جامعة مولاي إسماعيل
UNIVERSITÉ MOULAY ISMAÏL

كلية العلوم
FACULTÉ DES SCIENCES

NOTE DE COURS :

OPTIQUE NONLINEAIRE

Master d'Optique, Photonique et Traitement de l'Information 2018-2019

Pr. *N.CHERKAOUI EDDEQAQI*

Table des matières

Chapitre I : Introduction à l'optique non linéaire

I- Optique linéaire des diélectriques :
1- polarisation linéaire
2- Vecteur de polarisation : équation de la mécanique

II- Optique non linéaire :
1- polarisation non linéaire des diélectriques
2- Milieux non linéaire à centre de symétrie

III- Susceptibilité non linéaire :
1- Dispersion temporelle de la susceptibilité non linéaire
2- Dispersion de la susceptibilité non linéaire
3- Propriétés de symétrie générales du tenseur de susceptibilités quadratique et cubique
4- susceptibilités complexes

Chapitre II : Modèle semi classique de la réponse non linéaire

I- Susceptibilité linéaire et non linéaire : Théorie quantique
1- Rappel
a- Description par l'opérateur densité
b- propriétés de la matrice densité
2- Formalisme :
a- Introduction
b- Equation de Block
3- Calcul des cohérences
4- Calcul des polarisations

II- Equation de propagation non linéaire
1- Equation d'onde pour un milieu à polarisation non linéaire
2- Approximation des enveloppes lentement variables

Chapitre III : Quelques phénomènes d'optique Non linéaire

I- Classification des non linéarités :

1- Terme du 1er ordre

2- Terme du deuxième ordre

3/ Terme du troisième ordre

II- Processus du deuxième ordre :

1- Génération de la fréquence somme

a- Relations de Manley-Rowe

b- Solutions simples sans conditions aux limites

2- Génération de la seconde harmonique : doublage de la fréquence

a- Cas où il y a des adaptations des vitesses de phase

b- Adaptation des vitesses de phase

3- Amplification et oscillations paramétriques

a- Différence de fréquence et amplificateur paramétrique

III -Optique non linéaire du 3ème ordre

1- Un faisceau incident et effet Kerr optique

2- Deux faisceaux incidents et effet Kerr Croisé

3 Trois faisceaux incidents et conjugaison de phase

IV Appendices

Appendice A : Transformer de Fourier

Appendice B : Représentation temps - fréquences

Appendice C ; Simulations numériques

Chapitre I :

Introduction à l'optique non linéaire

IV- Optique linéaire des diélectriques :

1- polarisation linéaire :

Les diélectriques soumis à un champ extérieur se polarisent. Le champ provoquent un déplacement des gaines d'électrons des atomes/aux noyaux ; il en résulte que les atomes acquirent un moment électrique dipolaire. C'est une polarisation électronique du diélectrique.

Il existe d'autres types de polarisation :

- Polarisation ionique $\rightarrow$ déplacement relatifs des ions + et – sous l'action d'un champ électrique
- Polarisation d'orientation (rotationnelle) $\rightarrow$la rotation des dipôles prend la direction du champ appliqué (le cas d'un milieu contient des dipôles
- A l'échelle du temps c'est la polarisation électronique qui s'établit le plus vite :
  - polarisation électronique se produit en un temps 10-15 à 10-14 s.
  - polarisation ionique 10-13 à 10-11s
  - polarisation rotationnelle 10^{-10} et plus.

Dans le domaine de l'optique, le champ de polarisation est une onde lumineuse (plus exactement dans les porteurs ultraviolette, visible et l'infrarouge proche du spectre). Dans tell cas, c'est la polarisation électronique qui joue un rôle prépondérant pour des longueurs d'ondes de rayonnement de l'ordre 10m et plus, la polarisation ionique devient électronique.

1- *Vecteur de polarisation : équation de la mécanique*

La polarisation d'un diélectrique se décrit quantitativement par une vecteur polarisation P qui représente le moment électrique dipolaire de limite de volume du milieu, induit par le champ extérieur de champ électrique E (dans le cas considéré des champs d'onde lumineuse).

La relation entre les vecteurs P et E est une des équations dites de la mécanique. En optique linéaire on considère une équation de la mécanique linéaire.

$$P_i = \sum_{k=1}^{3} \alpha_{ik} E_k \quad (i, k = 1, 2, 3) \qquad (1)$$

D'où α_{ik} sont les composantes du tenseur de susceptibilité diélectrique. C'est un tenseur symétrique ; par choix convenable des axes de coordonnées, il peut être mis sous la forme diagonale :

$$\alpha ij = \begin{pmatrix} \alpha_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_{33} \end{pmatrix} \qquad (2)$$

- Pour le milieu isotrope et les cristaux de système cubique on a : $\alpha_{11} = \alpha_{22} = \alpha_{33}$. Dans ce cas la relation (1) prend la forme suivante :

$$P = \alpha.E \qquad (3)$$

- Dans le cas où $\alpha_{11} = \alpha_{22} \neq \alpha_{33}$, correspond aux cristaux uniaxiaux (axe optique dirigé vers l'axe de z). Ce sont des cristaux des systèmes tétragonal, hexagonal et trigonal.
- Le cas de $\alpha_{11} = \alpha_{22} = \alpha_{33}$ est celui des cristaux biaxiaux (cristaux des systèmes rhombique, monoclinique et triclinique). Lors des études des phénomènes non linéaires on a affaire aux cristaux uniaxiaux.

Le vecteur inducteur électrique D est décrit :

$$D = E + 4\pi P \qquad (4)$$

En tenant compte de la relation (1) on obtient :

$$D_i = E_i + 4\pi \sum_k \alpha_{ik} E_k \qquad (5)$$

$$D_i = \sum_k (\delta_{ik} + 4\pi\alpha_{ik}) E_k \qquad (6)$$

Où δ_{ik} est le symbole de Kronechan ($\delta_{ik} = 0$ si $i \neq k$; $\delta_{ik} = 1$ s $i = k$).

On obtient encore une écriture de l'équation de la mécanique :

$$D_i = \sum_k \varepsilon_{ik} E_k \qquad \text{Avec} \qquad \varepsilon_{ik} = \delta_{ik} + 4\pi\alpha_{ik}$$

Où ε_{ik} est le tenseur de permittivité du milieu.

V- Optique non linéaire :

1- polarisation non linéaire des diélectriques :

Depuis la mise au point du laser, l'approximation linéaire n'est plus toujours justifiée, puisque celui-ci permet d'atteindre des champs électriques du même ordre de grandeur ou supérieur au champ de cohésion des charges. Dans la mesure où le champ ne crée pas de déformations irréversibles, dans le milieu, le dipôle induit peut être exprimé au termes d'un développement en série de puissances du champ électrique appliqué. En tenant compte des effets de l'optique non linéaire basés sur la variation de la susceptibilité en fonction de l'intensité du champ d'onde lumineuse transforme l'équation de la mécanique linéaire (1) en une équation non linéaire :

$$P_i = \sum_{k=1} \alpha_{ik}(E) E_k \qquad (7)$$

Avec $\alpha_{ik}(E)$ est un développement en série de puissances de E :

$$\alpha_{ik}(E) = \alpha_{ik} + \sum_{j=1}^{3} \psi_{ijk} E_j + \sum_{j=1}^{3}\sum_{m=1}^{3} \theta_{ikjm} E_j E_m + \ldots\ldots\ldots \qquad (8)$$

Il en de même pour la polarisation microscopique

$$P_i = P_{l_i} + P_{nl_i}$$

$$= P_i = \sum_{k} \alpha_{ik} E_k + \sum_{k=1}\sum_{j=1} \psi_{ijk} E_k E_j + \sum_{k=1}\sum_{j=1}\sum_{m=1} \theta_{ikjm} E_k E_j E_m + \ldots\ldots\ldots \qquad (9)$$

Ici $P_{l_i} = \sum_{k=1}^{3} \alpha_{ik} E_k$, polarisation linéaire et le vecteur polarisation non linéaire P_{nl} intervenant dans (9), est la somme des vecteurs de polarisation quadratique P_q et cubique P_c définis par les vecteurs suivants :

$$P_{q_i} = \sum_{k=1}^{3}\sum_{j=1}^{3} \psi_{ijk} E_k E_j \qquad (10)$$

$$P_{c_i} = \sum_{k=1}^{3}\sum_{j=1}^{3}\sum_{m=1}^{3} \theta_{ikjm} E_k E_j E_m \qquad (11)$$

Dans les ouvrages spécialisées on utilise parfois (pour abréger l'écriture) la représentation des relations (8) à (11) sous la forme vectorielle suivante :

$$P = \alpha_i E + \psi_i EE + \theta_i EEE + \ldots\ldots \qquad (12)$$

$$P_l = \alpha_i E \qquad (13) \qquad P_c = \theta_i EEE \qquad (15$$

$P_q = \psi iEE$ (14)

α_{ik} : est une susceptibilité linéaire (tenseur d'ordre 2).

ψ_{ikj} : est une susceptibilité non linéaire quadratique (tenseur d'ordre 3).

θ_{ikjm} : est une susceptibilité non linéaire cubique (tenseur d'ordre 4).

<u>valeur numérique de susceptibilité</u> :

$\alpha = 1$; $\psi \approx 10^{-12}$ à 10^{-11} m/V

$\theta \approx 10^{-12}$ à 10^{-21} m^2/V^2

Par exemple :

- Cristaux K.D.P (phosphate monopotassique) $\rightarrow$
  - $\psi \approx 0{,}5 \cdot 10^{-12}$ m/V
  - $\theta \approx 2 \cdot 10^{-22}$ m^2/V^2
- Cristaux $LINbO_3$ (Nobalte de Lithium) $\rightarrow$
  - $\psi \approx 5 \cdot 10^{-12}$ m/V
  - $\theta \approx 2 \cdot 10^{-21}$ m^2/V^2

<u>Conclusion</u> : En tenant compte du faite que l'intensité de rayonnement laser n'excède pas 10^9 V/m, on peut conclure que les termes de développement (8) décroissent rapidement lorsque leur ordre augmente.

2/ Milieux non linéaire à centre de symétrie :

Pour les cristaux à centre de symétrie ainsi que pour les liquides et les gaz, le tenseur ψ est nul.

Par voie de conséquence :

* $-\psi_{ikj} = \psi_{ikj}$ ou autrement dit, $\psi_{ikj} = 0$

La non linéaire de ces milieux se détermine donc dans une première analyse au premier ordre par la susceptibilité cubique, d'où le nom de milieux non linéaire cubique isotropes l'équation (12) prend la forme :

$P = \alpha E + \theta E^2 E + \ldots \ldots$ (16)

VI- Susceptibilité non linéaire :

1/ Dispersion temporelle de la susceptibilité non linéaire :

Le processus d'établissement de la polarisation du milieu exige pour la réalisation un certain temps, cela signifie que la réponse d'un milieu à une action extérieure doit être en retard sur l'action. Plus exactement, la polarisation du milieu à un instant donné doit se déterminer par les valeurs de l'intensité de

chapitre à des instants précédents. Ceci signifie qu'au lieu de l'équation (9), on doit se servir de la relation suivante :

$$P_i = \sum_k \int_0^\infty \alpha_{ik}(\tau) E_k(t-\tau) d\tau \qquad (17)$$

Equation qui prend en considération la dispersion temporelle de la susceptibilité diélectrique.

