatrix} \tilde{u}_{i+1} \\ \tilde{v}_{i+1} \end{pmatrix} = M_i \begin{pmatrix} \tilde{u}_i \\ \tilde{v}_i \end{pmatrix} \tag{2.38}$$

La matrice de transfert M_i s'écrit [16] :

$$M_i = \begin{pmatrix} \cosh(\gamma_i \Delta z) + j\frac{\delta k}{\gamma_i}\sinh(\gamma_i \Delta z) & \frac{q_i}{\gamma_i}\sinh(\gamma_i \Delta z) \\ \frac{q_i^*}{\gamma_i}\sinh(\gamma_i \Delta z) & \cosh(\gamma_i \Delta z) - j\frac{\delta k}{\gamma_i}\sinh(\gamma_i \Delta z) \end{pmatrix} \tag{2.39}$$

où Δz est la longueur de chaque section et γ_i est défini par :

$$\gamma_i^2 = |q_i|^2 - \delta k^2 \tag{2.40}$$

Comme les équations couplées ne sont valables que lorsque les paramètres du réseau de Bragg varient lentement à l'échelle de la longueur d'onde, la longueur élémentaire Δz doit être plus grande que la période du réseau de chaque section :

$$\Delta z > \Lambda_i \tag{2.41}$$

On peut calculer la matrice de transfert de chaque section par (2.39), la matrice de transfert de toute la structure s'obtient par un produit de matrices :

$$M = \prod_i M_i = \begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{pmatrix} \tag{2.42}$$

On obtient donc la relation pour un réseau de longueur L :

$$\begin{pmatrix} \tilde{u}(L) \\ \tilde{v}(L) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{u}(0) \\ \tilde{v}(0) \end{pmatrix} \tag{2.43}$$

Dans la modélisation, le réseau dans sa totalité est un système conservatif si bien que de même que pour chaque section élémentaire :

$$\begin{cases} M_{22} & = & M_{11}^* \\ M_{21} & = & M_{12}^* \end{cases} \tag{2.44}$$

En appliquant les conditions aux limites, $\tilde{u}(0) = 1$ et $\tilde{v}(L) = 0$, on en déduit que :

$$r = \tilde{v}(0) = -\frac{M_{12}^*}{M_{11}^*} \tag{2.45}$$

Le coefficient de réflexion est ainsi déterminé par (2.45) pour chaque fréquence.

2.4.2.2 Méthode des matrices de transfert simplifiée

Dans le cas où $\Delta z \ll L$, on peut montrer que la matrice de transfert M_i d'une section uniforme est équivalente au produit de deux matrices plus simples [16] :

$$M \approx M_{\Delta z} M_\rho \tag{2.46}$$

M_ρ est la matrice décrivant un miroir avec un coefficient de réflexion complexe ρ :

$$M_\rho = \left(1 - |\rho|^2\right)^{-\frac{1}{2}} \begin{pmatrix} 1 & -\rho^* \\ -\rho & 1 \end{pmatrix} \tag{2.47}$$

où ρ est relié au coefficient complexe du réseau par la relation :

$$\rho = -\frac{q^*}{|q|}\tanh(|q|\Delta z) \tag{2.48}$$

On peut retrouver l'expression (2.47) de M_ρ en prenant la limite dans la matrice générale (2.39) quand $|q| \longrightarrow \infty$ tout en gardant le produit $q\Delta z$ fini. Dans cette situation, la réflexion est bien localisée en un point donné (comme pour un miroir).

$M_{\Delta z}$ est la matrice décrivant une propagation sur une distance Δz :

$$M_{\Delta z} = \begin{pmatrix} e^{j\delta k\Delta z} & 0 \\ 0 & e^{-j\delta k\Delta z} \end{pmatrix} \tag{2.49}$$

Cette expression s'obtient en prenant la limite dans (2.39) quand $|q| \longrightarrow 0$ puisque dans ce cas il n'y a plus de couplage et la matrice représente simplement la propagation des champs.

Dans ce modèle, le réseau est donc remplacé par une série de miroirs discrets séparés d'une distance Δz et caractérisés par le coefficient de réflexion complexe ρ_i (voir Fig. 2.11). La réflectivité du réseau se calcule donc en évaluant un produit de matrices de transfert plus simples que dans le paragraphe précédent. On peut alors trouver une relation plus simple d'utilisation pour calculer la réflectivité.

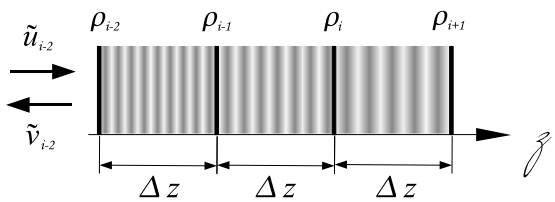

FIG. 2.11 – modélisation du réseau en une série de miroirs

Pour cela, considérons la relation entre les champs avant et après transfert par la matrice M_i. Celle-ci se calcule simplement :

$$M_i = M_{\Delta z,i} M_{\rho,i} = \left(1 - |\rho|^2\right)^{-\frac{1}{2}} \begin{pmatrix} e^{j\delta k\Delta z} & -\rho_i^* e^{j\delta k\Delta z} \\ -\rho_i e^{-j\delta k\Delta z} & e^{-j\delta k\Delta z} \end{pmatrix} \tag{2.50}$$

En utilisant (2.38) :

$$\begin{pmatrix} \tilde{u}_{i+1} \\ \tilde{v}_{i+1} \end{pmatrix} = M_i \begin{pmatrix} \tilde{u}_i \\ \tilde{v}_i \end{pmatrix}$$

on en déduit que :

$$r_{i+1} = \frac{\tilde{v}_{i+1}}{\tilde{u}_{i+1}} = \frac{r_i - \rho_i}{1 - r_i \rho_i^*} e^{-2j\delta k\Delta z} \tag{2.51}$$

et réciproquement :

$$r_i = \frac{\rho_i + r_{i+1} e^{2j\delta k\Delta z}}{1 + r_{i+1}\rho_i^* e^{2j\delta k\Delta z}} \tag{2.52}$$

Ces deux relations de récurrence sont particulièrement simples et permettent de calculer la réflexion du réseau en partant soit du début (relation 2.51) soit de la fin du réseau (relation 2.52). Évidemment, pour le calcul de la réponse spectrale du réseau, on utilisera donc (2.52), mais dans le cadre du calcul inverse[3] qui consiste à déterminer les paramètres physiques du réseau connaissant sa réponse spectrale, on peut utiliser 2.51.

[3] l'algorithme du calcul inverse est détaillé en annexe

2.5 Simulations et ordres de grandeur

En conclusion, nous allons étudier d'un point de vue théorique les performances des réseaux de Bragg chirpés pour l'étirement d'impulsions courtes. En utilisant l'algorithme vu précédemment, nous réaliserons des simulations permettant de dimensionner les composants en termes de modulation d'indice Δn, de longueur L et de variation de période $\Lambda(z)$. Comme application directe de cette méthode numérique, deux réseaux de Bragg chirpés seront simulés :

1. Un réseau simulant une loi d'étirement linéaire entre la position z et la longueur d'onde λ (identique à celui étudié pour la *réflexion ponctuelle*) ;
2. Un réseau simulant une loi d'étirement compensant exactement un étireur à réseaux de diffraction de type compresseur de Treacy.

2.5.1 Réseau linéairement chirpé

Le premier est le même modèle que celui utilisé dans le cas de la réflexion pontuelle. Ce réseau "type" est un "cas d'école" puisque aucun compresseur "classique" ne peut être utilisé en complément. Cependant il est simple à réaliser en pratique et il permet de se fixer les ordres de grandeur à atteindre dans les matériaux photo-sensibles. Pour commencer il faut se donner un objectif à atteindre en terme de bande passante, de dispersion et d'efficacité de diffraction. Les paramètres recherchés seront donc les suivants :

- ≻ un profil de type super gaussien ($m = 20$) ;
- ≻ une efficacité de diffraction de 90% ;
- ≻ une bande passante $\Delta\lambda = 30$-nm ;
- ≻ une variation du pas de 15-nm par centimètre de réseau

Le coefficient de dispersion d'ordre 2 vaut alors :

$$\phi_2 = \frac{nL\lambda_0^2}{\pi c^2 \Delta\lambda} \tag{2.53}$$

Selon la nature du matériau holographique l'indice n varie et par conséquent ϕ_2 également. Deux grandes familles de matériaux étaient à notre disposition pour ce travail de recherche :

- ≻ les cristaux de type $LiNbO_3$ d'indice situé autour de $n = 2,2$;
- ≻ les matériaux polymères de type PMMA ou polyuréthane dont l'indice varie autour de $n = 1,52$.

On obtient alors deux coefficients ϕ_2 pour chaque espèce :

- ≻ $\phi_{2,LiNbO_3} = 2,3.10^{-24}\ s^2$;
- ≻ $\phi_{2,PMMA} = 3,4.10^{-24}\ s^2$.

Il est important de préciser que le profil super Gaussien a été choisi pour la stabilité de l'algorithme. En effet, un profil de type porte provoque un phénomène de Gibbs (artefact mathématique produisant des oscillations dans les zones de discontinuités), l'apodisation via la super Gaussienne permet de l'éviter. La figure 2.12 présente les résultats de l'algorithme pour les deux matériaux cités précédemment.

A première vue, une chose surprend fortement : l'amplitude de la modulation d'indice n'est pas la même selon le matériau utilisé. Pourtant l'efficacité de diffraction est indépendante de l'indice de réfraction. En réalité les résultats sont heureusement tout à fait logiques. Pour des raisons de commodité, on a choisi comme paramètre de conception la variation de la longueur d'onde réfléchie en fonction de la position ($\lambda(z)$) que l'on a fixée

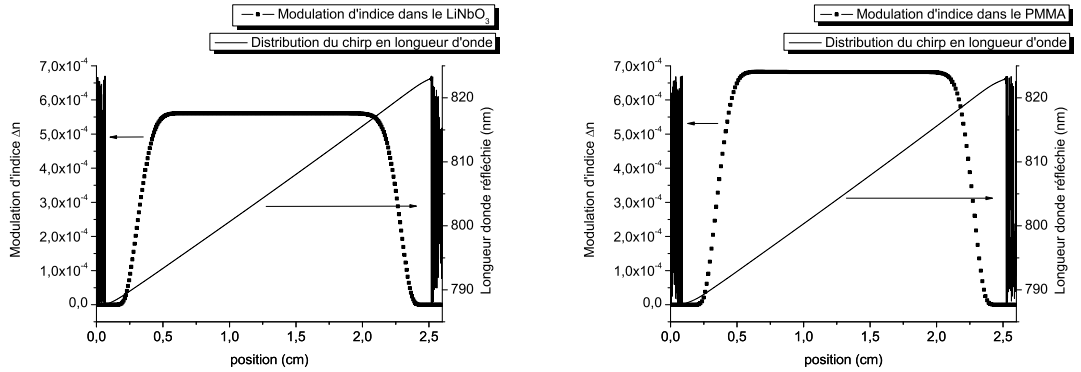

FIG. 2.12 – A gauche : paramètre d'un réseau linéairement chirpé dans le $LiNbO_3$. A droite : paramètre d'un réseau linéairement chirpé dans le $PMMA$

à 15-nm par centimètre. On peut ainsi relier bande spectrale $\Delta\lambda$ et dispersion ϕ_2 très facilement par la relation (2.53). Cependant, le paramètre pertinent pour décrire la variation de la période (le chirp) est le pas du réseau $\Lambda(z) = \frac{\lambda(z)}{2n}$. Rapidement, on trouve que la variation de la période du réseau vaut :

- ≻ 3,4-nm par centimètre pour le $LiNbO_3$;
- ≻ 4,9-nm par centimètre pour le $PMMA$.

En d'autres termes, le désaccord est plus fort pour le matériau d'indice $n = 1,52$ que pour celui d'indice $n = 2,2$. On conçoit donc facilement que la modulation d'indice doive s'adapter aux variations de pente de la période. La modulation d'indice est logiquement plus forte pour une pente $\frac{d}{dz}(\Lambda(z))$ plus grande puisque la zone résonnante (quasi-accord de Bragg) se réduit.

2.5.1.1 Ordres de grandeur

Cette première simulation a permis d'évaluer les grandeurs physiques qu'il faut atteindre pour générer un réseau linéairement chirpé pour des impulsions relativement courtes ($\Delta\lambda = 30$-nm de bande passante totale équivaut à une impulsion gaussienne de 100-fs à mi-hauteur). On remarque, comme prévu dans le modèle de la réflexion ponctuelle, que $\Lambda(z)$ est linéaire avec la position z. Compte tenu de la dispersion retenue (15-nm/cm), le réseau mesure 2-cm. Dans ces conditions les impulsions seraient étirées à environ :

- ≻ 300-ps pour le $LiNbO_3$;
- ≻ 200-ps pour le $PMMA$.

Les ordres de grandeur à obtenir dans les matériaux holographiques sont donc :

- ≻ une efficacité de diffraction de 90% ;
- ≻ une longueur $L = 2$-cm ;
- ≻ une bande passante de 30-nm ;
- ≻ une dispersion de 15-nm/cm soit une centaine de picoseconde par centimètre ;
- ≻ une modulation d'indice de l'ordre de $\Delta n = 6.10^{-4}$;

En ce qui concerne l'amplitude de la modulation d'indice, il est important de noter que cette valeur de 6.10^{-4} est du même ordre de grandeur (de 10^{-4} à 10^{-3}) que les valeurs citées dans la littérature pour l'enregistrement de divers type de réseaux de Bragg pour les matériaux précédemment cités.

2.5.2 Réseau symétrique à un compresseur de Treacy

L'objet que nous allons traiter maintenant correspond à la conception d'un étireur symétrique à un compresseur dans la configuration de Treacy. Ce compresseur est composé de deux réseaux gravés parallèles, utilisé en double passage comme présenté sur la figure 2.13.

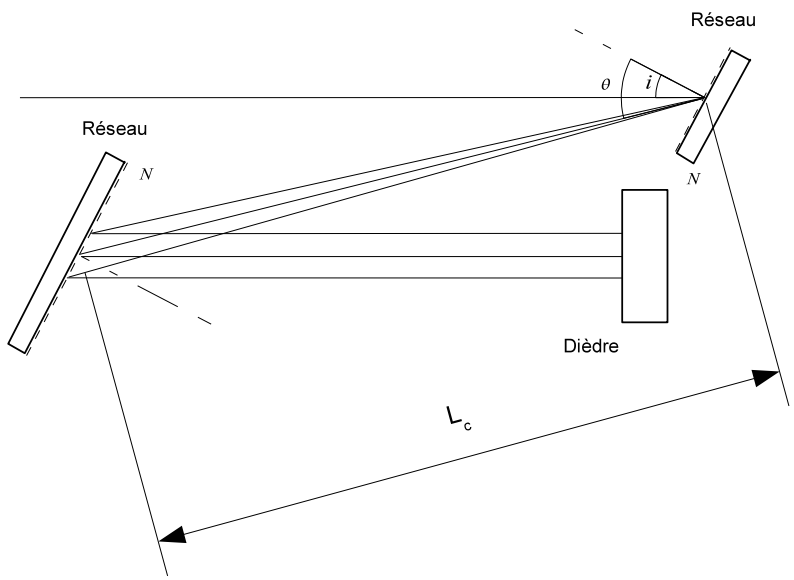

FIG. 2.13 – Compresseur à réseaux gravés dans la configuration de Treacy

2.5.2.1 Compresseur de Treacy, calcul de la réponse spectrale

Le schéma des compresseurs classiques qui s'appuie sur l'arrangement de Treacy [51] à été largement modélisé et il est facile d'évaluer les paramètres ϕ_n (ordre de dispersion du compresseur) en fonction des variables du compresseur que sont :

- ≻ L'angle d'incidence i ;
- ≻ L'angle de diffraction $\theta(\lambda_0)$;
- ≻ Le tirage L_c ;
- ≻ Le nombre de traits par millimètre N ;
- ≻ La longueur d'onde centrale du compresseur λ_0.

Il a été démontré que la phase spectrale d'un compresseur de Treacy peut être décomposée sous la forme d'un développement de Taylor et que les termes d'ordre 2 et 3 s'expriment sous la forme :

$$\phi_{2_{Treacy}} = -\frac{8\pi^2 c L_c N^2}{\omega^3 \cos^2\theta}\bigg|_{\omega=\omega_0} \tag{2.54}$$

$$\phi_{3_{Treacy}} = -\frac{3\phi_{2_{Treacy}}}{\omega}\left(1 - \frac{2\pi c N \sin\theta}{\omega\cos^2\theta}\right)\bigg|_{\omega=\omega_0} \tag{2.55}$$

Les termes supérieurs à ϕ_3 peuvent également s'exprimer en fonction des variables du système mais pour des impulsions de 100-fs on considère que les termes d'ordre supérieur à 3 sont négligeables.

Pour fixer le paramètre $\phi_{2_{Treacy}}$ on utilise la dispersion de 15-nm/cm choisie pour la simulation des réseaux linéaires. De cette manière, on s'assure que l'amplitude de la modulation d'indice pour l'étireur sera de l'ordre de $\Delta n = 6.10^{-4}$.

En utilisant la relation (2.53) pour un matériau d'indice $n = 1,52$, on obtient $\phi_{2_{Treacy}} = -2,3.10^{-24}$. Dans cet exemple, cela signifie que le compresseur à réseau sera compensé par un étireur utilisant un matériau de type polymère. La valeur du $\phi_{2_{Treacy}}$ fixe alors les variables du compresseur :

i	$\theta(\lambda_0)$	L_c	N	λ_0
26.7°	−42.6°	350-cm	1400 traits/mm	805-nm

TAB. 2.1 – Paramètres du compresseur en configuration de Treacy.

On peut alors rapidement calculer le terme $\phi_{3_{Treacy}}$. Le tableau 2.2 résume les paramètres du compresseur :

n	$\phi_{n_{Treacy}}$	unité
2	$-2,3.10^{-24}$	s^{-2}
3	$7.2.10^{-39}$	s^{-3}

TAB. 2.2 – Valeurs ϕ_2 et ϕ_3 du compresseur en configuration de Treacy.

2.5.2.2 Simulations du réseau symétrique au compresseur de Treacy

La figure 2.14 présente les résultats de l'algorithme pour le réseau étireur. Contrairement aux réseaux linéaires étudiés précédemment, la variation de la période avec z n'est plus linéaire et présente clairement un écart à celle-ci. La modulation est pour sa part assymétrique. Ces propriétés sont la conséquence directe de la non-linéarité du délai de groupe. En effet, pour obtenir une réflectivité en amplitude uniforme sur toute la bande passante de l'étireur, l'amplitude de la modulation d'indice doit s'adapter aux variations de pente de la période. On conçoit facilement que localement une modulation d'indice plus importante soit nécessaire dans les régions où la pente $\frac{d\Lambda}{dz}$ est plus élevée puisque la zone résonnante pour la longueur d'onde correspondante est réduite. Cet effet est le même que celui observé pour les réseaux linéaires lorsque l'on change l'indice du matériau et par là même, la dispersion de la période.

2.6 Conclusion

Ce chapitre a été l'opportunité de présenter la théorie des miroirs de Bragg à pas fixe et par extension les miroirs de Bragg à pas variable. Le miroir de Bragg à pas fixe, brique élémentaire des miroirs de Bragg à pas variable, a été complètement décrit analytiquement. Cette "décomposition" mathématique permet de bien maîtriser le comportement physique de l'élément de base des miroirs de Bragg à pas variable. A partir de cette description

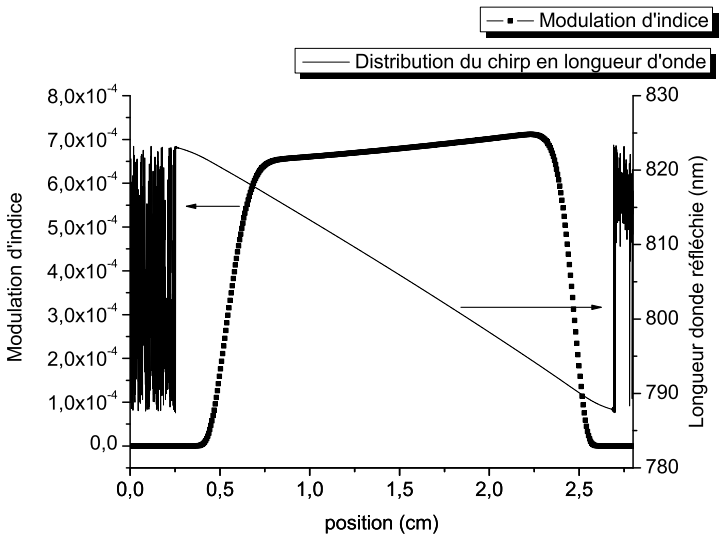

FIG. 2.14 – Réseau de Bragg étireur adapté à un compresseur dans la configuration de Treacy

mathématique, une construction plus complexe des miroirs de Bragg à pas variable a été proposée. Cette modélisation a été largement exploitée pour les miroirs de Bragg inscrits dans les fibres ce qui assure une excellente validation de ce modèle. L'algorithme "layer peeling" décompose le miroir de Bragg à pas variable en une succession de réseaux à pas fixe avec un coefficient de réflexion complexe. L'ensemble des informations concernant les ondes incidentes et réfléchies est contenu dans ce coefficient de réflexion complexe. La partie réelle correspond à l'amplitude spectrale alors que la partie imaginaire traite de la phase spectrale. C'est avec ces deux paramètres qu'il est possible de modeler à souhait l'amplitude et la phase de l'impulsion sortant du miroir de Bragg utilisé comme étireur. Cet outil de simulation est donc parfaitement adapté pour concevoir le miroir de Bragg à pas variable permettant de remplacer les étireurs classiques de Öffner et assurer ainsi le transfert technologique. C'est l'objet de la dernière partie de ce chapitre où il a été présenté un miroir de Bragg à pas variable présentant le même comportement, en terme de phase spectrale, qu'un étireur de type Öffner. Mais cet outil de modélisation permet d'envisager d'autres comportements. En particulier, la possibilité de modeler la réponse en amplitude du miroir de Bragg. En effet, au cours de l'amplification, le gain dans le $Ti : Sa$ est maximisé à 800-nm. Ce gain non-homogène spectralement, à tendance à réduire la largeur spectrale de l'impulsion et par conséquent à élargir la durée temporelle. Il est donc possible de créer un miroir de Bragg à pas variable ayant une réponse plus faible à 800-nm pour produire une réponse de gain homogène sur toute la bande spectrale. Il est alors possible de concevoir un miroir étireur qui pré-compense les modifications de phase et d'amplitude spectrale de la chaîne laser pour obtenir en sortie la durée la plus courte possible.

Chapitre 3

Matériaux pour l'holographie

Le rôle du matériau holographique est de fixer dans l'espace et de la manière la moins réversible possible la fonction de phase obtenue à l'aide des outils présentés dans le chapitre précédent. Ce matériau devra donc présenter les aspects suivants :

- une bonne qualité optique pour être utilisé dans des systèmes lasers ;
- une bonne tenue au flux pour supporter les hautes énergies des lasers ;
- une bonne sensibilité pour enregistrer des réseaux de dimensions centimétriques dans les temps les plus courts possibles ;
- une bonne efficacité pour obtenir un rendement de diffraction optimum.

L'étape de conception du matériau holographique est donc primordiale pour le succès de ces travaux de recherche. Le chapitre suivant présente le travail exploratoire fait dans ce domaine. Il est important de préciser qu'à ce jour aucun matériau holographique ne répond aux exigences propres à la réalisation d'un réseau tel que décrit dans cette thèse. Plusieurs axes de recherche ont été ou sont explorés aujourd'hui au niveau du laboratoire. La diversité des matériaux et de leur mode de fonctionnement rend difficile une présentation détaillée et exhaustive. Cependant, ce chapitre est l'occasion de présenter les résultats obtenus en utlisant trois matériaux holographiques différents. Ces matériaux appartiennent à trois grandes familles dont les modes de fonctionnement diffèrent clairement et qui sont parmi les plus utilisés de nos jours.

Dans ce chapitre, nous verrons tout d'abord plus en détail les trois modes de fonctionnement que sont *la modulation d'indice par changement de conformation de la matière*, *la modulation d'indice par migration de la matière* ou encore une combinaison des deux premières (voir Fig. 3.1). Ensuite, en s'appuyant sur des résultats obtenus en laboratoire ainsi que sur la bibliographie disponible sur des exemples de matériaux similaires, nous dresserons un état des lieux des ordres de grandeur accessibles pour chaque famille de matériau. C'est cette série d'expériences qui nous a permis de choisir la meilleure voie pour modéliser et concevoir un matériau holographique centimétrique qui réponde à nos exigences. Enfin, nous présenterons les résultats de caractérisation et les limitations du nouveau matériau holographique.

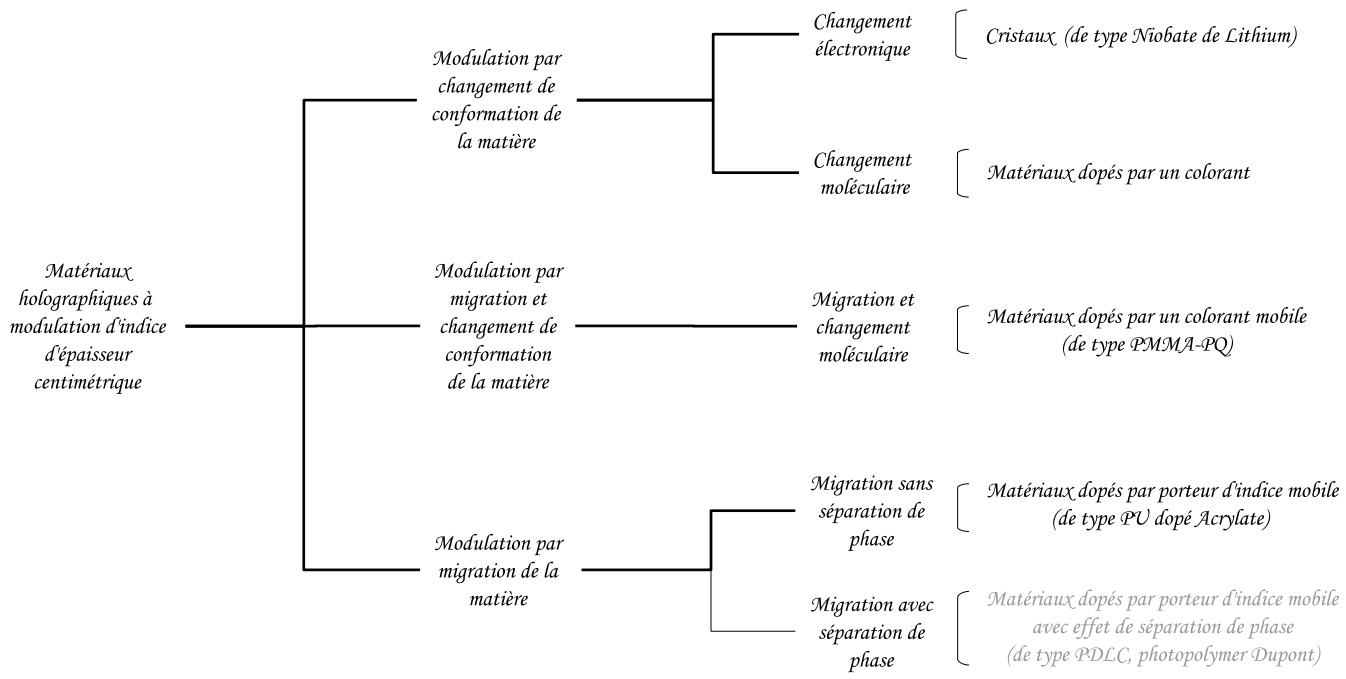

Fig. 3.1 – Exploration des matériaux holographiques d'épaisseur centimétrique.

3.1 Introduction

La mise au point de sources lumineuses intenses permet d'atteindre des champs électriques comparables à ceux qui lient les électrons à leurs noyaux au sein des atomes. Cette compétition entre le champ intrinsèque et un rayonnement extérieur conduit dans les matériaux à l'observation d'effets dit non-linéaires. Dans le cas des matériaux choisis ou optimisés pour exalter cette non linéarité, des grandeurs indépendantes du champ électrique au premier ordre vont présenter une réponse proportionnelle au champ électrique ou à une de ses puissances successives ($|\overrightarrow{E}|$, $\|\overrightarrow{E}\|^2$...). Le cas particulier de matériaux dont l'indice optique de réfraction peut être modulé par l'interaction avec des photons (ce matériau est dit photoréfractif), constitue une classe particulièrement importante de matériaux non linéaires adaptés à l'enregistrement holographique. Selon le type de matériaux, différentes réponses sont mesurées (E le champ, I l'intensité $\|\overrightarrow{E}\|^2$...) .

- $n = n_0 + n_1 E$
- $n = n_0 + n_2 I$
- ...

On distingue également des temps de réponse allant de la femtoseconde pour des matériaux de type PZT à la microseconde pour les cristaux liquides photosensibilisés. D'autre part, le réseau n'est pas permanent et s'efface sur une période plus ou moins longue en fonction du cristal et du dopage permettant la réalisation de "switch" optique [23], d'opérations d'amplification par mélange à deux ondes [48] ou encore de multiplexeurs ou démultiplexeurs [19]. Les cristaux ont l'avantage de pouvoir être d'excellente qualité optique et possèdent une tenue au flux remarquable [42][53]. Cependant, les problèmes de durée de vie des hologrammes, ainsi que leur mauvaise sensibilité (supérieure à 1-J/cm^2) ont conduit la recherche des matériaux holographiques vers les matériaux polymères.

Les photopolymères DuPont est un excellent exemple de matériau polymère dédié à l'Holographie [52]. Matériau très sensible, grâce aux importantes sections efficaces des photo-amorceurs organiques, les matériaux *photopolymères* permettent d'enregistrer des réseaux permanents dans des épaisseurs de plusieurs dizaines de microns pour le Dupont à plusieurs dizaines de millimètre pour d'autres types de matériaux polymères moins aboutis industriellement. Les matériaux polymères possèdent une structure amorphe qui conduit à une conductivité thermique 2 ordres de grandeurs inférieure à des systèmes cristallins. Dans le cas d'une absorption lumineuse même résiduelle pour les matériaux polymères, cette faible diffusivité thermique est associée à une capacité thermique qui conduit rapidement à une augmentation locale de la température dans le matériau. Les températures doivent être comparées aux températures spécifiques (typiquement la température de transition vitreuse) du polymère. Dans la pratique, les températures atteintes durant l'enregistrement ou plus généralement la lecture des hologrammes dans de tels polymères organiques sont de l'ordre de la température de transition vitreuse et induisent alors de fortes modifications structurales pour le matériaux se traduisant par des inhomogénéités optiques.

Aujourd'hui, pour répondre à la problématique d'un matériau holographique de dimension centimètrique, très sensible, de bonne qualité optique et possédant une bonne tenue aux flux, plusieurs axes sont en cours d'exploration pour fonctionnaliser des verres inorganiques. C'est le cas des matériaux de type verre PTR (Photo-Thermal-Refractive glass) développés par Leonid B. Glebov [21]. Notons que ce dernier n'hésite pas à qualifier son matériau de *photoréfractif*. Une autre voie consiste à utiliser des matériaux sol-gel dopés avec des éléments organiques (le *dopage* peut atteindre le ratio de 50%). Pour des ratios de l'ordre de 50/50, on peut consulter le travail de P. Cheben pour la réalisation de micro-lentille [24]. Concernant des ratios plus faible 10/90, on peut s'intéresser au déve-

loppement de S. Blaya et C. Carretero pour l'enregistrement de mémoires holographiques et plus récemment pour l'enregistrement de réseaux de Bragg à pas fixe [2]. Cette voie élégante permet d'associer la grande sensibilité des matériaux organiques à l'excellente qualité optique et à la remarquable tenue au flux de la silice.

3.2 Les matériaux holographiques conventionnels

3.2.1 Mode de fonctionnement des matériaux holographiques conventionnels

L'enregistrement holographique d'une variation spatiale d'indice au sein d'un matériau peut avoir diverses origines dont trois approches sont aujourd'hui particulièrement utilisées.

- modulation d'indice par changement de conformation électronique ;
- modulation par migration de la matière ;
- une combinaison des deux.

3.2.1.1 Modulation d'indice par application d'un champ électrique local

Ce mécanisme, largement décrit dans le cadre des cristaux photoréfractifs, fait intervenir un composé qui demeure très largement minoritaire [39]. Dans le cas des cristaux photoréfractifs, c'est un atome donneur ou receveur d'électrons (dopage inférieur au pourcent). Un cristal photoréfractif tel que le Niobate de Lithium ($LiNbO_3$) peut être dopé par différents ions, le fer étant le plus communément utilisé. Nous pouvons décrire les mécanismes d'enregistrement dans les cristaux de la manière suivante (Fig. 3.2) :

- a) sous une irradiation adaptée au domaine de sensibilité, les photons créent des électrons mobiles et des trous immobiles sur des temps très long (années) ;
- b) les électrons diffusent dans les zones sombres et sont piégés par des atomes accepteurs ;
- c) les trous et les électrons bloqués spatialement sur les impuretés produisent un champ de charge d'espace.
- d) Dans le cas d'un cristal non linéaire le champ de charge d'espace $\rho(z)$ modifie l'indice de réfraction du matériau.

Cette variation est de l'ordre de 10^{-5} à 10^{-4}, rarement 10^{-3} et les méthodes de fixation du réseau, bien que démontrées qualitativement, restent délicates à quantifier. Pour augmenter la modulation de l'indice, des dopants sont ajoutés en tant que donneur d'électrons. Notons que ces dopants assurent l'absorption des photons. Il faut donc trouver un compromis entre une absorption trop forte, qui interdit les réseaux centimètriques homogènes et une absorption trop faible qui impose des flux lumineux colossaux. Les cristaux, en raison de leur mode de fabrication (croissance cristalline), présentent une qualité optique et une tenue au flux exceptionnelle. Des longueurs de quelques centimètres peuvent être obtenues. Peu sensibles, les cristaux nécessitent en général une énergie de l'ordre de 1-J/cm^2 pour être enregistrés. Dans les cristaux, le champ de charge d'espace et la modulation d'indice sont décalés spatialement d'une distance $\Lambda/2$ correspondant à la fréquence spatiale d'enregistrement. C'est ce décalage qui permet de réaliser des expériences de mélange d'ondes car ce déphasage produit un transfert d'énergie d'une onde (pompe) vers l'autre (signal).

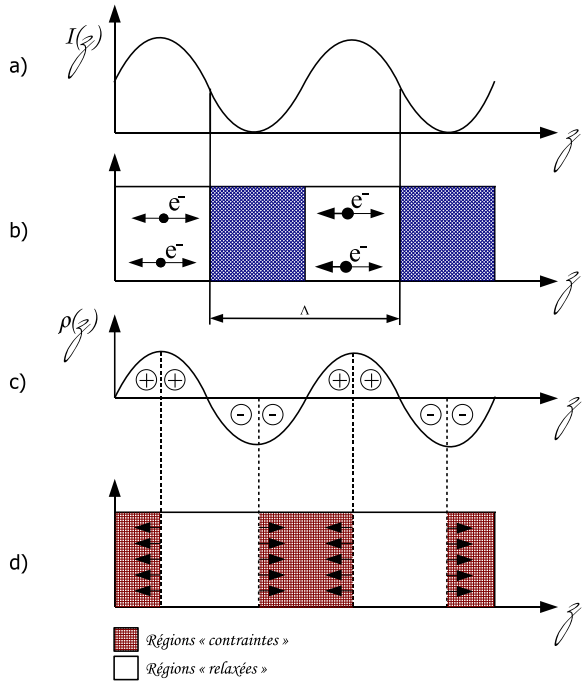

FIG. 3.2 – Création d'un champ de charge d'espace sous une irradiation I(z) sinusoïdale. Les électrons se déplacent dans les zones sombres et font apparaître des trous dans les zones éclairées. Le champ de charge d'espace crée des régions contraintes (où l'indice est plus fort) et des régions relaxées (indice plus faible)

3.2.1.2 Modulation d'indice par migration et changement de conformation électronique

Dans le cas des matériaux organiques à changement de conformation électronique, le composé minoritaire (de l'ordre de 1% cette fois) peut être traité comme un élément diffusant s'il n'est pas attaché à la matrice hôte.

- a) Le dopant est photosensible et subit une modification chimique lorsqu'il est soumis à une irradiation $I(z)$ adaptée au domaine de sensibilité (éventuellement via un co-amorceur) ;
- b) La rupture d'une liaison chimique entraîne une variation d'indice optique extrêmement faible et ne fixe pas le dopant qui peut alors diffuser librement ;
- c) La variation spatiale de l'indice est relayée par la modulation de la concentration locale en dopant $c(z)$;
- d) La modification et la migration du dopant densifient la matière dans les zones éclairées $[c(z)]$. Cependant cette migration reversible limite l'importance de cette solution à long terme.

Liés au faible transport de matière, les sauts d'indices restent très faibles (Δn de l'ordre de 10^{-5} à 10^{-4} rarement 10^{-3}). Le polymère qui constitue la matrice n'a plus besoin d'être réactif à la longueur d'onde d'inscription et est pris non absorbant, ce qui autorise des épaisseurs d'enregistrement homogène nettemement plus importantes, compatibles avec le besoin d'hologrammes centimètriques.

