

# SUPERCONTINUUM DE LUMIERE UTILISE POUR LA MESURE DE LA SUSCEPTIBILITE NON LINEAIRE D'ORDRE TROIS D'UN MONOCRISTAL DE PARATELLURITE

**Zakaniaina Rajaofara<sup>1,2</sup>, Erwan Capitaine<sup>2</sup>, Philippe Leproux<sup>2</sup>, Hideaki Kano<sup>3</sup>, Tomokatsu Hayakawa<sup>4</sup>, Philippe Thomas<sup>1</sup>, Jean-René Duclère<sup>1</sup>, Vincent Couderc<sup>2</sup>**

1. Institut de Recherche sur les Céramiques, UMR 7315 CNRS-Université de Limoges, 12, rue Atlantis, 87068 Limoges Cedex, France
2. Institut XLIM, UMR 7252 CNRS – Université de Limoges, 123, Avenue Albert Thomas, 87060 Limoges Cedex, France
3. Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, 1-1-1 Tennodai, Tsukuba, Ibaraki, 305-8573, Japan
4. Field of Advanced Ceramics, Department of Life Science, Nagoya Institute of Technology, Gokiso, Showa, Nagoya 466-8555, Japan

[zakaniaina.rajaofara@unilim.fr](mailto:zakaniaina.rajaofara@unilim.fr)

## RÉSUMÉ

Nous montrons que la spectroscopie CARS (Coherent anti-Stokes Raman scattering) large bande, basée sur l'utilisation d'un supercontinuum de lumière peut être utilisée pour déterminer la partie réelle de la susceptibilité non linéaire du troisième ordre ( $\chi^{(3)}$ ) d'un monocristal de dioxyde de tellure.

**MOTS-CLEFS :** *supercontinuum, spectroscopie, paratellurite, CARS.*

## 1. INTRODUCTION

La microscopie CARS est basée sur l'utilisation de deux ondes de différentes fréquences (appelées pompe et Stokes). Grâce à l'interaction laser matière, une troisième onde dite anti-Stokes est générée de manière cohérente et traduit la réponse non linéaire de l'échantillon. Ce signal se trouve exalté lorsque la différence de fréquence entre l'onde pompe et l'onde Stokes correspond exactement à la fréquence d'un mode vibrationnel de l'échantillon. Systématiquement, ce processus de mélange à quatre ondes est accompagné d'un autre processus cohérent responsable d'un fond non résonant s'ajoutant au spectre CARS que l'on appellera NRB (Nonresonant background) et qui correspond à la réponse électronique de la matière. De ce fait, l'intensité CARS sera constituée de l'addition du signal vibrationnel et du NRB (Voir Eq. (1)) [1].

$$I_{cars}(\omega) \propto \left| \chi_{NR}^{(3)}(\omega) \right|^2 + \left| \chi_R^{(3)}(\omega) \right|^2 + 2 \operatorname{Re} \left[ \chi_{NR}^{(3)}(\omega) \right] \operatorname{Re} \left[ \chi_R^{(3)}(\omega) \right] \quad (1)$$

$I_{cars}$  est l'intensité de l'onde anti-Stokes,  $\chi_{NR}^{(3)}$  est la composante non résonante de la susceptibilité non linéaire d'ordre trois,  $\chi_R^{(3)}$  sa composante vibrationnelle et  $\omega$  la fréquence.

Nous démontrons dans ces travaux que l'utilisation d'un système CARS large bande utilisant un supercontinuum de lumière, engendré dans une fibre optique microstructurée infiniment monomode, permet une extraction rapide de la réponse électronique d'un échantillon. Pour ce faire, nous analysons le signal anti-Stokes suffisamment loin du domaine fréquentiel correspondant au signal vibrationnel de l'échantillon. Dans ce cas particulier, on peut négliger la composante vibrationnelle de la susceptibilité et l'intensité CARS devient alors :

$$I_{cars}(\omega) \propto \left| \chi_{NR}^{(3)}(\omega) \right|^2 \quad (2)$$

En négligeant l'absorption multiphotonique représentée par la partie imaginaire de  $\chi_{NR}^{(3)}$ , l'intensité CARS est donc simplement proportionnelle au carré de la partie réelle de  $\chi_{NR}^{(3)}$ .