La prise en compte de cette dispersion amène à une variation du tenseur de susceptibilité en fonction de la pulsation ω de l'onde lumineuse.

$$\omega \Rightarrow E$$

Si on utilise les composantes du transformé du Fourier des vecteurs P et E les vecteurs :

$$P(\omega) = \int P(t) \exp(-i\omega t) dt \qquad (18)$$

$$E(\omega) = \int E(t) \exp(-i\omega t) dt \qquad (19)$$

On obtient le résultat suivant :

$$P_i(\omega) = \sum_k \alpha_{ik}(\omega) E_k(\omega) \qquad (20)$$

Où

$$\alpha_{ik}(\omega) = \int \alpha_{ik}(\tau) \exp(-i\omega\tau) dt$$

2/ Dispersion de la susceptibilité non linéaire :

L'équation (10) valable pour la polarisation quadratique est remplacée, compte tenu de la dispersion par l'expression suivante :

$$P_{qi}(t) = \sum_k \sum_j \int_0^\infty \int \psi_{ikj}(\tau', \tau'') E_k(t-\tau') E_j(t-\tau'-\tau'') d\tau' d\tau''. \qquad (21)$$

En utilisant (comme dans le cas de la polarisation linéaire) les composants de Fourier des vecteurs polarisations et intensité de chapitre, on peut obtenir les relations suivantes :

$$P_{qi}(\omega_1 + \omega_2) = \sum_k \sum_j \psi_{ikj}(\omega_1 + \omega_2) E_k(\omega_1) E_j(\omega_2) \qquad (22)$$

$$P_{qi}(\omega_1 - \omega_2) = \sum_k \sum_j \psi_{ikj}(\omega_1 - \omega_2) E_k(\omega_1) E_j^*(\omega_2) \qquad (23)$$

(E* le conjugué de E).

Où : $\psi = \int_0^\infty \int \psi_{ijk}(\tau', \tau'') \exp[-i(\omega \pm \omega)\tau' \mp i\omega\tau'']d\tau' d\tau''$.

Chacune des composantes spectrales du tenseur ψ dépend de deux fréquences (ω_1 et ω_2) qui forment une certaine combinaison ($\omega_1 + \omega_2$ ou $\omega_1 - \omega_2$). C'est cette combinaison qui détermine la fréquence de l'onde de polarisation quadratique.

Notation :

$$\psi_{ikj}(\omega_1 \pm \omega_2 ; \omega_1, \omega_2)$$

Les composantes spectrales du tenseur dépendent de trois fréquences dont la combinaison détermine la fréquence de l'onde de polarisation indiquant à titre d'exemple la relation :

$$P_{ci}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3) = \sum_k \sum_j \sum_m \theta_{ikjm}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3) \text{ x } E_k(\omega_1) E_j(\omega_2) E_m(\omega_3) \qquad (24)$$

Les relations (21), (22) et 23) reflètent un fait d'importance fondamentale : la polarisation non linéaire du milieu est liée aux phénomènes d'interactions des ondes lumineuses. L'onde de polarisation quadratique est le résultat de l'interaction de deux ondes lumineuses. De telles interactions sont dites à trois fréquences.

Pc $\rightarrow$ résultat de l'interaction de trois ondes lumineuses est dites interactions à quatre fréquences.

3/ Propriétés de symétrie générales du tenseur de susceptibilités quadratique et cubique :

Le tenseur ψ est toujours symétrique par rapport à la permutation de deux derniers d'indices :

$$\psi_{ikj} = \psi_{ijk} \qquad (25)$$

De plus, en examinant les différentes composantes spectrales du tenseur ψ, on peut établir une relation de symétrie supplémentaire :

$$\psi_{ikj}(\omega_1 + \omega_2) = \psi_{kij}[(\omega_1 + \omega_2) - \omega_1] \qquad (26)$$

Pour $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ $\longrightarrow$ $\psi_{ikj}(2\omega) = \psi_{kij}(2\omega - \omega)$

Elle signifie que le tenseur ψ est symétrie par rapport à la permutation de deux premiers indices avec une modification simultanée correspondante de la combinaison de fréquence qui détermine la composante spectrale du tenseur. Cette relation est appelée relation de permutation de fréquence.

Dans le domaine de fréquence où la dispersion temporelle de la susceptibilité est suffisamment faible, le tenseur ψ est symétrie / aux permutations de trois indices. Dans ce cas on obtient des relations connues sous le nom de relation de Kleinman :

$$\psi_{ikj} = \psi_{kij} = \psi_{jki} = \psi_{ijk} = \psi_{kji} = \psi_{jik} \qquad (27)$$

Pour le tenseur θ est symétrie /aux permutations de trois derniers indices :

$$\theta_{ikjm} = \theta_{ikmj} = \theta_{ijkm} = \theta_{ijmk} = \theta_{imkj} = \theta_{imjk} \qquad (28)$$

Les relations de permutations de fréquence pour le tenseur θ sont :

$$\theta_{ikjm}(\omega_1+ \omega_1+ \omega_2) = \theta_{kijm}(\omega_1+ \omega_1-2(\omega_1+ \omega_2)) \qquad (29)$$

$$\theta_{ikjm}(\omega_1+ \omega_1- \omega_2) = \theta_{kijm}(\omega_2+ \omega_1-\omega_2) \qquad (30)$$

$$\theta_{ikjm}(\omega_1+ \omega_1+ \omega_2) = \theta_{kijm}(\omega_2- \omega_1+(2\omega_1- \omega_2)) \qquad (31)$$

$$\theta_{ikjm}(\omega_1+ \omega_1+ \omega_1) = \theta_{kijm}(\omega_1+ \omega_1+\omega_1-3\omega_1) \qquad (32)$$

A faible dispersions temporelle, le tenseur θ est symétrie par rapport aux permutations de tous les quatre indices.

4/ susceptibilités complexes :

La susceptibilité diélectrique d'un milieu dispersif est une grandeur complexe.

$$\tilde{\varepsilon} = \varepsilon + i\,\frac{4\pi\sigma}{\omega} \qquad \leftarrow \text{Permittivité complexe} \qquad (33).$$

$$\tilde{\alpha} = \alpha + i\,\frac{\sigma}{\omega} \quad \leftarrow \text{Susceptibilité complexe linéaire} \qquad (34)$$

où σ est la conductivité du milieu.

Remarque :

La conductivité du milieu est la cause qui fait apparaître une composante imaginaire dans les deux expressions précédentes.

Dans le cas général, les susceptibilités non linéaires, elles sont comme des grandeurs complexes :

$$\tilde{\psi} = \psi + i\,\mathrm{Im}\,\psi$$

$$\tilde{\theta} = \theta + i\,\mathrm{Im}\,\theta$$

Remarque : $\mathrm{Im}\,\tilde{\alpha} \langle\langle \alpha$; $\mathrm{Im}\,\tilde{\psi} \langle\langle \psi$ $\mathrm{Im}\,\tilde{\theta} \langle\langle \theta$

De plus,

$$\mathrm{Im}\,\tilde{\alpha} \approx \psi E \quad , \quad \mathrm{Im}\,\tilde{\psi} \approx \theta E$$

Une règle générale peut être énoncé :

- Aux effets liés à la composante imaginaire de la susceptibilité de $n^{ième}$ ordre sont du même ordre de grandeur que les effets dues à la composante réelle de la susceptibilité de $(n+1)^{ième}$ ordre.
- Les composantes réelles des susceptibilités d'ordres supérieurs sont responsables de la génération des harmoniques optiques supérieurs. De plus elles sont responsables de l'absorption multi photon de la lumière et de l'ionisation multi photon des atomes et de la dissociation des molécules.

Chapitre II :

Modèle semi classique de la réponse linéaire et non linéaire.

II-Susceptibilité linéaire et non linéaire : Théorie quantique

1/ Rappel :

a) Description par l'opérateur densité :

Dans les problèmes qui font intervenir un ensemble de particules, il est nécessaire d'utiliser le formalisme de la matrice densité, ceci est lié à un manque d'information pour décrire l'état quantique du système globale à l'instant initial.

Considérons un système quantique dans un état :

$$\left|\psi(t)\right\rangle = \sum_{n} C_n(t)\left|n\right\rangle \qquad (1)$$

Où $\{|n>\}$ forment une base complète.

Par définition, la valeur moyenne sur l'état $|\psi(t)>$ d'un opérateur A est :

$$\left\langle A\right\rangle = \left\langle \psi(t)\left|A\right|\psi(t)\right\rangle = \sum_{n,m} C_m^* C_n A_{mn} \qquad (2)$$

Où $A_{mn} = \left\langle m\left|A\right|n\right\rangle$

$$\left\langle A\right\rangle = \sum_{m,n} \left\langle \psi(t)\left|m\right\rangle\right\langle n\left|\psi(t)\right\rangle A_{mn} \qquad (3)$$

Il est donc naturel d'introduire l'opérateur densité $\psi(t)$ tel que :

$$\rho = \left|\psi(t)\right\rangle\left\langle\psi(t)\right| \qquad (4)$$

Dans la base $\left\{\left|n\right\rangle\right\}$ la matrice densité est représentée par une matrice appelée matrice densité, dont les éléments de matrice sont :

$$\rho_{nm} = \left\langle n\left|\rho\right|m\right\rangle = C_m^* C_n \qquad (5)$$

La valeur moyenne d'un opérateur s'exprime alors par la relation :

$$\left\langle A\right\rangle = \sum_{n,m} \rho_{nm} A_{nm} = \sum_{n} (\rho A)_n \qquad (6)$$

$$\left\langle A\right\rangle = \mathrm{Tr}(\rho A) \qquad (7)$$

Où Tr est trace de la matrice.

La relation (7) est indépendante de la base choisie au départ.

b- propriétés de la matrice densité :

$$\rho_{nm} = \rho^{*}_{mn} \qquad \Rightarrow \qquad \rho = \rho^{+} \tag{8}$$

L'opérateur densité est hermétique

$$\mathrm{Tr}\,(\rho) = \sum_{n} .\left|C_n(t)\right|^2 = 1 \text{ car } |\psi(t)> \text{ est normalisé} \tag{9}$$

La matrice densité vérifie l'équation d'évolution :

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [H,\rho] \tag{10}$$

Où H est l'Hamiltonien du système et [A,B] = AB – BA indique que le commutateur entre A et B.

Physiquement, les éléments diagonaux représentent les populations des niveaux d'énergie. Les éléments non diagonaux appelés les cohérence optiques. Ce sont ces dernières qui interviennent dans la polarisation macroscopiques induites dans le milieu.

2/ Formalisme :

a- Introduction :

Le problème de l'interaction entre le milieu rayonnement électromagnétique est en générale extrêmement complexe en raison de nombre considérable de degrés de libertés intervenant dans le matériau, en particulier dans le cas d'un solide ou liquide de dimensions macroscopiques. Nous serons donc contraints d'effectuer un certain nombre d'approximation.

- En premier lieu, on divisera le système en deux parties :

  - d'une part un système quantique comportant un faible nombre N de niveau d'énergie, et d'autre part, le reste du système appelé bain thermique.

  - de plus, nous supposons que seul le système à N niveaux est couplé au rayonnement, tandis que l'effet du bain thermique sera introduit dans des mécanismes de relaxation des populations et des cohérences du système quantique.