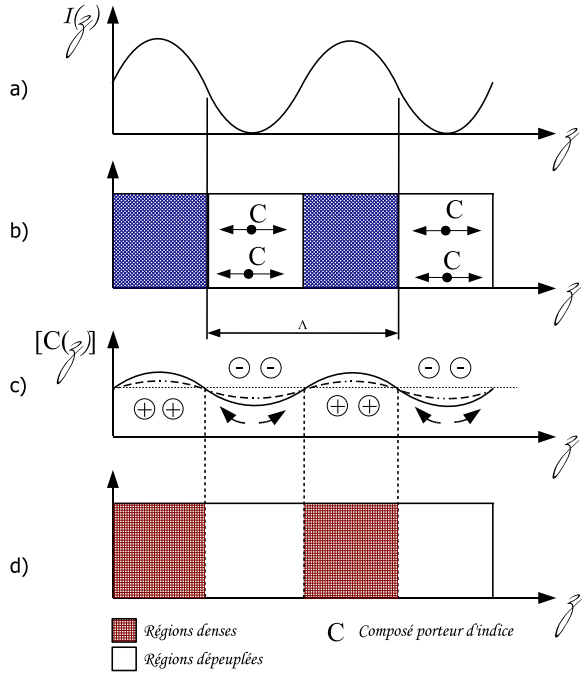

FIG. 3.3 – Modification du composé porteur d'indice sous une irradiation I(z) sinusoïdale. $[c(z)]$ représente la concentration locale du dopant photosensible (un colorant par exemple. Si le composé peut diffuser, il peut y avoir migration de matière liée à la variation de concentration.

3.2.1.3 Modulation d'indice par migration de la matière

La mise en oeuvre d'un déplacement important de matière est utilisée dans les matériaux à très forte modulation d'indice 10^{-3} à 10^{-2} jusqu'à 10^{-1}. C'est le cas des photopolymères DuPont [52] ou des PDLC (Polymer-Dispersed Liquid Crystals)[27]. Dans ce type de système "guest host", la matrice se comporte telle une éponge imbibée de solution photosensible assurant la migration d'un porteur d'indice en son sein.

- a) le dopant est un mélange photosensible qui subit une modification chimique lorsqu'il est soumis à une irradiation $I(z)$ adaptée au domaine de sensibilité (polymérisation) ;
- b) Le monomère dans les zones sombres diffuse vers les zones claires en raison de la variation de concentration issue de la polymérisation ($[M(z)]$) ;
- c) Le monomère ayant polymérisé est alors capturé dans les mailles de la matrice fixant ainsi le réseau ;
- d) La modification et la migration du mélange photosensible densifient la matière dans les zones éclairées($[P(z)]$). Cette densification est définitive dans la mesure ou le produit polymérisé est capturé dans la maille de la matrice hôte car son volume est supérieur au monomère.

C'est cette solution qui est utilisée pour les matériaux de type sol-gel photosensible [24][29] et que nous avons utilisé pour réaliser notre matériau holographique.

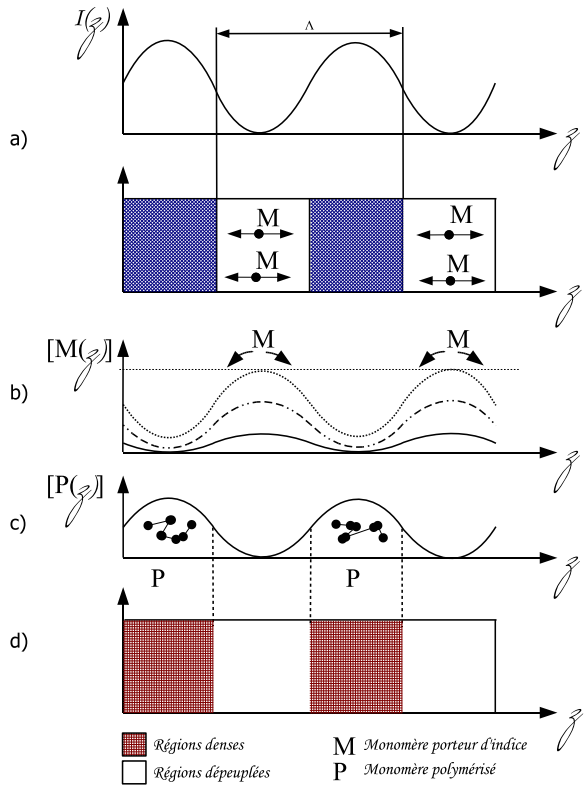

FIG. 3.4 – Polymérisation du monomère porteur d'indice sous une irradiation I(z) sinusoïdale. $[M(z)]$ représente la concentration locale du monomère. $[P(z)]$ représente la concentration locale du monomère polymérisé. Le monomère non transformé se déplace dans les zones éclairées pour compenser la diminution de concentration liée à la transformation de monomère en polymère. La densité du matériau est donc plus importante dans les zones éclairées (où l'indice est plus fort) et plus basse dans les zones sombres (indice plus faible).

3.2.1.4 Notion de réponse spatiale

La notion de réponse spatiale est un point essentiel des matériaux holographiques. L'enregistrement holographique le plus simple correspond à enregistrer une modulation d'indice sinusoïdale. Tout hologramme plus complexe pouvant être décomposé en la somme de sinusoïdes de périodes différentes (décomposition de Fourier). La réponse spatiale d'un matériau caractérise la capacité du matériau à enregistrer une période donnée. En principe un matériau holographique doit posséder une large bande spectrale pour permettre d'enregistrer des périodes variables. En pratique les matériaux holographiques possèdent une plage de réponse relativement fine et les variations d'efficacité conduisent à des distortions dans l'enregistrement de l'hologramme. Cet effet de filtrage de la période spatiale est connu depuis les débuts de l'enregistrement de réseau dans les matériaux (effet du Fanning, réseaux parasites dans le $LiNbO_3$). Sur le plan spatial deux effets antagonistes peuvent être identifiés pour fixer la bande passante spatiale d'un matériau :

- A longue distance, le coefficient de diffusion du dopant D est prépondérant, le porteur d'indice (électron, molécule...) doit pouvoir migrer d'une distance comparable au pas Λ de l'enregistrement. La diffusion de type "Fick" étant sans dimension caractéristique cette limite haute semble liée à la stabilité mécanique du système

d'enregistrement. Les franges doivent rester fixes pendant un temps $t = \frac{\Lambda^2}{D}$. Mais dans ce régime, il est important de prendre en compte le temps de vie τ^* de l'état excité du porteur d'indice (électron, molécule...) ainsi que d'un temps de gel τ_g du système. En pratique cela signifie que pour les grandes périodes Λ, l'enregistrement sera piloté par la réaction chimique (migration de paires électrons/trous, polymérisation ...).

- ≻ A courte distance, la structure locale de la matrice impose une échelle caractéristique. Dans le cas des cristaux, la diffusion électronique est bien connue. Dans le cas des systèmes où l'échelle du porteur d'indice est moléculaire, un verre (organique ou minéral) par exemple, conserve au niveau microscopique le comportement d'un liquide. Si la diffusion des porteurs d'indice est trop grande et que ce dernier n'est pas greffé ou fixé dans la matrice, il continuera de diffuser et les petites fréquences spatiales seront filtrées [17][14].

Les conséquences sur les hologrammes sont doubles. Tout d'abord, la quantité de matière qui va migrer va directement influer sur le contraste d'indice Δn. La modulation d'indice étant directement liée à l'efficacité du réseau, une variation de la modulation d'indice en fonction de la période conduit directement à une variation de l'efficacité de diffraction en fonction de la longueur d'onde.

D'autre part, si la migration de matière n'est plus linéaire avec le motif d'enregistrement, on observe des phénomènes de distortion. Le motif sinusoïdal de base, s'il y a saturation par exemple, produit des motifs à des fréquences supérieures. L'enregistrement d'harmoniques d'ordres supérieurs à la sinusoïdale fondamentale conduit directement à la diffraction de longueurs d'onde supérieures à la longueur d'onde désirée.

3.2.2 Mise en oeuvre expérimentale

3.2.2.1 Méthode d'enregistrement

Le montage holographique est un système interférométrique standard (voir fig. 3.5) où l'on fait interférer deux ondes que l'on nommera σ et ρ. Comme nous l'avons vu au chapitre II, un réseau de volume peut-être utilisé en transmission ou en réflexion, en fonction de l'angle d'incidence et de la longueur d'onde d'utilisation. Les miroirs holographiques de Bragg fonctionnent en lecture en réflexion à la longueur d'onde 800-nm. Pour éviter les problèmes d'effacement du réseau lors de la lecture on utilise lors de l'enregistrement du réseau une longueur d'onde très différente du point de fonctionnement en lecture (en pratique l'enregistrement se fait dans l'UV ou le visible 365-nm ou 532-nm) cette caractéristique est directement liée au matériau.

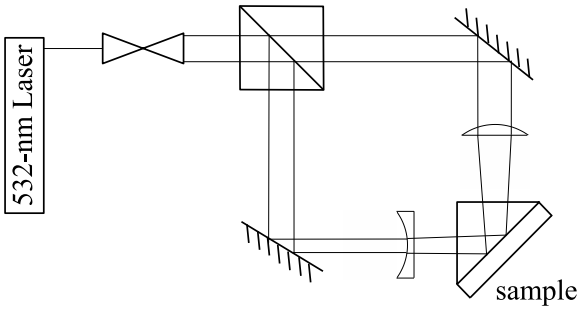

FIG. 3.5 – Montage expérimental du banc d'enregistrement.

FIG. 3.6 – Photo du montage à pas fixe.

Pour faciliter la comparaison entre les différents matériaux, il a été décidé d'enregistrer des réseaux à pas fixe qui réfléchissent la longueur d'onde centrale des réseaux à pas variable soit 800-nm. La longueur d'onde de lecture en réflexion va donc imposer des conditions d'angles sur l'enregistrement en fonction de la longueur d'onde d'enregistrement (365-nm ou 532-nm).

Lecture

Prenons un miroir de Bragg à pas fixe Λ_{lec} accordé à $\lambda_{lec} = 800$-nm à incidence normale sur la tranche [1] ($\theta_{lec} = \frac{\pi}{2}$) comme présenté sur la figure 3.7. Pour lire en réflexion (c'est à dire pour $\theta_{lec} = \pi/2$ à 800-nm), l'onde incidente σ et l'onde réfléchie ρ doivent remplir la condition :

$$\overrightarrow{\sigma}_{lec} = \overrightarrow{\rho}_{lec} - \overrightarrow{K}_{lec}$$

avec σ et ρ les vecteurs d'ondes respectifs des ondes incidentes et réfléchies. Le module du vecteur d'onde du réseau est défini par l'expression :

$$\|\overrightarrow{K}_{lec}\| = \frac{2\pi}{\Lambda_{lec}}$$

soit n_{med} l'indice de réfraction moyen du réseau, le pas du réseau Λ_{lec} est défini par :

$$\Lambda_{lec} = \frac{\lambda_{lec}}{2n_{med}\sin(\theta_{lec})}$$

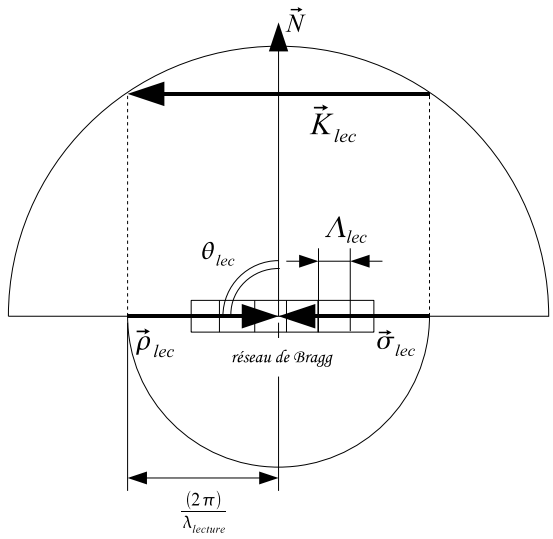

FIG. 3.7 – Diagramme vecteur d'un réseau à pas fixe en lecture.

[1] la lecture se fait sur la tranche de l'échantillon, l'enregistrement se fait sur la grande face. Il y a donc un angle de 90° entre les deux. Ici on a donc défini la normale par rapport à la grande face, la tranche est donc à $\pi/2$

Enregistrement

Pour "enregistrer" un miroir il faut donc trouver la valeur de θ_{enr} telle que la période des franges d'interférence (Λ_{enr}) soit identique à la période du miroir de Bragg (Λ_{lec}). Cette condition ($\Lambda_{enr} = \Lambda_{lec}$), impose donc pour une longueur d'onde d'enregistrement (λ_{lec}) un angle d'incidence tel que :

$$\theta_{enr} = \arcsin\left(\frac{\lambda_{enr}}{\lambda_{lec}}\right)$$

Cette condition est illustrée par le diagramme vecteur pour l'enregistrement sur la figure 3.8. Il est intéressant de remarquer que le réseau qui fonctionne en réflexion à la lecture, fonctionne en transmission lorsqu'il est enregistré.

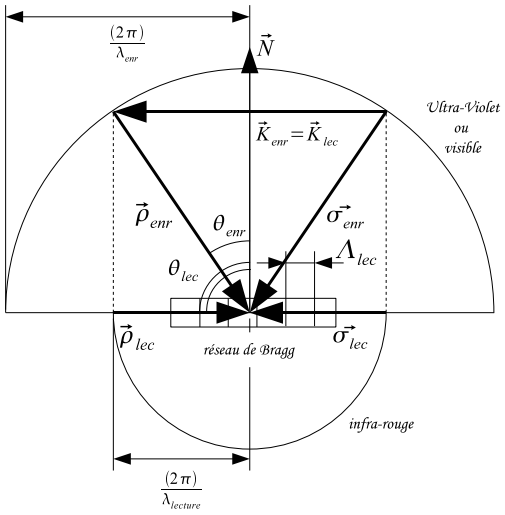

FIG. 3.8 – Diagramme vecteur d'un réseau à pas fixe lors de l'enregistrement.

Optimisation du montage d'enregistrement, couplage dans le matériau

Compte tenu des longueurs d'onde d'enregistrement λ_{enr} et du pas à enregistrer Λ_{lec} les angles d'incidence dans les matériaux sont très ouverts. Les angles d'incidence sont donc très rasants sur les matériaux. Les angles rasants sont à proscrire pour deux raisons :

- ils minimisent le couplage de l'énergie dans le matériau en raison des réflexions aux interfaces (Fresnel) ;
- ils produisent des réseaux parasites (interférences associées aux rayons piégés par les dioptres).

Pour éviter ces deux effets parasites on utilise des prismes et un liquide d'indice adapté. On obtient alors une configuration (Figure 3.9) ou les rayons incidents sont quasiment normaux aux dioptres du prisme. A l'arrière des échantillons on utilise encore un liquide d'indice et une densité qui absorbe l'énergie en excès pour éviter les réseaux parasites.

On peut alors facilement calculer les angles d'incidence dans les prismes en fonction de la longueur d'onde d'enregistrement et de l'indice du matériau.

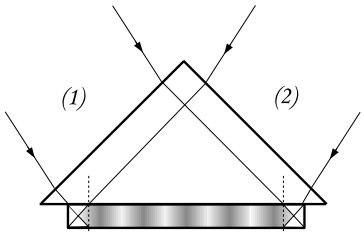

FIG. 3.9 – Tracé de rayons de l'enregistrement du réseau avec couplage par un prisme.

Le pas du réseau à enregistrer dans un matériau donné vaut :

$$\Lambda_{materiau} = \frac{\lambda_{lec}}{2n_{mat}}$$

On peut donc déterminer l'angle d'incidence dans le matériau à la longueur d'onde d'enregistrement λ_{enr}. Dans le matériau d'indice n_{mat} l'angle d'incidence $\theta_{materiau}$ vaut :

$$\theta_{materiau} = \arcsin\left(\frac{\lambda_{enr}}{2.n_{mat}.\Lambda_{materiau}}\right)$$

On obtient alors en fonction du matériau des configurations différentes résumées dans le tableau suivant :

matériau	$\Lambda_{materiau}$	λ_{enr}	n_{mat}	$\theta_{mat/air}$	$\theta_{prisme/air}$	matériau du prisme
$LiNbO_3$	178-nm	363,8-nm	2,4	$>90^\circ$	$25{,}2^\circ$	Silice
$PMMA$	268-nm	532-nm	1,49	83°	$41{,}8^\circ$	BK7
Dupont	268-nm	532-nm	1,49	83°	$41{,}8^\circ$	BK7
Polyuréthane	263-nm	532-nm	1,52	83°	$40{,}8^\circ$	BK7

TAB. 3.1 – Angle d'enregistrement en fonction des matériaux holographiques utilisés.

3.2.2.2 Mesure de l'efficacité de diffraction

Au chapitre II (cf 3.2.2.1), il a été démontré que l'efficacité de diffraction est fonction du produit de la modulation d'indice et de l'épaisseur du réseau. On utilise donc l'efficacité de diffraction du réseau pour réaliser une estimation de la modulation de l'indice de réfraction créée lors de l'enregistrement du réseau. Pour contrôler la phase d'enregistrement du réseau on peut donc en temps réel utiliser :

- ≻ pour les réseaux minces, une onde à une longueur d'onde éloignée du domaine de sensibilité du matériau ;
- ≻ dans le cas d'un réseau très épais (type miroir de Bragg) on peut utiliser directement l'efficacité de réflexion du miroir à 800-nm pour estimer la modulation d'indice.

En effet, dans le cas d'échantillons plus fins (170-μm) le couplage dans la "tranche" de l'échantillon est très difficilement envisageable. Dans ce cas on peut utiliser un système de mesure de la diffraction en utilisant le réseau en transmission toujours à une longueur d'onde suffisamment éloignée du domaine de sensibilité du matériau. La figure 3.10 présente

les dispositifs de contrôle de l'efficacité de diffraction lors de l'enregistrement pour (a) des réseaux fins et (b) des réseaux épais.

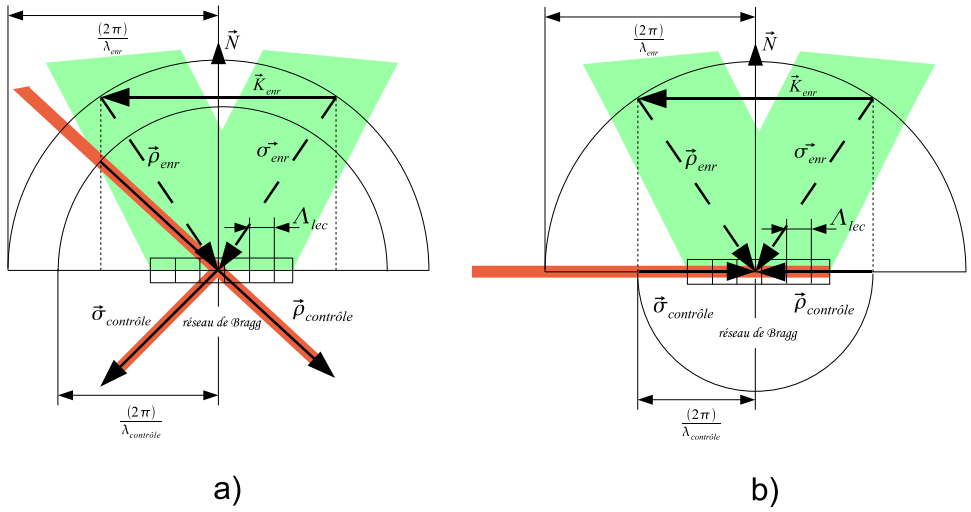

FIG. 3.10 – Méthode de mesure de l'efficacité de diffraction.

En mesurant le rendement de diffraction η entre l'onde transmise $\sigma_{controle}$ et l'onde diffractée $\rho_{controle}$, on peut estimer la valeur de la modulation d'indice connaissant l'épaisseur de réseau traversé. En effet, à l'aide de la théorie des équations couplées on peut calculer le rendement de diffraction pour un réseau en transmission et pour un réseau en réflexion [44]. On obtient pour un réseau en réflexion d'épaisseur d :

$$\eta_{reflexion} = tanh^2\left(\frac{\pi \Delta n d}{\lambda_{controle} \sin\theta_{controle}}\right) \tag{3.1}$$

et pour un réseau en transmission d'épaisseur d :

$$\eta_{transmission} = sinh^2\left(\frac{\pi \Delta n d}{\lambda_{controle} \cos\theta_{controle}}\right) \tag{3.2}$$

Estimation de la modulation d'indice Δn

A partir des expressions 3.1 et 3.2, connaissant l'épaisseur de réseau traversé, il est possible de remonter à la modulation d'indice Δn. Cependant, il est important de préciser la fiabilité de cette mesure. Pour la mesure en réflexion comme pour la mesure en transmission, il est important de connaître précisément l'épaisseur d du réseau. De plus, pour la mesure en transmission, l'efficacité de diffraction est périodique, il existe donc plusieurs valeurs de Δn pour une mesure unique de l'efficacité. Il convient donc pour déterminer la solution correcte, de faire deux mesures à deux longueurs d'onde différentes ou en utilisant par exemple deux polarisations différentes. Dans tout les cas la mesure donne une estimation de la modulation moyenne de l'indice de réfraction intégrée sur toute l'épaisseur d du réseau. Dans la suite, toute les valeurs de Δn ont été calculées en utilisant la méthode la plus habile, fonction de l'expérience.

3.2.3 Résultats expérimentaux, état de l'art des matériaux existants

Pour faciliter la comparaison entre les matériaux, le montage holographique a été simplifié. Le but est d'enregistrer un réseau de Bragg à pas fixe. La période à enregistrer correspond à la longueur d'onde centrale des réseaux à pas variables soit 800-nm. Ansi le pas du réseau vaut $\Lambda = \frac{\lambda}{2n}$. Le but est de déterminer dans quelle mesure les matériaux proposés peuvent répondre à l'application visée en évaluant la modulatin d'indice Δn, la stabilité en fonction du temps et les épaisseurs pouvant être réalisées.

3.2.3.1 Enregistrement de réseau de Bragg à pas fixe dans un matériau à changement de conformation électronique

Les cristaux de $LiNbO_3$ (dopés par différents éléments) sont de bons candidats pour la réalisation d'effets nonlinéaires [39]. Des essais d'enregistrement de réseau dans le $LiNbO_3$ pur (sensible dans l'UV) et le $LiNbO_3$:Fe^{3+} (sensible dans le vert) ont déjà été réalisés au laboratoire pour la réalisation de filtres optiques pour bloquer l'effet laser de matériaux larges bandes à une longueur d'onde fixe. Pour la réalisation de réseau de Bragg à pas fixe, nous avons utilisé un cristal de $LiNbO_3$:MgO en raison de sa bonne tenue au flux [20] et de sa bonne sensibilité [48]. Les enregistrements dans le $LiNbO_3$ dopé MgO ont permis d'extraire les ordres de grandeur de Δn accessibles dans ce matériau. A l'origine, ce matériau est utilisé pour réaliser des opérations d'amplification à deux ondes.

FIG. 3.11 – Echantillon de $LiNbO_3$.

Point de fonctionnement du $LiNbO_3$ dopé MgO

Le spectre de transmission du cristal utilisé est présenté sur la figure 3.12. Les dimensions du cristal sont de 1-cm^3. Le dopage est de 9-mol. % ce qui est très important pour un cristal où typiquement le taux de dopant reste inférieur à 1-mol. %. L'indice du matériau en fonction de la longueur d'onde est donné par la figure 3.13 [9][35][34].

L'utilisation d'un prisme en silice associé à un liquide d'indice adapté ($n = 1.49$) pour entrer dans le cristal s'est avéré obligatoire compte tenu de l'ouverture de l'angle θ_{LiNbO_3} et de l'indice du matériau $n = 2,44$. L'angle d'incidence dans le prisme est alors de 25,2°.

Dans la suite nous avons tenté d'enregistrer un réseau de Bragg à pas fixe dans un cristal de $LiNbO_3$ dopé MgO. Nous avons observé l'amplification du signal par mélange à deux ondes. C'est à partir de cet effet que nous avons déterminé la modulation d'indice maximale (Δn_{sat}) produite par ce matériau. Nous avons également constaté que ce matériau perdait

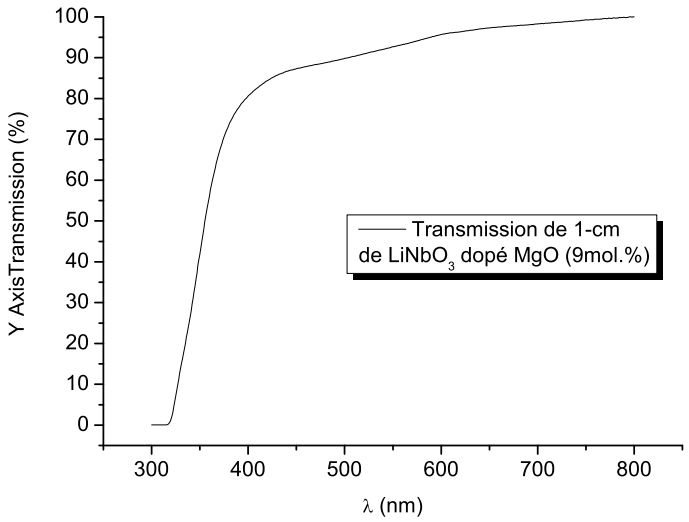

FIG. 3.12 – Transmission d'un échantillon de $LiNbO_3$ dopé MgO. A 363,8-nm (longueur d'onde du laser UV d'enregistrement) le matériau absorbe énormément (α = 0,51-cm^{-1}) ce qui interdit un réseau homogène sur toute l'épaisseur du matériau. Le matériau devient transparent au delà de 800-nm. Le coefficient d'absorption α vaut 0,04-cm^{-1} à 700-nm.

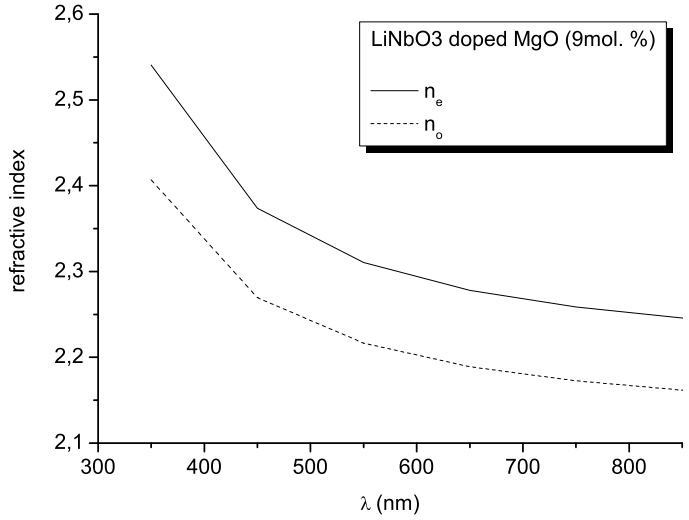

FIG. 3.13 – Indices du $LiNbO_3$ dopé MgO à 9-mol. %.

quasiment immédiatement le réseau d'indice lorsque l'illumination était coupée (effacement de l'ordre de la seconde). Il n'y a donc pas d'effet "mémoire" dans ce matériau ce qui en interdit l'utilisation pour notre application.

Le rapport entre les deux faisceaux d'enregistrement a été fixé à 50/50. Au cours du temps on observe un transfert de l'énergie du faisceau pompe (1) vers le faisceau (2) signal jusqu'à un maximum pour lequel on a $\Delta n = \Delta n_{sat}$. Après, le transfert diminue. Cette diminution est due à la création de réseaux parasites dans le cristal. Ces réseaux naissent sur du bruit. Le pas de ces réseaux parasites est associé à la réponse spatiale du matériau liée aux mécanismes de diffusion des électrons dans la matrice. Le cristal diffracte alors dans un cône propre à cette réponse spatiale.

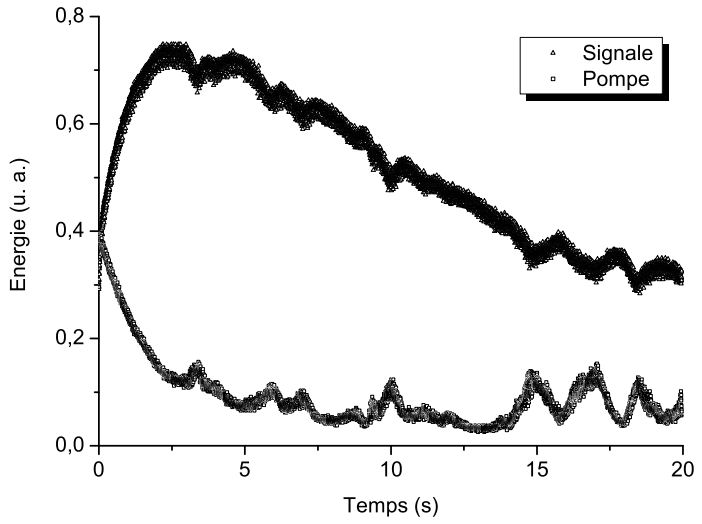

FIG. 3.14 – Au cours de l'enregistrement, le réseau d'indice déphasé de $\frac{\pi}{2}$ provoque un transfert d'énergie de l'onde Pompe vers l'onde Signale.

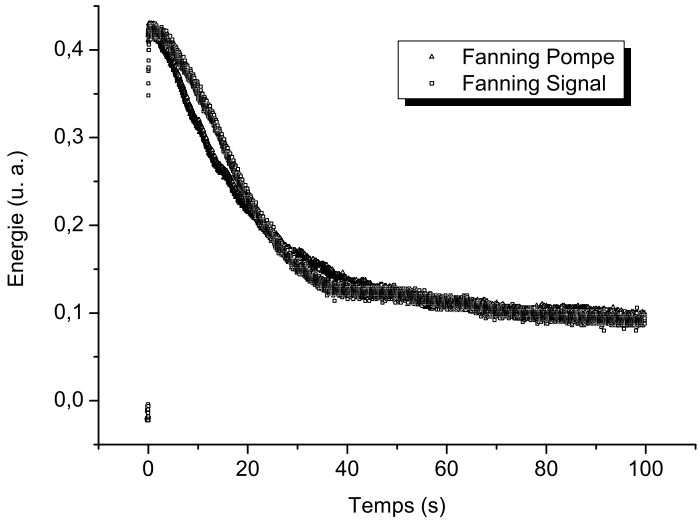

FIG. 3.15 – Au delà de quelques secondes l'effet de diffraction par les réseaux parasites rend le cristal extrêmement diffusant.

Evaluation du Δn dans les matériaux à changement de conformation électronique

Dans le cas d'un matériau dynamique, les équations couplées vues au chapitre II (cf 2.3.4) décrivant un mélange à 2 ondes sont modifiées [39]. Il a été démontré que l'intensité du signal I_s en sortie s'écrit en fonction de l'intensité initiale $I_{s_0} = I_s(t = 0)$:

$$I_s = I_{s_0} \frac{(\beta + 1)e^{\Gamma(t).\Delta z}}{\beta + e^{\Gamma(t).\Delta z}} \tag{3.3}$$

où β représente le rapport entre l'intensité pompe et l'intensité sonde à $t = 0$, Δz est l'épaisseur du réseau (1-cm) et Γ s'exprime sous la forme :

$$\Gamma(t) = \frac{4\pi\Delta n(t)}{\lambda_{enr}\cos(\theta_{LiNbO_3})} \tag{3.4}$$

On peut donc estimer la valeur maximum Δn_{sat} pouvant être obtenue lorsque l'amplification est maximale par la relation :

$$\Delta n_{sat} = \frac{\Gamma\lambda_{enr}\cos(\theta_{LiNbO_3})}{4\pi} \tag{3.5}$$

avec,

$$\Gamma = \frac{1}{\Delta z}\ln\left[\frac{\frac{\beta}{\beta+1}\frac{I_s}{I_{s_0}}}{1 - \frac{1}{\beta+1}\frac{I_s}{I_{s_0}}}\right] = 174 \tag{3.6}$$

ce qui donne pour la modulation d'indice maximum :

$$\Delta n_{sat} = 5.10^{-6}$$

λ_{enr}	Δn	indice à 800-nm	abs max (à 700-nm)	E_{enr}	P_{enr}	t_{pause}
363,8-nm	5.10^{-6}	2.25	0,04-cm^{-1}	2-J/cm^2	800-mW/cm^2	3-s

TAB. 3.2 – Paramètres pertinents concernant le $LiNbO_3$ dopé MgO.

Le tableau 3.2 résume les paramètres concernant le $LiNbO_3$ dopé MgO :

En conclusion, deux points s'opposent à l'utilisation de ce cristal pour la réalisation de réseau de Bragg à pas variable :

- ≻ la modulation d'indice beaucoup trop faible ;
- ≻ l'effacement quasi immédiat du réseau.

D'autres cristaux aux performances plus élevées existent. Cependant, si les cristaux restent d'excellents candidats pour la réalisation d'effets non-linéaires (amplification à deux ondes, conversion de fréquence...) ils sont très mal adaptés à l'enregistrement holographique. En particulier, ils nécessitent un éclairement P_{enr} intense ce qui interdit l'enregistrement d'hologramme sur de grandes surfaces et sur d'importantes profondeurs. Il est alors nécessaire de "recaler", en phase, plusieurs hologrammes, ce qui se révèle délicat à mettre en œuvre. Cette technique fait alors perdre tout la flexibilité liée à l'enregistrement holographique.

3.2.3.2 Enregistrement de réseaux de Bragg à pas fixe dans un matériau à changement de conformation électronique et migration

Les matériaux polymères dopés par des molécules photosensibles permettent d'enregistrer des variations d'indice comparables à celles observées dans les cristaux. La différence majeure se situe dans le fait que le dopant n'est plus un atome donneur ou receveur d'électrons mais une molécule qui change de conformation (et donc d'indice) lorsqu'elle est soumise à un éclairement. Dans cette grande famille de matériaux, on peut citer tout particulièrement le PMMA (Polyméthacrylate de méthyle) mieux connu sous le nom de Plexiglas ou Altuglass en raison des nombreuses applications industrielles qui lui sont associés (enseignes, bandeaux lumineux mais aussi prothèses dentaires ou lentilles de focalisation des lecteurs de disques optiques). Ce matériau transparent dans le visible et le proche infrarouge, peut-être mélangé à un dopant pour le rendre photosensible. En ce qui concerne ce dernier aspect, on peut s'intéresser au dopage via la phénanthrène-quinone (PQ) pour l'importance des études qui l'ont concerné dès les années 1980 jusqu'à nos jours [31][36]. Les premiers essais d'enregistrement de réseau dans le $PMMA$:PQ disponible au sein du laboratoire ont été réalisés sur un matériau qui était à l'origine fournit par le National Chiao Tung University (NTCU) à Taiwan au travers d'une collaboration. Les publications indiquent une bonne modulation d'indice $\Delta n > 10^{-4}$ [36] faisant du $PMMA$:PQ un candidat potentiel pour la réalisation de réseaux de volume. Les enregistrements dans le $PMMA$:PQ ont permis d'extraire les ordres de grandeur de Δn accessibles dans ce matériau au pas d'intérêt ($\Lambda = 270$-nm). A l'origine, ce matériau est utilisé pour réaliser des mémoires holographiques avec un pas de réseau typique de 1-μm à 30-μm [36][30] assez éloigné du point de fonctionnement recherché (270-nm) .

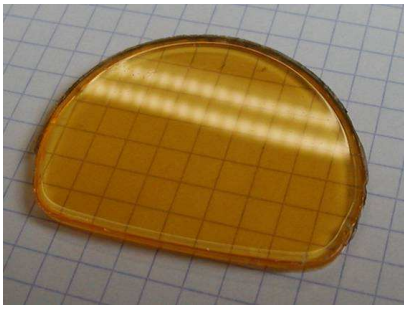

Fig. 3.16 – Echantillon de PMMA-PQ réalisé au laboratoire.

Point de fonctionnement du $PMMA$ dopé PQ

Le spectre de transmission du matériau utilisé est présenté sur la figure 3.17. Les dimensions du matériau sont de $20 \times 30 \times 3$-mm. Le dopage est de 7% en masse de *Phenanthrene-Quinone* (PQ).

L'utilisation d'un prisme de verre ($BK7$) associé à un liquide d'indice adapté ($n = 1.52$) pour entrer dans le polymère s'est avéré obligatoire compte tenu de l'ouverture de l'angle θ_{PMMA} et de l'indice du matériau $n = 1.49$. L'angle d'incidence dans le prisme est alors de 41°. L'angle d'incidence sur le prisme est presque normal. Ce montage a donc l'avantage de limiter les pertes aux interfaces.

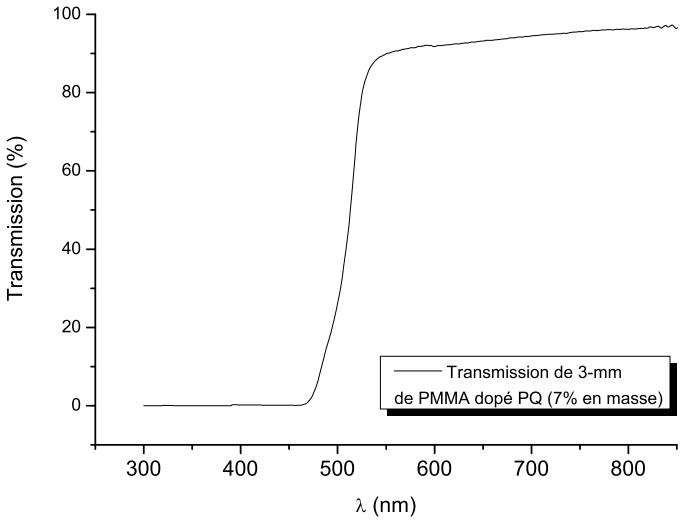

FIG. 3.17 – Transmission d'un échantillon de $PMMA$ dopé PQ. A 532-nm (longueur d'onde du laser d'enregistrement) le matériau absorbe 14% de l'énergie ($\alpha = 0{,}50$ cm^{-1}). Le matériau absorbe peu autour de 800-nm. Le coefficient d'absorption α vaut 0,07-cm^{-1} à 800-nm.