L'échantillon que nous étudions est le dioxyde de tellure sous sa forme paratellurite qui est un monocristal que l'on note aussi  $\text{TeO}_2\text{-}\alpha$ . L'étude consiste donc à enregistrer les spectres CARS de deux échantillons références dont les indices non linéaires sont connus (la silice fondue ( $\text{SiO}_2$ ) et le verre Schott N-SF57), puis de comparer les intensités obtenues avec celles du  $\text{TeO}_2\text{-}\alpha$ . Comme nous le montre l'Eq. (3), l'expression de l'indice non linéaire  $n_2$  dépend de manière linéaire de la partie réelle de  $\chi^{(3)}_{NR}$ . On détermine ainsi, de manière relative, la valeur de l'indice de réfraction non linéaire de notre échantillon de test.

$$n_2 = \frac{3 \text{Re}[\chi^{(3)}_{NR}(\omega)]}{4n_0^2 \epsilon_0 c} \quad (3)$$

Ces résultats seront ensuite comparés à ceux obtenus par Duclère *et al.* par la méthode du z-scan [2].

## 2. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Le dispositif expérimental est décrit par la Fig. 1. Nous utilisons un laser Sirius Spark qui délivre des impulsions de 60 ps à une cadence de 150 kHz. Le faisceau de ce dernier est subdivisé en deux par un polariseur de Glan-Taylor et une lame demi-onde. Une partie sera injectée dans une fibre à cristal photonique pour générer un faisceau ultralarge bande de 600 nm à 1700 nm qui jouera le rôle du faisceau polychromatique Stokes. Celui-ci est alors filtré par un filtre passe-haut 1050 nm afin de n'utiliser que la partie infrarouge de 1050 nm à 1700 nm. L'autre partie du faisceau à 1064 nm joue le rôle du faisceau pompe. Une ligne à retard compense la différence de chemin optique induite par la fibre non linéaire pour que les deux faisceaux soient temporellement synchronisés. Ils sont ensuite recombinaés par un miroir dichroïque qui laisse passer le faisceau Stokes large bande mais qui réfléchit la pompe à 1064 nm avant d'être focalisé sur l'échantillon par un premier objectif à forte ouverture numérique ( $\text{ON} = 1,2$  immersion dans l'eau). Un deuxième objectif collecte le signal anti-Stokes et l'envoie dans le spectromètre Labram Horiba après que le résidu de pompe ait été filtré par un filtre notch 1064 nm.

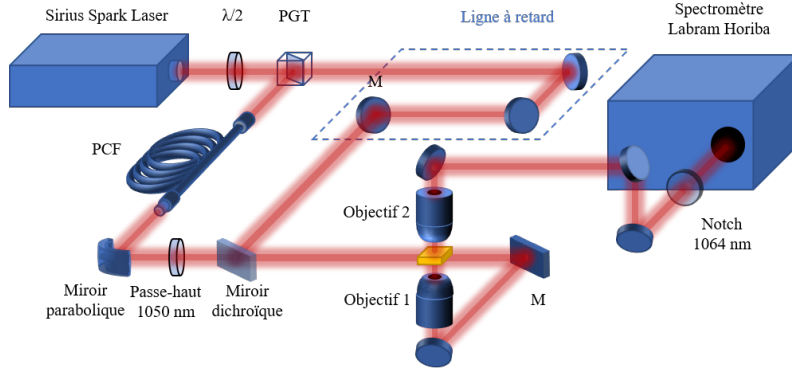


Fig. 1 : Schéma de montage du dispositif CARS Large bande utilisé.  $\lambda/2$  : lame demi-onde; PGT : Polariseur de Glan-Taylor; PCF : Fibre à cristal photonique; M : miroir.

## 3. RESULTATS

Le spectre CARS du  $\text{TeO}_2\text{-}\alpha$  est présenté en Fig. 2 où un mode vibrationnel est présent à  $644 \text{ cm}^{-1}$ . Ce mode correspond à la résonance des deux atomes d'oxygène équatoriaux avec l'atome de tellure [3]. On considère ainsi que tout le reste du signal de  $1000 \text{ cm}^{-1}$  à  $3000 \text{ cm}^{-1}$  correspond au NRB. La mesure de la racine carrée du niveau moyen de ce signal pour les trois échantillons ( $\text{TeO}_2\text{-}\alpha$ ,  $\text{SiO}_2$  et SF57) nous permet, en les comparant, de déduire la valeur de l'indice non linéaire du  $\text{TeO}_2\text{-}\alpha$  que l'on présente dans les tableaux 1 et 2.