- Il existe diverses techniques plus au moins élaborées permettant de prendre en compte les mécanismes de relaxation résultant du couplage entre le système et le bain thermique. Nous nous limiterons à la technique la plus simple à savoir l'équation de Block. Cette approche permet de saisir l'essentiel des mécanismes physique intervenant en optique non linéaire.

b/ Equation de Block :

L'évolution du système, en présence d'un champ électromagnétique, s'écrira :

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [H, \rho] + i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t})_{relax} \qquad (11)$$

L'Hamiltonien du système en interaction avec la lumière s'écrit :

$$H = H_0 + H_i \qquad (12)$$

Où Ho est l'Hamiltonien non perturbé avec les vecteurs propres |n> et les valeurs propres E_n

$[(H_0|n\rangle);\ \text{avec}\ E_n = \hbar\omega]$ et, H_i est l'Hamiltonien d'interaction dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique,

Où $H_i(t) = -\mu E(t)$; $\mu = -er$ est l'opérateur moment dipolaire.

En tenant compte du couplage du système avec le faisceau lumineux, l'équation de Block devient alors :

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [H_o\ ,\ \rho] + [H_i\ ,\ \rho] + i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t})_{relax} \qquad (13)$$

Le dernier terme de l'équation (13) correspond à la relaxation du système résultant de l'interaction avec le bain. L'équation (13) peut se résoudre de manière perturbative par rapport à l'Hamiltonien d'interaction :

- Ordre 0 :

$$i\hbar \frac{\partial \rho^{(o)}}{\partial t} = [H_o\ ,\ \rho^{(o)}] + i\hbar \frac{\partial \rho^{(o)}}{\partial t})_{relax} \qquad (14)$$

C'est l'équation thermique.

- <u>ordre 1</u> :

$$i\hbar \frac{\partial \rho^{(1)}}{\partial t} = [H_o\ ,\ \rho^{(1)}] + [H_i\ ,\ \rho^{(o)}] + i\hbar \frac{\partial \rho^{(1)}}{\partial t})_{relax} \qquad (15)$$

- <u>ordre 2 :</u>

$$i\hbar \frac{\partial \rho^{(2)}}{\partial t} = [H_o\ ,\ \rho^{(2)}] + [H_i\ ,\rho^{(1)}] + i\hbar \frac{\partial \rho^{(2)}}{\partial t})_{relax} \qquad (16)$$

On a donc :

$\rho = \rho^{(o)} + \rho^{(1)} + \rho^{(2)} + \ldots\ldots$

Connaissant ρ, on peut déduire la valeur moyenne de n'importe quelle observable. En particulier, on peut calculer la valeur moyenne du moment dipolaire et en déduire les polarisabilités d'ordre 1,2, etc…. Ces dernières permettent de déterminer les susceptibilités linéaires et non linéaires.

3/ Calcul des cohérences :

Les éléments non diagonaux de ρ sont appelés cohérence. Ces dernières permettent de déterminer les polarisations linéaires et non linéaires.

- A l'ordre 0 :

C'est l'équilibre thermique : les cohérences sont nulles :

$$\langle n|\ \rho^{(0)}|m\rangle = \rho_{nm}^{(0)}\delta_{nm} \qquad (17)$$

$\rho_{nm}^{(o)}$ correspond à la valeur d'équilibre de l'opérateur densité dont tous les termes non diagonaux sont nuls.

- A l'ordre 1 :

Il s'agit de résoudre :

$$i\hbar\frac{\partial\rho^{(1)}}{\partial t} = \left[H_0,\rho^{(1)}\right] + \left[H_i,\rho^{(0)}\right] + i\hbar\frac{\partial\rho^{(1)}}{\partial t}\Bigg)_{relax} \qquad (18)$$

Les relaxations sont pris en compte sous forme :

$$\langle n|\ \frac{\partial\rho}{\partial t}\ |m\rangle = -\Gamma_{nm}\rho_{nm} \qquad (19)$$

Où Γ_{nm} est le taux de relaxation. Il correspond à un taux de déphasage $(\frac{1}{T_2})$ lorsque $n \neq m$ et à un taux de relaxation de la population $(\frac{1}{T_1})$ lorsque n=m.

Remarque :

Cette expression simplifiée des termes de relaxation néglige en particulier les transferts de population entre niveaux.

Ecrivons les éléments de matrice de cette expression (18) tout d'abord, les éléments de matrice des deux commutateurs s'écrivent :

$$\begin{aligned}\langle n|\ \left[H_0,\rho^{(1)}\right]\ |m\rangle &= \langle n|\ H_0\rho^{(1)} - \rho^{(1)}H_0\ |m\rangle \\ &= \langle n|\ \hbar\omega_n\rho^{(1)} - \rho^{(1)}\hbar\omega_m\ |m\rangle \\ &= \hbar\omega_{nm}\rho_{nm}^{(1)}\end{aligned}$$

$$\langle n|\ [H_i,\rho^{(0)}]\ |m\rangle = \langle n|\ H_i\rho^{(0)} - \rho^{(0)}H_i\ |m\rangle$$
$$= \sum_l \left[(H_i)_{nl}\rho^{(0)}_{lm} - \rho^{(0)}_{nl}(H_i)_{lm}\right]$$
$$= \langle n|H_i|m\rangle(\rho^{(0)}_{mm} - \rho^{(0)}_{nn})$$

D'où :

$$\frac{\partial\rho^{(1)}}{\partial t} = -i\omega_{nm}\rho^{(1)}_{nm} + \frac{1}{i\hbar}\langle n|H_i|m\rangle\left(\rho^{(0)}_{mm} - \rho^{(0)}_{nn}\right) - \Gamma_{nm}\rho^{(1)}_{nm} \qquad (20)$$

Où : $\omega_{nm} = \frac{E_n - E_m}{\hbar}$ sont les fréquences de transition du milieu considéré.

On considère un champ incident de la forme :

$$E = A_k \exp(k_k r - \omega_k t) \qquad (21)$$

De même l'Hamiltonien d'interaction s'exprime alors :

$$H_i = -\mu E = H(\omega_k) \qquad (22)$$

Comme $\rho^{(1)}$ est identique à celle du terme source (l'Hamiltonien d'interaction)

$$\rho^{(1)} = \rho^{(1)}(\omega_k) \qquad (23)$$

Ceci implique qu'on doit chercher une solution forcée induite par le champ à la fréquence ω_k :

$$\rho^{(1)} = e^{-i\omega_k t} \qquad (24)$$

En reportant (24) dans (20), on trouve :

$$(-i\omega_k + i\omega_{nm} + \Gamma_{nm})\rho^{(1)}_{nm}(\omega_k) = \frac{1}{i\hbar}\langle n|H_i(\omega_k)|m\rangle\left(\rho^{(0)}_{mm} - \rho^{(0)}_{nn}\right)$$

D'où on obtient :

$$\rho^{(1)}_{nm}(\omega_k) = \frac{\langle n|H_i(\omega_k)|m\rangle}{\hbar(\omega_k - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm})}\left(\rho^{(0)}_{mm} - \rho^{(0)}_{nn}\right) \qquad (25)$$

L'élément de matrice de l'Hamiltonien d'interaction s'écrit :

$$\langle n|\ H(\omega_k)\ |m\rangle = \langle n|\ -\mu E(\omega_k)\ |m\rangle$$
$$= e\langle n|\ rE(\omega_k)\ |m\rangle$$
$$= e\sum_\alpha \langle n|\ r_\alpha\ |m\rangle E_\alpha(\omega_k)$$
$$= e\sum_\alpha (r_\alpha)_{nm} E_\alpha(\omega_k) \qquad (26)$$

Où r_α prend les valeurs x, y, ou z et E_z est la projection du champ selon l'axe r_α.

L'expression finale de l'élément de la matrice de la cohérence du 1er ordre induite à la fréquence ω_k est :

$$\rho_{nm}^{(1)}(\omega_k) = \frac{e}{\hbar}\sum_{\alpha}\frac{(r_\alpha)_{nm}E_\alpha(\omega_k)}{\hbar(\omega_k - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm})}\left(\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}\right) \quad (27)$$

- <u>l'ordre 2 **:**</u>

A l'ordre 2, il intervient des produits E_jE_k oscillant à la fréquence $\omega_j + \omega_k$ qui proviennent du produit de l'Hamiltonien d'interaction avec la cohérence du 1er ordre. On est donc naturellement conduit à décomposer la cohérence du second ordre sous la forme :

$$\rho^{(2)} = \rho^{(2)}(\omega_j + \omega_k) \quad (28)$$

Les éléments de matrice $\rho^{(2)}$ vérifient l'équation

$$\frac{\partial\rho_{nm}^{(2)}(\omega_j + \omega_k)}{\partial t} = -i\omega_{nm}\rho_{nm}^{(2)}(\omega_j + \omega_k) - \Gamma_{nm}\rho_{nm}^{(2)}(\omega_j + \omega_k) + \frac{1}{i\hbar}\left\{\left\langle n\left|\left[H_i(\omega_j), \rho^{(1)}(\omega_k)\right]\right|m\right\rangle + \left\langle n\left|\left[H_i(\omega_k), \rho^{(1)}(\omega_j)\right]\right|m\right\rangle\right\}$$

Où l'on tient compte de tous les termes sources oscillant à la fréquence $\omega_j+\omega_k$.

Les éléments de matrice $\rho^{(2)}$ vérifient l'équation :

$$\frac{\partial\rho_{nm}^{(2)}(\omega_j + \omega_k)}{\partial t} = -i\omega_{nm}\rho_{nm}^{(2)}(\omega_j + \omega_k) - \Gamma_{nm}\rho_{nm}^{(2)}(\omega_j + \omega_k) + \frac{1}{i\hbar}\left\{\left\langle n\left|\left[H_i(\omega_j), \rho^{(1)}(\omega_k)\right]\right|m\right\rangle + \left\langle n\left|\left[H_i(\omega_k), \rho^{(1)}(\omega_j)\right]\right|m\right\rangle\right\} \quad (29)$$

On cherche une solution forcée induite à la fréquence

$$\rho^{(2)}(\omega_j + \omega_k) = \exp -(\omega_j + \omega_k)t \quad (30)$$

D'où :

$$\rho_{nm}^{(2)}(\omega_j + \omega_k) = \frac{\left\langle n\left|\left[H_i(\omega_j), \rho^{(1)}(\omega_k)\right]\right|m\right\rangle + \left\langle n\left|\left[H_i(\omega_k), \rho^{(1)}(\omega_j)\right]\right|m\right\rangle}{\hbar(\omega_j + \omega_k - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm})} \quad (31)$$

$$\rho_{nm}^{(2)}(\omega_j + \omega_k) = \frac{1}{\hbar(\omega_j + \omega_k - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm})} \times \sum\begin{bmatrix}\left\langle n\left|H_i(\omega_j)\right|l\right\rangle\left\langle l\left|\rho^{(1)}(\omega_k)\right|m\right\rangle - \\ \left\langle n\left|\rho^{(1)}(\omega_k)\right|l\right\rangle\left\langle l\left|H_i(\omega_j)\right|m\right\rangle + \\ \left\langle n\left|H_i(\omega_k)\right|l\right\rangle\left\langle l\left|\rho^{(1)}(\omega_j)\right|m\right\rangle - \\ \left\langle n\left|\rho^{(1)}(\omega_j)\right|l\right\rangle\left\langle l\left|H_i(\omega_k)\right|m\right\rangle\end{bmatrix} \quad (32)$$