Dans la suite nous avons enregistré un réseau de Bragg à pas fixe dans le matériau polymère. Nous avons observé que la modulation d'indice (Δn) produit par ce matériau était d'autant plus faible que le pas du réseau Λ était petit (Fig.3.18) ce qui est dû à la limitation spatiale intrinsèque du matériau (phénomène déjà observé dans les PMMA dopés [12]). Nous avons également constaté que ce matériau perdait une grande partie de la modulation d'indice lorsqu'il était maintenu à une température de 55°C pendant une dizaine d'heures seulement (Fig.3.19) [13][6]. L'effet "mémoire" n'est donc pas définitif et le réseau s'efface d'autant plus vite que la température est élevée par un mécanisme décrit au §3.2.1.2.

Le tableau 3.3 résume les paramètres concernant le $PMMA$ dopé PQ :

λ_{enr}	Δn	indice à 800-nm	abs max (à 700-nm)	E_{enr}	P_{enr}	t_{pause}
532-nm	3.10^{-5}	1.49	0,07-cm^{-1}	20-J/cm^2	20-mW/cm^2	17-min

TAB. 3.3 – Paramètres pertinents concernant le $PMMA$ dopé PQ.

A nouveau, deux points s'opposent à l'utilisation de ce polymère pour la réalisation de réseau de Bragg à pas variable :

- la modulation d'indice encore trop faible ;
- l'effacement du réseau.

Même si ce matériau polymère n'offre pas une progression spectaculaire, l'expérience sur ce matériau, ainsi que le vaste champ des matériaux polymères a permis d'envisager la réalisation d'un nouveau matériau répondant aux exigences du projet.

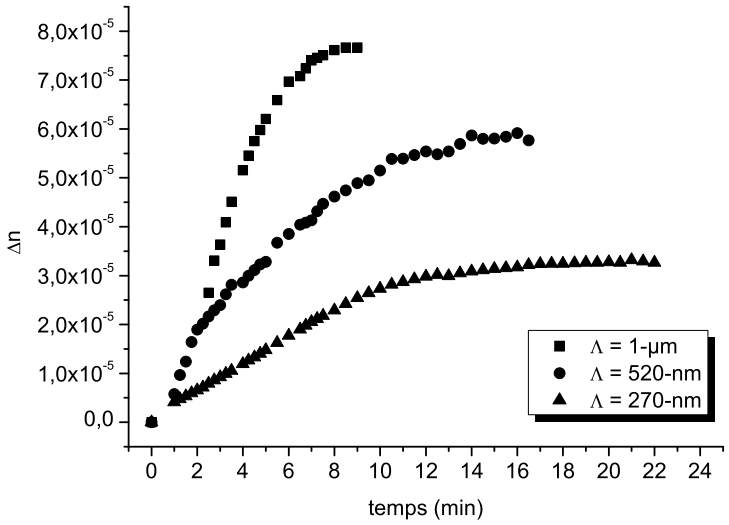

FIG. 3.18 – Evolution de la modulation d'indice Δn en fonction de la durée d'enregistrement à λ_{enr}= 532-nm avec 20-mW/cm^2 par bras d'enregistrement. Les périodes spatiales enregistrées dans le matériau sont Λ=1-μm, Λ=520-nm et Λ=270-nm.

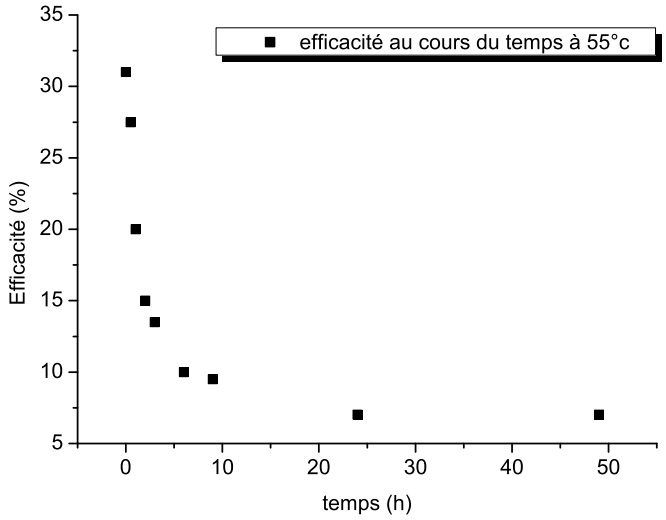

FIG. 3.19 – Evolution au cours du temps d'un enregistrement de pas Λ = 270-nm sur un échantillon chauffé à 55°C. La lecture de l'échantillon se fait en configuration "miroir de Bragg" à 800-nm, avec une énergie inférieur à 5-mW.

3.2.3.3 Enregistrement de réseau de Bragg à pas fixe dans un matériau à migration de matière

Les matériaux photopolymères utilisant la migration de matière pour réaliser une modulation de l'indice optique font partie des matériaux les plus aboutis industriellement. En particulier, nous pouvons citer les photopolymères DuPont développés pour des applications aussi diverses que des masques pour circuits électroniques, des guides optiques polymères ou des composants optiques diffractifs [52]. Les photopolymères DuPont sont composés principalement d'un mélange de :

- un photoamorceur
- un monomère
- un polymère
- un plastifiant

La différence majeure de ce type de matériau par rapport aux précédents ($LiNbO_3$, $PMMA$...) se situe dans le fait que le dopant est une molécule (le monomère) qui migre au sein d'une matrice hôte. C'est l'accumulation de matière dans les zones éclairées qui produit une augmentation de l'indice par densification [52]. Parmi les différentes déclinaisons du photopolymère DuPont, le DuPont HRF-734 est un matériau holographique se présentant sous la forme d'un film de 60-μm d'épaisseur. Ce matériau transparent dans le proche infrarouge, est photosensible dans le vert (532-nm). A l'origine, ce matériau est utilisé pour réaliser des enregistrements holographiques avec un pas de réseau typique inférieur à 1-μm et la modulation d'indice Δn accessible peut atteindre 10^{-3} à plusieurs 10^{-2}.

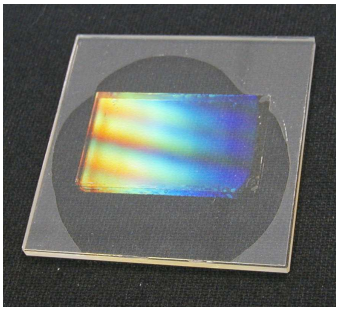

Fig. 3.20 – Echantillon de photopolymère DuPont HRF-734 enregistré au laboratoire. Le film a été cellé entre deux lames de verre.

Point de fonctionnement du photopolymère Dupont HRF-734

Le spectre de transmission du matériau utilisé est présenté sur la figure 3.21. Les dimensions du matériau sont de 50 × 50-mm ×60-μm . L'indice du matériau vaut $n = 1.49$.

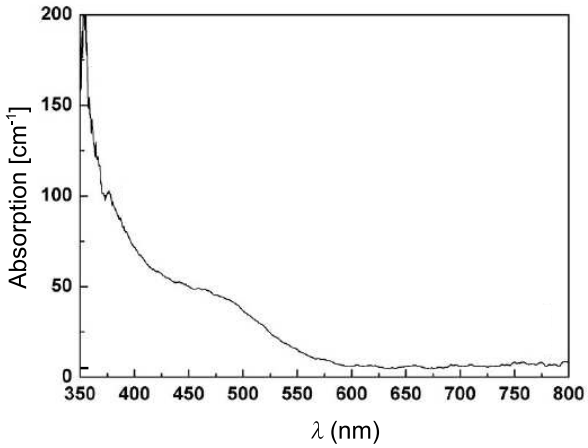

FIG. 3.21 – Absorption d'un échantillon de DuPont HR-734. A 532-nm (longueur d'onde du laser d'enregistrement) le matériau absorbe 14% de l'énergie ($\alpha = 25$ cm^{-1}). Le matériau absorbe peu autour de 800-nm. Le coefficient d'absorption α vaut 0,07-cm^{-1} à 800-nm.

A nouveau, l'utilisation d'un prisme de verre ($BK7$) associé à un liquide d'indice adapté ($n = 1.52$) pour entrer dans le polymère s'est avéré obligatoire compte tenu de l'ouverture de l'angle θ_{DuPont} et de l'indice du matériau $n = 1.49$. L'angle d'incidence dans le prisme est alors de 41°.

Dans la suite nous avons enregistré un réseau de Bragg à pas fixe dans le matériau polymère.

Le tableau suivant résume les paramètres concernant le Dupont HR-734 :

λ_{enr}	Δn	indice à 800-nm	abs max (à 700-nm)	E_{enr}	P_{enr}	t_{pause}
532-nm	$5,6.10^{-3}$	1.49	0,06-cm^{-1}	60-mJ/cm^2	10-mW/cm^2	6-s

TAB. 3.4 – Paramètres pertinents concernant le DuPont HR-734.

Le photopolymère DuPpont répond très bien aux exigences concernant la modulation d'indice du matériau. Cependant, même si l'énergie d'enregistrement et l'éclairement à 532-nm sont très faibles (ce qui autorise l'enregistrement de réseaux de grandes dimensions) l'absorption reste très élevée. D'autre part, ce matériau n'est malheureusement pas disponible sur des épaisseurs supérieures à la centaine de microns en particulier du fait de sa forte absorption.

3.2.4 Discussion, bilan de l'exploration expérimentale

Les ordres de grandeurs retenus pour la formation d'un réseau de Bragg à pas variable ($\Delta n \sim 10^{-3}$ et une épaisseur de quelques centimètres) montrent qu'une solution basée sur un phénomène de migration de matière semble bien adaptée. Il est donc raisonnable d'envisager un système à base d'un couple photoamorceur-monomère, le monomère pouvant migrer et jouer le rôle de porteur d'indice comme c'est le cas dans le photopolymère DuPont. La nécessité d'obtenir une épaisseur centimétrique montre qu'une solution utilisant une matrice hôte telle que le PMMA semble envisageable. Dans les polymères de type PMMA, la matrice n'est pas tridimensionnelle mais se compose d'un enchevêtrement de fils de polymère à l'image d'un plat de spaghettis. Nous avons donc vu que des molécules telles que la phénanthrène-quinone peuvent migrer au sein du polymère à la fois pour créer le réseau mais aussi pour conduire à son effacement. Pour éviter la migration du porteur d'indice polymérisé nous pouvons envisager l'utilisation d'une matrice tridimensionnelle en utilisant un polymère réticulé. La matrice hôte se comporte alors telle un filet qui laisse migrer les molécules de monomères (de petites tailles) mais qui piège les fils de polymère (constitués d'un grand nombre de monomères). Le système que nous avons envisagé se compose donc des éléments suivants :

- une matrice hôte réticulée ;
- un photoamorceur radicalaire ;
- un monomère porteur d'indice ;
- Eventuellement un plastifiant et un solvant ;

La suite du chapitre a pour objectif d'explorer ce nouveau type de matériau. Une brève explication phénoménologique permet de décrire la stratégie de la démarche de création du matériau. A la suite, la mise en oeuvre expérimentale détaille le comportement de chacun des éléments constitutifs du matériau que nous avons réalisé en pratique et présente également les processus de fabrication du matériau. Les résultats expérimentaux à proprement dit sont ensuite présentés. Enfin, une discussion permet à la fois de faire le bilan concernant l'exploration de ce nouveau matériau et de proposer un modèle de diffusion cohérent avec l'approche phénoménologique.

Type	λ_{enr}	Δn	abs max (à 700-nm)	E_{enr}
$LiNbO_3$	363,8-nm	5.10^{-6}	0,04-cm^{-1}	2-J/cm^2
$PMMA$	532-nm	3.10^{-5}	0,07-cm^{-1}	20-J/cm^2
$Dupont$	532-nm	$5,6.10^{-3}$	0,06-cm^{-1}	60-mJ/cm^2

TAB. 3.5 – Comparaison des paramètres pertinents des différents matériaux holographiques.

3.3 Approche phénoménologique, conception d'un matériau holographique centimétrique

L'étude précédente nous a donc permis de définir un cahier des charges pour la réalisation d'un nouveau matériau holographique :

- une matrice avec un domaine de transparence vers 532-nm et de 700-nm à 900-nm ;
- une matrice rigide et épaisse (centimètrique) pour la mise en forme et le polissage optique ;
- un matériau photosensible dans le visible vers 532-nm ;
- une absorption faible dans le visible vers 532-nm pour permettre l'enregistrement de réseau épais ;
- une forte modulation d'indice ($\Delta n \sim 10^{-3}$) obtenue par déplacement de matière ;
- une réponse spatiale adaptée à la période du réseau ($\sim$ 270-nm).

3.3.1 Mise en oeuvre expérimentale

Le matériau choisi pour enregistrer les hologrammes est composé des quatre parties distinctes suivantes :

- le photoamorceur est l'irgacure 784 qui présente l'avantage d'être relativement sensible dans le vert (on utilise pour l'enregistrement un laser $Nd : YVO_3$ doublé à 532nm) ;
- le monomère porteur d'indice, qui est un acrylate, va assurer la formation de zones plus denses lors de sa polymérisation par voie photochimique et induire ainsi une modulation spatiale de l'indice ;
- un plastifiant, l'anisole, sert à fluidifier le système et ainsi adapter la mobilité du porteur d'indice à la période spatiale à enregistrer ;
- la matrice destinée à être le support des mouvements du porteur d'indice est en polyuréthane (elle est donc réalisée à partir du mélange d'un isocyanate avec un polyol). Elle est synthétisée par voie thermique (polycondensation) et reste inerte vis-à-vis de l'acrylate et de l'Irgacure ;

Le mode opératoire concernant la fabrication des échantillons est présenté en annexe 5.

3.3.1.1 Caractérisation physico-chimique du nouveau matériau holographique

L'ensemble des produits est disponible commercialement. Chacun d'eux a été caractérisé individuellement pour extraire les grandeurs physico-chimiques d'intérêts (coefficient d'absorption, constante de réaction...).

Caractérisation du photoamorceur

Le photoamorceur choisi, l'Irgacure 784 (Fig.3.22) est un complexe du titane qui présente une bande d'absorption assez large autour de 450-nm et dont la queue d'absorption atteint les 550-nm. Il est important d'évaluer la constante d'amorçage de la réaction. Dans cette optique, nous avons cherché à obtenir la cinétique de dégradation de ce composé à 532-nm.

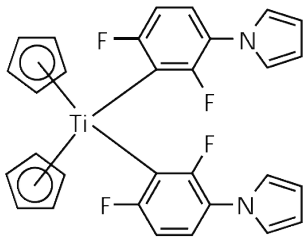

Fig. 3.22 – Formule chimique de l'irgacure 784.

Le matériau est donc un mélange contenant les proportions optimisées présentées en annexe. C'est un mélange d'un photoamorceur dans une matrice de polyuréthane , "gonflée" d'acrylate et d'anisole possédant d'épaisseur 170-μm. Nous avons exposé cet échantillon à un éclairage uniforme d'une puissance de 26-mW/cm^2. La dépendance de l'absorption molaire de l'irgacure par rapport à la longueur d'onde a été déterminée en effectuant son spectre dans l'éthanol avant éclairement. L'évolution au cours de l'exposition lumineuse a donc pu être mesurée.

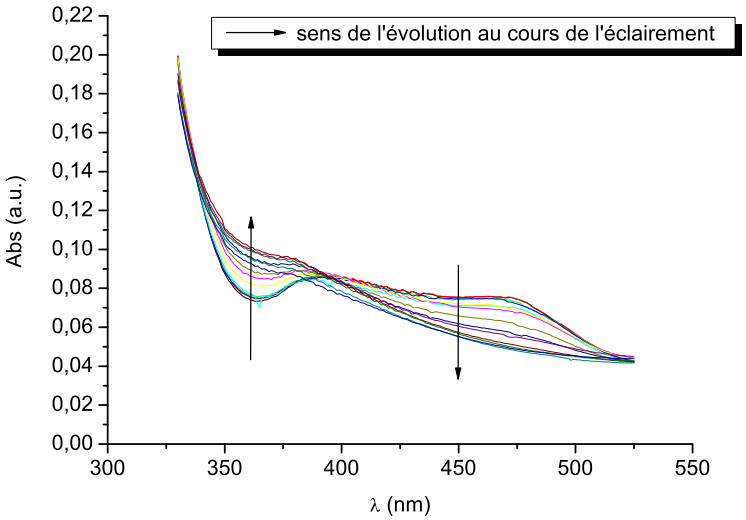

Fig. 3.23 – Spectre d'absorption d'un échantillon test de 170-μm d'épaisseur soumis à un éclairement de 26-mW/cm^2.

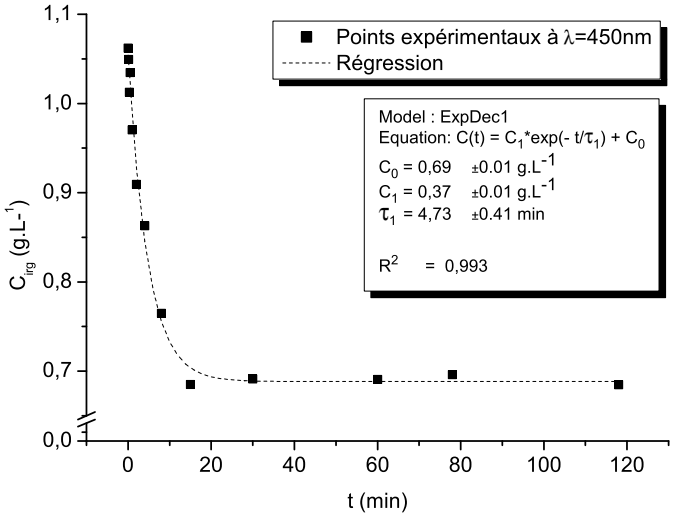

FIG. 3.24 – Evolution de la concentration en Irgacure d'un échantillon test de 170-μm d'épaisseur soumis à un éclairement de 26-mW/cm^2.

Tout d'abord, on peut signaler que les concentrations obtenues (Fig.3.24) sont tout à fait cohérentes avec ce qui a été introduit dans l'échantillon. En effet, cet échantillon présentait une concentration en irgacure de $C_{Irg} = 1,26$-g/L lors du remplissage. La concentration initiale avancée ici ($C_{Irg} = 1,06$-g/L) est pertinente et l'écart constaté entre les deux valeurs peut être expliqué par la dose de lumière reçue par l'échantillon lors des étapes intermédiaires non réalisées en salle inactinique (installation sur le banc de test, mesure au spectromètre). La cinétique de dégradation de l'irgacure étant a priori d'ordre 1 par rapport à la concentration et à l'éclairement, la réaction peut s'écrire :

$$Irg + h\nu \xrightarrow{k^*} Irg^*$$

La variation de la concentration de l'irgacure sous sa forme radicalaire $[Irg^*]$ au cours du temps s'écrit alors :

$$\frac{d[Irg^*]}{dt} = k^*.[h\nu].[Irg]$$

or $k^*.[h\nu]$ étant constant au cours de l'enregistrement et $-\frac{d[Irg^*]}{dt} = \frac{d[Irg]}{dt}$, la concentration de l'irgacure s'écrit :

$$[Irg](t) = [Irg](t = 0).e^{-t.k^*.[h\nu]} \tag{3.7}$$

La décroissance exponentielle de la concentration mesurée expérimentalement 3.24 correspond parfaitement aux prévisions théoriques. L'équation 3.7 met en évidence le fait que plus on éclaire fortement plus la réaction est rapide. La constante de la réaction k^* vaut 3,5.10^{-3}-s^{-1} $\pm 0,4.10^{-3}$ et le temps pour lequel on estime que tout l'amorceur a réagi est de 23-min 30-s ($= 5\tau_1$). Cela signifie que le photoamorceur reste en quantité suffisante durant l'enregistrement pour permettre la formation du réseau. Par ailleurs, on note que la quantité d'amorceur n'atteint pas la valeur nulle et qu'il existe à partir des 20-min une décroissance lente et linéaire de cette concentration. A priori il ne s'agit plus de l'irgacure car après conservation de l'échantillon dans le noir pendant une semaine, un nouveau spectre indique que la concentration de ce composé est proche de 0. On peut par conséquent penser que cette absorption résiduelle est due à une autre entité qui absorbe dans la même zone. A priori il ne peut pas s'agir du radical formé par la dégradation de l'irgacure qui donnerait plutôt un signal à une longueur d'onde plus faible, et qui pourrait expliquer l'autre cinétique visible vers 360-nm 3.23. L'hypothèse la plus probable est celle de la formation de dioxyde de titane, sous forme de particules blanches, qui provoqueraient des pertes de transmission par diffusion de la lumière. Cela concorderait avec la présence de TiO_2 lors du test de l'irgacure dans l'éthanol (bien visible après éclairement puis décantation) et l'aspect blanchâtre de la zone enregistrée sur l'échantillon solide. Le comportement à "long terme" (20-min) n'a pas fait l'objet d'une étude plus poussée dans ce travail car il est sans lien évident avec l'enregistrement (5-min).

Caractérisation du monomère porteur d'indice

Le monomère porteur d'indice est un acrylate, l'éthylène glycol phenyl éther acrylate. Sa formule chimique est présentée sur la figure (3.25). Il est composé d'une fonction acrylate pour la polymérisation, bien entendu, et d'une chaîne fortement conjuguée avec un cycle benzènique ce qui augmente son indice optique ($n_{20}^{D} = 1,518$).

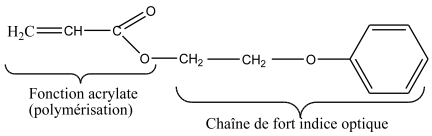

FIG. 3.25 – Formule chimique de l'acrylate.

L'utilisation d'un monomère d'indice très faible ou très élevé en comparaison avec la matrice hôte est une méthode courante dans la réalisation de matériaux holographiques à modification de l'indice par migration de matière [52][22]. En effet, dans ces conditions une migration d'une faible quantité de matière produit une forte variation de l'indice.

Caractérisation du plastifiant

Le plastifiant est l'anisole. Sa formule chimique est présentée sur la figure (3.26). Ce plastifiant a été choisi en raison d'importantes similitudes de structure avec la chaîne de l'acrylate. Son indice optique vaut ($n_{20}^{D} = 1,516$).

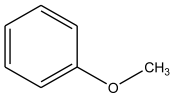

FIG. 3.26 – Formule chimique de l'anisole.

L'utilisation d'un plastifiant se justifie parfaitement dans le contexte d'un système limité par la diffusion. En effet, dans ce type de système la migration d'une espèce E est pilotée par une équation du type :

$$\frac{d[E](t)}{dt} = D_E \Delta[E] - k_E.[E] \tag{3.8}$$

La variation de la concentration de l'espèce E au cours du temps dépend donc d'un terme de source $k_E.[E]$ qui correspond aux réactions chimiques liées à cette espèce et d'un terme de diffusion D_E lié à "l'aptitude" de l'espèce E à migrer dans le système. En utilisant un plastifiant il est possible d'ajuster le terme D_E pour faciliter ou réduire la migration de l'espèce E et ainsi adapter la réponse spatiale du système à l'application. D'autre part, l'ajout de ce composé permet de conserver une porosité importante à la matrice hôte sans pour autant introduire une quantité de fonctions réactives trop importantes (cas de l'acrylate en excès dans le système).

Caractérisation de la matrice de polyuréthane

La dureté importante de la matrice permet de fixer la fréquence spatiale du réseau. En effet, les monomères porteurs d'indice, emprisonnés dans une matrice rigide (maille tridimensionnelle serrée), ne pourront migrer que sur de faibles distances, autorisant ainsi un pas du réseau Λ aussi réduit que les 263-nm nécessaires pour obtenir un réseau autour de $\lambda_{lec} = 2.n.\Lambda = 800$-nm (l'indice du polyuréthane dopé vaut 1,52). Pour optimiser les enregistrements il faut donc quantifier le degré de polymérisation de la matrice.

Le durcissement de la matrice en polyuréthane a été suivi par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR). Nous avons mesuré l'évolution de l'aire des pics des fonctions isocyanate et uréthane formée lors de la réaction de polymérisation par rapport à un pic de référence fixe. Nous avons également considéré le pic secondaire issu de la réaction de l'isocyanate sur un uréthane qui pouvait être un bon indicateur du degré de réticulation et donc de la porosité de la matrice. Ces tests ont été effectués pour différentes concentrations d'acrylate dans le mélange (0 à 14% en masse, Fig.3.27) et à deux températures (15 et 35°C, Fig.3.28) pour un mélange avec 10% d'acrylate dans une enceinte thermostatée.

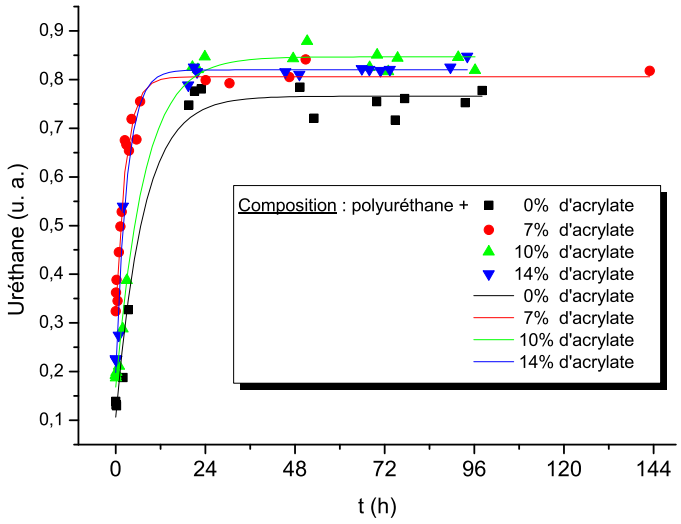

FIG. 3.27 – Formation de la fonction uréthane au cours du temps suivie au spectromètre FTIR lors de la formation de la matrice à 35°C.

On constate que pour une température donnée (35°C), la formation de la matrice de polyuréthane caractérisée par la formation de la fonction uréthane, prend environ 24h. A ce stade, la matrice est effectivement solide, on obtient un pavé de dimensions centimétriques stable et manipulable pour les opérations d'enregistrement et de polissage. Ainsi, on peut a priori enregistrer environ 24h après la fabrication. La rigidité de la matrice assure donc au matériau une fréquence spatiale élevée. En outre, la figure 3.27 confirme que le taux d'acrylate contenu dans la matrice n'influe pas sur le taux de réticulation du polyuréthane ce qui n'implique aucune influence à priori.

La formation de la matrice est légèrement plus lente à 15°C qu'à 35°C. Si on considère que les groupements alcool sont en large excès par rapport aux groupements isocyanate (la bande IR du groupement OH est encore très importante quand celle de l'isocyanate

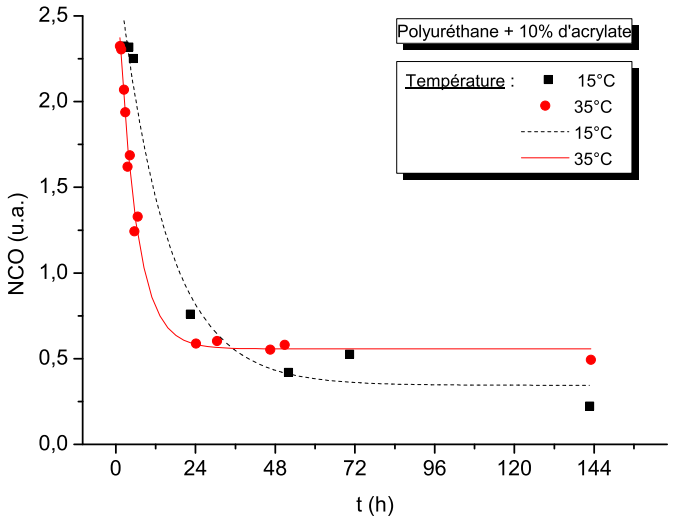

FIG. 3.28 – Disparition de la fonction isocyanate suivie au spectromètre IR lors de la formation de la matrice à 15°C et à 35°C.

a complètement disparu) on peut décrire la réaction par une cinétique d'ordre 1 et donc procéder à une régression exponentielle en vue d'obtenir la constante k de la réaction à deux températures différentes.

$$[OH] + [Isocyanate] \overset{k_{Urethane}}{\rightarrow} [Urethane]$$

soit

$$\frac{d[Urethane]}{dt} = k_{Urethane}.[Isocyanate].[OH]$$

ce qui implique si $\delta[Isocyanate] << \delta[OH]$ une solution du type :

$$[Urethane](t) = (1 - [Isocyanate](t = 0).e^{-t.k_{Urethane}.[OH]}) \tag{3.9}$$

On peut alors déterminer un ordre de grandeur de l'énergie d'activation de la réaction en appliquant la relation d'Arrhénius. Pour le polyuréthane contenant 10% d'acrylate l'énergie d'activation est de l'ordre de 36-kJ.mol^{-1}.

3.3.2 Résultats expérimentaux sur le nouveau matériau holographique

Afin de vérifier le bon fonctionnement du matériau développé, deux études ont été réalisées pour le caractériser :

- une étude sur échantillons minces (170-μm) ;
- une étude sur échantillons centimétriques.

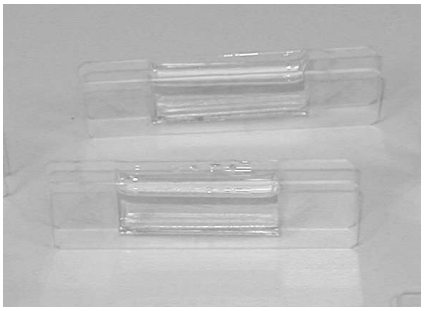

FIG. 3.29 – Echantillons de polyuréthane réalisés au laboratoire.

3.3.2.1 Etude du phénomène d'inscription sur matrice mince (170-μm)

Le spectre de transmission du matériau utilisé est présenté sur la figure 3.30. L'indice du matériau a été estimé à $n = 1.52$.

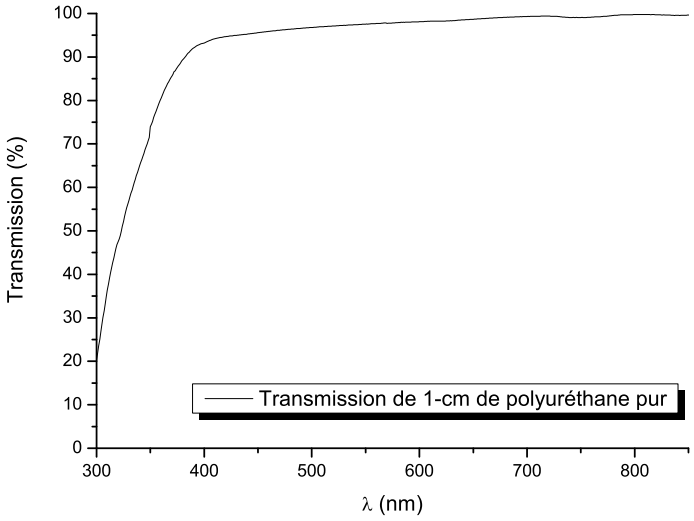

FIG. 3.30 – Transmission d'un échantillon de Polyuréthane pur de 1-cm. Le matériau à une large bande de transparence autour de 800-nm. Le coefficient d'absorption α vaut 0,05-cm^{-1} à 800-nm.

L'utilisation d'un prisme de verre ($BK7$) associé à un liquide d'indice adapté ($n = 1.52$) pour entrer dans le polymère est obligatoire compte tenu de l'ouverture de l'angle θ_{PU} et de l'indice du matériau $n = 1.52$. L'angle d'incidence dans le prisme est alors de 41,7°. L'angle d'incidence sur le prisme est presque normal. Ce montage a donc l'avantage de limiter les pertes aux interfaces.

Point de fonctionnement du Polyuréthane dopé Acrylate

Dans la suite nous avons enregistré un réseau de Bragg à pas fixe dans le nouveau matériau polymère. Nous avons fait varier le dopage entre de 6% et 16% en masse d'acrylate. Nous avons observé que la modulation d'indice maximale (Δn) enregistrable dans ce matériau était fonction de la quantité de monomère [2].

La figure 3.31 présente un bilan des expériences réalisées. Le maximum de modulation d'indice en fonction de la concentration en acrylate met en évidence un maximum vers 14% en masse d'acrylate. Pourtant un calcul rapide permet d'estimer que la quantité d'acrylate nécessaire pour produire une modulation d'indice est inférieur à 2%. En effet, si on considère une variation d'indice de $0,04$ entre le polyacrylate et l'acrylate et une modulation d'indice dans le matériau de 10^{-3} on estime le dopage d'acrylate nécessaire à :

$$\Delta n = 2.\Phi_{deplacement}.(n_{polyacrylate} - n_{acrylate}) \Rightarrow \Phi_{deplacement} = \frac{10^{-3}}{2 \times 0,04} \approx 1,2\% d'acrylate$$

Cette constatation expérimentale nous amène à considérer la notion centrale de mobilité de l'acrylate dans la matrice. Le réseau ne peut se former efficacement que si la migration de l'acrylate dans la matrice est facilitée soit par l'acrylate en excès, soit par un agent supplémentaire (le plastifiant). Il est alors possible d'ajuster la mobilité de l'acrylate. L'utilisation d'une espèce supplémentaire inerte (le plastifiant) en lieu et place de l'acrylate en excès permet de conserver tout au long de la réaction le terme de mobilité constant.

En revanche, le fléchissement aperçu pour des concentrations encore supérieures semble indiquer une saturation de la matrice et donc des mouvements de matière. L'apparition d'une efficacité non négligeable est d'autant plus rapide que l'on augmente la mobilité du mélange et ce jusqu'à un optimum de 14% d'acrylate. Cela montre que la phase de migration est d'autant plus aisée que la mobilité de l'acrylate est facilitée.

Enfin, nous avons également constaté que ce matériau ne perdait pas de modulation d'indice lorsqu'il était chauffé. L'effet "mémoire" semble donc être définitif (à l'échelle d'une année au moins à la température ambiante).

Le tableau suivant résume les paramètres concernant le PU dopé $Acrylate$:

λ_{enr}	Δn	indice à 800-nm	abs max (à 700-nm)	E_{enr}	P_{enr}	t_{pause}
532-nm	8.10^{-4}	1.52	0,07-cm^{-1}	3,6-J/cm^2	20-mW/cm^2	3-min

TAB. 3.6 – Paramètres pertinents concernant le PU dopé $Acrylate$.

Ce nouveau *photopolymère* permet maintenant d'envisager la réalisation de réseau de Bragg à pas variable.

[2] Les données expérimentales sont rapportées en annexe IV

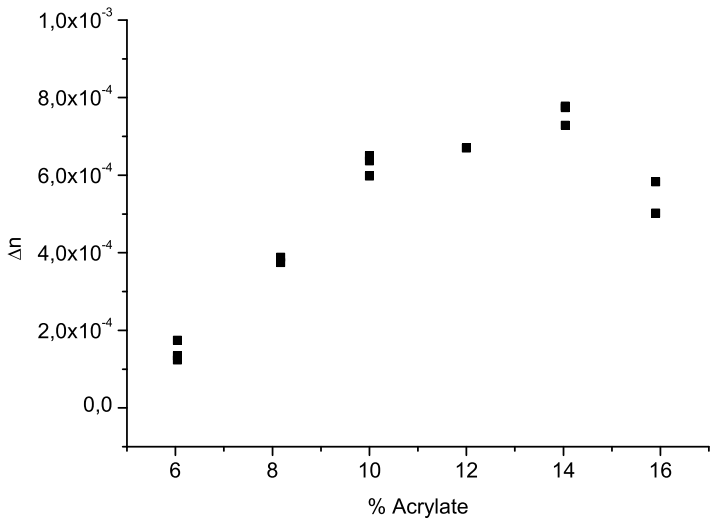

FIG. 3.31 – Evolution de la modulation d'indice Δn en fonction du taux d'acrylate.

3.3.2.2 Etude du phénomène de photo-inscription sur matrices centimétriques

Le travail d'expérimentation sur les matériaux photopolymères a mis en évidence les difficultés associées à la réalisation de matériaux holographiques centimétriques. Le travail de conception nous a donc doté d'un nouveau matériau aux dimensions centimétriques exigé par le projet. Une fois les tests sur réseaux "minces" effectués, il a été nécessaire de réaliser des réseaux d'épaisseur croissante pour vérifier l'homogénéité sur toute la profondeur. Les cinétiques d'enregistrement sont présentées sur la figure 3.32. Le montage d'enregistrement est le même que pour les échantillons minces (170-μm). La modulation d'indice Δn estimée est la valeur moyenne déduite sur toute l'épaisseur de l'échantillon. Le bilan de cette étude concernant l'amplitude de la modulation d'indice en fonction de l'épaisseur est présentée sur la figure 3.33.