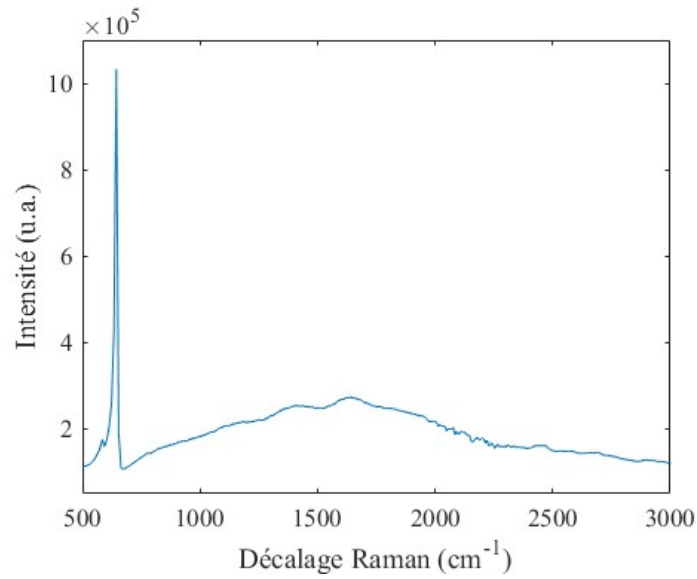


Fig. 2 : Spectre CARS du  $\text{TeO}_2\text{-}\alpha$ .

Tab. 1 : Valeurs des indices non linéaires  $n_2$  du  $\text{TeO}_2\text{-}\alpha$  obtenus par CARS (ces travaux) et z-scan [2].

Méthode	$\lambda_{\text{pump}}$ (nm)	$n_2$ ( $\text{m}^2/\text{W}$ )
z-scan	800	$5,86 \times 10^{-19}$
CARS (this work)	1064	$5,83 \pm 0.73 \times 10^{-19}$

Tab. 2 : Valeurs du ratio  $\chi^{(3)}(\text{TeO}_2)/\chi^{(3)}(\text{SiO}_2)$  obtenues par z-scan, CARS et THG [4]

	Z-scan	CARS	THG
$\lambda_{\text{pump}}$ (nm)	800	1064	1900
$\chi^{(3)}(\text{TeO}_2)/\chi^{(3)}(\text{SiO}_2)$	49,1 ( $\text{TeO}_2\text{-}\alpha$ )	48,9 ( $\text{TeO}_2\text{-}\alpha$ )	50,4 ( $\text{TeO}_2$ pure)

#### 4. CONCLUSION

Les résultats obtenus sont en très bon accord avec ceux publiés par Duclère *et al.* [4] mais aussi avec ceux de Kim *et al.* [4]. Le principal avantage du CARS large bande en régime subnanoseconde repose sur le temps d'acquisition rapide qui ouvre la voie à une imagerie de la réponse non linéaire du troisième ordre d'un matériau complexe. Cette méthode permet d'obtenir uniquement la composante électronique des matériaux en s'affranchissant des signatures vibrationnelles et sans utiliser un laser femtoseconde. Des mesures sur des échantillons non transparents ou diffusants peuvent également être réalisées par la méthode d'Epi CARS.

#### RÉFÉRENCES

- [1] E. M. Vartiainen, K.-E. Peiponen, and T. Tsuboi, "Analysis of coherent Raman spectra," J. Opt. Soc. Am. B, vol. 7, 722–725, 1990.
- [2] J.-R. Duclère, T. Hayakawa, E. Roginskii, M. B. Smirnov, A. Mirgorodski, V. Couderc, O. Masson, M. Colas, O. Noguera, V. Rodriguez, and P. Thomas, "Third order nonlinear optical properties of a paratellurite single crystal," J. Appl. Phys. Vol. 123, 183105, 2018.
- [3] V. Rodriguez, M. Couzi, F. Adamietz, M. Dussauze, G. Guery, T. Cardinal, P. Veber, K. Richardson, and P. A. Thomas, "Hyper-Raman and Raman scattering in paratellurite  $\text{TeO}_2$ ," J. Raman Spectrosc. Vol 44, 739-745, 2013.
- [4] S.-H. Kim, T. Yoko, and S. Sakka, "Linear and nonlinear optical properties of  $\text{TeO}_2$  glass," J. Am. Ceram. Soc., vol 76, 2486–2490, 1993.