On remplace les éléments de matrice de l'Hamiltonien d'interaction et de la cohérence du 1èr ordre finalement :

$$\rho_{nm}^{(2)}(\omega_j+\omega_k)=\frac{e^2}{\hbar^2}\frac{1}{(\omega_j+\omega_k-\omega_{nm}+i\Gamma_{nm})}\times$$

$$\sum_{\beta,\gamma}\sum_{l}\left[\begin{array}{l}\dfrac{(r_\beta)_{nl}(r_\gamma)_{lm}}{\hbar(\omega_l-\omega_{lm}+i\Gamma_{lm})}\left(\rho_{mm}^{(0)}-\rho_{ll}^{(0)}\right)-\\ \dfrac{(r_\gamma)_{nl}(r_\beta)_{lm}}{\hbar(\omega_k-\omega_{nl}+i\Gamma_{nl})}\left(\rho_{ll}^{(0)}-\rho_{nn}^{(0)}\right)+\\ \dfrac{(r_\gamma)_{nl}(r_\beta)_{lm}}{\hbar(\omega_j-\omega_{lm}+i\Gamma_{lm})}\left(\rho_{mm}^{(0)}-\rho_{ll}^{(0)}\right)-\\ \dfrac{(r_\beta)_{nl}(r_\gamma)_{lm}}{\hbar(\omega_j-\omega_{nl}+i\Gamma_{nl})}\left(\rho_{ll}^{(0)}-\rho_{nn}^{(0)}\right)\end{array}\right]E_\beta(\omega_j)E_\gamma(\omega_l) \qquad (33)$$

4/ Calcul des polarisations :

La polarisation macroscopique à l'ordre m est :

$$P^m(\omega)=N\langle\mu\rangle=NTr\left(\rho^m\mu\right)$$

$$=N\sum_{n,l}\rho_{nl}^m\mu_{ln} \qquad (34)$$

En projetant suivant l'axe r_α on a :

$$P_\alpha^m(\omega)=-Ne\sum_{n,l}\rho_{nl}^m(r_\alpha)_{ln} \qquad (35)$$

- <u>ordre 1</u> :

La relation (35) à l'ordre (1) conduit à :

$$P_\alpha^{(1)}(\omega)=\frac{-Ne^2}{\hbar}\sum_{n,l}\sum_{\beta}\frac{(r_\beta)_{nl}(r_\alpha)_{ln}}{\hbar(\omega-\omega_{nl}+i\Gamma_{nl})}\left(\rho_{ll}^{(0)}-\rho_{nn}^{(0)}\right)E_\beta(\omega) \qquad (36)$$

D'autre part la polarisation est donnée par la relation suivante :

$$P_\alpha^{(1)}(\omega)=\varepsilon_0\sum_{\beta}\psi_{\alpha\beta}^{(1)}(\omega)E_\beta(\omega) \qquad (37)$$

Par identification, on déduit toutes les composantes du tenseur de susceptibilité linéaire :

$$\psi_{\alpha\beta}^{(1)}(\omega)=\frac{-Ne^2}{\hbar\varepsilon_0}\sum_{n,l}\frac{(r_\beta)_{nl}(r_\alpha)_{ln}}{\hbar(\omega-\omega_{nl}+i\Gamma_{nl})}\left(\rho_{ll}^{(0)}-\rho_{nn}^{(0)}\right) \qquad (38)$$

Cette relation décrit toutes les propriétés d'anisotropie linéaires.

Pour un système à deux niveaux (|a> , |b>), on retrouve la formule habituelle :

$$\psi^{(1)}_{\alpha\beta}(\omega) = \frac{-\mathrm{Ne}^2}{\hbar\varepsilon_0}\frac{(r_\beta)_{ab}(r_\alpha)_{ba}}{\hbar(\omega-\omega_0+i\Gamma)}\left(\rho^{(0)}_{bb}-\rho^{(0)}_{aa}\right) \qquad (39)^*$$

- ordre 2 :

La relation (35) à l'ordre (2) s'écrit :

$$P^{(2)}_\alpha(\omega_j+\omega_k) = -\mathrm{Ne}\sum_\beta \psi^{(2)}_{nl}(\omega_j+\omega_k)(r_\alpha)_{ln} \qquad (40)$$

La cohérence du second d'ordre étant connue, on peut identifier avec la relation générale :

$$P^{(2)}_\alpha(\omega_j+\omega_k) = \varepsilon_0\sum_{\beta,\gamma}\psi^{(2)}_{\alpha\beta\gamma}(\omega_j+\omega_k)(E_\beta(\omega_j)E_\gamma(\omega_k))_{ln} \qquad (41)$$

D'où les composantes du tenseur de susceptibilité du second ordre :

$$\psi^{(2)}_{\alpha\beta\gamma}(\omega=\omega_j+\omega_k) = \frac{\mathrm{Ne}^2}{\varepsilon_0\hbar^2}\frac{1}{(\omega_j+\omega_k-\omega_{nm}+i\Gamma_{nm})}\times \sum_{n,l}\left[\begin{array}{l} \frac{(r_\beta)_{nl}(r_\gamma)_{lm}}{\hbar(\omega_k-\omega_{lm}+i\Gamma_{lm})}\left(\rho^{(0)}_{mm}-\rho^{(0)}_{ll}\right)- \\ \frac{(r_\gamma)_{nl}(r_\beta)_{lm}}{\hbar(\omega_k-\omega_{nl}+i\Gamma_{nl})}\left(\rho^{(0)}_{ll}-\rho^{(0)}_{nn}\right)+ \\ \frac{(r_\gamma)_{nl}(r_\beta)_{lm}}{\hbar(\omega_j-\omega_{lm}+i\Gamma_{lm})}\left(\rho^{(0)}_{mm}-\rho^{(0)}_{ll}\right)- \\ \frac{(r_\beta)_{nl}(r_\gamma)_{lm}}{\hbar(\omega_j-\omega_{nl}+i\Gamma_{nl})}\left(\rho^{(0)}_{ll}-\rho^{(0)}_{nn}\right) \end{array}\right] E_\beta(\omega_j)E_\gamma(\omega_l) \qquad (42)$$

Il apparaît clairement dans les relations (38) et (42) que les effets linéaires et non linéaires sont exaltés prés d'une résonance atomique (cela varie à tous les ordres).

III- Equation de propagation non linéaire :

Nous venons de voir que la mécanique quantique, permet de calculer la réponse du milieu à une excitation d'origine électromagnétique. Cette réponse (la polarisation) constitue une source qui à son tour, va rayonner un champ électromagnétique. Le problème de rayonnement peut être complètement résolu à l'aide des équations de Maxwell pourvue que l'on connaisse le terme source :

1- Equation d'onde pour un milieu à polarisation non linéaire :

Dans la suite, on suppose le milieu non magnétique (où les densités de charges et de courant macroscopique sont nulles ce qui est très généralement le

cas en optique) et l'on s'intéresse tout d'abord au cas ou l'enveloppe du champ ne dépend pas du temps.

Les équations de Maxwell s'écrivent :

$$\left.\begin{aligned}\nabla \wedge \mathrm{E} &= -\frac{\partial \mathrm{B}}{\partial \mathrm{t}} \\ \nabla \wedge \mathrm{B} &= \mu_0 \frac{\partial \mathrm{D}}{\partial \mathrm{t}}\end{aligned}\right\} \qquad (43)$$

$$\nabla \cdot \mathrm{D} = \nabla \cdot \mathrm{B} = 0 \qquad (44)$$

$$((\nabla \wedge \ = \mathrm{rot} \quad , \quad \nabla \cdot \ = \mathrm{div}))$$

D'autre part :

$$\mathrm{D} = \varepsilon_0 \mathrm{E} + \mathrm{P} \qquad (45)$$

En combinant les relations (43) et (45), on abouti à l'équation de propagation pour le champ électrique.

$$\nabla \wedge \nabla \wedge \mathrm{E} + \frac{1}{\mathrm{c}^2}\frac{\partial^2 \mathrm{E}}{\partial \mathrm{t}^2} = -\frac{1}{\varepsilon_0 \mathrm{c}^2}\frac{\partial^2 \mathrm{P}}{\partial \mathrm{t}^2} \qquad (46)$$

On suppose que le champ électrique est la superposition d'ondes planes monochromatiques :

$$\mathrm{E} = \sum_{\mathrm{n}=1}^{\mathrm{N}} \mathrm{E}_\mathrm{n}(\mathrm{k}_\mathrm{n}, \omega_\mathrm{n}) \qquad (47)$$

Où la somme s'étend non seulement aux ondes incidentes mais également à l'ensemble des ondes générées dans le milieu non linéaire par la polarisation induite.

Généralement, la polarisation induite dans le milieu contient une partie linéaire (ordre 1) et une partie non linéaire :

$$\mathrm{P} = \mathrm{P}^{(1)} + \mathrm{P}^{\mathrm{NL}} \qquad (48)$$

Le spectre de Fourier de la polarisation ($\forall$ l'ordre) est le même que celui du champ total dans la mesure où ce dernier prend en compte toutes les ondes présentées dans le milieu non linéaire. Les polarisations linéaires peuvent être de composées en somme de Fourier.

$$\mathrm{P}^{(1)}(\mathrm{r},\mathrm{t}) = \sum_{\mathrm{l}=1}^{\mathrm{N}} \mathrm{P}_\mathrm{l}^{(1)}(\mathrm{k}_1, \omega_1) = \varepsilon_0 \sum_{\mathrm{k}=1}^{\mathrm{N}} \psi^{(1)}(\omega_1)\mathrm{E}_\mathrm{k}(\mathrm{k}_1, \omega_1) \qquad (49)$$

$$\mathrm{P}^{\mathrm{NL}}(\mathrm{r},\mathrm{t}) = \sum_{\mathrm{n}>1} \mathrm{P}^{(\mathrm{n})}(\mathrm{r},\mathrm{t}) = \sum_{\mathrm{m}=1}^{\mathrm{N}} \mathrm{P}_\mathrm{m}^{\mathrm{NL}}(\mathrm{k}_\mathrm{m}^{\mathrm{NL}}, \omega_\mathrm{m}) \qquad (50)$$

En tenant compte de (46), (49) et (50), l'équation de propagation du champ devient :

$$\sum_{n=1}^{N}\left[\nabla\wedge\nabla\wedge E_n-\frac{\omega_n^2}{c^2}E_n\right]=\frac{1}{\varepsilon_0 c^2}\sum_{l=1}^{N}\omega_l^2 P_l^{(1)}+\frac{1}{\varepsilon_0 c^2}\sum_{m=1}^{N}\omega_m^2 P_m^{NL} \qquad (51)$$

$$\sum_{n=1}^{N}\left[\nabla\wedge\nabla\wedge E_n-\frac{\omega_n^2}{c^2}(1+\psi^{(1)}(\omega_n))E_n-\frac{1}{\varepsilon_0 c^2}\omega_n^2 P_n^{NL}\right]=0 \qquad (52)$$

L'équation (52) doit être valable quelque soit t, il en résulte que chaque terme de la somme de Fourier doit être nul.

Pour chaque fréquence présente dans le milieu, on pourra donc écrire une équation de type :

$$\left[\nabla\wedge\nabla\wedge\ -\frac{\omega^2}{c^2}\varepsilon_r(\omega)\right]E(k,\omega)=\frac{1}{\varepsilon_0 c^2}\omega^2 P^{NL}(k^{NL},\omega) \qquad (53)$$

P^{NL} contient tous les termes non linéaire oscillant à la fréquence ω ;

- Par exemple, considérons la génération de la fréquence somme $\omega_3=\omega_2+\omega_1$

Dans ce cas, $P^{NL}(k^{NL}, \omega) = P^{(2)}(k^{NL}, \omega)$.