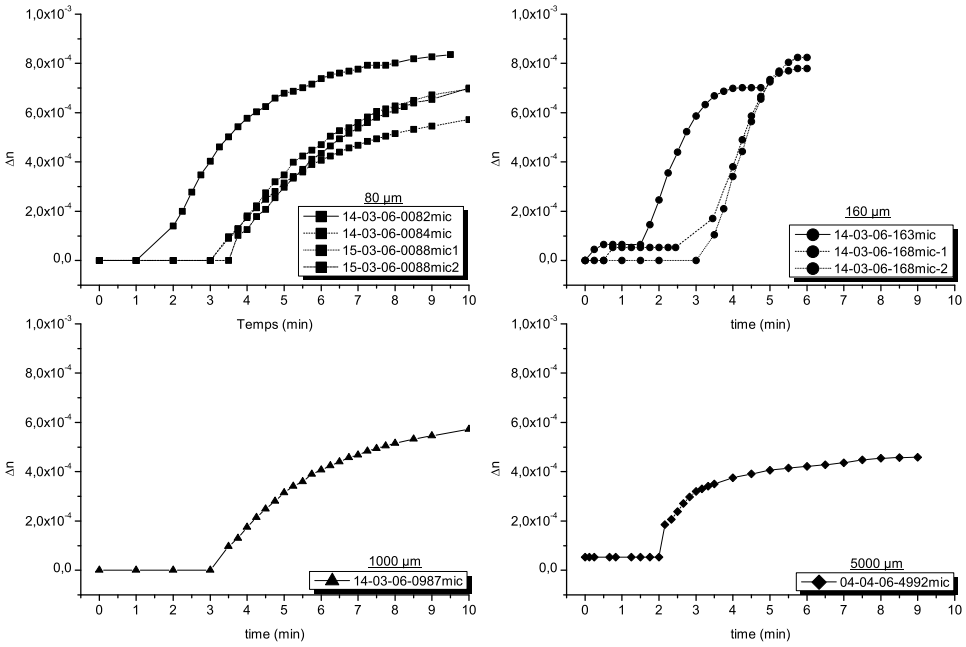

FIG. 3.32 – Cinétique des enregistrements en fonction de l'épaisseur.

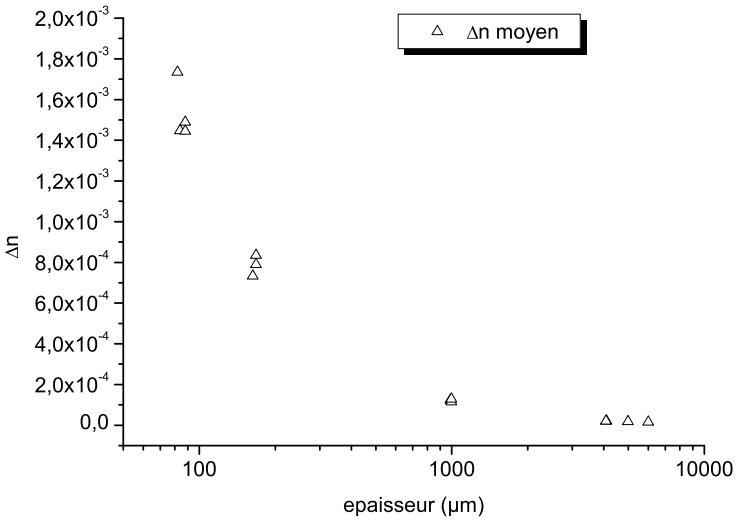

FIG. 3.33 – Bilan des modulations d'indice obtenues en fonction de l'épaisseur.

Il est clair que la modulation d'indice varie en fonction de l'épaisseur. Pourtant la faible quantité de photoamorceur utilisé (0,1 %) et le fait de travailler avec une longueur d'onde située dans la queue d'absorption ne justifient pas une telle perte d'homogénéité dans l'épaisseur du réseau. En pratique, sur des épaisseurs supérieures à 1-mm, on observe à l'œil nu des sortes de filaments disposés suivant la direction de propagation des faisceaux d'enregistrement (Fig.3.35). Ces filaments rendent le matériau diffusant et brouillent la figure d'interférence permettant d'enregistrer le réseau. Cette justification se confirme lorsque l'on mesure l'efficacité le long de la section du réseau (Fig.3.34).

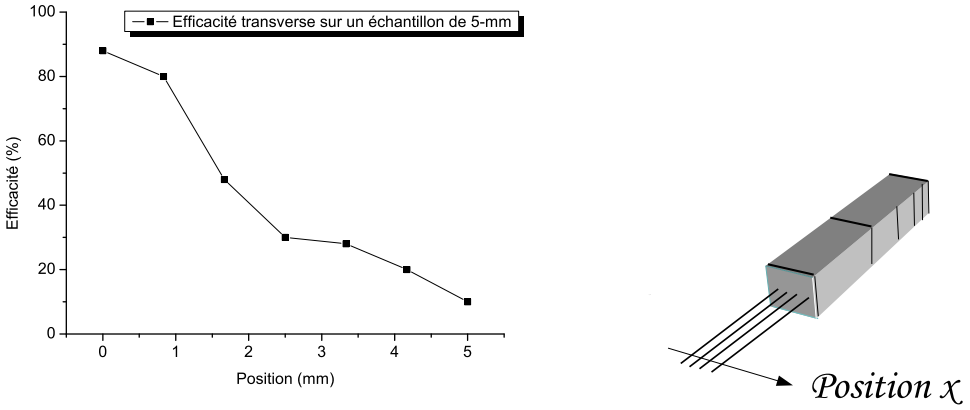

FIG. 3.34 – Mesure de l'efficacité transverse d'un échantillon de 5-mm d'épaisseur.

3.3.2.3 réseaux parasites, effet de filamentation

Le phénomène de filamentation est un effet parasite comme nous l'avons rencontré dans le $LiNbO_3$ dopé MgO avec l'apparition de réseaux de bruit. L'étude de ce phénomène dépasse largement le cadre de ce travail. L'apparition de ces structures diffractantes reste cependant un point limitant pour le développement de composants épais. Le choix a donc été de trouver des solutions pour limiter au maximum la filamentation en parallèle d'une description phénoménologique pour ouvrir des pistes d'étude de ce comportement. Les observations de l'effet de filamentation sont les suivantes :

- ≻ les filaments se "propagent" dans la direction des faisceaux d'enregistrement ;
- ≻ les filaments possèdent un diamètre caractéristique d'une centaines de microns ;
- ≻ les filaments sont un effet de variation d'indice ;
- ≻ le temps d'apparition des filaments est de l'ordre de la dizaine de minute ;
- ≻ les filaments sont observables uniquement dans le mélange photo-polymérisable.

Ce phénomène de filamentation est difficile à interpréter. Les filaments ont une taille caractéristique de quelques centaines de microns. Ils semblent se "propager" dans la direction de propagation des ondes d'enregistrement mais il ne sont pas organisés géométriquement les uns par rapport aux autres. On peut coupler une onde lumineuse dans un filament par effet de guidage. Leur cinétique d'apparition est très lente (supérieur à la dizaine de minutes). Il arrive que l'on puisse observer leur "développement" après l'illumination. Enfin, le contraste de phase de ces filaments s'estompe lorsque l'on blanchit le matériau après enregistrement.

La première interprétation envisagée était l'effet solitonique que l'on retrouve dans les milieux amplificateurs par exemple [33][32]. De la même manière que les variations de gain (et donc d'absorption) dans les amplificateurs optiques peuvent produire des effets de guidage, la variation d'absorption liée à l'activation du photoamorceur pourrait provoquer un effet solitonique. Mais les constantes de temps observées sont largement trop grandes pour un effet instantané tel que l'autoguidage. De la même manière les expérimentations de propagation dans des milieux non-linéaires tel que le CS_2 [5] mettent toutes en œuvre des phénomènes instantanés incompatibles avec les observations. Avec des durées plus longues, les effets de filamentation par polymérisation dans un mélange monomère-photoamorceur semblent facilement envisageables [7][8].Si on fait l'hypothèse que le filament est initié par une modulation de l'intensité, le speckle par exemple, la polymérisation induite par cette surintensité produit une augmentation locale de l'indice. La lumière est guidée et focalisée par ce point où l'indice est plus élevé. La polymérisation est alors plus rapide et le guide se construit ainsi au fur et à mesure. Un calcul rapide du diamètre des filaments connaissant la modulation d'indice entre l'acrylate et le polyacrylate ($\Delta n = 0{,}04$) peut être réalisé. Classiquement, on compare la puissance critique $P_{critique}$ d'auto-focalisation par effet Kerr à la diffraction et on obtient l'expression de la puissance critique [28] :

$$P_{critique} = I.\pi.\frac{w^2}{4} = \frac{\lambda^2}{4.\pi.n_2}$$

Où I est l'intensité d'enregistrement à $\lambda = 532$-nm et w est le diamètre du filament. En admettant que nous soyons à la puissance critique, on obtient un diamètre caractéristique w :

$$w = \sqrt{\frac{\lambda^2}{\pi^2.10\%\Delta n}}$$

Où $\Delta n = n_2.I$ avec n_2 le coefficient. La modulation d'indice maximum ne vaut que 10% de la différence d'indice entre l'acrylate et le polyacrylate (composition à 10% en masse).

Dans ces conditions, on obtient un diamètre caractéristique w :

$$w \approx 5\mu m$$

Les ordres de grandeur de ce calcul rapide montrent peu de cohérence avec les dimensions observées. Mais la différence principale réside dans le fait que ces filaments restent après illumination. Après enregistrement, on expose l'échantillon à une lumière incohérente pour blanchir l'échantillon. Si la polymérisation était le seul mécanisme à l'origine des filaments le blanchiment devrait les faire disparaître (le photoamorceur et l'acrylate étant largement en excès). Cette interprétation ne permet donc pas d'expliquer toutes les observations. Le phénomène de filamentation peut donc très probablement expliquer la structure guide d'onde. En revanche il est difficile de déterminer l'origine de cet effet et de cette dimension caractéristique de la centaine de microns. Il est d'ailleurs également difficile de déterminer si cette dimension représente la distance entre deux filaments de plus petites tailles ($5\mu m$) par exemple ou le diamètre intrinsèque du filament. Le chapitre §3.3.3 permettra d'apporter des éléments de réponses.

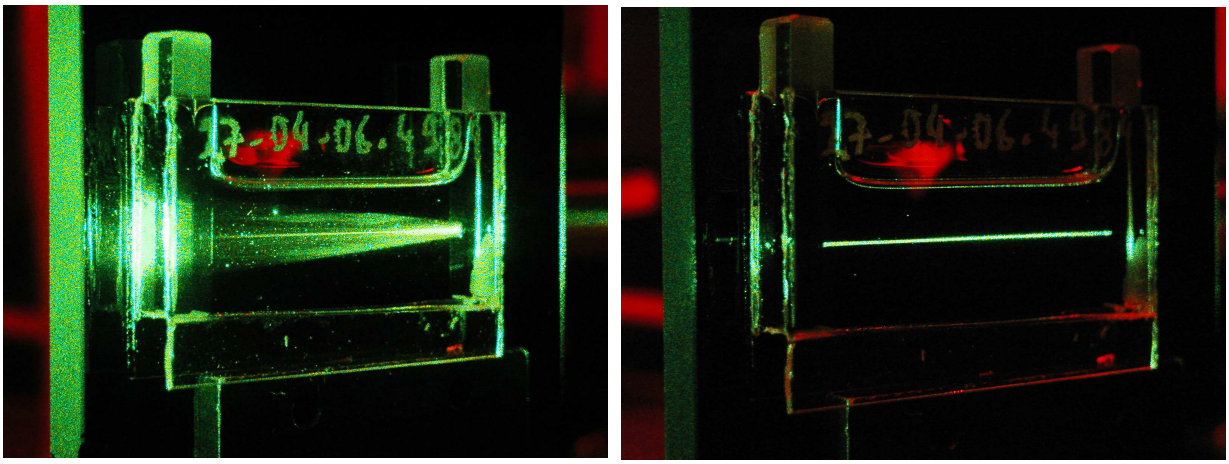

Fig. 3.35 – Effet de la filamentation.

3.3.2.4 Attenuation des filaments, utilisation d'un plastifiant

Cet effet de filamentation reste une limitation forte dans le cadre de notre projet. C'est en fait la principale raison qui nous a poussé à inclure dans notre formulation un plastifiant en lieu et place de l'acrylate résiduel qui pouvait très bien remplir cette tâche. En effet, l'intensification des filaments semble liée à l'excès de mélange d'acrylate et de photoamorceur.

La formation des filaments (figure 3.37) pour les mêmes dosages en porteur d'indice (de 6 à 14%) et plastifiant (de 0 à 8%) est ici étudiée en détails. Nous avons dirigé un faisceau laser uniforme sur des cuves de spectromètre contenant les diverses concentrations en produit. Le détecteur était placé à une distance d'environ 1-m sur la tâche laser initiale. Au fil de la formation de la structure parasite, l'intensité mesurée (ordre 0) diminue au profit des ordres supérieurs de la figure de diffraction naissante (Fig.3.36) (l'énergie est transférée de l'ordre 0 vers les ordres suivants). Les courbes sont issues de tests menés à une mobilité constante de 14%, afin de travailler dans la zone optimale et de ne pas faire varier le paramètre de la mobilité (même si celui-ci ne rentre pas a priori en ligne de compte).

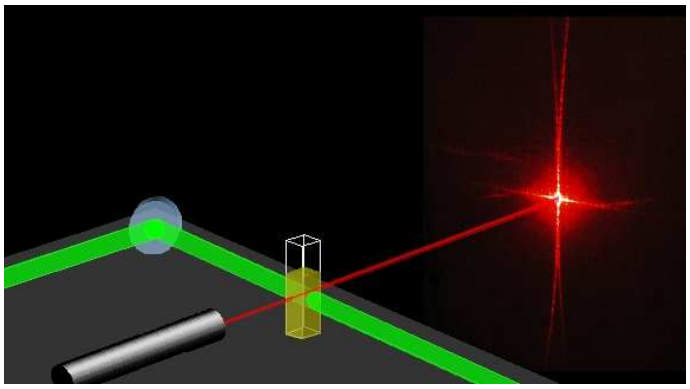

Fig. 3.36 – Montage utilisé pour mesurer la filamentation en fonction du taux d'acrylate.

L'influence de la quantité d'acrylate est mise en évidence sur la figure 3.37. Plus cette quantité est élevée plus les pertes par diffraction sont importantes. Le temps d'apparition des filaments diminue lui aussi quand la concentration d'acrylate augmente et reste de l'ordre de la minute, un temps comparable à la vitesse de polymérisation de l'acrylate. On note également une phase d'effacement des filaments lorsque l'intensité de l'ordre 0 remonte. Cela traduit, en éclairement uniforme, la polymérisation complète de l'acrylate dans les zones extérieures aux guides. L'indice optique s'homogénéise donc au niveau de la structure des filaments et conduit à une atténuation du contraste de ces derniers. Cela n'a pas de conséquence au niveau de l'hologramme qui est quant à lui créé par la migration de l'acrylate des zones claires vers les zones sombres plutôt que par sa seule polymérisation. Les deux phénomènes sont distincts car ils interviennent à des échelles spatiales très différentes (100-μm pour les filaments et 270-nm pour le réseau). D'après ces constatations expérimentales, nous avons choisi d'utiliser un mélange contenant 6% d'acrylate et 8% d'anisole. En effet c'est le point de fonctionnement du système qui assure la meilleure efficacité et qui permet de limiter au mieux l'apparition de l'effet de filamentation. Afin d'atténuer cette structure parasite par des méthodes simples, nous avons par ailleurs tenté d'éclairer en lumière blanche uniforme un échantillon épais après l'enregistrement pour réaliser un post-traitement. Conformément aux expériences précédentes, la structure incri-

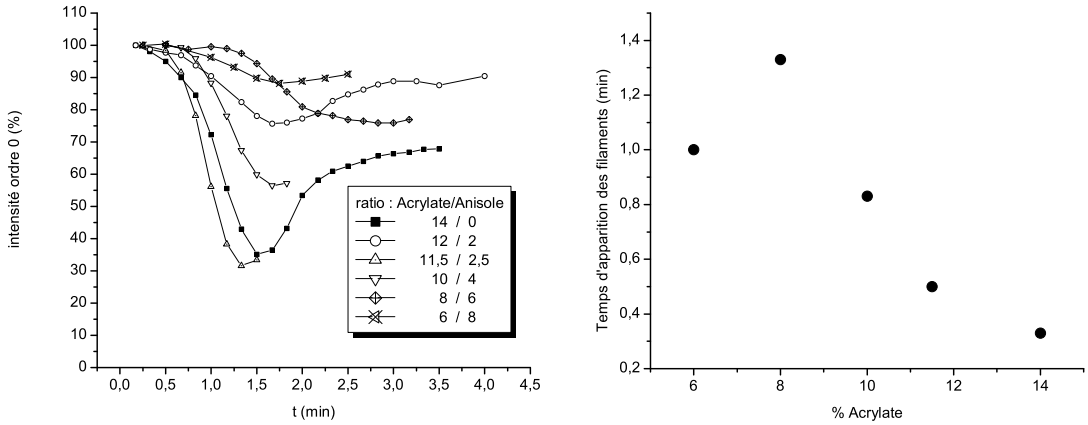

FIG. 3.37 – Diffraction causée par la filamentation en fonction du rapport monomère/plastifiant.

minée disparaît progressivement mais continue à perturber la qualité optique du signal de sortie durant la relecture de l'hologramme.

3.3.2.5 Discussion

Les résultats expérimentaux concernant l'enregistrement de réseau de Bragg dans le Polyuréthane dopé Acrylate montrent une bonne adéquation avec l'approche phénoménologique proposée pour son élaboration. Afin d'aller plus loin et de valider cette approche, nous avons développé un modèle quantitatif pouvant être validé par l'expérience. Ce modèle est basé sur le formalisme de diffusion généralisée. Il traite donc de la diffusion de chaque espèce dans le mélange en tenant compte de la porosité maximale du système. Les variations de concentration à l'origine de la diffusion de chaque espèce sont pilotées par les réactions de polymérisation de l'Acrylate dans le mélange.

3.3.3 Modélisation de la diffusion généralisée dans le système

Nous proposons ici de modéliser la photoinscription d'un réseau de Bragg dans une matrice tridimentionnelle dans un système de type *Modulation d'indice par migration de la matière* sans séparation de phase [52]. Nous avons pour cela modélisé le comportement au sein de la matrice des composants suivants :

- ≻ un monomère porteur d'indice (m) ;
- ≻ un plastifiant (a) ;
- ≻ le polymère (monomère porteur d'indice ayant polymérisé)(p) ;
- ≻ les lacunes créées lorsque le monomère polymérise (l) ;
- ≻ un photoamorceur(e).

Le comportement physico-chimique du matériau peut être décrit par les lois de la diffusion et de la cinétique chimique [14][17] [15][18]. Le but est de calculer les termes de mobilité des composés dans le cadre du formalisme proposé par Onsager (diffusion généralisée) tout en négligeant les interactions chimiques. Trois composés subissent à la fois diffusion et cinétique chimique : Le monomère (m), le plastifiant (a), les lacunes (l). Le photoamorceur (e) et le polymère (p) sont considérés comme immobiles et servent à l'initiation et la terminaison de la réaction. Seule leur cinétique chimique est prise en compte.

Le développement permettant d'obtenir le système matriciel présenté ci-dessous est présenté en annexe 6, il tient compte de la diffusion de chaque espèces en fonction de sa mobilité M_{ij} et en fonction des modifications chimiques qu'elles subissent $S(i)$ (terme de source).

$$\frac{\partial}{\partial t}\begin{bmatrix}\Phi_m\\ \Phi_a\\ \Phi_p\\ \Phi_l\end{bmatrix} = -\begin{bmatrix}M_{mm} & M_{ma} & 0 & M_{ml}\\ M_{am} & M_{aa} & 0 & M_{al}\\ 0 & 0 & 0 & 0\\ M_{lm} & M_{la} & 0 & M_{ll}\end{bmatrix}\Delta\begin{bmatrix}\Phi_m\\ \Phi_a\\ \Phi_p\\ \Phi_l\end{bmatrix} + \begin{bmatrix}S_m\\ S_a\\ S_p\\ S_l\end{bmatrix} \tag{3.10}$$

La résolution complète du système en prenant en compte la diffusion de toutes les espèces ainsi que les réactions chimiques relève de l'équation dite de PP-Fisher dont la résolution dépasse le cadre de ce travail mais fait l'objet de nombreux travaux théoriques.

L'objet de cette partie est de montrer de quelle manière une version simplifiée du modèle précédent, permet, dans le cadre de faibles modulations d'indice, de retrouver et de comparer les différents phénomènes physiques que sont la diffusion et la réactivité chimique.

Hypothèse 1 : On se place dans le cas ou la modulation d'indice reste faible ce qui permet de la considérer comme une pertubation. Nous écrivons donc les concentrations des espèces chimiques :

$$\Phi_i(r,t) = \Phi_i^0(t) + \Phi_i^1(t)\sin\left(\frac{2\pi r}{\Lambda}\right)$$

Hypothèse 2 : Nous ne considérons que la diffusion des espèces monomériques à l'état fondamental ou excité. Dans la mesure où l'on se place dans le cadre de faibles pertubations les quantités de matières qui diffusent restent très faibles devant les valeurs moyennes. L'équation de diffusion peut donc être traitée dans le cadre de la diffusion d'éléments infiniment dilués ce qui nous ramène au formalisme de Fick.

$$\frac{\partial \Phi_i(r,t)}{\partial t} = D\Delta\{\Phi_i(r,t)\} + Sources\{\Phi_i(r,t)\}$$

Hypothèse 3 : Le monomère qu'il soit dans son état excité ($\Phi_{\dot{M}}$) ou fondamental (Φ_M) conserve une taille semblable. Un même coefficient de diffusion D sera donc pris pour ces deux espèces. Ce coefficient de diffusion est directement lié à la porosité du milieu (mélange matrice de polyuréthane et de monomère acrylate).

On définit ainsi une connectivité moyenne :

$$\chi = \frac{\text{nombre de liaisons du réseau polymère par unité de volume}}{\text{nombre de liaisons maximales du réseau par unité de volume}}$$

Une loi d'échelle relie alors la diffusivité à la densité de liaisons du milieu.

$$\begin{aligned} D &= D_0|\chi^c - \chi|^\beta \textbf{ si } \chi < \chi^c \\ &= 0 \textbf{ si } \chi > \chi^c \end{aligned}$$

χ^c est une valeur de connectivité critique au delà de laquelle le réseau polymère est trop dense pour permettre la diffusion. On parle de gel cinétique du système.

Dans la suite on considérera le modèle simplifié de la polymérisation radicalaire suivant :

"amorçage" k_d

$$[Irg] + I \xrightarrow{k^a} 2.[\dot{R}]$$

$$[\dot{R}] + [M] \xrightarrow{k_d} [\dot{M}]$$

"propagation" k_p

$$[\dot{M}_m] + [M] \xrightarrow{k_p} [\dot{M_{m+1}}]$$

"terminaison" k_t

$$[\dot{M}_m] + [\dot{M}_n] \xrightarrow{k_t} [M_{n+m}]$$

L'hypothèse des états quasi stationnaires suppose que la concentration en radicaux libres reste constante et faible au cours du temps et permet de calculer la vitesse de polymérisation dans le cas de ces réactions radicalaires.

- ≻ La concentration typique en $[\dot{M}]$ est de 10^{-9} à 10^{-7} mol/L.
- ≻ Le temps de vie des radicaux libres $\tau^* = \tau_{\frac{1}{2}} = 0{,}1$ à 10 secondes.
- ≻ La vitesse de polymérisation $-\frac{\partial[M]}{\partial t} = \frac{\partial[P]}{\partial t} = k_p \Phi_M.\Phi_{\dot{M}}$

$$\left.\frac{\partial \Phi_M}{\partial t}\right|_{poly} = k_p\sqrt{\frac{k_d.I}{k_t}} = \frac{\Phi_M}{\tau_p}$$

avec

$$\tau_p = \frac{1}{k_p}\sqrt{\frac{k_t}{k_d.I}}$$

Soit, avec $k_p >> k_d$ et $k_p >> k_t$

$$\Phi_{\dot{M}} = \sqrt{\frac{k_d.I}{k_t}} = C^{ste}(t)$$

Hypothèse 4 : En considérant la modulation de la densité de matière faible (traitement pertubatif) nous supposons dans la suite que l'hypothèse d'un état stationnaire est applicable en moyenne au matériau. C'est à dire sur la partie continue des variables $\Phi_i^0(t)$. On distingue alors les deux cas suivants :

En l'absence de diffusion

$$\Phi_{\dot{M}}(t) = \Phi_{\dot{M}}^0.I = C^{ste}(t)$$

Si l'on considère un éclairement I de la forme :

$$I(r,t) = I_1(1+\sin(\frac{2\pi r}{\Lambda}))^2$$

On obtient

$$\Phi_{\dot{M}}(r) = \sqrt{\frac{k_d}{k_t}.I_1}(1+\sin(\frac{2\pi r}{\Lambda}))$$

Avec la diffusion

Si une quantité n_0 d'espèce est crée en r on a alors une répartition de la concentration C de l'espèce de la forme [3] :

$$C(r,t) = \frac{n_0}{(8\pi D\tau^*)^{\frac{3}{2}}} e^{-\frac{r^2}{4D\tau^*}} \tag{3.11}$$

d'où

$$\begin{aligned}
\Phi_{\dot{M}}(r) &= \int_{u=-\infty}^{+\infty} \Phi_{\dot{M}}(r)\big|_{\text{sans diff}} \frac{1}{(8\pi D\tau^*)^{\frac{3}{2}}} e^{-\frac{(r-u)^2}{4D\tau^*}} du \\
&= \int_{u=-\infty}^{+\infty} \sqrt{\frac{k_d}{k_t}.I_1} \frac{1}{(8\pi D\tau^*)^{\frac{3}{2}}} \left(1+\sin\left(\frac{2\pi r}{\Lambda}\right)\right) e^{-\frac{(r-u)^2}{4D\tau^*}} du \\
&= \sqrt{\frac{k_d}{k_t}.I_1} \frac{1}{(8\pi D\tau^*)^{\frac{3}{2}}} \left[-\frac{1}{2}\sqrt{\pi}\sqrt{4D\tau^*}\left(j.e^{\frac{4j\pi r}{\Lambda}} - 2.e^{\frac{4j\pi r}{\Lambda}} - j\right).e^{-\frac{2j\pi r}{\Lambda}}.e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}}\right] \\
&\times \left(j.e^{\frac{2\pi jr}{\Lambda}} - j.e^{-\frac{2\pi jr}{\Lambda}} - 2\right).e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}}.\left(2\sin\left(\frac{2\pi r}{\Lambda}\right) - 2\right)
\end{aligned}$$

Soit,

$$\Phi_{\dot{M}}(r) = \sqrt{\frac{k_d}{k_t}.I_1}.\frac{\sqrt{4\pi D\tau^*}}{(8\pi D\tau^*)^{\frac{3}{2}}}.\left(1-\sin\left(\frac{2\pi r}{\Lambda}\right).e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}}\right)$$

En faisant l'hypothèse d'un état quasi stationnaire local auquel on applique une diffusion pendant le temps caractéristique de vie de cet état excité il est donc possible d'estimer la répartition spatiale de monomère excité qui est supposée fixe dans le temps.

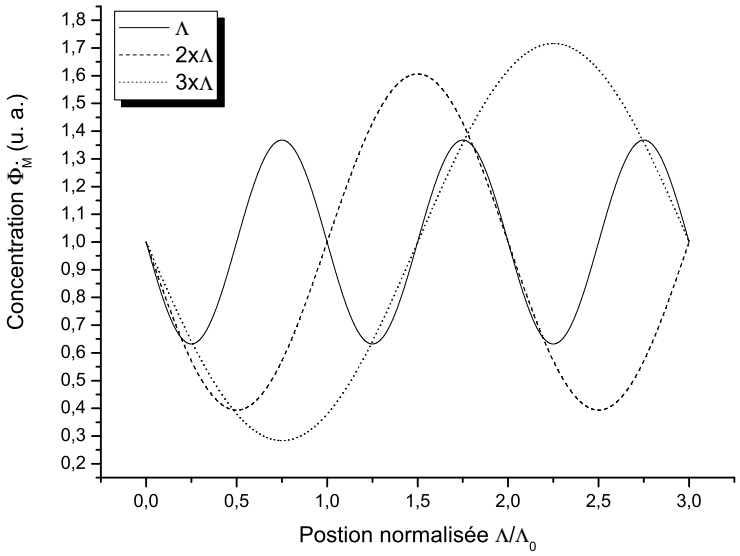

FIG. 3.38 – Variation de la concentration $\Phi_{\dot{M}}$ en fonction du pas d'enregistrement Λ.

L'équation de diffusion/réaction peut alors être traitée dans le cadre d'une petite perturbation.

$$\frac{\partial \Phi_M}{\partial t} = -k_p \Phi_M \Phi_{\dot{M}} + D\Delta\Phi_M$$

avec

$$\Phi_M(r,t) = \Phi_M^0(t) + \Phi_M^1(t)\sin\left(\frac{2\pi r}{\Lambda}\right)$$

$$\begin{cases} \dfrac{\partial \Phi_M^0(t)}{\partial t} = -k_p \Phi_M^0(t)\sqrt{\dfrac{k_d}{k_t}.I_1}\dfrac{\sqrt{4\pi D\tau^*}}{(8\pi D\tau^*)^{\frac{3}{2}}} \\ \dfrac{\partial \Phi_M^1(t)}{\partial t} = -k_p \Phi_M^0(t)\sqrt{\dfrac{k_d}{k_t}.I_1}\dfrac{\sqrt{4\pi D\tau^*}}{(8\pi D\tau^*)^{\frac{3}{2}}}.(-e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}}) + k_p \Phi_M^1(t)\sqrt{\dfrac{k_d}{k_t}.I_1}\dfrac{1}{2\sqrt{2}(4\pi D\tau^*)^2} - \dfrac{D}{\Lambda^2}.\Phi_M^1(t) \end{cases}$$

On extrait alors le temps caractéristique τ_p tel que :

$$\frac{1}{\tau_p} = \underbrace{k_p.\sqrt{\frac{k_d}{k_t}.I_1}}_{\text{polymerisation standard homogène}} \times \underbrace{\frac{1}{2\sqrt{2}(4\pi D\tau^*)^2}}_{\text{effet de la diffusion}}$$

Φ_M^1 s'écrit alors :

$$\Phi_M^1 = \left[F_0 e^{-\left[\frac{D}{\Lambda^2}-\frac{2}{\tau_p}\right].t} + \frac{\Phi_M^0}{\tau_p}.e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}}.\frac{\Lambda^2}{D\tau_p - 2\Lambda^2}\right].e^{-\frac{t}{\tau_p}}$$

Avec la condition initiale $\Phi_M^1(t=0)=0$ on obtient pour F_0 :

$$F_0 + \frac{\Phi_M^0 \Lambda^2}{D\tau_p - 2\Lambda^2}.e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}} = 0$$

Soit

$$\Phi_M^1 = \frac{\Phi_M^0 \Lambda^2}{D\tau_p - 2\Lambda^2}.e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}} \left[1 - e^{-\left[\frac{D}{\Lambda^2} - \frac{2}{\tau_p}\right].t}\right].e^{-\frac{t}{\tau_p}}$$

On obtient alors pour la concentration Φ_M les expressions :

$$\begin{cases} \Phi_M^0(t) = \Phi_M^0.e^{-\frac{t}{\tau_p}} \\ \Phi_M^1(t) = \dfrac{\Phi_M^0 \Lambda^2}{D\tau_p - 2\Lambda^2}.e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}} \left[e^{-\frac{t}{\tau_p}} - e^{\left[-\frac{D}{\Lambda^2} + \frac{1}{\tau_p}\right].t}\right] \end{cases}$$

De la concentration Φ_M nous pouvons déduire la concentration en polymère Φ_P à l'origine de la modulation d'indice dans le matériau.

$$\frac{\partial \Phi_P}{\partial t} = +k_p \Phi_M \Phi_{\dot{M}}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial \Phi_P}{\partial t} &= +k_p \Phi_M \Phi_{\dot{M}} \\
&= +k_p \left(\Phi_M^0(t) + \Phi_M^1(t) \sin\left(\frac{2\pi r}{\Lambda}\right)\right).\sqrt{\frac{k_d}{k_t}.I_1}.\frac{\sqrt{4\pi D\tau^*}}{(8\pi D\tau^*)^{\frac{3}{2}}}.\left(1 - \sin\left(\frac{2\pi r}{\Lambda}\right).e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}}\right) \\
&= \frac{1}{\tau_p}\left[\Phi_M^0(t) + \sin\left(\frac{2\pi r}{\Lambda}\right).\left(\Phi_M^1(t) - \Phi_M^0(t).e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}}\right) + \Phi_M^1(t).\sin^2\left(\frac{2\pi r}{\Lambda}\right).e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}}\right] \\
&= \frac{1}{\tau_p}\left[\Phi_M^0.e^{-\frac{t}{\tau_p}}\right. \\
&\quad + \sin\left(\frac{2\pi r}{\Lambda}\right).\left(\frac{\Phi_M^0 \Lambda^2}{D\tau_p - 2\Lambda^2}.e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}}\left[e^{-\frac{t}{\tau_p}} - e^{\left[-\frac{D}{\Lambda^2} + \frac{1}{\tau_p}\right].t}\right] - \Phi_M^0.e^{-\frac{t}{\tau_p}}.e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}}\right) \\
&\quad \left. + \frac{\Phi_M^0 \Lambda^2}{D\tau_p - 2\Lambda^2}.e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}}\left[e^{-\frac{t}{\tau_p}} - e^{\left[-\frac{D}{\Lambda^2} + \frac{1}{\tau_p}\right].t}\right].\sin^2\left(\frac{2\pi r}{\Lambda}\right).e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}}\right]
\end{aligned}$$

on obtient alors pour l'expression de Φ_P les deux termes suivants :

$$\begin{cases} \Phi_P^0(t) = \Phi_M^0.\left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_p}}\right) \\ \Phi_P^1(t) = \dfrac{\Phi_M^0}{D\tau_p - 2\Lambda^2}.e^{-\frac{4D\tau^*\pi^2}{\Lambda^2}}\left[(3\Lambda^2 - D\tau_p).\left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_p}}\right) + \dfrac{\Lambda^4}{\Lambda^2 - D\tau_p}\left(1 - e^{\left[\frac{\Lambda^2 - D\tau_p}{\tau_p \Lambda^2}\right].t}\right)\right] \end{cases}$$

Remarque : On pourrait croire que cette solution diverge pour le cas,

$$\begin{cases} D\tau_p - 2\Lambda^2 \to 0 \\ \Lambda^2 - D\tau_p \to 0 \end{cases}$$

En pratique ça n'est pas le cas. En effet, $1 - e^{+\varepsilon} \to -\varepsilon$ quand $\varepsilon \to 0$. Cela implique que :

$$\frac{1 - e^{\left[\frac{\Lambda^2 - D\tau_p}{\tau_p \Lambda^2}\right].t}}{\Lambda^2 - D\tau_p} \to \frac{1}{\tau_p \Lambda^2} \times t \text{ quand } \Lambda^2 - D\tau_p \to 0$$

Si $D\tau_p - 2\Lambda^2 \to 0$
alors,

$$\begin{cases} 3\Lambda^2 - D\tau_p \to \Lambda^2 \\ \Lambda^2 - D\tau_p \to -\Lambda^2 \end{cases}$$

De faite $\Phi_P^1(t)$ devient alors :

$$(\to \Lambda^2).\left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_p}}\right) + \frac{\Lambda^4}{\to \Lambda^2}.\left(1 - e^{\left[\frac{\to -\Lambda^2}{\tau_p \Lambda^2}\right].t}\right) \to 0$$

Le système ne diverge pas.