Où $\omega=\left\{\omega_1+\omega_2,\ \omega_3-\omega_2,\ \omega_3-\omega_1\right\}$

Chaque champ vérifie l'équation (53), on obtient ainsi trois équations couplées par l'intermédiaire de la polarisation non linéaire. La propagation de ces ondes se trouve profondément modifiée par rapport au cas linéaire, les couplages introduits par la non linéarité peuvent conduire à des échanges d'énergies entre les trois ondes.

2- Approximation des enveloppes lentement variables :

En général, on ne peut pas résoudre l'équation (53), c'est pourquoi nous allons faire un certain nombre d'hypothèses conduisant à des simplifications qui permettent de résoudre analytiquement (ou numériquement) l'équation de propagation.

Nous supposons que :

- toutes les ondes se propagent suivant une direction moyenne OZ,
- le milieu est isotope de telle sorte que la constante diélectrique est une constante,

- le champ et les polarisations sont la même direction, on se ramène donc à un problème scalaire.

Dans ces constantes, on néglige le premier terme du second membre de la transformation suivante :

$$\nabla \wedge \nabla \wedge \mathrm{E} = \nabla(\nabla \cdot \mathrm{E}) - \Delta \mathrm{E} \qquad (54)$$

d'où l'équation de propagation du champ électrique s'écrit :

$$\left[\Delta + \frac{\omega^2}{c^2}\varepsilon_r(\omega)\right]\mathrm{E} = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2}\omega^2 \mathrm{P}^{\mathrm{NL}} \qquad (55)$$

on pose :

$$\mathrm{E} = \mathrm{A}(z)e^{i(kz-\omega t)} + cc$$

$$\mathrm{P}^{\mathrm{NL}} = \mathrm{P}^{\mathrm{NL}} e^{i(k^{\mathrm{NL}} z-\omega t)} + cc$$

Où A et P^{NL} sont les amplitudes lentement variable du champ et de la polarisation respectivement.

L'équation (55) devient :

$$\frac{\partial^2 \mathrm{A}}{\partial z^2} + 2ik\frac{\partial \mathrm{A}}{\partial z} - k^2 \mathrm{A} + \varepsilon\frac{\omega^2}{c^2}\mathrm{A} = \frac{-\omega^2}{\varepsilon_0 c^2}\mathrm{P}^{\mathrm{NL}} e^{i\Delta kz} \qquad (56)$$

($k^2 A + \varepsilon\frac{\omega^2}{c^2}A \rightarrow 0$)

avec :

$$\Delta\kappa = k^{\mathrm{NL}} - k, \qquad \kappa^2 = \varepsilon\frac{\omega^2}{c^2} = n^2\frac{\omega^2}{c^2}\cdot \qquad (\lambda = 2\pi\frac{c}{\omega})$$

Δk appelé le désaccord de phase ou bine la désadaptation des vitesses de phase. Ce désaccord provient du fait que le vecteur d'onde associé à la polarisation non linéaire des vecteurs d'ondes des champs électriques intervenant dans son expression. Ce vecteur d'onde résultant est en général, différent de celui associé au champ rayonné par cette même polarisation qui est donné par la relation habituelle faisant intervenir l'indice à la fréquence considérée.

<u>A titre d'exemple</u> :

Considérons le problème de la génération de la seconde harmonique. La polarisation non linéaire rayonnant le champ à 2ω est proportionnelle au carré du champ fondamental.

$$\mathrm{P}^2(2\omega) = \varepsilon_0 \psi^{(2)} \mathrm{E}(\omega)\mathrm{E}(\omega)$$

Le vecteur d'onde associé est donc :

$$k^{NL} = 2k_\omega = 2n_\omega \frac{\omega}{c}\cdot$$

Par ailleurs, le vecteur d'onde du champ rayonné à 2ω est :

$$k_{2\omega} = \frac{n_{2\omega} 2\omega}{c}\cdot$$

Le désaccord de phase vaut donc :

$$\Delta\kappa = \frac{2\omega}{c}(n_{2\omega} - n_\omega)$$

et qui est différent de 0 puisque en générale, l'indice croît avec la fréquence.

L'approximation des enveloppes lentement variable consiste a supposé que les enveloppes varient peu sur une longueur d'onde. Mathématiquement cela se traduit par :

$$\left|\frac{\partial^2 A}{\partial z^2}\right| << \left|2k\frac{\partial A}{\partial z}\right|$$

On peut ainsi négliger la dérivée seconde dans l'équation de propagation. D'où :

$$\frac{\partial A}{\partial z} = \frac{i\omega}{2nc\varepsilon_0} P^{NL} e^{i\Delta kz} \qquad (57)$$

Dans le cas dépendant du temps (propagation d'impulsion), les enveloppes sont lentement variable en Z et en t :

$$\left|\frac{\partial^2 A}{\partial z^2}\right| << \left|2k\frac{\partial A}{\partial z}\right| \quad \text{de même :} \quad \left|\frac{\partial^2 A}{\partial t^2}\right| << \left|2\omega\frac{\partial A}{\partial t}\right|.$$

L'équation de propagation devient :

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_g}\frac{\partial}{\partial t}\right) A(z,t) = \frac{i\omega}{2nc\varepsilon_0} P^{NL}(z,t) e^{i\Delta kz} \qquad (58)$$

où v_g est la vitesse du groupe.

Les équations (57) et (58) constituent les équations fondamentales de l'optique non linéaire.

Chapitre III :

Quelques phénomènes d'optique Non linéaire

IV- Classification des non linéarité :

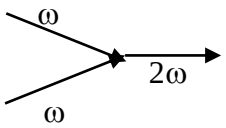
1/ Terme du 1er ordre :

$\psi^{(1)}$ est un tenseur du second ordre et il correspond aux propriétés optiques linéaire : Indice de réfraction, absorption, gain, biréfringence. Ce terme ne permet pas de coupler les ondes. Il en résulte que deux ondes se propagent sans influence naturelle.

2/ Terme du deuxième ordre :

Le $\psi^{(2)}$ est responsable de tous les effets du second ordre. On notera dans la suite, $\psi^{(2)}(\omega, \omega_1, \omega_2)$ la susceptibilité associé à la polarisation oscillant à la fréquence $\omega = \omega_1 + \omega_2$, où ω_1 et ω_2 sont les fréquences de champs permettant de créer la polarisation non linéaire.

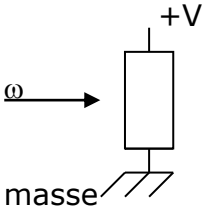
- Génération de la seconde harmonique :$\psi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega)$



Absorption virtuelle de deux photons à la fréquence ω et émission d'un photon à 2ω.

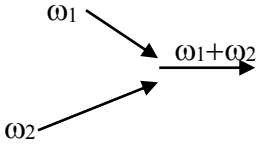
Application : Lasers doublés en fréquence, auto corrélations optiques.

- Rectification optique : $\psi^{(2)}(0 ; \omega, -\omega)$



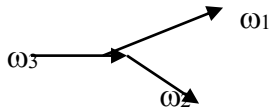
C'est la génération d'une différence de potentiel aux bornes d'un milieu non linéaire sous l'action d'un champ électromagnétique intense.

- Génération de la fréquence somme : :$\psi^{(2)}(\omega_1+\omega_2, \omega_1, \omega_2)$



Absorption virtuelle d'un photon à la fréquence ω_1 et d'un photon à la fréquence ω_2 et émission d'un photon $\omega_1+\omega_2$

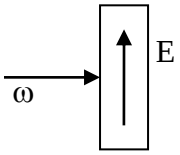
- Amplification paramétrique : $\psi^{(2)}(\omega_3 ; \omega_1, \omega_3 - \omega_1)$



C'est pratiquement le processus inverse de la génération de la fréquence somme.
Les fréquences sont telles que : $\omega_3 = \omega_1+\omega_2$

Applications : amplificateurs et oscillateurs paramétriques accordables en fréquence.

- Effet Pockels : $\psi^{(2)}(\omega , \omega , 0)$



C'est le couplage entre un champ E.O.M et un champ électrique continu (effet électro-optique linéaire).

Le tableau ci-dessous fait l'inventaire des principaux processus non linéaires du deuxième ordre (les fréquences sont ici supposées toutes positives).

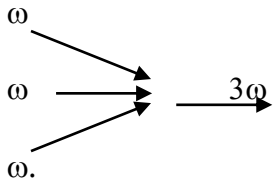
$\chi^{(2)}(-2\omega;\omega,\omega)$	Doublage de fréquence
$\chi^{(2)}(-\omega_1-\omega_2;\omega_1,\omega_2)$	Somme de fréquences
$\chi^{(2)}(-(\omega_1-\omega_2);\omega_1,-\omega_2)$	Différence de fréquences
$\chi^{(2)}(0;\omega,-\omega)$	Redressement optique
$\chi^{(2)}(-\omega;\omega,0)$	Effet électro-optique

Applications : modulation rapide de la lumière.

3/ Terme du troisième ordre :

Ces non linéarités se manifestent indépendamment de la symétrie d'inversion : $\psi^{(3)}$ est un tenseur d'ordre 4.

- Génération de la troisième harmonique : :$\psi^{(3)}((3\omega , \omega, \omega, \omega)$



Absorption virtuelle de trois photons de fréquence ω et émission d'un photon à 3ω

Applications : Laser dans le domaine UV proche.

- Effet Kerr optique : :$\mathrm{Re}\psi^{(3)}(\omega , \omega, -\omega, \omega)$

E, ω ⟶ $\Delta n = n_2 |E|^2$

C'est la modification par une onde lumineuse intense, des propriétés optiques d'un milieu non linéaire (variation d'indice photo induite, biréfringence photo induite).

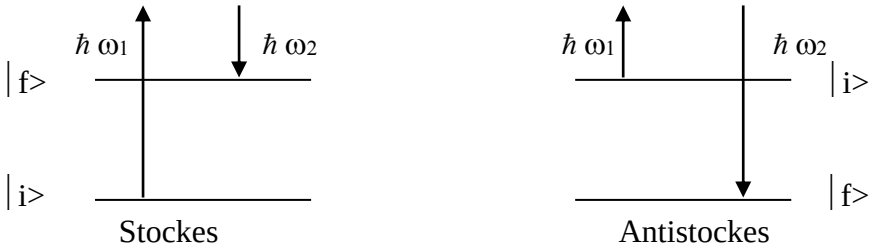
Applications : Conjugaison de phase, bistabilité optique,

- Effet Kerr : $\mathrm{Re}\psi^{(3)}(\omega, \omega, 0, 0)$

C'est le couplage d'une onde électromagnétique avec un champ continu (effet électro-optique).

Applications : modulation de la lumière.

- Diffusion Raman stimulée : $\psi^{(3)}(\omega\pm\Omega, \omega, -\omega, \omega\pm\Omega)$



Destruction d'un photon à la fréquence ω et création d'un photon à la fréquence $\omega\pm\Omega$ alors que le milieu subit une transition du niveau |i> vers le niveau |f>.

$\hbar\Omega$ correspond à l'énergie d'une transition vibrationnelle

Applications : amplificateurs et lasers Raman, diagnostic laser.

- Diffusion Brillouin stimulée : $\psi^{(3)}(\omega\pm\Omega, \omega, -\omega, \omega\pm\Omega)$

$\hbar\Omega$ correspond à l'énergie d'un phonon, la diffusion Brillouin est un processus de couplage paramétrique entre une onde optique et une onde acoustique.

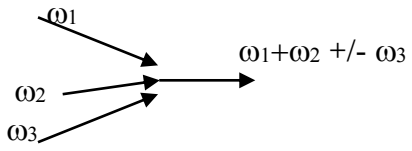
Applications : Amplificateurs et Laser Brillouin

- Absorption à deux photons : $\mathrm{Im}\psi^{(3)}(\omega, \omega, -\omega, \omega)$

C'est un processus résonnant à deux photons.

Applications : spectroscopie.

- Mélange à quatre ondes non dégénérée en fréquence : $\psi^{(3)}(\omega_1+\omega_2\pm\omega_3, \omega 1, \omega_2, \pm\omega_3)$



Applications : conjugaison de phase.

Remarque : La liste des processus non linéaire décrit ci-dessus est loin d'être exhaustive. Soulignons d'ores et déjà que les effets non linéaires peuvent être exaltés prés d'une résonance du milieu considéré (par exemple la fréquence plasma dans le cas d'un plasma, ou bien une résonance atomique). Dans le cas résonant, le développement de la polarisation en série de puissances du champ électrique peut ne pas converger, dans ce cas, il faut résoudre les équations du milieu de manière exacte (non perturbative).

II- Processus du deuxième ordre :

1/ Génération de la fréquence somme :

Son interprétation physique est la suivante : Deux ondes de fréquences ω_1 et ω_2 interagissent dans un milieu non linéaire et génèrent une polarisation non linéaire $P^{(2)}(\omega_3=\omega_1+\omega_2.)$.

- Cette polarisation somme va rayonner, en général, de manière isotrope dans toutes les directions.
- Cependant, une direction peut être privilégiée : la direction pour laquelle on a l'adaptation de phase. En effet, pour avoir un transfert d'énergie efficace des ondes pompes de fréquence ω_1 et ω_2 vers ω_3, on doit avoir simultanément conservation d'énergie $\omega_3=\omega_1+\omega_2$ et des moments $k_3=k_1+k_2$. Cette dernière relation montre que l'onde somme est rayonnée efficacement dans la direction où l'on a l'accord de phase.
- Si l'accord des vitesses de phase, ne peut pas être réalisé, la direction préférentielle, sera celle qui minimise de désaccord.

a/ Relations de Manley-Rowe :

- A_1, A_2 et A_3 sont les amplitudes lentement variables de trois ondes planes se propagent suivant oz, de fréquences ω_1, ω_2 et ω_3, tq $\omega_3=\omega_1+\omega_2$
- Echanges d'énergies se font entre les ondes seules
- On suppose les trois polarisations sont identiques (problème scalaire).

Pour chacune de ces amplitudes. L'équation de propagation est de la forme :

$$\frac{\partial A_n}{\partial z} = \frac{i\omega_n}{2n_n c\varepsilon_0} P^{NL}(\omega_n) e^{-ik_n z} \qquad (1)$$

$$\text{Avec} \begin{cases} P^{NL}(\omega_1) = \varepsilon_0 \psi^{(2)}(\omega_3, -\omega_2) A_3 A_2^* e^{i(k_3-k_2)z} \\ P^{NL}(\omega_2) = \varepsilon_0 \psi^{(2)}(\omega_3, -\omega_1) A_3 A_1^* e^{i(k_3-k_1)z} \\ P^{NL}(\omega_3) = \varepsilon_0 \psi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) A_1 A_2 e^{i(k_1-k_2)z} \end{cases}$$

D'où :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial A_1}{\partial z} = \dfrac{i\omega_1}{2n_1 c}\psi^{(2)}(\omega_3,-\omega_2)A_3 A_2^* e^{i\Delta kz} \\ \dfrac{\partial A_2}{\partial z} = \dfrac{i\omega_2}{2n_2 c}\psi^{(2)}(\omega_3,-\omega_1)A_3 A_1^* e^{i\Delta kz} \\ \dfrac{\partial A_3}{\partial z} = \dfrac{i\omega_3}{2n_3 c}\psi^{(2)}(\omega_1,\omega_2)A_3 A_2 e^{-i\Delta kz} \end{cases} \quad (2)$$

Où : $\Delta k = k_3 - k_1 - k_2 = \dfrac{n_3\omega_3 - n_1\omega_1 - n_2\omega_2}{c}$ est le désaccord de phase.

Puisque les fréquences considérées sont loin de toute fréquence propre du milieu, on peut démontrer à partir de $\psi^{(2)}$. (en négligeant les relaxations : $\delta\omega = \omega_i - \omega_{nn'} >> \Gamma_{nn'}$).

Et que : $\psi^{(2)}(\omega_3,-\omega_2) = \psi^{(2)}(\omega_3,-\omega_1) = \psi^{(2)}(\omega_1,\omega_2) = \psi_e^{(2)}$

Les intensités pour chaque onde est :

$$I_i = n_i c\varepsilon_0 |A_i|^2 \quad (3)$$

b/ Solutions simples sans conditions aux limites :

Dans la mesure où la Cste d'adaptation de phase n'est plus satisfaites ($\Delta k \neq 0$) cela entraine que les échanges d'énergie entre les trois ondes ne sont pas efficace. Donc, on peut supposer :

- A_1 et A_2 sont peut modifier lors de la propagation, $A_{1,2}(z)$=cste

L'intégration du système est immédiat si l'on suppose par ailleurs qu'à l'entrée du milieu on a : $A_3(0) = 0$.

D'où, sa valeur à la sortie du milieu de longueur l est :

$$A_3(l) = \frac{i\omega_3}{2n_3 c}\psi_e^{(2)} A_1 A_2 \frac{1 - e^{-i\Delta kl}}{i\Delta k} \quad (4)$$

Et l'intensité :

$$I_3(l) = n_c c\varepsilon_0 |A_3(l)|^2 = \frac{1}{2}\frac{l^2 |\psi_e^{(2)}|^2}{n_1 n_2 n_3 \varepsilon_0 c^3}\omega_3^2 \sin c^2\left(\frac{\Delta k \cdot l}{2}\right) I_1 I_2 \quad (5)$$

La relation précédente montre que I_3 est une fonction oscillante de l'espace avec une période :

$$l_c = \frac{2\pi}{\Delta k} = \frac{2\pi c}{\left|n_3\omega_3 - n_1\omega_1 - n_2\omega_2\right|} \qquad (6)$$

La relation (5) indique que l'énergie est transférée de A_1, A_2 vers A_3 pendant la 1ère demi-période et inversement pendant la seconde demi-période. Il apparaît clairement que la longueur de cohérence l_c soit grande, autrement dit, il faut minimiser le désaccord de phase Δk. Le cas optimal est obtenue lorsque $\Delta k = 0$; c'est l'adaptation des vitesses de phase. Dans ce cas, les oscillations disparaissent et le calcul précédent n'est plus valable puisqu'il ne tient pas compte de la perte d'énergie des deux ondes pompes.

2/ Génération de la seconde harmonique : doublage de la fréquence

a) Cas où il y a des adaptations des vitesses de phase :

$\Delta k \neq 0$ et on peut reprendre la relation (5) en posant $\omega_1=\omega_2=\omega$, $\omega_3 = 2\omega$ et $I = I\omega(0)$

On obtient alors :

$$I_{2\omega}(l) = \frac{8\left|\psi_e^{(2)}\right|^2}{n_\omega^2 n_{2\omega}\varepsilon_0 c^3 \Delta k^2}\omega^2 \sin c^2\left(\frac{\Delta k \cdot l}{2}\right) I_\omega^2(0)$$

$I_{2\omega} \propto fct(I_\omega^2(0))$ Intensité fondamentale

- La physique sous-jacent à la génération de la seconde harmonique ne correspond pas à l'absorption de deux photons de fréquence ω puis à l'émission d'un photon à la fréquence 2ω
- En effet, un tel processus est résonant puisqu'il faut un niveau intermédiaire. La bonne interprétation de la génération de la fréquence 2ω est liée à la réponse anharmonique des électrons, ce phénomène est exalté si la fréquence 2ω est proche d'une résonance car dans ce cas $\psi^{(2)}$ est plus grande.
- Les variations sinusoïdales de $I_{2\omega}$ en fonction de la longueur du milieu limitent l'efficacité de conversion : il faut chercher à annuler Δk.

b) Adaptation des vitesses de phase :

Calculons Δk dans le cas de la génération de la seconde harmonique :

$$\Delta k = k_{2\omega} - 2k_{\omega} = n(2\omega)\frac{2\omega}{c} \cdot -2n(\omega)\frac{\omega}{c} \qquad (8)$$

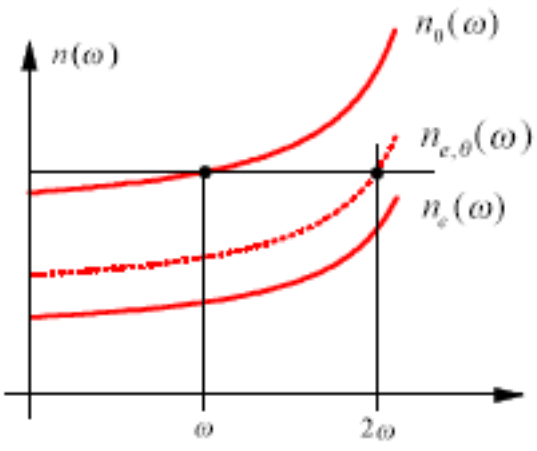
$$\Delta k = 0 \;\Rightarrow\; n(2\omega) = n(\omega) \qquad (9)$$

- Pour un milieu isotropes ou les milieux à symétrie cubique, dans le cas du régime de dispersion normale (hors de résonance atomique), on a $n(2\omega) > n(\omega)$: la relation 9 ne peut pas être satisfaite, l'adaptation de phase ne peut être réalisé que dans les cas suivants :
  - i) Dispersion anormal (prés d'une résonance atomique, la courbe de dispersion est tq $\frac{dn}{d\omega} < 0$ localement).
  - ii) Dans les cristaux anisotropies :

C'est le cas (ii) qui est utilisé dans le cas de la génération du second harmonique. Dans un milieu anisotrope ou biréfringent à chaque direction de propagation et à une fréquence donnée correspondent deux indices de réfraction : l'un associé à l'ordre ordinaire (n_o), indépendant de la direction de propagation, et l'autre associé à l'onde extraordinaire (n_e) qui dépend de la direction de propagation.

Cependant il existe deux méthodes couramment employés permettent de réaliser l'accord de phase.

- La 1ère technique dite : l'accord de phase par biréfringence qui consiste à utiliser un cristal non linéaire biréfringent de sortie que le fondamentale et le second harmonique soient polarisés selon des axes perpendiculaire (figure ci-dessous).



$$k_{e,\theta}(2\omega) = 2k_o(\omega)$$
$$n_{e,\theta}(2\omega) = n_o(\omega)$$

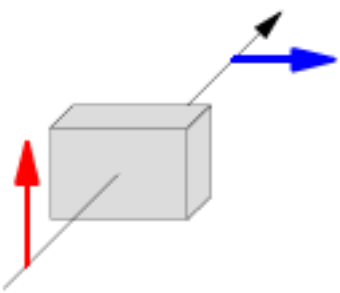


Figure : Accord de phase par biréfringence

Le cristal est taillé de sorte qu'un faisceau en incidence normale fasse un angle θ avec l'axe optique.