3.3.3.1 Simulations et ordre de grandeur

On peut maintenant considérer l'enregistrement d'un réseau de période Λ et donc de fréquence $f = \frac{1}{\Lambda}$. On doit alors prendre en compte les fréquences propres du matériau $f_p = \frac{1}{\sqrt{D.\tau_p}}$ et $f_D = \frac{1}{\sqrt{4D\tau^*\pi^2}}$ ainsi que la fréquence $f_g = \frac{1}{\sqrt{D.\tau_g}}$. Ces trois fréquences propres sont liées chacune à une réaction physico-chimique dans le matériau. La fréquence f_p est liée au temps caractéristique de polymérisation. La fréquence f_D est liée à la diffusion de l'espèce $\dot{M}$ dans le matériau. Enfin la dernière fréquence introduite, f_g, correspond au temps de gel. Le temps de gel τ_g correspond au temps au bout duquel le système est figé et ou l'espèce $\dot{M}$ ne peut plus migrer et correspond au cas ou la connectivité est supérieure à la connecivité critique χ^c . L'expression de $\Phi_P^1(f)$ s'écrit alors :

$$\Phi_P^1(f)_{t=t_0} = \frac{\Phi_M^0}{\frac{1}{f_p^2} - \frac{2}{f^2}}.e^{-\frac{f^2}{f_D^2}} \left[(\frac{3}{f^2} - \frac{1}{f_p^2}). \left(1 - e^{-Dt_0 f_p^2}\right) + \frac{\frac{1}{f^4}}{\frac{1}{f^2} - \frac{1}{f_p^2}} \left(1 - e^{\left[(f_p^2 - f^2)D\right].t_0}\right) \right]$$

$$\Phi_P^1(f)_{t=t_0} = \frac{\Phi_M^0 f^2 f_p^2}{f^2 - 2f_p^2}.e^{(-\frac{f}{f_D})^2} \left[\frac{3f_p^2 - f^2}{f^2 f_p^2}. \left(1 - e^{-Dt_0 f_p^2}\right) + \frac{f^2 f_p^2}{f^4(f_p^2 - f^2)} \left(1 - e^{\left[(f_p^2 - f^2)D\right].t_0}\right) \right]$$

Il faut maintenant ajouter à cette expression le cas limite ou le système est gelé soit quand $t = \tau_g$. On obtient alors l'expression suivante :

$$\Phi_P^1(f)_{t=\tau_g} = \frac{\Phi_M^0 f^2 f_p^2}{f^2 - 2f_p^2}.e^{(-\frac{f}{f_D})^2} \left[\frac{3f_p^2 - f^2}{f^2 f_p^2}. \left(1 - e^{-\frac{f_p^2}{f_g^2}}\right) + \frac{f^2 f_p^2}{f^4(f_p^2 - f^2)} \left(1 - e^{\left[\frac{f_p^2 - f^2}{f_g^2}\right]}\right) \right]$$

On peut alors étudier le comportement en fréquence spatiale du système en faisant varier individuellement les paramètres τ_p, τ_* et τ_g. La figure 3.39 présente les évolutions de la courbe de réponse en fréquence spatiale du matériau en faisant varier chaque paramètre indépendamment.

- ≻ La courbe (a) montre l'influence du temps de gel τ_g. Plus ce temps est grand, plus le système gèle tardivement et donc plus le monomère peut migrer. Par conséquent, plus le temps de gel est élevé plus le gain de modulation d'indice sera important.
- ≻ Pour le temps caractéristique de polymérisation τ_p, on observe l'effet inverse. Plus ce temps est élevé plus la polymérisation sera rapide. La polymérisation étant un phénomène local, elle réduit la diffusion des monomères, le gain de modulation d'indice diminue quand la vitesse de polymérisation augmente (courbes (b)).
- ≻ Le temps τ_* est le temps caractéristique associé à la diffusion décrite par l'équation 3.11. Plus ce temps augmente plus la rupture de bande passante est forte (courbes (c)).
- ≻ Enfin, la courbe (d) présente l'évolution de la bande passante en fonction du coefficient de diffusion du monomère dans le système. Naturellement, plus le coefficient de diffusion est élevé, plus le monomère peut diffuser et donc plus les hautes fréquences sont "filtrées" par le phénomène de diffusion. Pour augmenter le coefficient de diffusion, il faut augmenter la porosité du système. Pour cela, il faut "gonfler" la matrice en augmentant la concentration initiale de monomère Φ_M^0 ou en remplaçant ce monomère en excès par une espèce similaire et neutre.

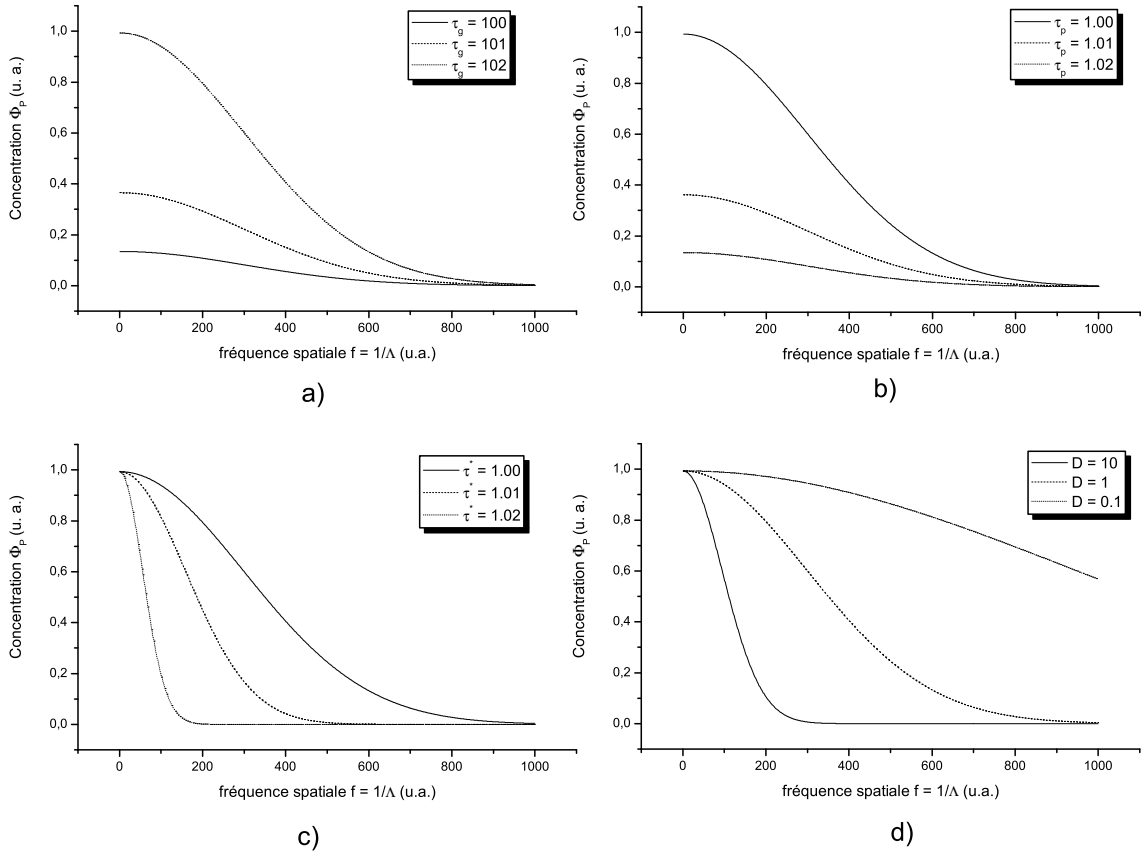

FIG. 3.39 – Réponse spatiale du matériau en fonction des temps caractéristiques τ_p, τ_* et τ_g.

Pour rendre compte totalement du système, il faut d'écrire l'évolution du coefficient de diffusion en fonction de la porosité du système. Pour cela on a introduit le terme de connectivité χ exprimant le rapport entre le nombre de liaisons polymérisées et le nombre total de liaisons possibles.

$$\chi = \frac{\text{Nombre de liaisons polymérisées}}{\text{Nombres total de liaisons possibles}}$$

Pour exprimer ce paramètre on introduit le terme de porosité Π exprimant le rapport entre le volume libre dans le polyuréthane et le volume total. Pour augmenter la porosité on augmente le taux de monomère dans le matériau.

$$\Pi = \frac{\text{Volume libre dans le polyuréthane}}{\text{Volume total}}$$

On exprime alors la saturation de la matrice χ en fonction du volume libre dans la matrice et le volume occupé par le monomère polymérisé.

$$\chi = \chi_{Matrice} \times (1 - \Pi) + \Pi.\chi_p.\Phi_p$$

On rappelle que le coefficient de diffusion D s'exprime alors sous la forme :

$$\begin{aligned} D &= D_0|\chi^c - \chi|^\beta \textbf{ si } \chi < \chi^c \\ &= 0 \textbf{ si } \chi > \chi^c \end{aligned}$$

La condition de gel devient alors :

$$\Phi_p > \frac{\chi^c - \chi_{Matrice}.(1 - \Pi)}{\Pi.\chi_p}$$

La condition de gel dépend donc du taux de monomère polymérisé. S'il n'y a pas assez de monomère avant réaction, le système ne gèle jamais. Le système gèle d'autant plus vite qu'il y a beaucoup de monomère.

En ce qui concerne le coefficient de diffusion D il s'exprime sous la forme :

$$D = D_0|\chi^c - \chi_{Matrice}.(1 - \Pi)|$$

En effet à $t = 0$ la concentration en polymère Φ_p est nulle. En conséquence,naturellement plus la porosité est grande, plus le coefficient de diffusion D est grand, mieux le monomère diffuse dens le système.

En considérant le système vu précédemment il est possible de simuler le comportement du matériau à une période Λ donnée pour différents taux de monomère Φ_M^0 insérés initialement. Plus important encore, il est possible de simuler un système où une partie du monomère est remplacée par un élément neutre jouant le rôle d'un plastifiant. En remplaçant une partie du monomère par le plastifiant, on maintient la porosité tout en réduisant le gain de modulation d'indice par polymérisation pure tout en conservant un gain suffisant pour l'enregistrement faisant appel au phénomène de diffusion. Ainsi, il est possible de conserver le phénomène utile à l'enregistrement du réseau en réduisant le phénomène de filamentation. Les figures 3.40 et 3.41 présentent une campagne de test visant à valider le modèle proposé ici et à rechercher la zone la plus efficace où le taux de monomère est le plus faible possible pour pouvoir réduire le phénomène de filamentation. La figure 3.40 présente une cartographie de la modulation d'indice en fonction du rapport des taux de monomère et de plastifiant dans le matériau. Les zones en bleues foncées ne correspondent pas à un

zéro d'efficacité mais simplement à des zones non-explorées. La figure 3.41 représente une cartographie de la simulation de la modulation d'indice en fonction du rapport des taux de monomère et de plastifiant dans le matériau. Les deux zones où se recouvrent expérience et simulation présentent un accord notable.

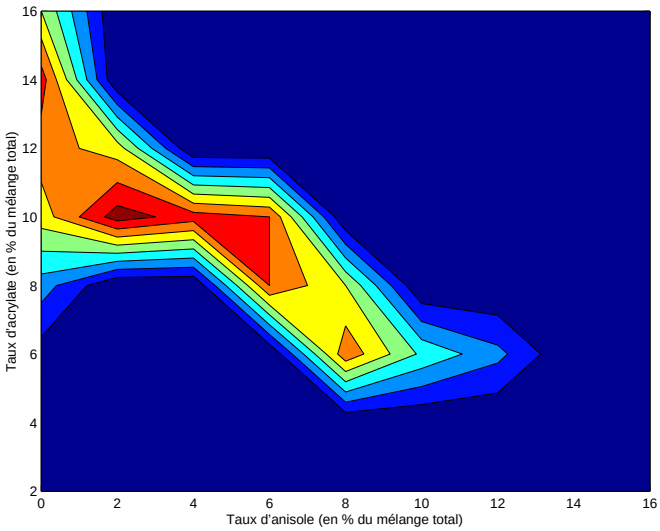

FIG. 3.40 – Efficacité de diffraction du réseau en fonction du rapport Acrylate/Anisole.

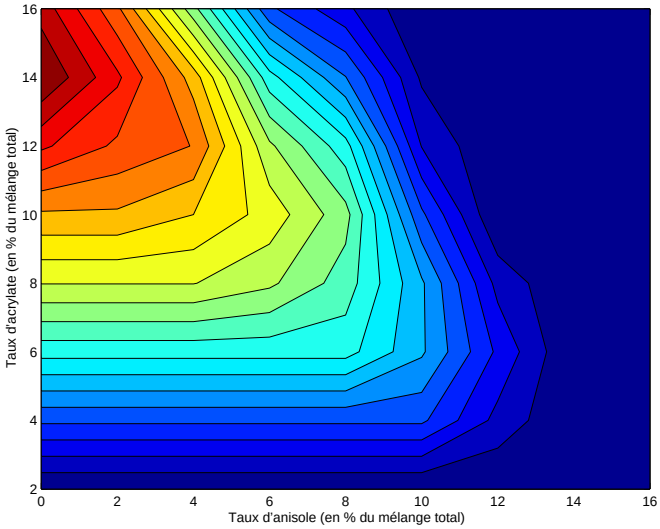

FIG. 3.41 – Simulation de l'efficacité de diffraction du réseau en fonction du rapport Acrylate/Anisole.

3.3.3.2 Origine possible du phénomène de filamentation

En considérant le modèle vu précédemment, il est possible de donner une interprétation cohérente à l'origine du phénomène de filamentation. Si on considère un matériau dont la bande passante est présentée par la figure 3.42, on peut rapidement calculer la transformée de Fourier de cette bande passante et connaître ainsi la réponse percussionnelle du matériau. La figure 3.43 présente la réponse percussionnelle du matériau considéré. Lorsqu'on éclaire le matériau avec les franges d'interférence, le contraste n'est jamais en pratique égal à 1. Il reste donc un fond continu contenant toutes les fréquences spatiales (bruit blanc). Sous cet éclairement homogène, on obtient la réponse percussionnelle du matériau. C'est cette réponse qui donnerait la structure originale des filaments (espacement d'une centaine de microns). La propagation des filaments, quand à elle, resterait pilotée par le phénomène de filamentation et produirait des filaments de dimensions plus fines mais conserverait la distance inter-filament. Pour valider cette proposition il serait important de déterminer finement la structure des filaments (amplitude de la modulation d'indice, distance inter-filament, diamètres des filaments...). Cette étude sort du cadre de ce travail de thèse.

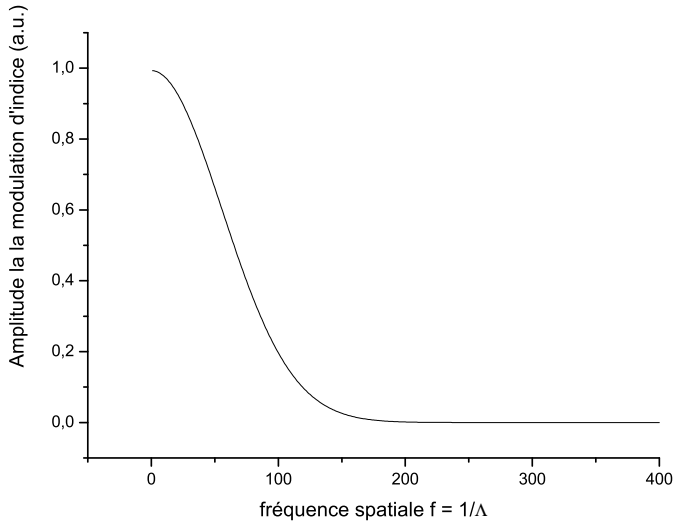

FIG. 3.42 – Exemple de réponse spatiale typique du matériau.

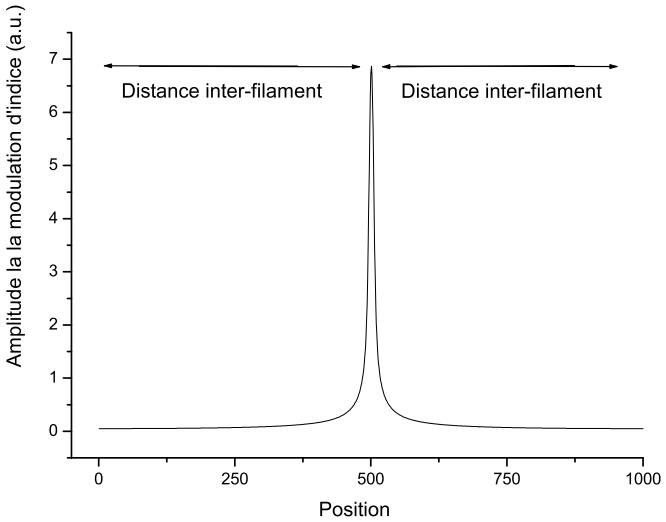

FIG. 3.43 – Transformée de Fourier de la réponse spatiale du matériau.

3.4 Conclusion

Le travail d'exploration concernant les matériaux holographiques a permis de réaliser un état de l'art de trois familles de matériaux :

- ≻ les matériaux à changement de conformation électronique ;
- ≻ les matériaux à changement de conformation électronique et déplacement de matière ;
- ≻ les matériaux à déplacement de matière ;

Pour chaque famille de matériau, un élément typique ($LiNbO_3$ dopé MgO, $PMMA-PQ$ et $DuPontHRF-734$) a été pleinement caractérisé en terme d'absorption, de modulation d'indice et de stabilité du réseau dans le temps. Le fonctionnement de chaque famille a été présenté et la mise en oeuvre expérimentale a été entièrement décrite. Les résultats expérimentaux ont été confrontés pour dresser un état de l'art des matériaux holographiques existant. Cette analyse a fait l'objet d'une discussion nous permettant de décrire le matériau idéal pour notre application.

Les expériences réalisées sur un matériau de chaque famille ont mis en évidence les avantages et les limitations de chacune d'elles. Les modulations d'indice obtenues avec les matériaux à migration de matière ($\Delta n \approx 10^{-3}$) ont montré l'intérêt d'utiliser ce mode de fonctionnement pour réaliser de fortes modulations d'indice. Au travers des matériaux à changement de conformation électronique et déplacement de matière nous avons trouvé une solution originale pour obtenir une matrice centimétrique exigée par le projet. Cette solution a été améliorée à l'aide d'une matrice réticulée (le polyuréthane) pour ajuster la réponse spatiale du matériau. En parallèle nous espérions obtenir une matrice plus solide pour les opérations d'enregistrement et de polissage. Si ce matériau montre un bon comportement mécanique au polissage, le phénomène de filamentation met en évidence sa faiblesse lors de l'étape d'enregistrement. Pour parfaire le système, l'exemple est à prendre dans les matériaux photoréfractifs cristallins. En effet, les cristaux sont, de loin, les meilleurs candidats en terme de résistance à l'effort quel qu'il soit. La dernière étape de conception du matériau développé ici consisterait à remplacer la matrice organique de polyuréthane par une matrice inorganique (la silice étant probablement le meilleur candidat). Pour cela les méthodes de type Sol-Gel pourraient assurer la liaison entre un mélange organique (photoamorceur-monomère-plastifiant) en une matrice hôte inorganique réticulée (le verre Sol-Gel).

En parallèle de cette réalisation pratique, un modèle physico-chimique a été proposé pour interpréter le fonctionnement de l'enregistrement du réseau d'indice dans le matériau. Le modèle proposé est un modèle simplifié de la description des réactions de polymérisation dans un système diffusant. L'hypothèse principale consiste à considérer que la modulation d'indice est faible et est donc assimilable à une perturbation. Compte tenu de la modulation d'indice Δn de l'ordre de 10^-3, cette hypothèse semble tout à fait raisonnable. Les résultats des simulations sont d'ailleurs en bon accord avec les expériences réalisées et ont permis de réduire de manière significative le phénomène de filamentation. Enfin, dans le même temps, le modèle permet d'envisager une origine simple au phénomène de filamentation permettant d'expliquer les dimensions observées de l'ordre de la centaine de microns.

Chapitre 4

Réalisation d'un composant test

4.1 Introduction

Une fois les tests sur réseaux à pas fixe effectués, nous avons décidé de réaliser un premier prototype de réseau à pas variable. Le problème de filamentation n'étant pas résolu mais seulement atténué, l'épaisseur transverse de réseau exploitable est seulement de 1-mm. Malgré cela, la réalisation d'un réseau à pas variable ou HCBR pour Holographic Chirped Bragg Reflector pour démontrer la faisabilité de notre solution semblait possible.

4.2 Montage holographique

Le montage holographique est très standard, excepté le fait que l'on utilise sur les deux bras qui interfèrent des lentilles divergentes ou convergentes, ce qui permet d'enregistrer une variation du pas le long du réseau(Fig.4.1).

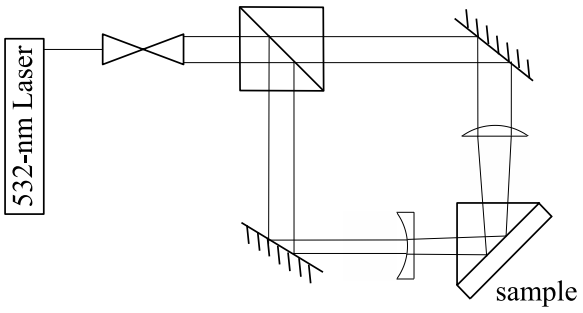

Fig. 4.1 – Montage expérimental du banc d'enregistrement.

Les réseaux de Bragg à pas variable utilisent le fait que la lumière est diffractée lorsque la condition de Bragg est remplie. Cette relation vectorielle est donnée par :

$$\overrightarrow{K} = \overrightarrow{\rho} - \overrightarrow{\sigma}$$

où $\overrightarrow{K}$ est le vecteur d'onde du réseau et où $\overrightarrow{\rho}$ et $\overrightarrow{\sigma}$ sont les vecteurs d'onde des ondes incidentes permettant d'enregistrer les strates du réseau (Fig 4.2).

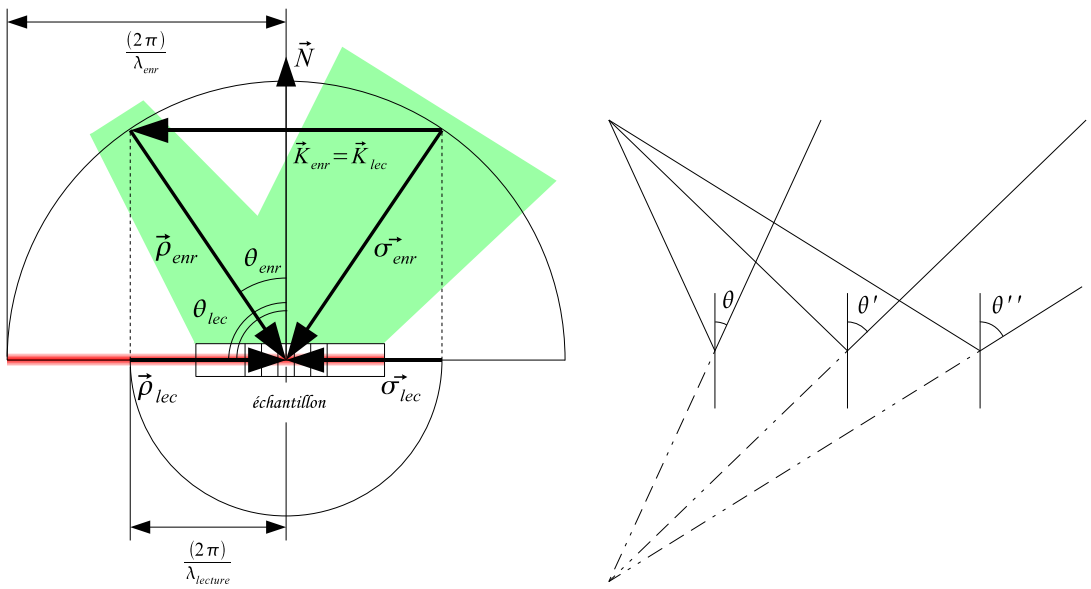

FIG. 4.2 – A gauche : Diagramme des vecteurs d'ondes d'enregistrement et de lecture. A droite : Variation locale de l'angle d'incidence conduisant à une variation locale de la période (chirp).

4.2.1 Enregistrement

Pour enregistrer un hologramme en transmission, les vecteurs d'ondes qui interfèrent doivent remplir la condition :

$$\overrightarrow{K}_{enr} = \overrightarrow{\rho}_{enr} - \overrightarrow{\sigma}_{enr}$$

avec

$$K_{enr} = \frac{2\pi}{\Lambda_{enr}}$$

et

$$\Lambda_{enr} = \frac{\lambda_{enr}}{2n_{med}\sin\theta_{enr}}$$

4.2.2 Lecture

Pour lire en réflexion (c'est à dire pour $\theta_{lec} = \pi/2$) le réseau précédemment enregistré, l'onde incidente et l'onde réfléchie doivent remplir la condition :

$$\overrightarrow{\sigma}_{lec} = \overrightarrow{\rho}_{lec} - \overrightarrow{K}_{lec}$$

avec

$$K_{lec} = \frac{2\pi}{\Lambda_{lec}}$$

et

$$\Lambda_{lec} = \frac{\lambda_{lec}}{2n_{med}\sin(\frac{\pi}{2})}$$

Pour réaliser un miroir il faut donc trouver la valeur de θ_{lec} telle que la condition $\Lambda_{enr} = \Lambda_{lec}$, et ce pour chaque composante spectrale λ_{lec} définie par :

$$\theta_{enr} = \arcsin\left(\frac{\lambda_{enr}}{\lambda_{lec}}\right)$$

4.3 Calculs de la dispersion de la période du réseau

Comme nous l'avons vu précédemment, la période locale du réseau dépend de l'angle d'incidence local du faisceau d'enregistrement. En pratique, il suffit donc d'adapter les fronts d'onde en sortie des lentilles pour réaliser n'importe quelle loi de dispersion. Pour des raisons de simplicité, nous avons utilisé des lentilles cylindriques plan-convexes (respectivement plan-concaves) du commerce traitées anti-reflet à 532-nm.

focale	matériau	rayon de courbure	dimensions
700-mm (à 587,6-nm)	BK7	361.8-mm	30×32-mm
-485.4-mm (à 632.8-nm)	BK7	250-mm	50.8×50.8-mm

Tab. 4.1 – Lentilles utilisées pour réaliser les réseaux à pas variables HCBR.

En se plaçant dans l'optique de Gauss (proche de l'axe optique), on peut estimer la loi de dispersion créée par deux lentilles minces de focales respectives 700-mm et -485-mm. Le schéma de la figure 4.3 présente les différentes relations d'optique géométrique du montage holographique.

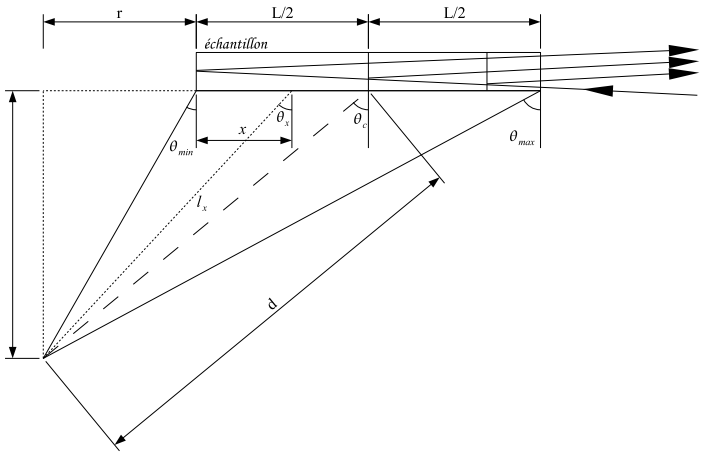

Fig. 4.3 – Relations d'optique géométrique du montage.

Sur la figure 4.3, θ_c représente l'angle d'incidence de la période centrale du réseau adapté à la longueur d'onde 805-nm. La distance l_x est définie par :

$$l_x = \sqrt{(r+x)^2 + (d\sin\theta_c)^2}$$

avec $r = d\sin\theta_c - \frac{L}{2}$ et

$$\begin{aligned}\sin\theta_x &= \frac{x+r}{l_x} \\ &= \sqrt{\frac{(r+x)^2}{(r+x)^2 + (d\cos\theta_c)^2}} \\ &= \sqrt{\frac{1}{1 + (d\cos\theta_c)^2/(x - \frac{L}{2} + d\sin\theta_c)^2}}\end{aligned}$$

où x représente la distance depuis le fond du miroir de Bragg, θ_x est l'angle d'incidence de la longueur d'onde d'enregistrement (532-nm) à ce point, L est la longueur totale du miroir de Bragg et d est la distance entre le centre du miroir de Bragg et le point focal de la lentille. Ainsi, la période locale du réseau HCBR est définie par :

$$\Lambda_{HCBR}(x) = \frac{\lambda_{enr}}{2n_{med}\sin\theta_x} = \frac{\lambda_{enr}}{2n_{med}}\sqrt{1 + \frac{(d\cos\theta_c)^2}{(x - \frac{L}{2} + d\sin\theta_c)^2}} \tag{4.1}$$

A partir de l'équation 4.1 en utilisant la relation $\Lambda = \lambda/2n_{med}$, on peut calculer la loi de dispersion $T(\lambda)$:

$$T(\lambda) = \frac{2n_{med}}{c}x(\lambda) = \frac{2n_{med}}{c}\left(\frac{d\cos\theta_c}{\sqrt{(\frac{\lambda}{\lambda_{enr}})^2 - 1}} - d\sin\theta_c + \frac{L}{2}\right) \tag{4.2}$$

Sur notre montage holographique, $\lambda_{enr} = 532$-nm, $d = 500$-mm, $\theta_c = 41{,}3^\circ$ et $L = 23$-mm. La loi de dispersion est centrée à 805-nm. La figure 4.4 montre la loi de dispersion attendue $T(\lambda)$.

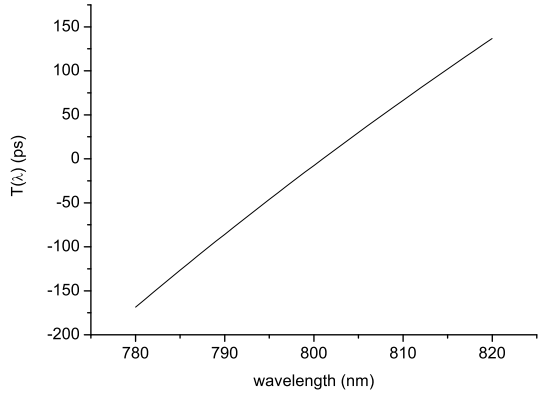

FIG. 4.4 – Loi de dispersion attendue $T(\lambda)$.

4.4 Modélisation assistée par ordinateur

Dans cette section, on s'attachera à calculer précisément le front d'onde incident sur l'échantillon afin de prévoir de manière précise la loi de dispersion enregistrée dans le matériau holographique. Cette étape permet de valider l'approximation de Gauss. D'autre part, elle peut permettre de modifier les lentilles pour optimiser le miroir de Bragg de sorte qu'il compense exactement le compresseur de Treacy présenté au chapitre II.

Le montage expérimental d'enregistrement a été modélisé à l'aide du logiciel de tracé de rayons CODE-V. Ce logiciel permet de prendre en compte tous les types d'aberrations (vérification de l'approximation de Gauss). L'autre aspect plus intéressant concerne les options d'optimisation du montage. En effet, le logiciel peut calculer la courbure des lentilles ainsi que l'indice de réfraction optimum pour obtenir une loi de distribution du pas du réseau personnalisée pour chaque application visée. La figure 4.5 présente les résultats de tracé de rayon pour les deux lentilles utilisées pour le prototype. La figure suivante (Fig. 4.6) présente les résultats de la simulation concernant la distribution du pas du réseau. Cette distribution du pas du réseau donne un délai de groupe $T(\lambda)$ identique à celui calculé dans l'approximation géométrique.

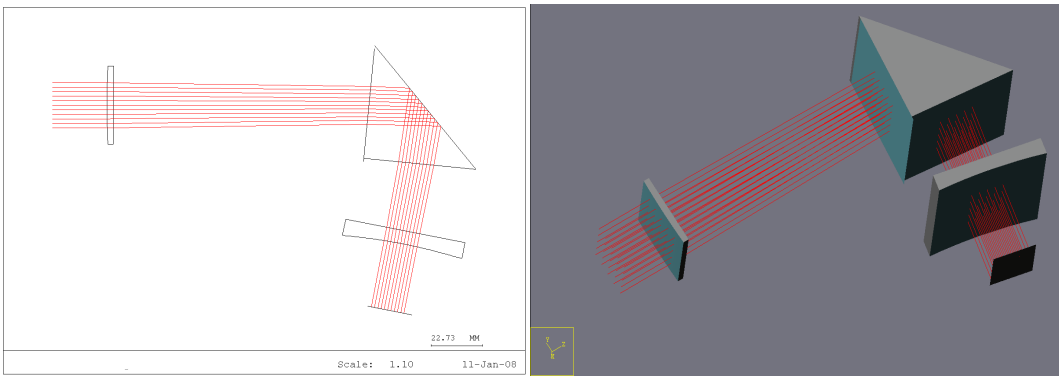

Fig. 4.5 – Simulation des lentilles commerciales utilisées.

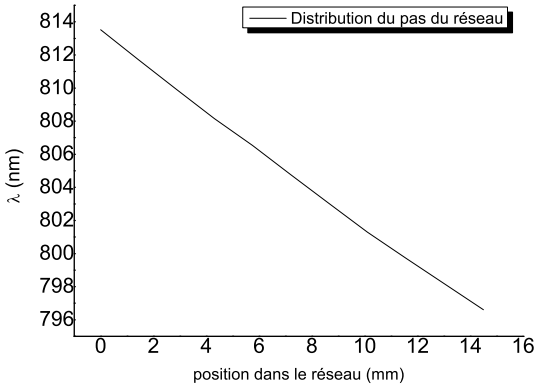

Fig. 4.6 – Simulation de la distribution du pas avec les lentilles utilisées pour le prototype.

4.5 Caractérisation du composant test réalisé

Le réseau de Bragg à pas variable réalisé fait, une fois poli, 23-mm de long, 5-mm d'épaisseur et 10-mm de haut (Fig. 4.8). Après enregistrement, l'échantillon a été coupé à chaque extrémité et poli. Nous avons ensuite mesuré l'efficacité du réseau de Bragg ainsi que l'efficacité du composant. L'efficacité du réseau de Bragg est liée à la modulation d'indice du matériau. L'efficacité du composant tient compte des pertes par absorption et diffusion de ce dernier.

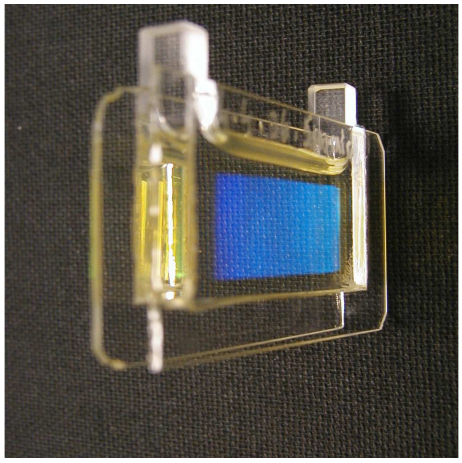

FIG. 4.7 – Réseau avant découpe et polissage. Le dégradé bleu est naturel et rend compte de la variation locale de la période du réseau.

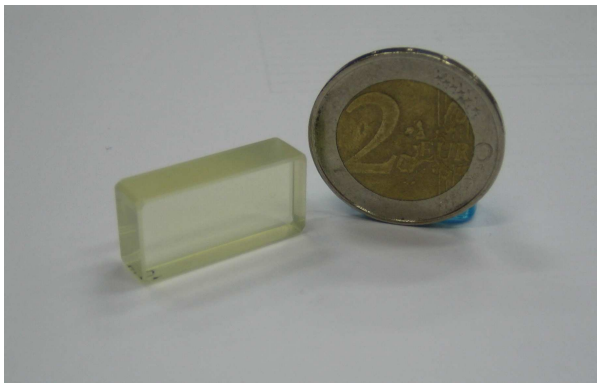

FIG. 4.8 – Prototype une fois mis en forme et poli. Les dimensions sont 23×10×5-mm

4.5.1 Rendement de diffraction

Nous avons mesuré à la fois l'efficacité du réseau de Bragg $\eta_{Bragg} = \frac{I_{dif}}{I_{dif}+I_{transmis}}$ et l'efficacité du composant défini par $\eta_{composant} = \frac{I_{dif}}{I_{incident}}$ en utilisant le montage présenté sur la figure (4.9) à l'aide d'un laser Ti :Sa continu, accordable.

L'efficacité du réseau de Bragg est de 90% sur une bande de 30-nm (20-nm à mi-hauteur) centrée sur 805-nm. En utilisant l'algorithme "Layer peeling" présenté au chapitre II, nous

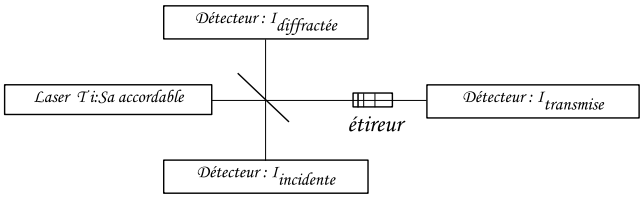

FIG. 4.9 – Montage utilisé pour mesurer à la fois l'efficacité du réseau et du composant.

avons estimé l'amplitude de la modulation d'indice induit dans le réseau.Une simulation d'un réseau de profil super-gaussien avec une dispersion linéaire de 20-mm de long avec 30-nm de bande passante est présenté figure (4.10) à gauche. Cette simulation nous donne une valeur de Δn de 6.10^{-4} pour l'amplitude de la modulation d'indice. Cette valeur est cohérente avec les valeurs mesurées (8.10^{-4}) sur réseaux minces à pas fixe.

En ce qui concerne l'efficacité du composant, sa valeur moyenne se situe autour de 60%. Nous avons appliqué à notre simulation des pertes correspondant à un coefficient α de l'ordre de 0,39-cm^{-1} (Fig.4.10) à droite. Ces pertes sont liées principalement aux distortions induites par les filaments.