Si la biréfringence est suffisante (par exemple $n_e(2\omega)=n_o(\omega)$ cristaux uniaxe négatifs) il sera possible de choisir un angle θ tq $n_e(\theta, 2\omega)=n_o(\omega)$ réalisant ainsi les constante d'accord de phase.

- L'autre technique, dite du quasi-accord de phase (figure ci-dessous), consiste à utiliser un matériau constitué d'un empilement alterné de couches de sorte. Que l'on change le signe de la non linéarité à chaque longueur de cohérence. On introduit ainsi un déphasage de π à chaque interface qui vient exactement compenser le déphasage $\Delta k.L_c = \pi$ résultant de la propagation. En pratique le renversement du $\Psi^{(2)}$ résulte de l'inversion du domaine ferroélectrique.

Dans le cas ou $\Delta k=0$, on a ($\omega_2=\omega_1$, $\omega_3=2\omega_2$) : $\frac{\partial A_3}{\partial z} = \frac{i\omega_2}{2n_2 c}\psi^{(2)}A_1^2$, dont la solution s'écrit simplement s'écrit simplement :

$$A_3 = \frac{i\omega_3}{2n_3 c}\psi^{(2)}A_1^2 z \qquad (10)$$

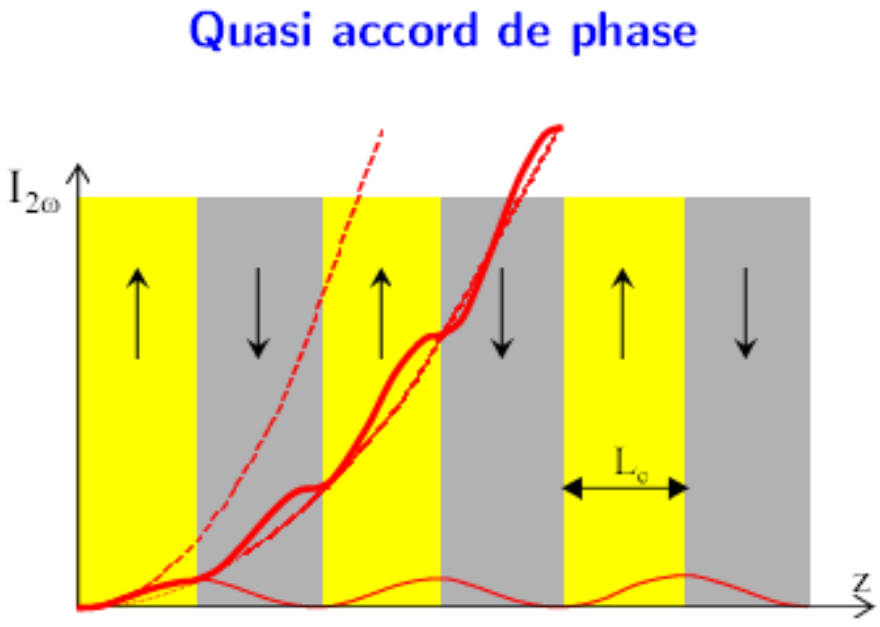
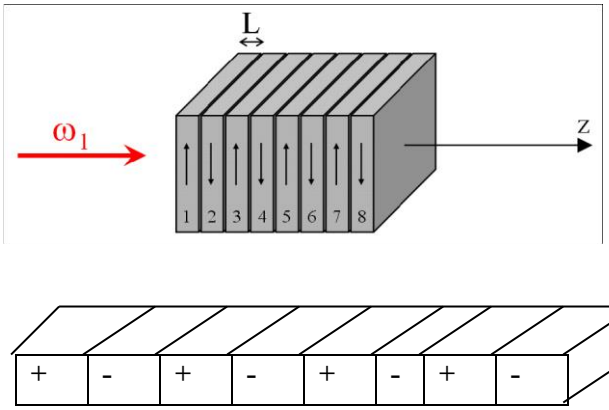


Figure : Quasi accord de phase

Exemple : Guide d'onde en LiNnO3



Inversion du signe du cœfficient non linéarité par application d'un guide PPLN Champ électrique.

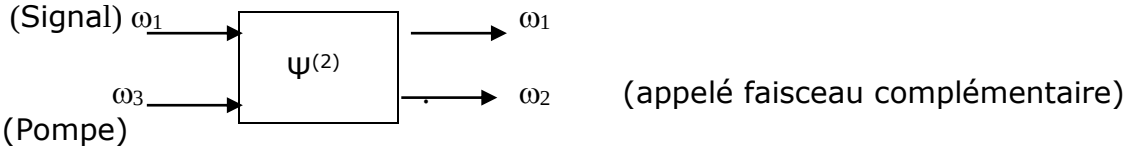
Le champ est donc proportionnel à Z et la puissance du second harmonique varie comme Z^2. Cette variation parabolique ne sera valable que dans le régime de faible conversion dans lequel nous nous somme placés, ici, puisque la variation réelle de la puissance sera en fait bornée supérieurement par la puissance incidente du fondamental.

3/ Amplification et oscillations paramétriques :

C'est le processus inverse de la génération de la fréquence somme : une onde de fréquence ω_3 peut générer deux ondes de fréquences ω_1 et ω_2 tel que : $\omega_3 = \omega_1+\omega_2$. Ce processus est très important puisqu'il permet d'obtenir des sources accordables dans l'infrarouge proche à partir d'un faisceau visible.

a- Différence de fréquence et amplificateur paramétrique :

L'amplification paramétrique peut démarrer sur le bruit, l'onde qui a la plus grande fréquence, et est également la plus intense (appelé pompe). Dans le cas où il y 'a initialement une onde de fréquence ω_1 (appelé signal), celle-ci se trouve amplifié et il y'a génération de la fréquence $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$.(fréquence différence) :



A priori, dans le cas général on pourrait penser que n'importe quel couple de fréquence (ω_1, ω_2) peut être crée. En fait, il n'est rien puisque le seul couple amplifié à partir du bruit sera celui qui minimise le désaccord de phase $\Delta k = k_3 - k_1 - k_2$.

On suppose dans la suite que $\Delta k \neq 0$, les coefficients de conversion sont faible et l'on peut supposer que A_3 reste constante. L'amplification paramétrique est alors décrite par le système d'équation couplées :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial A_1}{\partial z} = \dfrac{i\omega_1}{2n_1 c}\psi^{(2)} A_3 A_2^* e^{i\Delta kz} \\ \dfrac{\partial A_2}{\partial z} = \dfrac{i\omega_2}{2n_2 c}\psi^{(2)} A_3 A_1^* e^{i\Delta kz} \end{cases} \tag{11}$$

A ce stade, il est préférable d'utiliser des variables réduites, $\alpha_i(z)$, pour le champ électrique, grandeurs définies par :

$$\alpha_i(z) = \sqrt{\frac{n_i c\varepsilon_0}{2\hbar\omega_i}} A_i(z) \tag{12}$$

Remarquons que le carré de $\alpha_i(z)$ s'écrit :

$$\phi_i(z) = |\alpha_i(z)|^2 = \frac{n_i c\varepsilon_0}{2\hbar\omega_i}|A_i(z)|^2 = \frac{n_i c\varepsilon_0 \dfrac{|A_i(z)|^2}{2}}{\hbar\omega_i} \tag{13}$$

Soit le rapport entre le vecteur de poynting et l'énergie d'un photon. ϕ_i est donc le flux de photon dans le matériau, qui s'exprime en nombre de photons par unité de temps et de surface.

Calculons la dérivée de α_1 et α_2 par rapport à z, on obtient alors:

$$\frac{\partial \alpha_i}{\partial z} = \sqrt{\frac{n_1 c\varepsilon_0}{2\hbar\omega_1}} \frac{\partial A_1(z)}{\partial z} = \sqrt{\frac{n_1 c\varepsilon_0}{2\hbar\omega_1}} \frac{i\omega_1\psi^{(2)}}{2n_1 c} \sqrt{\frac{2\hbar\omega_2}{n_2 c\varepsilon_0}} \alpha_2^* \sqrt{\frac{2\hbar\omega_3}{n_3 c\varepsilon_0}} \alpha_3 e^{i\Delta kz}$$

$$\begin{cases} \dfrac{\partial \alpha_1}{\partial z} = ig\alpha_2^* \alpha_3 e^{i\Delta kz} \\ \dfrac{\partial \alpha_2}{\partial z} = ig\alpha_1^* \alpha_3 e^{i\Delta kz} \end{cases} \tag{14}$$

Avec $g = \psi^{(2)} \sqrt{\dfrac{\hbar\omega_1\omega_2\omega_3}{2\varepsilon_0 c^3 n_1 n_2 n_3}}$

Calculons, la dérivée /Z de $\phi_i = \alpha_i \alpha_i^*$ (i=1,2,3) et on en déduit que :

$$\frac{\partial \phi_1}{\partial z} = \frac{\partial \phi_2}{\partial z} \tag{15}$$

On peut donc déduire que $\phi_1 - \phi_2$ reste constant. C'est la relation de Marley-Rowe : toute variation sur le flux des photons du faisceau signal se traduit par une variation identique du flux de photos du faisceau complémentaire. Par ailleurs, ce qui signifie que la puissance totale se conserve ($\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{dz}}(\hbar\omega_1\phi_1 + \hbar\omega_2\phi_2) = 0$) : le milieu n'absorbe pas d'énergie. Sa non linéarité sert d'intermédiaire pour assurer un transfert d'énergie entre les trois faisceaux mais aucune énergie n'est déposée dans le matériau.

Il s'interprète en termes de photons, lors du processus d'interaction paramétrique, un photon pompe est détruit tandis qu'un photon signal et un photon complémentaire sont créés.

Dans la suite, on se placera dans les constantes d'accord de phase (Δk = 0), par un choix judicieux de l'origine des temps, on pourra de plus supposer α_3 imaginaire pur et de partie imaginaire négative ($\alpha_3 = \alpha_3(0) = -\mathrm{i}\left|\alpha_3(0)\right|$) les équations de propagation pour le signal et le complémentaire devient alors :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial\alpha_1}{\partial z} = \mathrm{ig}\alpha_2^*\alpha_3 = \mathrm{g}\alpha_2^* \\ \dfrac{\partial\alpha_2}{\partial z} = \mathrm{ig}\alpha_1^*\alpha_3 = \mathrm{g}\alpha_1^* \end{cases} \tag{16}$$

Où $g=ig\alpha_3=g|\alpha_3(0)|$, nombre réel positif, est le gain paramétrique. En dérivant les équations ci-dessus sur Z, on voit que α_1 et α_2 obéissant à la même équation :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial^2\alpha}{\partial z^2} = \mathrm{g}^2\alpha \end{cases} \tag{17}$$

On peut donc déduire la solution pour α_1 et α_2:

$$\begin{cases} \alpha_1(z) = \alpha_1(0)\cosh(gz) + \alpha_2^*(0)\sinh(gz) \\ \alpha_2(z) = \alpha_2(0)\cosh(gz) + \alpha_1^*(0)\sinh(gz) \end{cases} \tag{18}$$

Dans le cas particulier où l'on injecte que le faisceau signal dans le cristal en plus du faisceau pompe ($\alpha_2 = 0$), on obtient :

$$\begin{cases} \alpha_1(z) = \alpha_1(0)\cosh(gz) \\ \alpha_2(z) = \alpha_2^*(0)\sinh(gz) \end{cases} \tag{19}$$

On voit donc que le faisceau signal est amplifié, de façon similaire à ce qui se produit lors du phénomène d'émission stimulée. Il sera donc possible de

réaliser des amplificateurs paramétriques ou des oscillateurs paramétriques optiques.