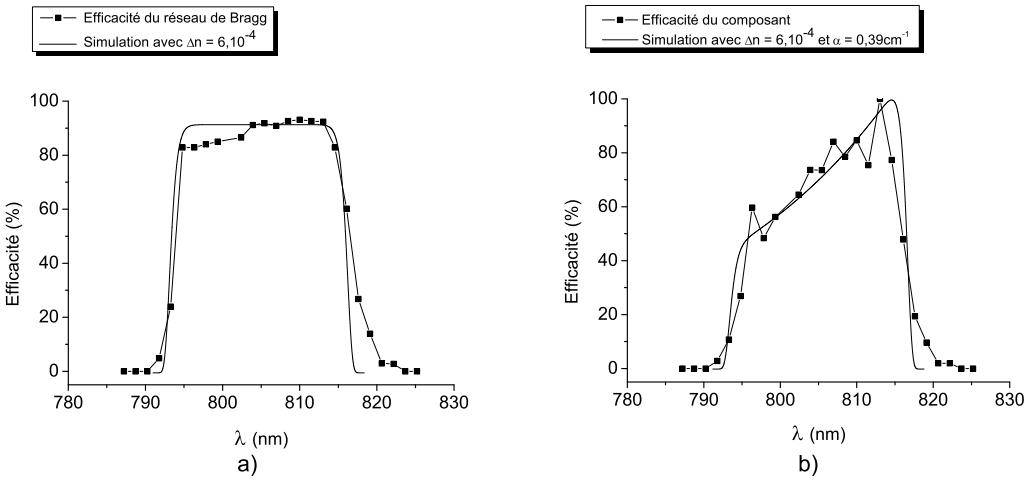

FIG. 4.10 – a) efficacité du réseau de Bragg. En trait plein, simulation d'un réseau de Bragg avec $\Delta n = 6.10^{-4}$. b) efficacité du composant. En trait plein, simulation d'un réseau de Bragg avec $\Delta n = 6.10^{-4}$ et $\alpha = 0{,}39$-cm^{-1}

Enfin, pour caractériser complètement le composant, il faut tenir compte de son efficacité transverse. La mesure montre que le composant est homogène sur une épaisseur de l'ordre de 1-mm (Fig. 4.11).

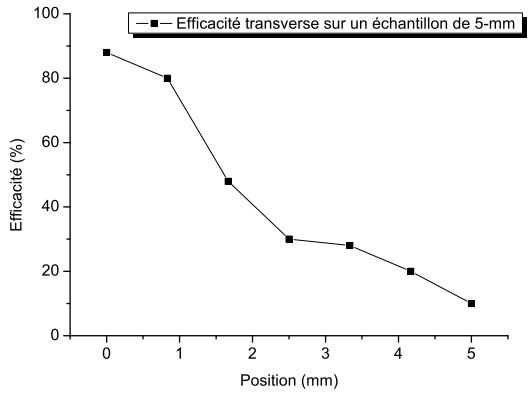

FIG. 4.11 – Mesure de l'efficacité transverse d'un échantillon de 5-mm d'épaisseur à 805-nm.

4.5.2 Dispersion temporelle

Pour connaître la phase spectrale induite par le composant, le paramètre physique mesurable est la dispersion temporelle des composantes spectrales $T(\lambda)$. Cette dispersion temporelle est liée à la phase par la relation $\frac{d\phi(\lambda)}{d\lambda} = T(\lambda)$.

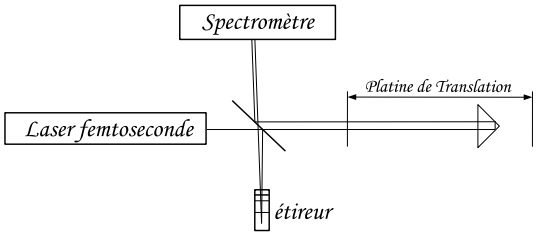

FIG. 4.12 – Montage utilisé pour mesurer la dispersion temporelle du composant.

Pour réaliser cette mesure, nous avons utilisé un montage de type interféromètre de Michelson (Fig. 4.12). On injecte dans ce montage les impulsions d'un oscillateur produisant des impulsions de 60-fs centrées à 805-nm (FWHM de 40-nm). Les impulsions femtosecondes vont interférer avec l'impulsion étirée sortant du composant. En sortie du montage, un spectromètre permet d'observer le spectre cannelé de l'impulsion courte. Le spectre gaussien de cette impulsion est alors modulé par les interférences et une teinte plate apparaît pour les longueurs d'onde ayant subi le même retard. En reliant chaque longueur d'onde avec la position de la translation pour laquelle la teinte plate apparaît, nous pouvons estimer la loi de dispersion temporelle de notre composant.

La figure 4.13 présente quelle longueur d'onde est réfléchie pour chaque position de la platine de translation. Les barres d'erreur augmentent pour les grandes et les courtes longueurs d'onde en raison du motif d'interférence devenant moins distinct sur les flans de la gaussienne. C'est pour cette raison que la loi de dispersion du composant a été explorée uniquement sur 15-nm. Cette bande passante correspond à une longueur de e=11-mm de matériau. Cependant, si l'on considère la totalité du matériau et son indice de réfraction $n_{mat} = 1.52$, il est potentiellement possible d'étirer une impulsion de 30-nm de bande passante à une durée de $\tau = \frac{2n_{mat}L}{c} = 222$-ps.

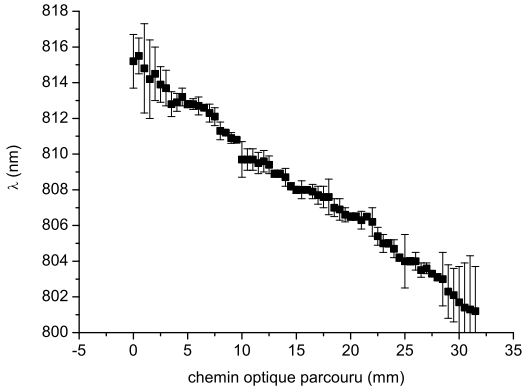

FIG. 4.13 – Résultats expérimentaux de la mesure du chemin optique parcouru sur la platine de translation pour chaque longueur d'onde.

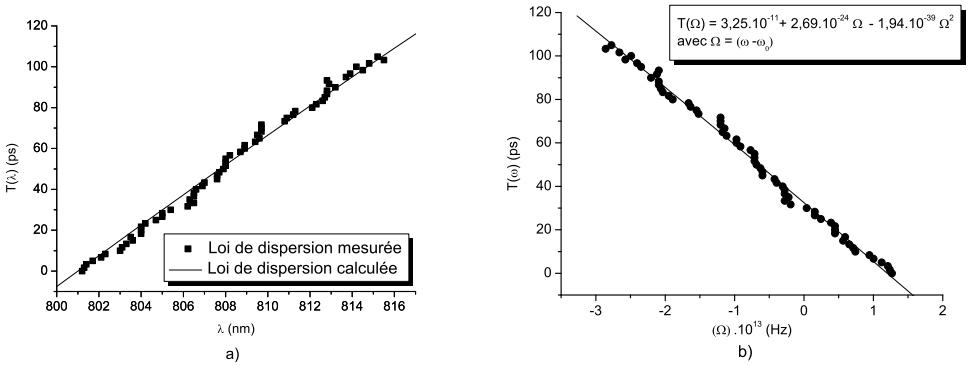

FIG. 4.14 – a) Loi de dispersion mesurée $T(\lambda)$ du composant. b) Loi de dispersion $T(\Omega)$ du composant et interpolation d'ordre 2.

Il faut prendre des précautions concernant cette valeur de τ. Dans le domaine des impulsions courtes, la durée d'une impulsion est considérée comme la durée à mi-hauteur de l'impulsion. Dans notre cas, le spectre de 30-nm représente la bande passante totale du composant, ce qui correspond à une impulsion gaussienne d'environ 10-nm à mi-hauteur. On considère ici un facteur 3 pour minimiser les effets d'élargissement temporel liés à la coupure du spectre. Ici, l'expression de τ représente la durée totale de l'impulsion soit une impulsion de type gaussienne d'environ 74-ps FWHM.

La figure 4.14 permet d'extraire les valeurs de Φ_2 et Φ_3 à l'aide d'une interpolation d'ordre 2. Ces valeurs sont présentées dans le tableau 4.2. La valeur du Φ_2 ($2,69.10^6$-fs^2) est en bon accord avec le design de notre étireur. La valeur du Φ_3 ($-0,97.10^6$-fs^3) est de signe opposé au Φ_3 d'un compresseur à réseau en configuration de Treacy.

n	$\phi_{n_{HCBR}}$	unité
2	$2,69.10^{-24}$	s^{-2}
3	$-0,97.10^{-39}$	s^{-3}

TAB. 4.2 – Paramètres ϕ_2 et ϕ_3 du HCBR réalisé.

La figure 4.15 présente un résumé des caractéristiques en terme d'amplitude et de dispersion de notre composant étireur. Les dimensions utilisables sont de $22 \times 10 \times 1$-mm.

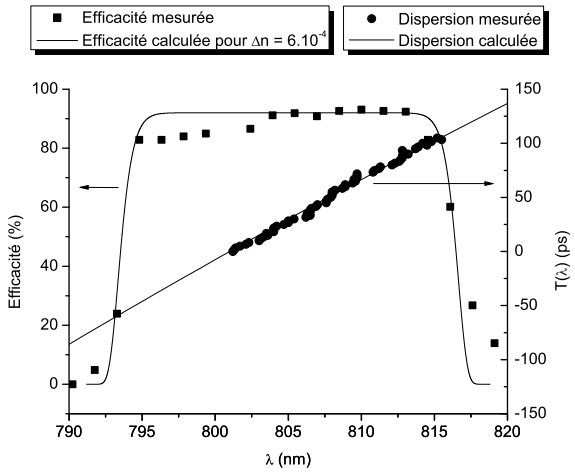

FIG. 4.15 – Amplitude et dispersion du composant étireur.

4.5.3 Distorsion causée par les filaments

Comme nous l'avons précisé précédemment, les filaments ont été atténués et non supprimés. Par conséquent, ils produisent des pertes qui sont visibles lorsque l'on mesure l'efficacité de notre composant. Mais les pertes ne sont pas le seul défaut introduit par les filaments. En effet, ces derniers déforment la matrice de polyuréthane ce qui a pour conséquence de courber de manière chaotique les strates d'indice enregistrées dans le composant. Ainsi, en plus de la dispersion temporelle, s'ajoute une dispersion spatiale aléatoire qui détruit la qualité spatiale du faisceau. En sortie du composant, nous avons donc un spot fortement modulé et possédant du "chirp" spatial. La figure 4.16 illustre l'effet observé.

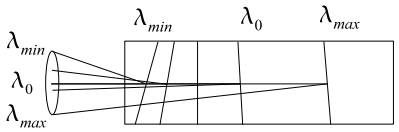

FIG. 4.16 – Illustration de la dispersion spatiale dûe à la filamentation.

4.6 Conclusion

Comme prévu, le phénomène de filamentation limite clairement la qualité de notre composant test. Vis à vis de l'amplitude spectrale, la filamentation conduit à une dégradation très importante de l'efficacité de diffraction au fur et à mesure que l'on se propage dans le composant. D'autre part, la filamentation a tendance à détruire la qualité du faisceau diffracté. En revanche, concernant la phase spectrale, la filamentation ne semble pas changer la linéarité du délai de groupe. Cependant, pour réaliser le premier HCBR au cours de cette thèse, des lentilles commerciales ont été utilisées ce qui, comme prévu par les simulations, produit un délai de groupe linéaire pour l'étireur. Ce délai de groupe est difficilement compensable par un compresseur de Treacy mais les coefficients ϕ_2 et ϕ_3 sont de signes opposés aux compresseurs classiques et permettent ainsi de tenter l'intégration de ce composant test dans une chaîne laser traditionnelle.

Chapitre 5

Mise en œuvre expérimentale

5.1 Introduction

Malgré les effets de filamentation, le composant semble suffisamment performant pour être installé sur une chaîne laser de test. La zone exploitable fait $22 \times 10 \times 1$-mm^3. Ces dimensions suffisent pour envisager d'utiliser le composant en tant qu'étireur à la sortie d'un oscillateur. Le faisceau étant distordu en sortie d'étireur, une phase de filtrage spatial est nécessaire. Le composant ne peut en revanche pas être utilisé en tant que compresseur et ce pour deux raisons. La première est relative à la dimension transverse du faisceau. Après amplification, l'intensité serait trop élevée pour envisager une recompression sans risque d'effet non-linéaire nuisible, voir destructeur. L'autre raison est relative encore une fois à l'effet de filamentation. En sortie du composant le "chirp" spatial rendrait le faisceau inutilisable. Pour réaliser le filtrage en sortie de l'étireur, nous avons décidé d'utiliser un amplificateur régénératif. Un amplificateur régénératif est réalisé à partir de l'association d'un milieu amplificateur et d'une cavité laser. Par nature, la cavité laser offre l'avantage de réaliser un filtrage spatial. En sortie d'amplificateur, le mode spatial de notre impulsion est le même que celui de la cavité. Ce filtrage se fait bien entendu au dépend d'une plus faible efficacité et d'une forte modulation spectrale.

5.2 Chaîne laser de Test

La chaîne laser de test est présentée sur la figure 5.1. C'est une chaîne utilisant des éléments standards. Elle est composée d'un oscillateur $Ti : Sa$ produisant des impulsions de 100-fs (FWHM) de profil gaussien avec un taux de répétition de 80-MHz. L'étireur de Öffner qui suit l'oscillateur est remplacé par notre composant. Les impulsions étirées sont ensuite injectées dans l'amplificateur régénératif. En sortie d'amplificateur, un compresseur à réseau spécialement conçu pour compenser l'étireur recomprime l'impulsion étirée.

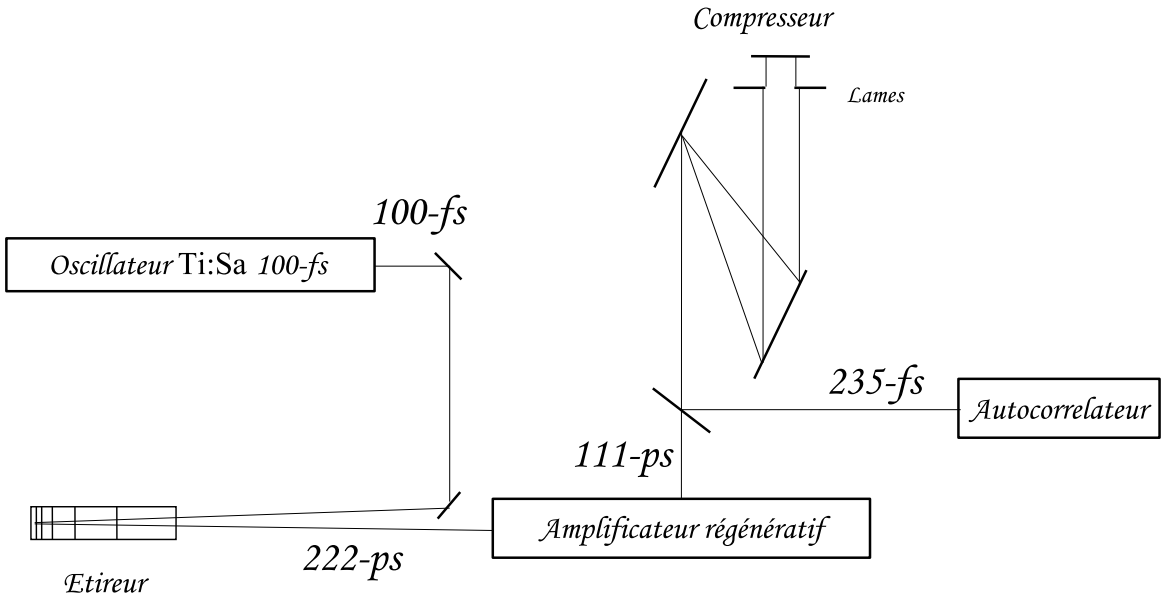

FIG. 5.1 – Montage du laser de test.

5.2.1 Conception du compresseur

Le schéma du compresseur est en réalité très proche de celui que nous avons proposé au chapitre II. En utilisant les relations bien connues du compresseur de Treacy, nous pouvons facilement évaluer les coefficients ϕ_n de la loi de dispersion $T(\omega) = \frac{d\phi(\omega)}{d\omega}$ en fonction des paramètres du compresseur pour compenser au mieux la dispersion de l'étireur holographique.

Les paramètres calculés pour cela sont les suivants :

i	$\theta(\lambda_0)$	L_c	N	λ_0
26.7°	−42.6°	390-cm	1400 traits/mm	805-nm

TAB. 5.1 – Paramètres de réglage du compresseur.

En utilisant les relations (5.1) et (5.2) rappelées ci dessous :

$$\phi_{2_{Treacy}} = -\frac{8\pi^2 c L_c N}{\omega^3 \cos^2\theta}\bigg|_{\omega=\omega_0} \tag{5.1}$$

$$\phi_{3_{Treacy}} = -\frac{3\phi_{2_{Treacy}}}{\omega}\left(1 - \frac{2\pi c N \sin\theta}{\omega\cos^2\theta}\right)\bigg|_{\omega=\omega_0} \tag{5.2}$$

On obtient les termes de dispersion résumés dans le tableau 5.2.

La figure 5.3 présente les dispersions $T(\lambda)$ de l'étireur et du compresseur utilisés pour la chaîne laser de test.

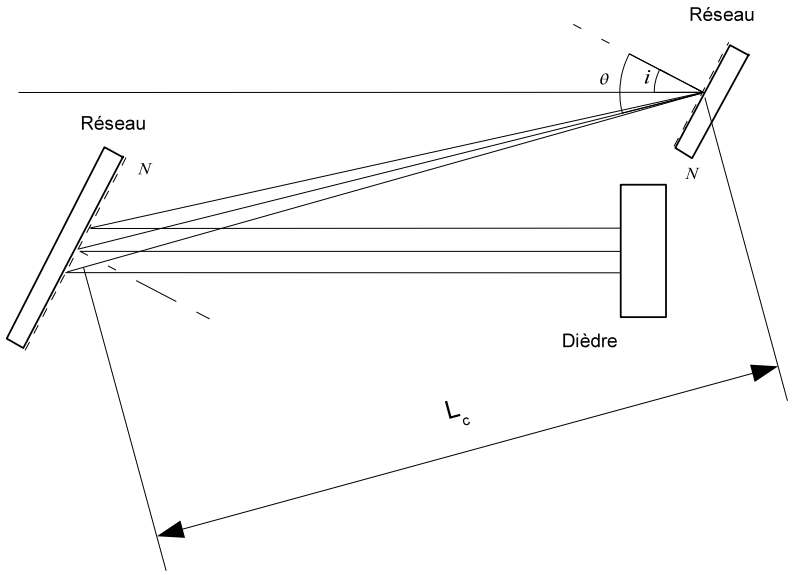

FIG. 5.2 – Compresseur à réseaux holographiques dans la configuration de Treacy

n	$\phi_{n_{Treacy}}$	$\phi_{n_{HCBR}}$	unité
2	$-2,60.10^{-24}$	$2,69.10^{-24}$	s^{-2}
3	$8,06.10^{-39}$	$9,06.10^{-39}$	s^{-3}

TAB. 5.2 – Paramètres ϕ_2 et ϕ_3 du compresseur en configuration de Treacy.

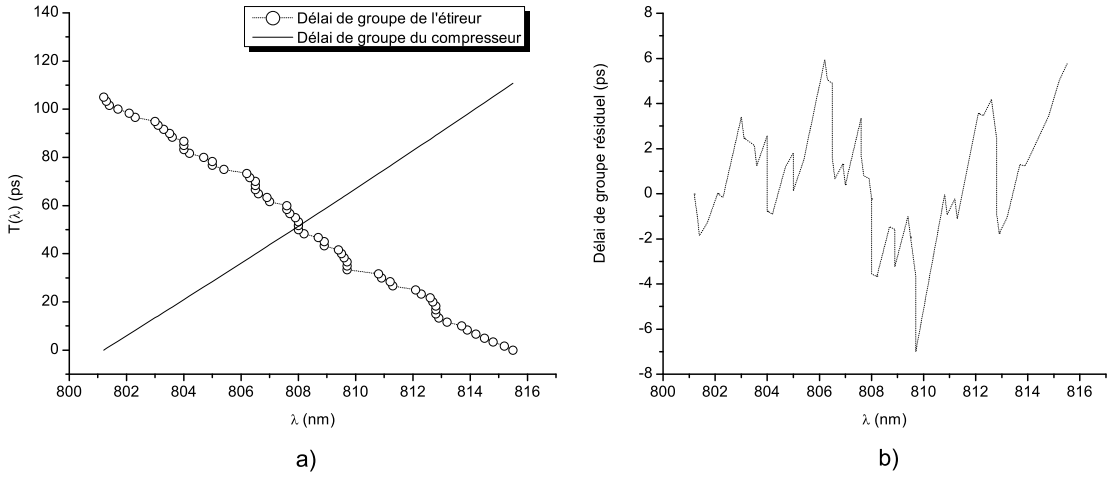

FIG. 5.3 – a) retard produit par l'étireur et par le compresseur. b) retard résiduel.

5.3 Résultats expérimentaux

En pratique, en raison des effets de distortion de l'étireur, le spot de sortie est fortement divergent (Fig. 4.16). L'amplificateur régénératif, pour sa part, permet l'amplification uniquement pour les rayons compatibles avec les modes de la cavité. Par conséquent, les pertes engendrées par le filtrage de l'amplificateur réduisent le spectre amplifié et produisent des modulations sur ce dernier. La figure 5.4 présente le spectre de l'impulsion en sortie d'amplificateur. Ce spectre est réduit à 15-nm de bande passante. Ces 15-nm correspondent à une longueur utile "e" sur le HCBR de seulement 11-mm. L'impulsion étirée et amplifiée par l'amplificateur régénératif a donc une durée de $\tau = \frac{2n_{mat}e}{c} = 111$-ps. Cette durée correspond au délai entre la première longueur d'onde réfléchie et la dernière, réfléchie après avoir traversé l'épaisseur "e" de matériau. Ce n'est donc pas la durée à mi-hauteur mais bien la durée totale de l'impulsion.

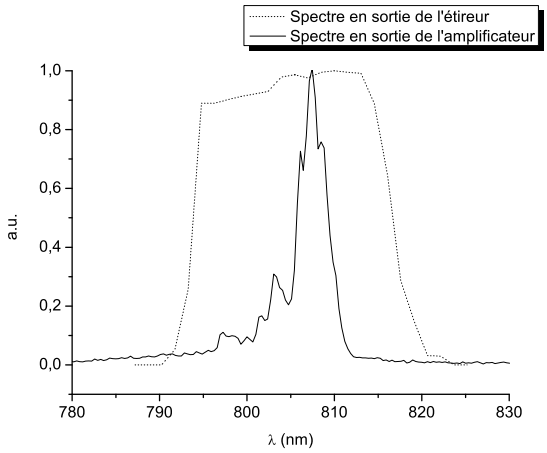

FIG. 5.4 – Spectre de l'impulsion étirée et amplifiée.

L'amplificateur délivre 600-μJ avant compression. Dans le compresseur nous avons légèrement réduit le spectre à l'aide de deux lames pour se limiter à la même plage spectrale que celle explorée lors de la caractérisation de la loi de dispersion de l'étireur. Le but est de pouvoir utiliser les caractéristiques mesurées dans le chapitre III et de simuler la durée de l'impulsion dans la chaîne pour la comparer avec les données expérimentales. Les caractéristiques en sortie de l'amplificateur sont présentées sur la figure 5.5.

5.3.1 Mesure de l'impulsion comprimée, autocorrelation 2ω

La mesure d'autocorrelation 2ω est la première technique utilisée pour mesurer des impulsions ultracourtes. Cette technique consiste à séparer l'impulsion courte en deux répliques et de faire varier le délai entre les deux bras. On superpose ensuite les deux impulsions dans un cristal non linéaire (SGH pour Second-Harmonic-Generation) produisant un signal optique à une fréquence double du signal original et ce uniquement lorsqu'il y a recouvrement des deux impulsions. L'enveloppe du champ à la fréquence double est liée au champ des deux impulsions par la relation :

$$E_{sig}^{SHG}(t, \tau_{SGH}) \propto E(t)E(t - \tau_{SGH})$$

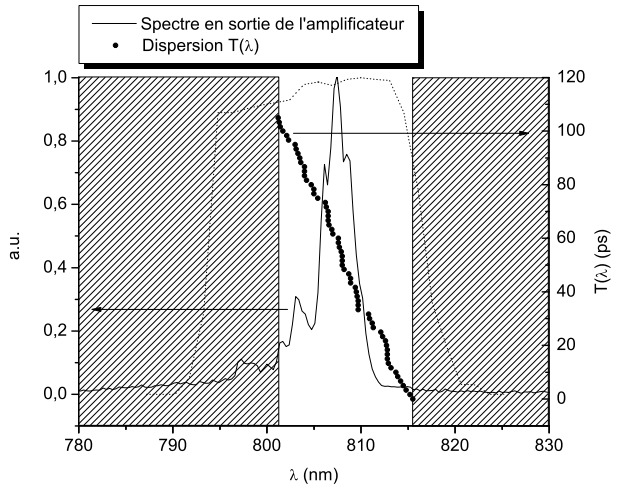

FIG. 5.5 – Spectre et loi de dispersion de l'impulsion étirée et amplifiée. La zone grisée représente la partie du spectre coupée dans le compresseur.

où τ_{SGH} représente le délai entre les deux impulsions. L'intensité I_{sig}^{SGH} qui est proportionnelle au produit des intensités des deux impulsions s'exprime sous la forme :

$$I_{sig}^{SGH}(t,\tau) \propto I(t)I(t-\tau)$$

Les détecteurs ne peuvent mesurer ce faisceau dans le temps et mesurent donc :

$$A_2(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t-\tau)dt \tag{5.3}$$

L'expression (5.3) est ce qu'on appelle l'intensité d'autocorrelation. Le sous-script 2 indique qu'il s'agit d'une autocorrelation d'ordre 2.

Cette technique est relativement facile à mettre en oeuvre. De plus elle possède une grande dynamique et une large plage temporelle d'exploration. Sur ces points, elle répond donc bien aux exigences de mesure de l'expérience. Cependant, avant de poursuivre sur les résultats obtenus, il est important de préciser les limitations de cette technique.

Tout d'abord, il peut être démontré que le problème consistant à retrouver le profil d'intensité d'une impulsion connaissant son autocorrelation est équivalent au problème mathématique ayant pour but de retrouver la transformée de Fourier de la phase d'une fonction dont seule la transformée de Fourier en amplitude est connue. Ce problème n'a pas de solution unique et il est donc impossible de savoir quel est le bon profil de phase. Pour des profils connus et classiques telles qu'une gaussienne la solution est connue et permet d'estimer la durée de l'impulsion (l'autocorrelation d'une gaussienne est une gaussienne). Mais à la vue du spectre de l'impulsion, il est clair que le profil de l'impulsion n'est pas gaussien. Nous ne pouvons donc pas déduire de manière sûre la durée de notre impulsion.

En pratique, l'autocorrelation a tendance à créer un effet de moyenne sur les structures d'une impulsion. Et ceci est d'autant plus vrai sur les impulsions aux profils complexes. En réalité, pour des profils très "torturés", il peut être montré que la figure d'autocorrelation se "simplifie" et s'approche d'une forme simple constituée d'un pic étroit sur un large piédestal

indépendant du profil d'intensité de l'impulsion. Compte tenu des distorsions engendrées par l'étireur, il y a toutes les chances que le profil d'intensité soit relativement complexe.

La technique d'autocorrelation n'est donc pas valable pour déterminer une durée d'impulsion nette et précise. Cependant, dans le contexte de ce travail de recherche, nous avons utilisé cette technique pour des raisons de facilité de mise en oeuvre. Le rôle premier de cette mesure était d'optimiser la durée d'autocorrelation et non la durée de l'impulsion (Fig.5.6). Une fois cette durée optimisée, nous avons extrait les paramètres du compresseur pour déduire la phase résiduelle de l'impulsion. Nous avons ensuite calculé numériquement le profil d'intensité en sortie du compresseur en fonction du spectre et de la phase résiduelle. Nous avons ensuite calculé numériquement l'autoccorelation de ce profil d'intensité. Enfin, nous l'avons comparé à la mesure d'autocorrelation.

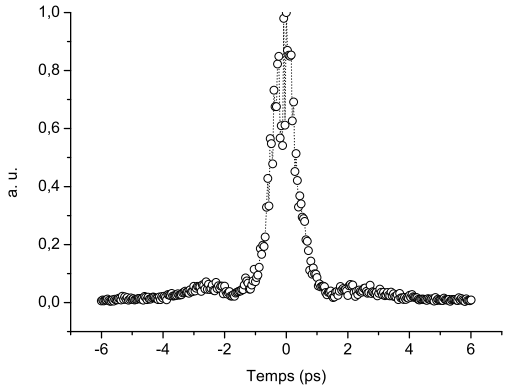

FIG. 5.6 – Profil d'autocorrelation optimisée mesuré.

5.3.2 Calcul du profil d'intensité temporelle

Pour obtenir le profil temporel d'autocorrelation le plus court, les paramètres du compresseur ont été modifiés par rapport aux prévisions. Le tableau 5.3 résume ces nouveaux paramètres.

n	$\phi_{n_{Treacy}}$	unité
2	$-2,90.10^{-24}$	s^{-2}
3	$8,99.10^{-39}$	s^{-3}

TAB. 5.3 – Paramètres ϕ_2 et ϕ_3 du compresseur optimisé.

Nous pouvons à partir de ces paramètres estimer la loi de dispersion résiduelle et calculer son intégrale, la phase résiduelle. Les résultats de ces calculs sont présentés sur la figure 5.7 avec l'amplitude du spectre en sortie du compresseur.

A l'aide de ces nouvelles données nous pouvons calculer le profil de l'impulsion et simuler son autocorrelation. La figure 5.8 présente le profil de l'impulsion et la simulation de son autocorrelation. Il est clair que le profil est fortement distordu avec des post et pré-impulsions caractéristiques d'une phase non-nulle. Cependant les autocorrelations, simulées

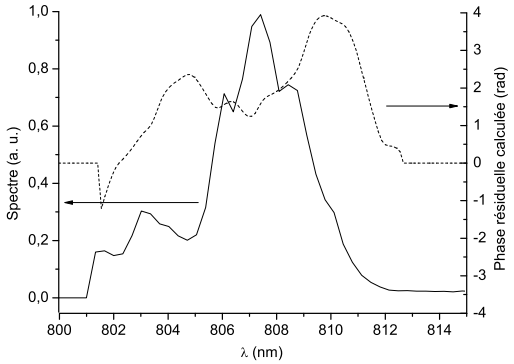

FIG. 5.7 – Amplitude et phase calculées de notre impulsion en sortie du compresseur.

et expérimentales, semblent bien correspondre. Le pic principal a une durée à mi-hauteur de 235-fs. Pour comparaison, la transformée de Fourier du spectre de l'impulsion avec une phase nulle donne une impulsion avec un seul pic d'une durée à mi-hauteur de 200-fs. Encore une fois, il est important de préciser que cette valeur de durée d'impulsion est donnée à titre indicatif. En effet, on voit sur la figure 5.7 que la phase résiduelle est très loin d'une phase plane. Cette phase est en réalité entièrement dûe au compresseur dont le ϕ_2 notamment est largement en excès. Ce résultat est le fait de notre méthode de mesure. En effet, nous avons réalisé plusieurs simulations qui montrent que si l'on tente de réduire au maximum la phase (modulations confinées entre $-\pi$ et π) la figure d'autoccorelation s'élargit. En fait, on observe un rapprochement du pic central et des pics latéraux conduisant à un élargissement de l'impulsion globale.

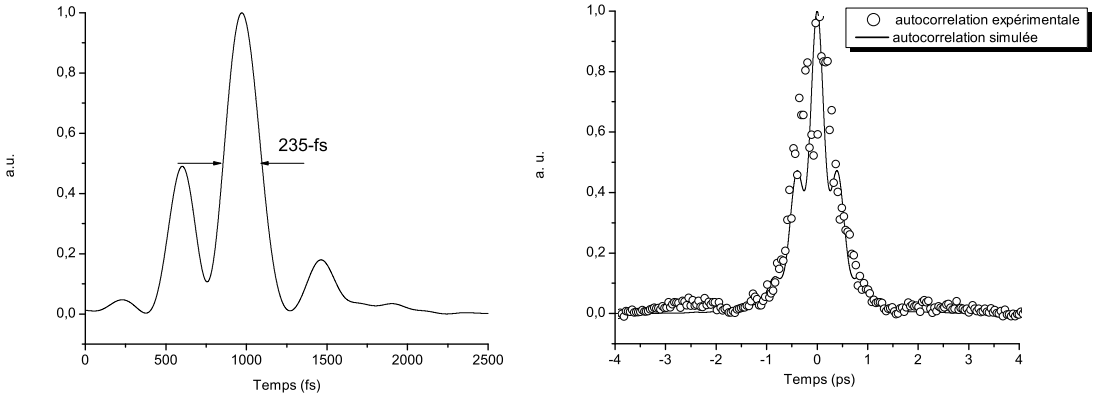

FIG. 5.8 – A gauche, profil d'impulsion calculé. A droite, Autocorrelation calculée.

Cette expérience a permis de démontrer la faisabilité d'une chaîne laser "hybride" utilisant un nouveau type d'étireur. La relation de phase entre les différentes composantes spectrales n'étant pas détériorée, nous avons pu recomprimer l'impulsion. Cette compression a été assurée par un compresseur de Treacy avec une efficacité de 75%. La compacité,

l'efficacité et la facilité de mise en oeuvre de ce composant en font le candidat idéal pour les lasers CPA industriels comme en témoigne la figure 5.9.

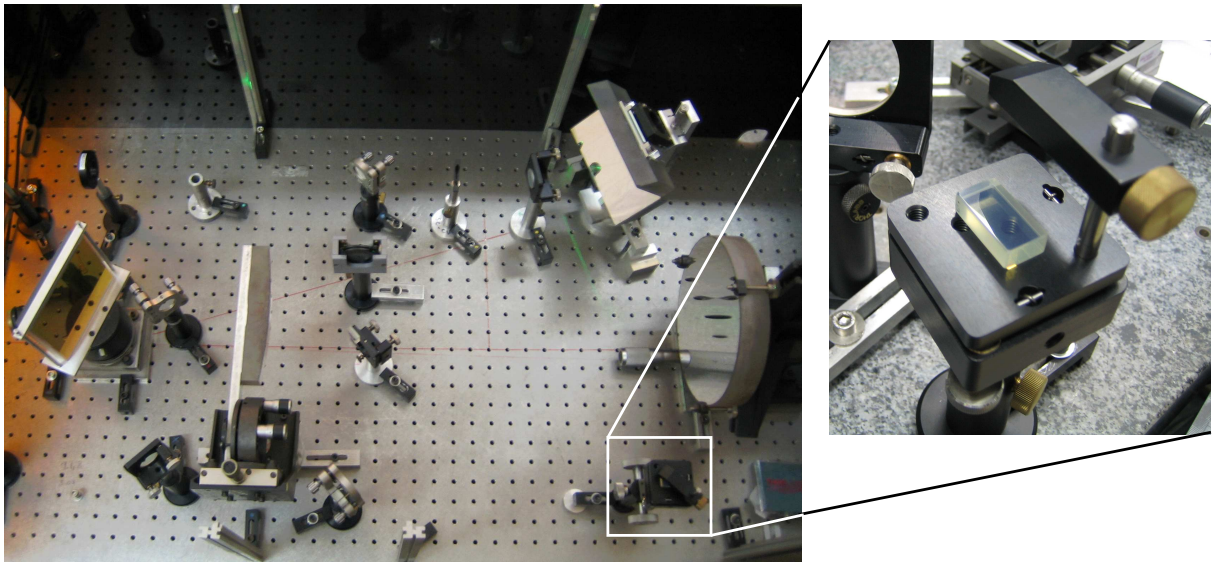

Fig. 5.9 – Présentation des deux systèmes d'étirement, l'étireur de Offner et le réseau de Bragg à pas variable HCBR.

Pour aboutir à un composant répondant aux exigences initiales, des travaux supplémentaires doivent d'être achevés. Tout d'abord, il serait très intéressant d'utiliser un banc d'enregistrement permettant d'obtenir une loi de dispersion parfaitement adaptée à la fois au compresseur utilisé mais également à l'ensemble de la chaîne laser pour compenser toutes les sources de dispersion (milieux amplificateurs, lentilles, substrats...). L'autre point consistera à améliorer le matériau holographique pour s'affranchir des effets de filamentations. Ces effets semblent provenir de la trop grande "souplesse" de la matrice. L'utilisation d'une matrice inorganique, plus robuste (en silice par exemple) permettrait probablement de supprimer ces effets. A terme, l'utilisation d'un matériau totalement inorganique assurerait une bonne tenue aux flux et une bonne durée de vie du composant. Nous pourrions alors envisager des chaînes laser CPA ultra-compactes utilisant pour l'étirement et pour la compression des réseaux de Bragg de type HCBR.

Chapitre 6

Conclusion et perspectives

Conclusion

Le travail de recherche présenté dans ce document est issu d'un concept fort, *le séparateur compact de composantes spectrales*. Comme il a été présenté dans le premier chapitre, ce concept est à l'origine de nombreuses solutions techniques. Ces nouvelles idées, si elles rencontrent un marché, constituent une importante source d'innovation. L'exploitation de ce concept pour la réalisation d'un séparateur compact temporel (étireur) s'inscrit pleinement dans le rôle du centre de recherche du groupe THALES, en offrant potentiellement un élément de différenciation à la branche Laser du groupe. En parallèle, ce nouveau composant offre de nouvelles perspectives en termes de performances, de flexibilité et de facilité de mise en oeuvre de la technique à dérive de fréquence (CPA), pour le monde industriel comme pour le monde académique.

Ce concept innovant a bien-entendu imposé l'exploration de "briques" de connaissance dans l'optique, pour la modélisation et la simulation de ces nouveaux composants optiques que sont les miroirs de Bragg holographiques à pas variables (HCBR). En outre, la nécessité d'un matériau holographique répondant aux exigences des simulations a conduit à l'acquisition de connaissances dans le domaine des matériaux organiques holographiques. Cette exploration imprévue a permis d'augmenter le portefeuille de connaissance du centre de recherche en le dotant d'un nouveau matériau holographique pour l'optique diffractive.

Le second chapitre consacré aux réseaux épais, dits "de volume", a permis d'installer les notions de base permettant de comprendre phénoménologiquement comme mathématiquement les réseaux de volume. Ce chapitre a donc été l'occasion de présenter un outil de modélisation des réseaux de Bragg à pas variable en se basant sur la méthode de l'algorithme *Layer peeling*. Cet algorithme permet d'évaluer les paramètres physiques (longueur, modulation d'indice, variation du pas) d'un réseau de Bragg à pas variable à partir de la réponse spectrale souhaitée par l'utilisateur et ce, en tenant compte de la variation d'indice du matériau. En d'autres termes, la simulation modélise la dispersion liée au réseau et également la dispersion liée au matériau, bien-entendu, à condition de connaître la dispersion de l'indice en fonction de la longueur d'onde. Dans ce document, l'exploitation de la variation d'indice en fonction de la longueur d'onde n'est pas exploitée en considérant que pour des impulsions de 100-fs, l'indice du matériau peut-être considéré comme constant. Si cette approximation peut-être tolérée pour des impulsions de 100-fs, elle devient absolument fausse pour des impulsions sub 30-fs. La modélisation présentée dans le chapitre II n'est heureusement pas limitative à des impulsions de l'ordre de la centaine de femtosecondes. Elle permet donc d'envisager la modélisation de réseaux de plus grandes dimensions (10-

cm de long) pour des impulsions de l'ordre de 30-fs. L'outil de simulation utilisé permet donc de prévoir les caractéristiques des réseaux de volume en donnant simplement comme paramètre la réponse spectrale en amplitude et en phase attendue par l'utilisateur. Parmi les points forts de cet algorithme on peut clairement mettre en avant sa rapidité d'exécution. L'autre point clé est la possibilité de déduire de la réponse spectrale (amplitude et phase) d'un composant, les paramètres physiques de ce dernier. Ainsi on peut analyser et caractériser pleinement des composants à tester. Que ce soit pour l'étude d'un réseau de Bragg à pas variable en fonction des données spectrales attendues ou le problème inverse, le temps de calcul est proportionnel au nombre N de "strates" (réseaux élémentaires à pas fixe) qui composent le réseau. Dans l'étude présentée dans ce document les caractéristiques étaient :

- une bande passante de 15-nm ;
- une longueur de 3-cm ;
- un nombre de sous réseaux élémentaires N égal à 2403 ;
- un temps de calcul de 10-s (pentium dual-core 3GHz, 1Go ram).

Le second chapitre a défini une liste d'exigences concernant le matériau holographique à employer pour réaliser un composant. En exploitant les solutions internes au laboratoire, nous avons pris conscience que nous ne disposions pas d'un matériau holographique répondant aux exigences de l'applications. Le chapitre III a présenté le travail de conception et d'expérimentation concernant la réalisation d'un nouveau matériau holographique. Un modèle de diffusion généralisée a été mis au point pour décrire le comportement du matériau holographique dans la plage de fonctionnement de l'application visée. En parallèle, ce modèle permet de prévoir le comportement de ce matériau pour d'autres applications. Des simulations ont permis de vérifier la pertinence du modèle proposé en le confrontant aux expériences réalisées sur un nombre non négligeable d'échantillons (de l'ordre de 100). Les résultats obtenus pour ce matériau sont les suivants :

- une épaisseur comprise entre quelques dizaines de microns à quelques centimètres ;
- une modulation d'indice comprise entre 10^{-4} et 10^{-3} ;
- une sensibilité de l'ordre du Joule/cm^2 ;
- des fréquences spatiales situées autour de 270-nm.

Ce nouveau matériau reste cependant inachevé. S'il fonctionne comme prévu pour des épaisseurs inférieures à 200-μm, sa qualité optique se dégrade pour des épaisseurs supérieures au millimètre. En effet, pour ces épaisseurs, on observe un phénomène de filamentation dont les origines n'ont pas été parfaitement identifiées. Il est donc nécessaire d'adopter une nouvelle stratégie pour empêcher cet effet néfaste.

Malgré les limitations liées au matériau, les résultats étaient suffisamment encourageants pour réaliser un premier composant test. La caractérisation de cet élément a été faite dans le quatrième chapitre. Le nouveau composant optique, étireur à base de miroir holographique de Bragg à pas variable (HCBR), a été entièrement caractérisé en terme d'efficacité de diffraction et de dispersion spectrale dans les trois dimensions. Ces mesures nous ont permis de définir un composant utile ayant les propriétés suivantes :

- une longueur 11-mm, et une ouverture 1-mm $\times$ 5-mm ;
- une efficacité de diffraction moyenne de 60% ;
- un coefficient de perte α égale à 0,15-m^{-1} ;
- une bande passante de 15-nm ;
- une loi de dispersion linéaire de 15-nm/cm avec un coefficient Φ_2 estimé à 2,69.10^6-fs^2.

Pour finir, cette thèse a démontré la faisabilité d'utiliser un étireur à base de miroirs de Bragg holographiques à pas variable pour une chaîne laser de 100-fs. La chaîne laser en

question utilise, hors mis pour l'étireur, des composants classiques des chaînes ultra-courtes à base de technologie Sapphire dopé au Titane. A savoir :

- un oscillateur commercial produisant des impulsions sub 100-fs ;
- l'étireur HCBR ;
- un amplificateur régénératif en régime kHz ;
- un compresseur à base de réseaux en configuration de Treacy ;

Les résultats obtenus avec cette chaîne laser "hybride" sont comparables à ceux obtenus avec une chaîne classique de 200-fs :

- étirement : de 100-fs à 100-ps avec une efficacité moyenne de 60% ;
- amplification : une énergie de 600-μJ avant compression ;
- compression : une énergie de 450-μJ (75% efficacité) et une durée de 284-fs (1,4 fois seulement la limite de Fourier) ;

Cette thèse a donc clairement confirmé que le concept à la base de ce travail de recherche peut-être appliqué aux chaînes lasers à base de technologie $Ti : Sa$. Les résultats prometteurs dans ce domaine permettent d'espérer, à condition de nouveaux efforts de recherche sur le matériau, l'utilisation de tels composants pour l'étirement d'impulsions femtosecondes dans le proche infrarouge (805-nm).

Ces travaux de recherche sur le matériau se caractérisent ainsi : en conservant la stratégie d'un matériau holographique basé sur la migration de matière, il est avant tout nécessaire d'améliorer la qualité de la matrice optique. Deux objectifs sont alors conjointement recherchés : annuler les effets néfastes de la filamentation et augmenter la qualité optique. Pour atteindre ce double objectif, la stratégie consistant à remplacer la matrice organique par une matrice inorganique à base de silice par exemple, semble très séduisante. Les matrices inorganiques de silice, fabriquées par technique sol-gel, possèdent des similitudes avec les matrices organiques réticulées. Elles possèdent une structure tridimensionnelle avec une porosité relativement contrôlable permettant la migration de matière. En prime, elles offrent une qualité optique proche de la silice fondue et possèdent probablement une tenue au flux comparable. En contre partie, des éléments massifs centimétriques de silice sol-gel demandent un temps de fabrication (lié au séchage) de l'ordre de plusieurs mois. D'autre part cette technique sol-gel nécessite un savoir faire qui n'est pas encore totalement acquis au sein du laboratoire.

Sous la condition que les travaux de recherche aient été faits et qu'ils produisent de bons résultats, le concept d'étirement peut-être appliqué alors éventuellement à la compression. On peut en effet envisager d'utiliser l'étireur "à l'envers" pour obtenir une dispersion opposée. On obtient alors une compression de l'impulsion. Cette compression sera possible à condition de rester sous les seuils de dommage du composant (la compression se faisant au sein du composant). Pour s'en assurer, deux stratégies peuvent être envisagées. La première consiste à répartir l'énergie spatialement en réalisant un composant à très grande ouverture. Cette solution sera dimensionné par les limites technologiques (temps de séchage, enregistrement holographique...). L'autre solution consiste à augmenter le seuil de dommage du matériau. Pour cela on peut envisager de faire un matériau tout inorganique. Si cette solution fonctionne, l'étirement et la compression d'impulsions courtes dans l'infrarouge à 1-μm ou 1,5-μm deviendraient également possible.

Plus largement, avec ce nouveau matériau holographique, ce sont de nouveaux champs d'application qui deviennent accessibles. En effet, les optiques diffractives à base de réseaux de Bragg offrent des fonctions de filtrage très intéressantes comme présentées dans le premier chapitre (spectrométrie, multiplexage optique). On peut également ajouter toutes les applications nécessitant un filtrage spectral tel que, par exemple, le verrouillage des diodes lasers à émission verticale (VCEL) par un réseau de Bragg. Il est très important

de noter que toutes ces applications séduisantes nécessitent un matériau dédié pouvant éventuellement être dérivé du matériau développé dans cette étude.

En plus d'une preuve de faisabilité, cette thèse a démontré l'intérêt d'une recherche en physique, liant l'univers des matériaux à celui de l'optique. En effet, c'est uniquement grâce à une étroite collaboration entre les chercheurs de ces deux domaines que les résultats obtenus dans cette thèse ont été accessibles. Ce type de recherche pluridisciplinaire extrêmement enrichissante et innovante a été possible grâce à un cadre propice constitué par des acteurs majeurs du secteur tels que le centre de recherche de THALES, les laboratoires de l'École Polytechnique, les laboratoires de l'ENSTA et les laboratoires de l'Institut d'Optique-Graduate School.

Annexes

6.1 Interférences d'une fente dans le plan d'observation

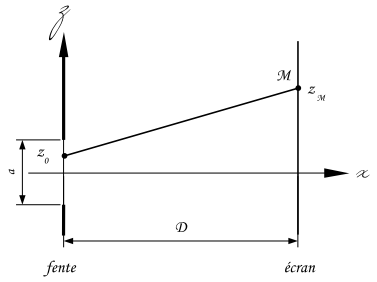

FIG. 6.1 – Diffraction par une fente.

Un rayon parcourt une distance L entre la fente et l'écran. La différence de phase introduite par ce chemin est :

$$\Delta\varphi = 2\pi\frac{L}{\lambda}$$

λ étant la longueur d'onde de la radiation lumineuse supposée monochromatique. Les rayons qui frappent un point de l'écran sont issus de différents points de la fente. S'ils sont en phase au niveau de la fente, leur déphasage est différent arrivé sur l'écran. Ils vont interférer, il faut donc calculer le déphasage entre les rayons pour connaître le résultat.

Considérons un point M de l'écran d'abscisse z_M , et un point d'abscisse z_0 dans la fente. L'onde partant de z_0 arrive en z_M en ayant parcouru une distance L :

$$\begin{aligned} L &= \sqrt{D^2 + (z_M - z_0)^2} \\ &= D.\sqrt{1 + \frac{(z_M - z_0)^2}{D^2}} \end{aligned}$$

Si l'écran est suffisamment loin, on a $D \gg (z_M - z_0)$, on peut donc faire un développement limité du premier ordre :

$$L \simeq D.\left(1 + \frac{(z_M - z_0)^2}{2D^2}\right)$$

Si l'on développe le terme au carré :

$$L = D.\left(1 + \frac{z_M^2 - 2z_M z_0 + z_0^2}{2D^2}\right)$$

Si l'on se place à une distance z_M grande devant z_0 (donc devant a), on peut négliger le terme du second ordre :

$$L \simeq D.\left(1 + \frac{z_M^2 - 2z_M z_0}{2D^2}\right)$$

Cette approximation correspond aux conditions de diffraction de Fraunhoffer.
L'onde incidente a pour fonction :

$$E(t) = E_0.e^{j\omega t}$$

quelque soit z_0 (onde plane, on choisit arbitrairement le déphasage nul dans le plan de la fente). Au point z_M, l'onde diffusée par le point z_0 a pour fonction :

$$\begin{aligned} E(z_0, z, t) &= E_0.e^{j\omega t - j\Delta\varphi} \\ &= E_0.e^{j\omega t - j\frac{2\pi}{\lambda}D.\left(1+\frac{z_M^2 - 2z_M z_0}{2D^2}\right)} \end{aligned}$$

soit :

$$E(z_0, z_M, t) = E_0.e^{j\omega t - j\frac{2\pi D}{\lambda} - j\frac{\pi z_M^2}{\lambda D}}.e^{j\frac{2\pi z_M z_0}{\lambda D}}$$

A un point d'abscisse z donné de l'écran, l'onde résultante vaut donc :

$$\begin{aligned} E(z,t) &= \int_{-a/2}^{a/2} E(z_0, z, t)dz_0 \\ &= E_0.e^{j\omega t - j\frac{2\pi D}{\lambda} - j\frac{\pi z^2}{\lambda D}}.\int_{-a/2}^{a/2} e^{j\frac{2\pi z z_0}{\lambda D}}dz_0 \\ &= E_0.e^{j\omega t - j\frac{2\pi D}{\lambda} - j\frac{\pi z^2}{\lambda D}}.A \end{aligned}$$

Le dernier membre vaut :

$$\begin{aligned} A &= -j\frac{\lambda D}{2\pi z}.\left[e^{j\frac{2\pi z z_0}{\lambda D}}\right]_{-a/2}^{a/2} \\ &= -j\frac{\lambda D}{2\pi z}.\left(e^{j\frac{\pi z a}{\lambda D}} - e^{-j\frac{\pi z a}{\lambda D}}\right) \\ &= \frac{\lambda D}{\pi z}.\sin\left(\frac{\pi z a}{\lambda D}\right) \end{aligned}$$

donc :

$$E(z,t) = E_0.e^{j\omega t - j\frac{2\pi D}{\lambda} - j\frac{\pi z^2}{\lambda D}}.a.sinc\left(\frac{\pi z a}{\lambda D}\right)$$

L'intensité lumineuse est le flux d'énergie, soit :

$$I(z) = E(z,t)\cdot E^*(z,t) = E_0^2 a^2 sinc^2\left(\frac{\pi a}{\lambda D}\cdot z\right) = I_0 sinc^2\left(\frac{\pi a}{\lambda D}\cdot z\right)$$

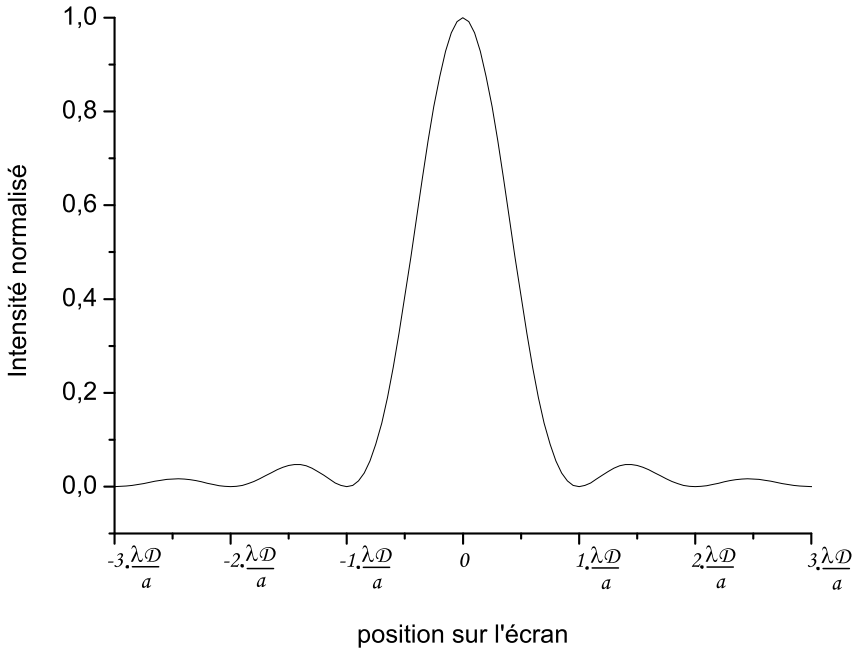

FIG. 6.2 – interférences *à l'infini* d'une fente.

6.2 Application du modèle de la réflexion ponctuelle

On se donne une réponse spectrale cible avec en particulier une phase spectrale $\psi(\omega)$ quadratique. A partir de là ,on en déduit le délai de groupe $T(\omega)$ qui est la dérivée de ψ par rapport à ω. Ce délai de groupe peut s'exprimer en fonction de la distance parcourue dans le réseau pour chaque fréquence :

$$T(\omega) = \frac{2n(\omega)z(\omega)}{c} \tag{6.1}$$

Cette relation donne donc la position où chaque fréquence est réfléchie $z(\omega)$. Par inversion, on peut en déduire la relation $\omega(z)$. Comme un réseau linéairement chirpé correspond à un délai de groupe linéaire, $z(\omega)$ doit également être linéaire (dans cet exemple on néglige la dépendance spectrale de l'indice $n(\omega) = n$), et par inversion, ω et K seront donc aussi linéaires par rapport à z. On en déduit que ψ est une fonction quadratique de z et on pose :

$$\psi(z) = \frac{1}{2}\alpha\left(z - \frac{L}{2}\right)^2 \tag{6.2}$$

où α est un paramètre à déterminer en fonction de la bande passante du réseau. En considérant cette forme pour ψ, l'équation $\beta(z) = \frac{K(z)}{2} = k_B + \frac{1}{2}\frac{d\psi(z)}{dz}$ donne :

$$\beta(z) = k_B + \frac{1}{2}\alpha\left(z - \frac{L}{2}\right) = \frac{2nz(\omega)}{c} \tag{6.3}$$

Ce qui implique par inversion :

$$\omega(z) = \omega_0 + \frac{c}{2n}\alpha\left(z - \frac{L}{2}\right) \tag{6.4}$$

où on a négligé la dépendance de n avec ω ($n = n(\omega_0)$) et où ω_0 est la pulsation centrale du filtre. Notons $\Delta\Omega$ la bande passante sur toute la longueur du réseau. Si on veut réaliser un étireur avec une dispersion positive par exemple, les basses fréquences doivent être réfléchies en premier. Par conséquent, on doit avoir :

$$\omega(z = 0) = \omega_0 - \frac{\Delta\Omega}{2} \tag{6.5}$$

ce qui implique :

$$\alpha = \frac{2n\Delta\Omega}{Lc} \tag{6.6}$$

et donc

$$\omega(z) = \omega_B + \frac{\Delta\Omega}{L}\alpha\left(z - \frac{L}{2}\right) \tag{6.7}$$

Ainsi, pour un réseau linéairement chirpé, la fonction ψ s'écrit :

$$\psi(z) = \frac{n\Delta\Omega}{Lc}\left(z - \frac{L}{2}\right)^2 \tag{6.8}$$

La dérivation de ψ a supposé implicitement que chaque longueur d'onde était réfléchie en un point donné à l'intérieur du réseau mais ce n'est pas le cas en réalité. Cependant, cette méthode permet facilement de comprendre le rôle de chaque paramètre du réseau de manière relativement intuitive. Il est par exemple facile de calculer le terme de phase

d'ordre 2 (ϕ_2) pour ce réseau linéaire. En effet on sait que le retard entre les longueurs d'onde réfléchies à l'entrée et en sortie du réseau est $\Delta\tau = \frac{2nL}{c}$ pour une bande passante correspondante $\Delta\Omega$. Par suite, comme pour un réseau linéairement chirpé on a $\phi_2 = \frac{\Delta\tau}{\Delta\Omega}$ on en déduit que :

$$\phi_2 = \frac{2nL}{c\Delta\Omega} \tag{6.9}$$

On résonne ici dans le cas où la bande passante est au moins aussi grande que la largeur TOTALE de l'impulsion. Dans ce cas la relation (6.9) est conforme à ce que l'on peut attendre :

- ≻ Pour une longueur L donnée, si on augmente la bande passante, le système devient moins dispersif, ϕ_2 diminue ;
- ≻ Pour une bande passante donnée $\Delta\Omega$, si on augmente la longueur, le système devient plus dispersif ;

On peut s'intéresser également à la variation de la période $\Lambda(z)$. En utilisant la relation (6.8) on peut écrire la période sous la forme :

$$\Lambda(z) = \frac{2\pi}{2k_B + \frac{2n\Delta\Omega}{c}\left(\frac{z}{L} - \frac{1}{2}\right)} = \Lambda_0 \frac{1}{1 + \frac{\Delta\Omega}{\omega_0}\left(\frac{z}{L} - \frac{1}{2}\right)} \tag{6.10}$$

où Λ_0 est la période correspondant à longueur d'onde λ_0 via la relation $\lambda_0 = 2n\Lambda_0$. Dans la relation (6.10), on peut utiliser la condition $\frac{\Delta\Omega}{\omega_0} \ll 1$ qui peut s'écrire $\frac{\Delta\lambda}{\lambda_0} \ll 1$ (où $\Delta\lambda$ est la largeur spectrale en longueur d'onde correspondant à $\Delta\Omega$) pour simplifier la relation précédente et obtenir :

$$\Lambda(z) = \Lambda_0 \left[1 - \frac{\Delta\lambda}{\lambda_0}\left(\frac{z}{L} - \frac{1}{2}\right)\right] = \Lambda_0 - \Delta\Lambda\left(\frac{z}{L} - \frac{1}{2}\right) \tag{6.11}$$

où $\Delta\Lambda$ est la variation de la période sur toute la longueur :

$$\Delta\Lambda = \frac{\Delta\lambda}{2n} \tag{6.12}$$

Cette relation, valable uniquement lorsque $\frac{\Delta\lambda}{\lambda_0} \ll 1$ correspondant à des impulsions relativement longues (supérieures ou égales à 100-fs), montre qu'un réseau linéairement chirpé en fonction de ω donne également au premier ordre un réseau linéairement chirpé en fonction de λ. D'autre part, il est important de rappeler que nous avons négligé la dépendance spectrale de l'indice.

6.3 Algorithme "Layer Peeling"

Dans la suite nous allons décrire plus précisément le principe de l'algorithme. En pratique, l'algorithme possède deux versions :

1. une version discrètisée (DLP pour "Discrete Layer Peeling") ;
2. une version continue (CLP pour "Continuous Layer Peeling").

Il a été montré numériquement que la version discrètisée était plus stable que la version continue [16]. C'est pour cette raison que nous utilisons la version discrètisée en pratique.

La réponse spectrale cible du réseau de Bragg (réflectivité $r(\omega)$) est la donnée source du problème inverse. Elle possède les informations de :

- ≻ réflectivité en fonction de la fréquence, $|r(\omega)|$;
- ≻ phase spectrale en fonction de la fréquence, $\arg(r(\omega))$.

$r(\omega, 0)$ s'exprime sous la forme $r(\omega, 0) = \frac{\tilde{v}(\omega,0)}{\tilde{u}(\omega,0)}$ où $\tilde{u}$ et $\tilde{v}$ sont respectivement l'onde transmise et réfléchie. La réflectivité en $z = 0$ est la transformée de Fourier de la réponse impulsionnelle $h(t)$ du réseau. On peut donc écrire la réponse impulsionnelle sous la forme :

$$h(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} r(\omega, 0) e^{j\omega t} d\omega \tag{6.13}$$

La connaissance de cette dernière permet simplement de reconstruire les caractéristiques du réseau de Bragg.

Nous avons vu précédemment qu'un réseau chirpé peut être modélisé par une succession de strates d'épaisseur constante Δz séparées par des miroirs de réflectivité complexe ρ_i. La réflectivité ρ_i des miroirs est reliée au coeffiscient complexe de couplage q_i par la relation :

$$\rho_i = -\frac{q_i^*}{|q_i|} \tanh(|q_i|\Delta z) \tag{6.14}$$

A partir de là, on s'appuie sur un argument de causalité pour déterminer les ρ_i à partir de $r(\omega)$. On définit le temps nécessaire à la lumière pour parcourir l'aller-retour entre deux miroirs successifs :

$$t_{A/R} = \frac{2n\Delta z}{c} \tag{6.15}$$

Pour des instants $t < t_{A/R}$, on peut affirmer que la réponse impulsionnelle du réseau est la même que celle obtenue en présence seulement du premier miroir puisque la lumière n'a pas le temps de parcourir cette distance. Par conséquent, le coefficient de réflexion complexe ρ_1 du premier miroir est directement égal à la réponse impulsionnelle en $t = 0$:

$$\rho_1 = h(t = 0) \tag{6.16}$$

Une fois que ρ_1 est connu, il suffit de propager les champs d'une distance Δz et de calculer la réflectivité $r_2(\omega)$ en utilisant la relation (2.51). Dès lors, l'effet de la première couche a été pris en compte et n'interviendra plus. Ceci justifie le nom de "Layer Peeling" pour cet algorithme (on épluche les couches). L'application du même raisonnement pour déterminer la réflectivité du premier miroir implique que ρ_2 est égal à la nouvelle réponse impulsionnelle (égale à la réponse impulsionnelle du réseau tronquée de la première couche) pris en $t = 0$. Sur ce principe de causalité, on peut calculer l'ensembles des ρ_i. Les coefficients de couplage complexe q_i s'en déduisent par :

$$q_i = -\frac{1}{\Delta z} \arctan(|\rho_i|) \frac{\rho_i^*}{|\rho_i|} \tag{6.17}$$

Le principe même de l'algorithme impose pour la réponse impulsionnelle un échantillonnage tous les $t_{A/R}$. Précisons que cela n'est pas contradictoire avec le fait de calculer les ρ_i tous les Δz correspondant à un temps $\frac{1}{2}t_{A/R}$. En effet, pour une position repérée par l'entier i, l'algorithme permet de calculer la réponse impulsionnelle en $z = i\Delta z$ du réseau correspondant à $z \geq i\Delta z$. Ce qui est important de retenir est que cette réponse impulsionnelle est à chaque fois échantillonnée tous les $t_{A/R}$. Cet échantillonnage de h implique donc une relation directe entre le pas spatial Δz et la fenêtre spectrale $\Delta\omega$ de calcul :

$$\Delta z = \frac{\pi c}{n\Delta\omega} \tag{6.18}$$

Si la réponse spectrale cible $r(\omega)$ est échantillonnée sur M points dans la fenêtre $\Delta\omega$, la résolution spatiale sera améliorée en augmentant $\Delta\omega$. En prenant en compte toutes ces considérations, la relation de synthèse des réseaux se déduit de (6.16) :

$$\rho_i = h_i(0) = \frac{n\Delta z}{\pi c}\int_{-\frac{\pi c}{2n\Delta z}}^{\frac{\pi c}{2n\Delta z}} r_i(\omega)d\omega = \frac{\Delta z}{\pi}\int_{-\frac{\pi}{2\Delta z}}^{\frac{\pi}{2\Delta z}} r_i(\delta k)d\delta k \tag{6.19}$$

en introduisant le désaccord δk.

Puisque le modèle traite uniquement des fonctions discrètes, l'expression de ρ_i s'écrit simplement :

$$\rho_i = \frac{1}{M}\sum_{m=1}^{M} r_i(m) \tag{6.20}$$

L'algorithme DLP décrit Fig.6.3 peut être résumé simplement via les quatre étapes suivantes :

1. commencer avec un coefficient de réflexion $r_1(\delta k)$ physiquement réalisable (filtre causal) ;
2. calculer ρ_1 en utilisant la relation (6.20) ;
3. propager les champs en utilisant les relations extraites des matrices de transfert ou la relation équivalente (2.51) ;
4. répéter l'étape 2 jusqu'à ce que la structure totale ait été déterminée.

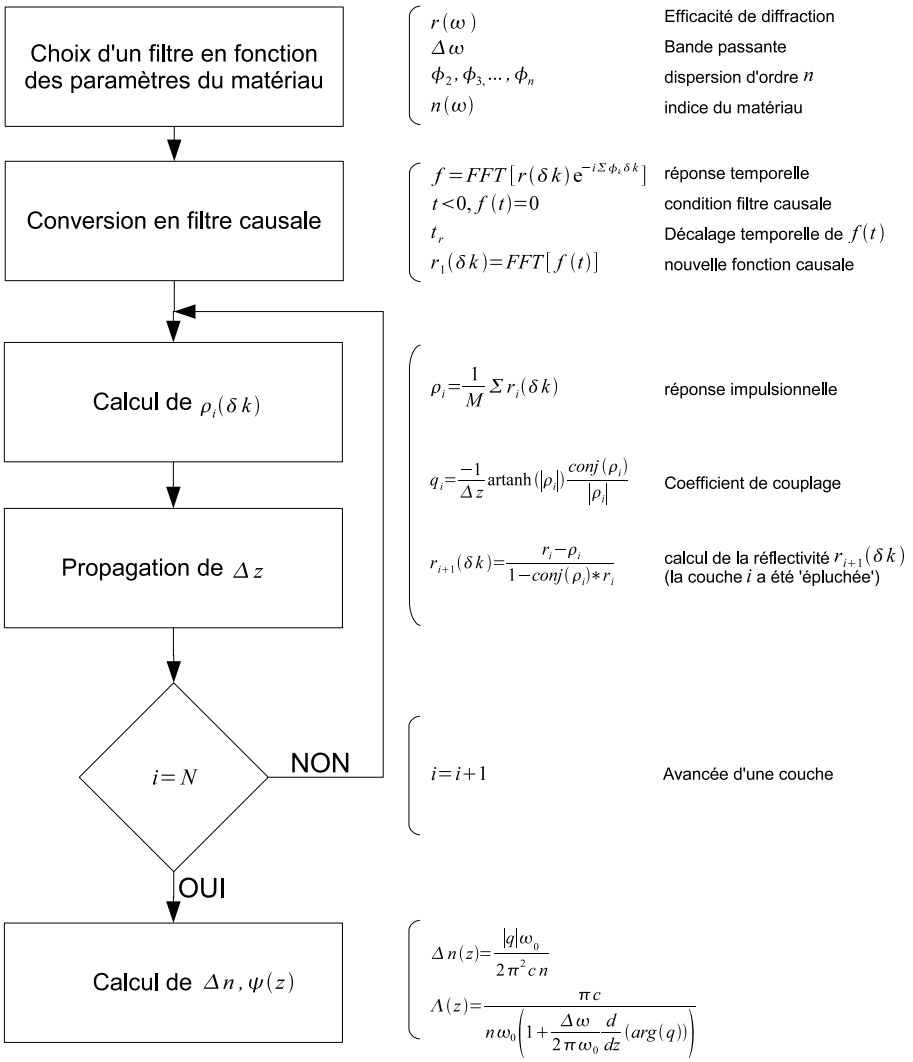

FIG. 6.3 – Schéma logique de l'algorithme DLP

6.4 Point de fonctionnement du Polyuréthane dopé Acrylate

Nous avons fait varier le dopage entre de 6% et 16% en masse d'acrylate. Nous avons observé que la modulation d'indice (Δn) produit par ce matériau était fonction de la quantité de monomère (Fig.6.4 à 6.9).

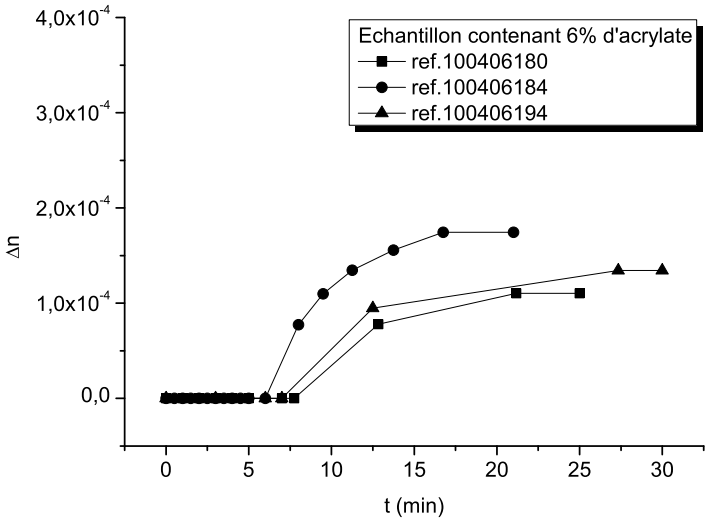

FIG. 6.4 – Evolution de la modulation d'indice Δn au cours de l'illumination. Le taux d'acrylate est de 6% en masse.

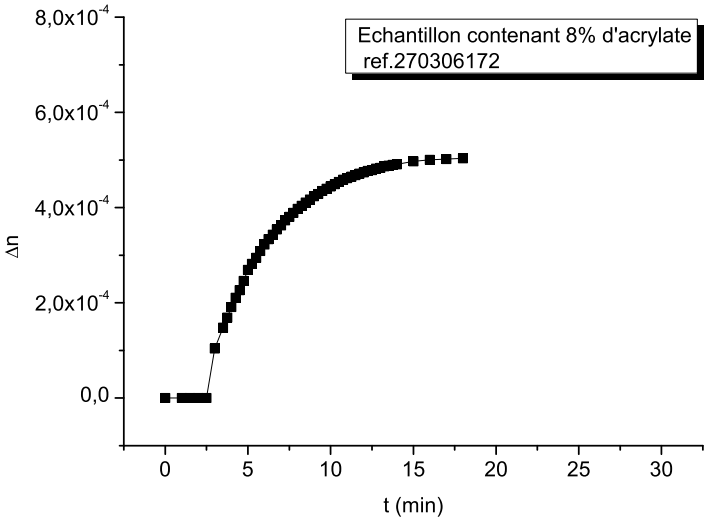

FIG. 6.5 – Evolution de la modulation d'indice Δn au cours de l'illumination. Le taux d'acrylate est de 8% en masse.

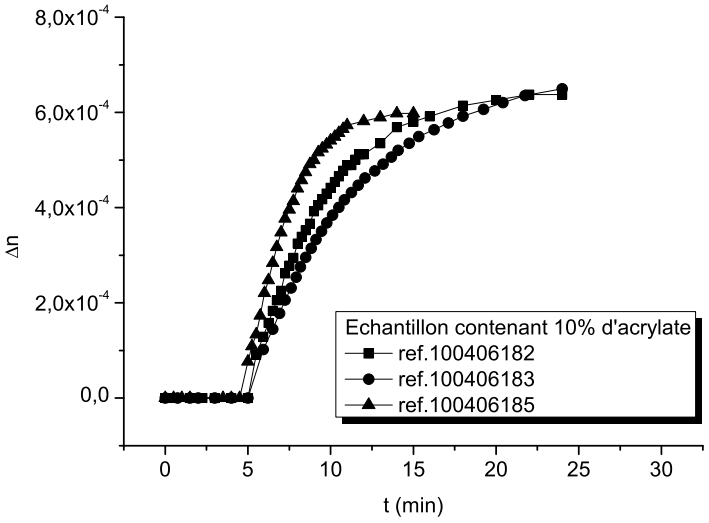

FIG. 6.6 – Evolution de la modulation d'indice Δn au cours de l'illumination. Le taux d'acrylate est de 10% en masse.

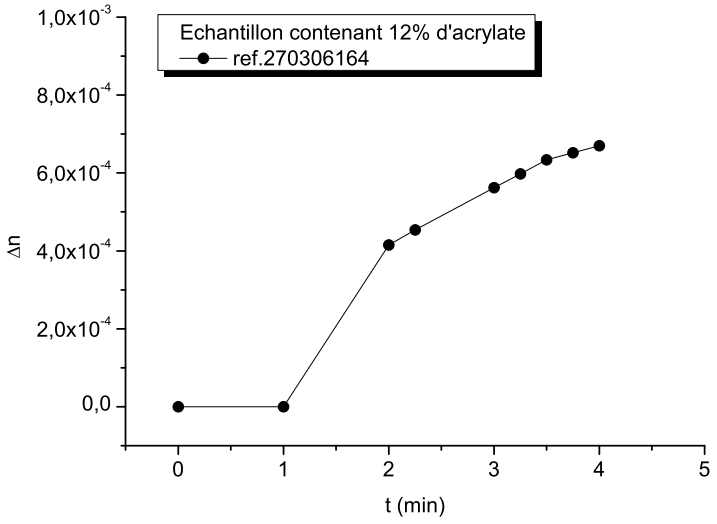

FIG. 6.7 – Evolution de la modulation d'indice Δn au cours de l'illumination. Le taux d'acrylate est de 12% en masse.

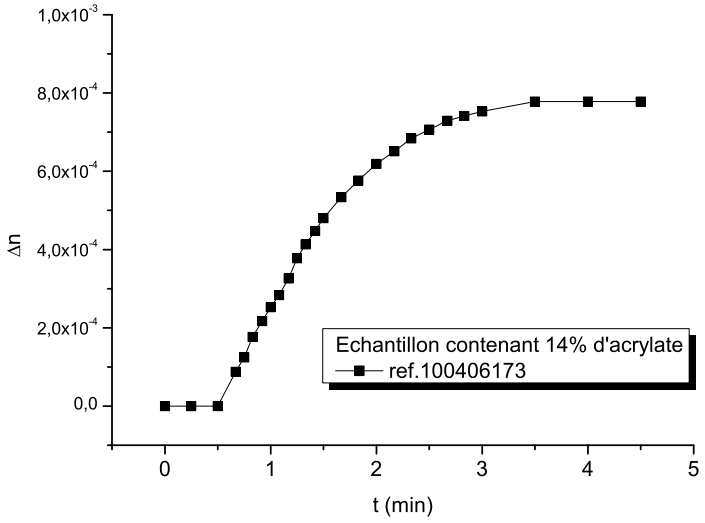

FIG. 6.8 – Evolution de la modulation d'indice Δn au cours de l'illumination. Le taux d'acrylate est de 14% en masse.

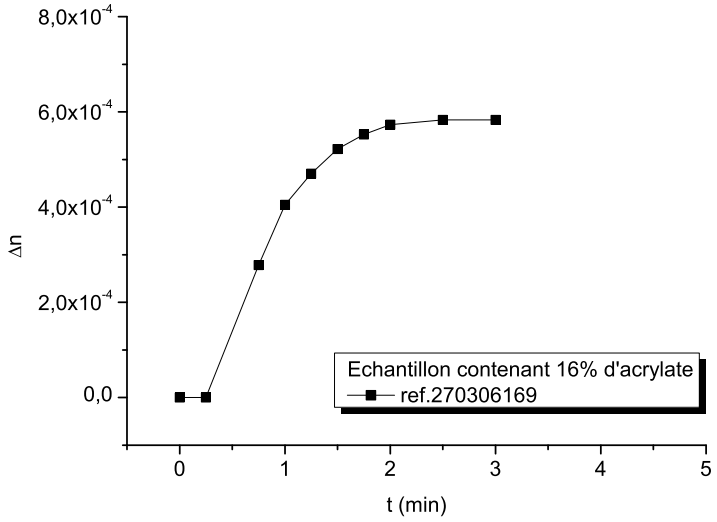

FIG. 6.9 – Evolution de la modulation d'indice Δn au cours de l'illumination. Le taux d'acrylate est de 16% en masse.

6.5 mode opératoire

La fabrication des échantillons a été réalisée dans une salle blanche (classe 10000) dans une pièce inactinique afin de préserver le photoamorceur. La réalisation du matériau à proprement dit, suit quatre étapes principales :

1. Le dégazage des produits de base ;
2. La pesée des produits et le mélange des produits ;
3. Le dépôt dans un moule suivi du séchage.

Dégazage des produits de base

Le dégazage des produits se fait en utilisant un montage classique sous cloche avec piège à vide. La pression est inférieur à 100-mbar. Chacun des constituants hormis le photoamorceur irgacure 784 est un liquide. Les produits de base sont donc pré-dégazés en quantité en utilisant ce système.

La pesée des produits

Le dosage des matières premières a été évalué en pourcentage en masse et non en moles. La pesée a été réalisée en salle blanche sur une balance de précision. Les dosages explorés sont les suivant :

- ≻ Le mélange monomère-plastifiant-photoamorceur représente entre 6 et 16% en masse totale ;
- ≻ Le photoamorceur est dosé à 1% en masse de la valeur de monomère choisie ;
- ≻ Le ratio entre le monomère et le plastifiant varie entre 1 : 0 à 3 : 7 ;
- ≻ Le complément en polyuréthane représente entre 94 et 84% en masse totale ;
- ≻ Les parties A et B qui composent le polyurétane sont dosées à 1 :1 en masse ;

Les produits que nous utilisons sont des produits commerciaux dont la composition n'est pas toujours donnée (le polyuréthane en particulier). Nous avons donc respecté les dosages prescrits par les fournisseurs (pour le polyuréthane et pour le photoamorceur).

A titre d'exemple voici le dosage typique utilisé pour faire les échantillons les plus efficaces (recette finale) figure 6.10.

- ≻ Polyuréthane (partie A et B) : 86% en masse ;
- ≻ Mélange photoamorceur (Irgacure 784) Acrylate (ethylene glycol phenyl ether acrylate) : 6% en masse ;
- ≻ Photoamorceur (Irgacure 784) : 1% en masse de la masse d'acrylate ;
- ≻ Anisole : 8% en masse.

En pratique, chaque espèce est dosée et mélangée dans un tube de Shlink avec un agitateur aimanté. Le tube de Shlink permet un dernier dégazage au cas où le mélange produirait des bulles. La partie B est ajoutée en dernier. Le moulage doit être fait au plus tard 15 minutes après le mélange pour éviter une viscosité trop importante. La procédure est la suivante :

- ≻ dosage de l'irgacure 784 (dosage le plus faible) ;
- ≻ dosage et mélange de l'ethylene glycol phenyl ether acrylate ;
- ≻ dosage et mélange de l'anisole ;
- ≻ dosage et mélange de la partie A (polyol) ;
- ≻ dosage et mélange de la partie B (di-isocyanate) ;

Le mélange final est agité durant 5 minutes jusqu'à obtenir un mélange homogène (absence de volute dans le tube Shlink).

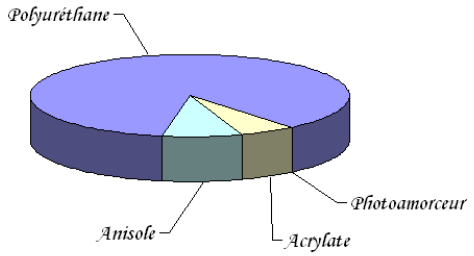

FIG. 6.10 – Formulation de la recette finale du matériau holographique

Le dépôt dans le moule et le séchage

Le moule est constitué de deux lames de verre espacées d'une distance de 80 à 170-μm pour les échantillons fins et de 4 à 6 millimètres pour les échantillons épais.

Pour les échantillons fins, l'espacement est assuré par des cales calibrées en verre ou en plastique. Les cales sont positionnées de sorte à former un espace tel que présenté sur la figure 6.11. Deux pinces positionnées sur chaque coté du récipient assurent l'étanchéité du moule en pressant sur les lames de verre et sur les cales.

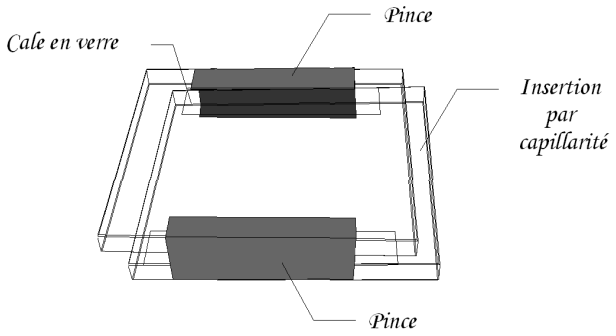

FIG. 6.11 – Cuves fines utilisées pour la réalisation d'échantillons d'épaisseur comprise entre 80 et 170-μm

Les lames et les cales sont nettoyées en salle blanche. La procédure de nettoyage est la suivante :

- 5 minutes dans un bain marie de savon nettoyant Decon avec ultra-sons ;
- 5 minutes dans un bain à ultra son d'acétone ;
- 5 minutes dans un bain à ultra son d'isopropanol ;
- séchage à l'azote sous hôtte.

Les moules sont ensuite assemblées sous hôttes en salle blanche avant l'étape de mélange. On utilise une pipette pasteur pour prélever le mélange dans le tube de Shlink. Le produit est alors infiltré par capillarité sur une des faces en verre des moules pour éviter la formation de bulles. Le produit est conservé pendant deux jours en salle blanche jusqu'à durcissement de la matrice de polyuréthane.

Pour les échantillons épais, l'espacement est assuré par des joints en Nafion fournis par JointOuest. Les joints en forme de "U" sont positionnés de sorte à former un récipient tel que présenté sur la figure 6.12. Trois pinces positionnées sur chaque coté du récipient

assurent l'étanchéité du moule en pressant les lames de verre sur les joints. Les lames et les joints sont nettoyés en salle blanche avec la même procédure de nettoyage que précédemment.

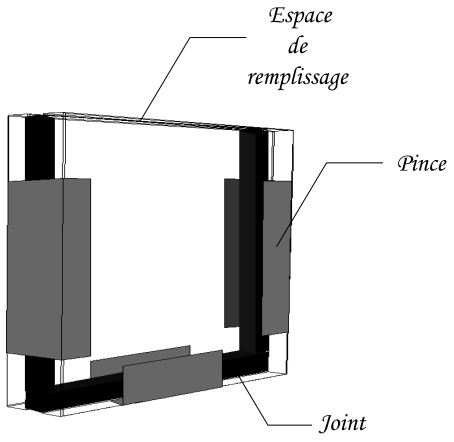

FIG. 6.12 – Cuves épaisses utilisées pour la réalisation d'échantillons d'épaisseur comprise entre 4 à 6-mm

Les moules sont ensuite assemblées sous hôttes en salle blanche avant l'étape de mélange. On utilise une pipette pasteur pour prélever le mélange dans le tube de Shlink. Le produit est alors versé sur une des faces en verre des moules pour éviter la formation de bulles. Le produit est conservé pendant deux jours en salle blanche jusqu'à durcissement de la matrice de polyuréthane.

Le démoulage consiste ensuite à retirer les joints. Le verre en surplus de chaque face est alors découpé à l'aide d'un diamant. L'échantillon est prêt pour les étapes d'enregistrement et de polissage.

6.6 Modèle quantitatif basé sur le formalisme d'Onsager (diffusion généralisée)

On peut tenter de modéliser la photoinscription d'un réseau de Bragg dans une matrice tridimentionnelle dans un système de type *Modulation d'indice par migration de la matière* sans séparation de phase [52]. Nous avons pour cela modélisé le comportement au sein de la matrice des composants suivants :

- un monomère porteur d'indice (m) ;
- un plastifiant (il permet de fluidifier le système et donc d'adapter la mobilité du monomère à la période à enregistrer) (a) ;
- le polymère (monomère porteur d'indice ayant polymérisé)(p) ;
- les lacunes créées lorsque le monomère polymérise (l) ;
- un photoamorceur(e).

Le comportement physico-chimique du matériau peut être décrit par les lois de la diffusion et de la cinétique chimique [14][17] [15][18]. Le but est de calculer les termes de mobilité des composés dans le cadre du formalisme proposé par Onsager tout en négligeant les interactions chimiques. Quatre composés subissent à la fois diffusion et cinétique chimique : Le monomère (m), le plastifiant (a),le polymère (p) et les lacunes (l). Le photoamorceur (e) est considéré comme immobile et sert à l'initiation de la réaction. Seule sa cinétique chimique est prise en compte.

Lors de la polymérisation du monomère, le volume occupé par le nouveau polymère est plus faible mais le volume global du système est conservé, il n'y a pas de contraction de la matrice. Les calculs qui suivent sont basés sur la fraction molaire, nous avons donc choisi d'introduire les lacunes pour écrire la conservation de la quantité de matière totale dans le système :

$$\Phi_m + \Phi_a + \Phi_p + \Phi_l = 1 \tag{6.21}$$

On rappelle que la fraction molaire Φ_i représente le rapport entre le nombre de molécules n_i de l'espèce i sur le nombre total de molécules N. Soit $\Phi_i = \frac{n_i}{N}$.

L'évolution temporelle et spatiale des différentes concentrations est décrite par le bilan suivant, où la source S_i correspond aux réactions chimiques qui interviennent dans le système :

$$\frac{d\Phi_i}{dt} = -div\vec{J_i} + S_i \tag{6.22}$$

En d'autres termes, S_i tient compte de l'apparition ou de la disparition d'une espèce (par exemple la disparition de l'Acrylate au profit du polyacrylate). Le flux de matière $\vec{J_i}$ quant à lui rend compte de la matière qui rentre ou sort d'un volume donné (la migration de l'Acrylate des zones sombres vers les zones claires par exemple).

L'autre grandeur importante est le flux de matière $\vec{J_i}$ qui se conserve également dans le système isolé :

$$\vec{J_m} + \vec{J_a} + \vec{J_p} + \vec{J_l} = \vec{0} \tag{6.23}$$

Il est d'ailleurs lié au potentiel chimique par les coefficients de mobilité M_{ij} du composé i dans le composé j :

$$\begin{bmatrix} J_m \\ J_a \\ J_p \\ J_l \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} M_{mm} & M_{ma} & M_{mp} & M_{ml} \\ M_{am} & M_{aa} & M_{ap} & M_{al} \\ M_{pm} & M_{pa} & M_{pp} & M_{pl} \\ M_{lm} & M_{la} & M_{lp} & M_{ll} \end{bmatrix} \vec{\nabla} \begin{bmatrix} \mu_m \\ \mu_a \\ \mu_p \\ \mu_l \end{bmatrix} \tag{6.24}$$

Le potentiel chimique μ_i de l'espèce i traduit la variation de l'énergie libre lorsque la quantité de la substance i varie. Lorsqu'un milieu est hétérogène, l'activité chimique de chaque espèce n'est pas identique en chaque point du milieu et il en est de même pour le potentiel chimique, fonction de l'activité. Spontanément, chaque espèce va migrer vers les lieux où son potentiel chimique est le plus bas.

On considère que la matrice de mobilité (M) est symétrique $(M_{ij} = M_{ji})$ d'après l'hypothèse de la microréversibilité. Elle ne contient à ce stade que 10 coefficients indépendants. D'après la conservation de la quantité de matière (6.21), trois variables sont indépendantes. Des équations (6.21) et (6.23) on peut choisir pour l'enthalpie libre molaire g les trois variables Φ_m, Φ_a, Φ_p telles que $g(\Phi_m, \Phi_a, \Phi_p, 1 - \sum_{m,a,p} \Phi_k)$. Ainsi, on peut décomposer les potentiels chimiques sous la forme :

$$\mu_i = \left.\frac{\partial G}{\partial n_i}\right|_{n_{j\neq i}} = \left.\frac{\partial G}{\partial \Phi_m}.\frac{\partial \Phi_m}{\partial n_i}\right|_{n_{j\neq i}} + \left.\frac{\partial G}{\partial \Phi_a}.\frac{\partial \Phi_a}{\partial n_i}\right|_{n_{j\neq i}} + \left.\frac{\partial G}{\partial \Phi_p}.\frac{\partial \Phi_p}{\partial n_i}\right|_{n_{j\neq i}} \tag{6.25}$$

avec

$$\Phi_i = \frac{n_i}{\sum_{j=m,a,p,l} n_j} = \frac{n_i}{N} \tag{6.26}$$

D'autre part on peut écrire :

$$\left.\frac{\partial \Phi_m}{\partial n_m}\right|_{n_{a,p,l}} = \frac{N - n_m}{N^2} = N.\frac{1 - \Phi_m}{N^2} = \frac{1}{N}.(1 - \Phi_m) \tag{6.27}$$

De même, on obtient :

$$\left.\frac{\partial \Phi_a}{\partial n_m}\right|_{n_{m,p,l}} = -\frac{1}{N}\Phi_a$$

$$\left.\frac{\partial \Phi_p}{\partial n_m}\right|_{n_{m,a,l}} = -\frac{1}{N}\Phi_p$$

On rappelle que l'enthalpie libre molaire g s'écrit sous la forme $g = \frac{G}{N}$. On peut alors exprimer le potentiel chimique en fonction des fractions molaires (Φ_m,Φ_a,Φ_p) ainsi que de la fraction d'énergie libre molaire g :

$$\begin{cases} \mu_m &= \frac{\partial g}{\partial \Phi_m}(1 - \Phi_m) + \frac{\partial g}{\partial \Phi_a}(-\Phi_a) + \frac{\partial g}{\partial \Phi_p}(-\Phi_p) \\ \mu_a &= \frac{\partial g}{\partial \Phi_m}(-\Phi_m) + \frac{\partial g}{\partial \Phi_a}(1 - \Phi_a) + \frac{\partial g}{\partial \Phi_p}(-\Phi_p) \\ \mu_p &= \frac{\partial g}{\partial \Phi_m}(-\Phi_m) + \frac{\partial g}{\partial \Phi_a}(-\Phi_a) + \frac{\partial g}{\partial \Phi_p}(1 - \Phi_p) \\ \mu_l &= \frac{\partial g}{\partial \Phi_m}(-\Phi_m) + \frac{\partial g}{\partial \Phi_a}(-\Phi_a) + \frac{\partial g}{\partial \Phi_p}(-\Phi_p) \end{cases} \tag{6.28}$$

En introduisant les équations (6.25) et (6.27) dans la relation (6.24) et en appliquant la conservation du flux, on obtient 4 relations indépendantes concernant les coefficients de mobilité :

$$\begin{cases} M_{mm} & = & -(M_{ma} & + & M_{mp} & + & M_{ml}) \\ M_{aa} & = & -(M_{am} & + & M_{ap} & + & M_{al}) \\ M_{pp} & = & -(M_{pm} & + & M_{pa} & + & M_{pl}) \\ M_{ll} & = & -(M_{lm} & + & M_{la} & + & M_{lp}) \end{cases} \tag{6.29}$$

On fait alors les hypothèses suivantes compte tenu de notre système :

- ≻ Le polymère est considéré comme immobile, ses coefficients de mobilité sont nuls $M_{pi} = M_{ip} = 0$;
- ≻ Les coefficient M_{al} et M_{ml} sont pris égaux car le plastifiant et le monomère employés ont des structures relativement proches.

Il ne subsiste donc plus que deux coefficients indépendants :

- ≻ M_{ma}, mobilité du plastifiant dans le monomère ;
- ≻ M_{al} $(= M_{ml})$, mobilité d'une lacune dans le plastifiant (respectivement dans le monomère).

Il s'agit à présent de donner une expression de l'enthalpie libre molaire g pour obtenir un modèle complet. Dans la mesure où chaque constituant du matériau est pris initialement à l'équilibre thermo-dynamique et que l'énergie du système se limite à l'énergie libre du mélange, l'enthalpie libre de mélange comporte un terme entropique et un terme enthalpique :

$$\triangle G = -T\triangle S + \triangle H \tag{6.30}$$

Le terme enthalpique est pris nul car on néglige les interactions chimiques entre les constituants du mélange. En effet, dans le système monomère, polymère, lacunes et plastifiant dans une matrice hôte, on considère au premier ordre que l'affinité chimique de chaque couple de constituant est constante. Ceci traduit le fait que le monomère est aussi stable entouré de plastifiant que de polymère ou de la matrice. En accord avec cette hypothèse, l'enthalpie de mélange ΔH est prise nulle. Ceci traduit en particulier le fait qu'aucune séparation de phases n'est observée dans ces matériaux. Le terme entropique est issu d'un modèle classique dans l'étude du comportement des polymères : le modèle de Flory-Huggins. Il est basé sur le calcul du nombre de conformations possibles du système polymère / solvant. En effet, comme suggéré par la représentation (Fig.6.13), on peut évaluer statistiquement le nombre de conformations de la chaîne de polymère (p) (dont tous les maillons doivent être adjacents) et des autres composés ainsi que du solvant (s). Ainsi, on détermine le terme entropique à partir de la formule de Boltzmann, qui contient le nombre de conformations :

$$S = k_B \ln(\omega) \tag{6.31}$$

La formule de Flory-Huggins qui en découle est la suivante et correspond à une énergie de mélange purement entropique :

$$g = RT\left\{\Phi_m \ln(\Phi_m) + \Phi_a \ln(\Phi_a) + \Phi_p \ln(\Phi_p) + (1 - [\Phi_m + \Phi_a + \Phi_p]) \ln(1 - [\Phi_m + \Phi_a + \Phi_p])\right\} \tag{6.32}$$

p	p	p	p	s	s	s	s
s	s	s	p	s	s	s	s
s	s	s	p	p	p	p	s
s	s	s	s	s	s	p	s
s	s	s	s	s	s	p	s
s	s	s	s	s	s	s	s

FIG. 6.13 – Schéma illustrant le calcul de ω. Les p représentent la chaîne polymère, les s constituent le solvant.

En injectant cette expression dans la définition du potentiel chimique (6.25) puis dans l'équation générale (6.23), en tenant compte des hypothèses sur les coefficients M_{ij} et en rappelant que :

$$\frac{\partial g}{\partial \Phi_i} = 1 + \ln(\Phi_i) - \{1 + \ln(1 - [\Phi_m + \Phi_a + \Phi_p])\}$$

$$\vec{\nabla}\left(\frac{\partial g}{\partial \Phi_i}(-\Phi_i)\right) = \vec{\nabla}\left(\frac{\partial g}{\partial \Phi_i}\right)(-\Phi_i) + \left(\frac{\partial g}{\partial \Phi_i}\right)\vec{\nabla}(-\Phi_i) = \vec{\nabla}\left(\frac{\partial g}{\partial \Phi_i}\right)(-\Phi_i)$$

$$\vec{\nabla}\left(\frac{\partial g}{\partial \Phi_i}\right) = \left(\frac{\partial^2 g}{\partial \Phi_m \partial \Phi_i}\right)\vec{\nabla}(\Phi_m) + \left(\frac{\partial^2 g}{\partial \Phi_a \partial \Phi_i}\right)\vec{\nabla}(\Phi_a) + \left(\frac{\partial^2 g}{\partial \Phi_p \partial \Phi_i}\right)\vec{\nabla}(\Phi_p)$$

avec quand $i \neq j$,

$$\left(\frac{\partial^2 g}{\partial \Phi_i \partial \Phi_j}\right) = \frac{1}{1 - (\Phi_m + \Phi_a + \Phi_p)}$$

et quand $i = j$,

$$\left(\frac{\partial^2 g}{\partial \Phi_i^2}\right) = \frac{1}{\Phi_i} + \frac{1}{1 - (\Phi_m + \Phi_a + \Phi_p)}$$

on détermine l'expression des flux $\vec{J_i}$:

$$\begin{array}{rcl} J_m & = & [M_{mm}.\partial^2_{mm} g + M_{ma}.\partial^2_{ma} g]\ \vec{\nabla}\Phi_m \\ & + & [M_{mm}.\partial^2_{am} g + M_{ma}.\partial^2_{aa} g]\ \vec{\nabla}\Phi_a \\ & + & [M_{mm}.\partial^2_{pm} g + M_{ma}.\partial^2_{pa} g]\ \vec{\nabla}\Phi_p \end{array} \tag{6.33}$$

$$\begin{array}{rcl} J_a & = & [M_{am}.\partial^2_{mm} g + M_{aa}.\partial^2_{ma} g]\ \vec{\nabla}\Phi_m \\ & + & [M_{am}.\partial^2_{am} g + M_{aa}.\partial^2_{aa} g]\ \vec{\nabla}\Phi_a \\ & + & [M_{am}.\partial^2_{pm} g + M_{aa}.\partial^2_{pa} g]\ \vec{\nabla}\Phi_p \end{array} \tag{6.34}$$

$$\begin{array}{rcl} J_p & = & [\ 0\ ]\ \vec{\nabla}\Phi_m \\ & + & [\ 0\ ]\ \vec{\nabla}\Phi_a \\ & + & [\ 0\ ]\ \vec{\nabla}\Phi_p \end{array} \tag{6.35}$$

$$\begin{array}{rcl} J_l & = & [M_{lm}.\partial^2_{mm}g \quad + \quad M_{la}.\partial^2_{ma}g] \quad \vec{\nabla}\Phi_m \\ & + & [M_{lm}.\partial^2_{am}g \quad + \quad M_{la}.\partial^2_{aa}g] \quad \vec{\nabla}\Phi_a \\ & + & [M_{lm}.\partial^2_{pm}g \quad + \quad M_{la}.\partial^2_{pa}g] \quad \vec{\nabla}\Phi_p \end{array} \tag{6.36}$$

On obtient alors le système matriciel suivant décrivant la diffusion des espèces subissant une réaction chimique au sein du matériau.

$$\frac{\partial}{\partial t}\begin{bmatrix} \Phi_m \\ \Phi_a \\ \Phi_p \\ \Phi_l \end{bmatrix} = -\begin{bmatrix} M_{mm} & M_{ma} & 0 & M_{ml} \\ M_{am} & M_{aa} & 0 & M_{al} \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ M_{lm} & M_{la} & 0 & M_{ll} \end{bmatrix} \Delta \begin{bmatrix} \Phi_m \\ \Phi_a \\ \Phi_p \\ \Phi_l \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} S_m \\ S_a \\ S_p \\ S_l \end{bmatrix} \tag{6.37}$$

Nous avons maintenant clairement identifié les variations de flux associées aux variations de concentration. Il reste à déterminer les équations sources à l'origine des variations de concentration. Le terme de source s'écrit de la manière suivante en faisant l'hypothèse d'une réaction bimoléculaire d'ordre 1 (le phénomène de polymérisation est décrit en considérant une seule espèce de radicaux $R^\bullet$) :

$$S([m]) = -k_p.[m].[R^\bullet] \tag{6.38}$$

$$S([a]) = 0 \tag{6.39}$$

$$S([p]) = k_p.[m].[R^\bullet] \tag{6.40}$$

$$S([l]) = k_p.[m].[R^\bullet] \tag{6.41}$$

auxquelles il faut ajouter les équations sources des espèces ne migrant pas mais participant aux réactions chimiques. On ajoute alors les équations pour le photoamorceur Irg et l'espèce $R^\bullet$ qui regroupe l'ensemble des chaînes polymériques non terminées.

$$S([Irg]) = -[Irg].k^*.[h\nu] \tag{6.42}$$

$$S([R^\bullet]) = [Irg].k^*.[h\nu] - k_t.[R^\bullet]^2 \tag{6.43}$$

Le photoamorceur Irg se dégrade ($-[Irg].k^*.[h\nu]$) pour former des radicaux $R^\bullet$ ($[Irg].k^*.[h\nu]$). La concentration $R^\bullet$ correspond à tous les radicaux créés donc la seule source de diminution de $R^\bullet$ est l'étape de terminaison qui forme le polymère ($-k_t.[R^\bullet]^2$). Le monomère est consommé lors des étapes de propagation ($-k_p.[m].[R^\bullet]$) et chaque mole de monomère produit une mole de polymère ($k_p.[m].[R^\bullet]$, 80% en volume) et une mole de lacune ($k_p.[m].[R^\bullet]$, 20% en volume) afin d'assurer la conservation de la matière au sein du système m, a, p, l. Les quantités de matière des composés sont ainsi calculées et l'on détermine les valeurs de l'indice de réfraction dans les zones éclairées et dans les zones sombres selon la formule : $n = \sqrt{\sum \Phi_i n_i^2}$.

Bibliographie

[1] M.E. Fermann A. Galvanauskas et D. Harter : All-fiber femtosecond pulse amplification circuit using chirped bragg gratings. *Appl. Phys. Lett.*, 66(6):1053–1055, February 1995.

[2] L. Carretero R.F. Madrigal A. Fimia A. Murciano, S. Blaya : Holographic reflection gratings in photopolymerizable solgel materials. *Opt. Letters*, 31(15):2317–2319, August 2006.

[3] R.Byron Bird et Warren E. Stewart : *Transport Phenomena.* John wiley & sons, inc. édition.

[4] C. Rouyer N. Blanchot S. Seznec C. Fiorini, C. sauteret et a. Migus : Temporal aberration due to misaligments of a stretcher-compressor system and compensation. *IEEE J. of Q.E*, 30(7):1662–1670, July 1994.

[5] A. Barthelemy et Al. : Propagation soliton et autoconfinement de faisceaux laser par non linéarité optique de kerr. *Opt. Com.*, 55:201–206, 1985.

[6] A. V. Veniaminov et Al. : Postexposition behavior of holograms under the effect of macromolecule diffusion. *Opt. and Spectroscopy*, 81(4):617–621, 1996. Translated from Optika i Spektroskopiya.

[7] A.Kewitsch et Al. : Nonlinear optical properties of photoresists for projection lithograpy. *Appl. Phys. Lett.*, 68:455–457, 1995.

[8] A.Kewitsch et Al. : Self-focusing and self-trapping of optical beams upon photopolymerisation. *Opt. Lett.*, 21:24–26, 1996.

[9] D. E. Zelmon et Al. : Infrared corrected sellmeier coefficients for congruently grown lithium niobate and 5 mol. % magnesium oxide-doped lithium niobate. *J. Opt. Soc. Am. B*, 14(2):3319–3322, December 1997.

[10] D. Mendlovic et Al. : Grating triplet. *Appl. Opt.*, 34(34):7807–7814, 1995.

[11] D. Strickland et Al. : Compression of amplified chirped optical pulses. *Opt. Com.*, 55(6):447–449, October 1985.

[12] I. Semenova et Al. : Highly selective holographic spectral filters for near ir range. *SPIE Proc.*, 3956:289–297, 2000.

[13] J. Mumbru et Al. : Comparison of the recording dynamics of phenanthrenequinone-doped poly(methyl methacrylate) materials. *Opt. Com.*, 194:103–108, 2001.

[14] J. R. Lawrence et Al. : Photopolymer holographic recording material parameter estimation using a nonlocal diffusion based model. *J. of Appl. Phys.*, 90(7):3142–3148, October 2001.

[15] J. R. Lawrence et Al. : Adjusted intensity nonlocal diffusion model of photopolymer grating formation. *J. Opt. Soc. Am. B*, 19(4):621–629, April 2002.

[16] J. Skaar et Al. : On the synthesis of fiber bragg gratings by layer peeling. *IEEE J. of Q.E.*, 37(2):165–173, 2001.

[17] J. T. Sheridan et Al. : Nonlocal-response diffusion model of holographic recording in photopolymer. *J. Opt. Soc. Am. A*, 17(6):1108–1114, June 2000.

[18] J. V. Kelly et Al. : Holographic photopolymer materials : nonlocal polymerization-driven diffusion under nonideal kinetic conditions. *J. Opt. Soc. Am. B*, 22(2):407–416, February 2005.

[19] J. Zhao et Al. : The diffraction properties and applications of photorefractive volume holographic gratings. *In* OSA, éditeur : *Photorefractive Effects, Materials, and Devices*, volume 99, pages 788–793, 2005.

[20] K. Peithmann et Al. : Photorefractive properties of highly-doped lithium niobate crystals in the visible and near-infrared. *Appl. Phys. B*, 68:777–784, April 1999.

[21] L. B. Glebov et Al. : Kinetics modeling in photosensitive glass. *Opt. Mat.*, 25:413–418, 2004.

[22] N. Zuzuki et Al. : Holographic recording in tio2 nanoparticle-dispersed methacrylate photopolymer films. *Appl. Phys. Lett.*, 81(22):4121–4123, 2002.

[23] P. Arora et Al. : Fast electrically switchable holographic mirrors. *In* OSA, éditeur : *Photorefractive Effects, Materials, and Devices*, volume 99, pages 750–755, 2005.

[24] P. Cheben et Al. : A photopolymerizable glass with diffraction efficiency near 100% for holographic storage. *Appl. Phys. Lett.*, 78(11):1490–1492, 2001.

[25] P. Tournois et Al. : Nonuniform optical diffraction gratings for laser pulse compression. *Opt. Com.*, 106:253–257, 1994.

[26] P. Tournois et Al. : Possible new light pulse expansors and compressors for the icf fast ignition concept. *SPIE Proc.*, 2633:337–347, May 1994.

[27] R. L. Sutherland et Al. : In situ shrinkage measurement of holographic polymer dispersed liquid crystals. *SPIE Proc.*, 5216:34–43, 2003.

[28] R. Y. Chiao et Al. : Self-trapping of optical beams. *Phys. Rev. Lett.*, 13:479–482, 1964.

[29] S. Blaya et Al. : Diffraction gratings and diffusion coefficient determination of acrylamide and polyacrylamide in sol-gel glass. *Appl. Phys. Lett.*, 84(23):4765–4767, 2004.

[30] S. H. Lin et Al. : Phenanthrenequinone-doped poly(methyl methacrylate) photopolymer bulk for volume holographic data storage. *Opt. Letters*, 25(7):451–453, 2000.

[31] S. H. Lin et Al. : Doped pmma photopolymer for volume holographic recording. *SPIE Proc.*, 5206, 2003.

[32] S.Sarkisov et Al. : Optical branching in dye-doped polymeric waveguide. *Opt. Com.*, 145:265–273, 1998.

[33] S.Sarkisov et Al. : Optical channel waveguides formed by upconverted photobleaching of dye-doped polymer film in regime of dark spatial soliton. *Opt. Com.*, 161:132–140, 1999.

[34] U. Schlarb et Al. : Refractive indices of lithium niobate as a function of wavelength and composition. *J. Appl. Phys.*, 73(7):3472–3476, November 1992.

[35] U. Schlarb et Al. : Influence of the defect structure on the refractve indices of undoped and mg-doped lithium niobate. *Phys. Rev. B*, 50(2):751–757, January 1994.

[36] Y. Hsiao et Al. : Analyses on physical mechanism of holographic recording in phenanthrenequinone-doped poly(methyl methacrylate) hybrid materials. *Opt. Eng.*, 43(9):1993–2002, September 2004.

[37] F. salin G. Cheriaux, P. Rousseau et J.P. Chambaret : aberration-free stretcher design for ultra-short-pulse amplification. *Optics Letters*, 21(6):414–416, March 1996.

[38] David M. Gaudiosi : Multi-kilohertz repetition rate ti :sapphire amplifier based on down-chirped pulse amplification. *Optics Express*, 14(20):9277–9283, Oct 2006.

[39] P. Gunter et J.P. Huignard : *Photorefractive materials and their appliations.* First édition.

[40] Armand Hatchuel : La théorie C-K : Fondements et usages d une théorie unifiée de la conception. *In Colloque « Sciences de la conception »*, mars 2002.

[41] Armand Hatchuel : De la R&D à la RID : de nouveaux principes de management du processus d innovation. *In Congrès francophone du management de projet, AFITEP*, nov 2001.

[42] F. Li X. Zhang Q. Sun S. Liu F. Song J.Xu, G. Zhang : Enhancement of ultraviolet photorefraction in highly magnesium-doped lithium niobate crystals. *Opt. Letters*, 25(2):129–131, January 2000.

[43] D. J. Kang : Direct photofabrication of focal-length-controlled microlens array using photoinduced migration mechanisms of photosensitive sol-gel hybrid materials. *Optics Express*, 14(18):8347–8353, Sept 2006.

[44] H. Kogelnik : Coupled wave theory for thick hologram gratings. *Bell System Tec. J.*, 48(9):2909–2947, 1969.

[45] O. E. Martinez : 3000 times grating compressor with positive group velocity dispersion : application to fiber compensation in 1.3 - 1.6 μm region. *IEEE J. of Q.E*, QE-23(1):59–64, january 1987.

[46] P.Tournois : Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems. *Opt. Com.*, 140:245–249, 1997.

[47] O.E. Martinez R. L. Fork et J.P. Gordon : Negative dispersion using pairs of prisms. *Optics Letters*, 9(5):150–152, may 1984.

[48] J. Petter T. Tschudi T. Lamarque B. Loiseaux J.P. Huignard R. Nicolaus, M. Rehs : Efficient ultraviolet image amplification by means of two wave mixing using a nanosecond laser source. *In* OSA, éditeur : *Photorefractive Effects, Materials, and Devices*, pages 689–696, 2003.

[49] R. Szipocs : Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers,. *Opt. Letters*, 19:201, 1994.

[50] P. Tournois : New diffraction grating pair with very linear dispersion for laser pulse compression. *Electronics Letters*, 29(16):1414–1415, August 1993.

[51] E.B. Treacy : Optical pulse compression with diffraction gratings. *IEEE J. of Q.E*, 5(9):454–458, September 1969.

[52] T. J. Trout : Optical photopolymers : Design and applications. *Adv. Mater.*, 10(15): 1219–1224, 1998.

[53] S. Takekawa Y. Furukawa, K. Kitamura : Stoichiometric $Mg : LiNbO_3$ as an effective material for non-linear optics. *Opt. Letters*, 23(24):1892–1894, december 1998.

[54] M. Zavelani-Rossi : Pulse compression over a 170-thz bandwidth in the visible by use of only chirped mirrors. *Opt. Letters*, 26:1155, 2001.

Vers l'élaboration d'un matériau holographique de dimension centimétrique pour l'enregistrement de réseaux de phase en volume à pas variable (réseaux de Bragg *chirpés*) : Application à l'étirement d'impulsions lasers ultra-courtes

Résumé :

Dès sa première réalisation expérimentale par Théodore Maiman en 1960, le laser a fonctionné en régime impulsionnel. Même si les puissances mises en jeu à cette époque étaient très faibles, la brillance de cette source rivalisait déjà avec un million de soleils. De ce fait, il était facile de voir l'intérêt de pouvoir placer une fraction d'énergie lumineuse dans des impulsions de durée les plus courtes possibles. Avec la technique d'amplification à dérive de fréquence, l'exploration des système d'étirement et de compression commence. Malgré une diversité de solutions pour les étireurs et les compresseurs, le système de Treacy va dominer complètement les architectures lasers en raison de son très haut niveau de dommage essentiel pour les applications de très haute énergie. Pourtant, cette solution est loin d'être facile à mettre en oeuvre et le système est associé à de nombreux défauts. Le coût des optiques (réseaux de diffraction et optiques réflectrices du triplet de Öffner) est très élevé en raison des très grandes dimensions et des qualités de surface nécessaires pour l'obtention d'impulsion de 20-fs. C'est dans ce contexte que s'inscrit cette thèse. Les systèmes d'étirement et de compression ont été clairement identifiés comme verrous technologiques pour le développement des lasers femtosecondes tant dans le cadre scientifique, qu'industriel. A cet effet, nous avons mené une étude pour la réalisation d'un système étireur compact utilisant des réseaux de Bragg à pas variable enregistrés via des méthodes holographiques, proposant une rupture technologique. Pour la réalisation de cet étireur un nouveau matériau holographique a été développé et mis en oeuvre pour la réalisation d'un composant de test. Son utilisation dans une chaîne d'amplification classique conduit à une démonstration de faisabilité claire d'un tel système.