Pour terminer, intéressons-nous au cas dégénéré où $\omega_1 = \omega_2$. Il de »vient alors impossible de distinguer entre signal et complémentaire, et les équations (15) se réduisent à l'unique équation :

$$\frac{\partial \alpha_1}{\partial z} = g\alpha_1^* \qquad (20)$$

dont la solution est :

$$\alpha_1(L) = \alpha_1(0)\cosh(gL) + \alpha_1^*(0)\sinh(gL)$$

$$\alpha_1(L) = \mathrm{Re}\left[\alpha_1(0)\right]\exp(gL) + i\,\mathrm{Im}\left[\alpha_1^*(0)\right]\exp(-gL) \qquad (21)$$

si l'on revient au champ électrique, A(Z) = Ap (Z) + iAq(Z) que l'on a décomposé sur des deux quadrature P et Q, on voit que le champ après propagation s'écrit :

$$A(L) = A_p(0)\exp(gL) + iA_d(0)\exp(-gL) \qquad (22)$$

Contrairement au cas de l'émission stimulée, l'amplification dépend ici de la phase relative du signal et de la pompe, une quadrature est amplifiée de façon exponentielle, tandis que l'autre quadrature est atténuée. Ce phénomène est analogue au phénomène d'amplification paramétrique en mécanique classique, où la bonne amplification du mouvement dépend de phase (par exemple dans le cas d'une balançoire où l'on fait varier le moment cinétique de façon périodique).

Par ailleurs, la faculté de pouvoir amplifiée une quadrature tout en atténuant l'autre aura de nombreuses applications en optique quantique en permettant notamment de descendre en dessous du bruit quantique standard pour une des deux quadratures (génération d'états comprimés).

b) Oscillation paramétrique

Un amplificateur paramétrique peut être placé dans une cavité résonante de façon accroître le gain. Cela conduit a une oscillation, et il est possible de créer des faisceaux aux fréquences ω_2 et ω_1 à partir du bruit, le schéma du principe est donné par la figure ci-dessous :

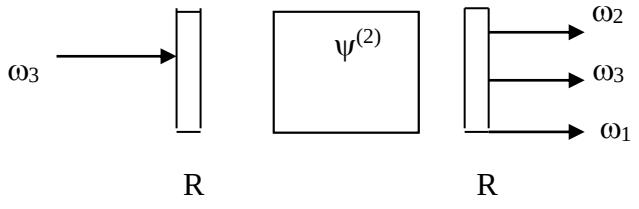


Figure : Principe de l'oscillation paramétrique

R est le cœfficient de réflexion des miroirs

Deux types de cavités sont utilisés :

- la cavité à simple résonance où R est grand à ω_1 ou ω_2.
- La cavité à double résonance où R est grand à ω_1 et ω_2.

La cavité à double résonance est peu stable en fréquence, une petite fluctuation entraîne de grands écarts en fréquence.

Seuil d'oscillation dans une cavité paramétrique :

La condition d'oscillation s'écrit exactement comme le cas d'un laser. En effet l'oscillation paramétrique n'est possible que si, lors d'un aller – retour, le gain égal à la perte. Nous prendrons comme expression approchée de champs, dans les milieux non linéaire, les relations (17) dans le cas d'accord de phase ($\Delta k = 0$).

$$\begin{cases} \alpha_1(z) = \alpha_1(0)\cosh(gz) + \alpha_2^*(0)\sinh(gz) \\ \alpha_2(z) = \alpha_2(0)\cosh(gz) + \alpha_1^*(0)\sinh(gz) \end{cases} \quad (23)$$

Si l'on revient au champ électrique l'équation (23) devient :

$$\begin{cases} A_1(z) = A_1(0)\cosh(gz) + \sqrt{\frac{n_2}{n_1}\frac{\omega_1}{\omega_2}}A_2^*(0)\sinh(gz) \\ A_2(z) = A_2(0)\cosh(gz) + \sqrt{\frac{n_1}{n_2}\frac{\omega_2}{\omega}}A_1^*(0)\sinh(gz) \end{cases} \quad (24)$$

La condition d'oscillation peut s'écrire sur un aller car la cavité est particulièrement symétrique, ce qui impose :

$$\begin{cases} A_1(0) = A_1(L)\exp(-\Gamma_1 L) \\ A_2(0) = A_2(L)\exp(-\Gamma_2 L) \end{cases} \quad (25)$$

Où Γ_i tient compte de toutes les pertes distribuées (absorption du milieu β_i) et localisées sur les miroirs.

$$\exp(-2\Gamma_i L) = R_i^2 \exp(-2\beta_i L)$$

$$\Gamma_i = \beta_i - \frac{1}{2}\ln R_i \quad (26)$$

L est la longueur du milieu.

Le système (25) conduit à un système de Kramer pour $A_1(0)$ et $A_2^*(0)$. Pour avoir une solution non nulle, le déterminant de la matrice associée au système doit être nul.

$$\begin{vmatrix} \cosh(g_{th}L) - e^{\Gamma_1 L} & \sqrt{\frac{\omega_1}{\omega_2}\frac{n_2}{n_1}}\sinh(g_{th}L) \\ \sqrt{\frac{\omega_2}{\omega_1}\frac{n_1}{n_2}}\sinh(g_{th}L) & \cosh(gL) - e^{\Gamma_2 L} \end{vmatrix} \qquad (27)$$

Où g_{th} représente la valeur du gain au seuil d'oscillation qui est obtenue à partir du calcul du déterminant :

$$\cosh(g_{th}L) = \frac{1 + \exp\left[(\Gamma_1 + \Gamma_2)L\right]}{\exp(\Gamma_1 L) + \exp(\Gamma_2 L)} \qquad (28)$$

Ce résultat peut s'appliquer aussi bien au cas d'une cavité à double résonance.

C/ oscillateur paramétrique accordable en fréquence :

Les fréquences de sortie de l'oscillateur paramétrique sont déterminées par les relations de conservation suivantes :

$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ énergie
$k_3 = k_1 + k_2$ moment (29)

Pour avoir cette conservations, il faut réaliser un accord de phase pour le couple de fréquence,(ω_1,ω_2) d'un cristal non linéaire anisotrope (uniaxe-négatif) :

$$\omega_3 n''(\omega_3,\theta) = \omega_1 n_0(\omega_1) + \omega_2 n_0(\omega_2) \qquad (30)$$

Cela illustre la possibilité d'obtenir un accord en fréquence d'un oscillateur paramétrique par simple rotation de l'angle θ entre l'axe optique du milieu et l'axe de la cavité (axe de propagation).

- Un autre moyen d'obtenir un oscillateur accordable consiste à faire varier la température du cristal.

4/ La rectification optique

Ce phénomène se traduit par la création d'un champ électrique statique à partir d'une onde lumineuse.

$$P^2(0) = \varepsilon\psi^2(0,\omega,-\omega)E^2(\omega) \qquad (31)$$

La polarisation induite dans le cristal par l'onde pompe incidente peut compenser une composante de fréquence nulle. Il apparaît donc une polarisation permanente de milieu c'est à dire des charges électriques sur les faces du cristal $\perp$ à la direction de polarisation de l'onde pompe et par conséquent une différence

de potentiel qui peut être mesuré. La tension V entre les deux faces d'un cristal distante de L est égal à la circulation du champ électrostatique induit : soit $V = \psi^2 L\left|E(\omega)\right|^2$

Pour le cristal : KTP supposé de section carrée 1mm un faisceau incident de 250 W.

III -Optique non linéaire du 3ème ordre

Les phénomènes non linéaires du 3ème ordre sont à priori d'amplitude plus faible que ceux du 2ème ordre. Ils jouent cependant un rôle très important en optique linéaire pour la raison suivante : contrairement aux phénomènes 2ème ordre, certains processus obéissant automatiquement à l'accord de phase, dans ce cas l'effet de la non linéarité optique pourra se cumuler sur de très grandes distances (milliers de km) (propagation d'une impulsion courte le long d'une fibre optique). L'effet sera alors très important et pourra jouer un rôle fondamental sur le profil temporel ou spatial du faisceau après propagation.

1/ Un faisceau incident effet Ken-optique

Intéressons nous au cas ou un seul faisceau associé au champ (E(t) est incident sur le matériau. La polarisation non linéaire du 3ème ordre s'écrit alors :

$$P^3(t) = \varepsilon_0 \psi^{(3)} E(t)^3$$

$$= \frac{\varepsilon_0}{8}\psi^{(3)}\left(\varepsilon(t)^3 + \varepsilon^*(t)^3 + 3\varepsilon^*(t)\varepsilon(t)^2 + 3\varepsilon^*(t)^2\varepsilon(t)\right) \qquad (32)$$

Si le champ oscille à une fréquence w, les deux premiers termes de l'équation ci-dessus oscillent à la fréquence 3ω, ce qui correspond à une génération de 3ème harmonique. Cependant, ce phénomène n'est pas particulièrement intéressant car en pratique, il est plus efficace d'engendrer la 3ème harmonique à l'aide de deux processus du 2ème ordre en cascade : doublage de fréquence $\omega \rightarrow 2\omega$ puis somme de fréquence $\omega + 2\omega \rightarrow 3\omega$, on supposera que les termes $\varepsilon(t)^3$ n'obéissant pas à la constantes d'accord de phase et peuvent être négligée. La polarisation se réduit donc à l'expérience :

$$P^3(t) = \frac{3}{4}\varepsilon_0 \psi^{(3)}\left|E(t)\right|^2 E(t) \qquad (33)$$

On remarque que ce terme de la polarisation non linéaire a exactement la même phase que le champ électrique : l'accord de phase est automatiquement

vérifié. L'effet de ce terme sur la propagation non linéaire du champ électrique est appelée : effet Ken-optique.

Nous nous limiterons ici au cas d'un champ monochromatique, nous pourrons donc directement écrire l'équation de propagation :

$$\frac{dA}{dz} = \frac{3i\omega}{8nc}\psi^{(3)}|A|^2 A \qquad (34)$$

Remarquons que malgré la non linéarité, l'intensité du faisceau reste constante, en effet :

$$\frac{d|A|^2}{dz} = A^* \frac{dA}{dz} + \frac{dA^*}{dz} A$$
$$= \frac{3i\omega}{8nc}\psi^{(3)}|A|^2 (A^* A - A^* A) = 0$$

donc :

$|A(z)| = |A(0)| = |\varepsilon_0|^2$ et l'équation devient :

$$\frac{dA}{dz} = \frac{3i\omega}{8nc}\psi^{(3)}|\varepsilon_0|^2 A$$

Donc la solution de cette équation s'obtient :

$$A(z) = A(0)\exp(i\varphi_{NL}(z))$$

Où $\varphi_{NL}(z) = \frac{3i\omega}{8nc}\psi^{(3)}|\varepsilon_0|^2 z$ (35)

On remarque que le déphasage non linéaire est proportionnel à la densité de puissance I, du faisceau lumineux. On l'écrit en général sous la forme :

$$\varphi_{NL}(z) = \frac{\omega}{c} n_2 I z \qquad (36)$$

Où n_2 quantité proportionnel à $\psi^{(3)}$ et par définition l'indice non linéaire du matériau et s'exprime en m^2/ω. En revenant à l'expression du champ électrique $\varepsilon(Z)$ on voit que celui-ci se met sous la forme :

$$\varepsilon(z) = \varepsilon(0)\exp(i\frac{\omega}{c}(n + n_2 I)z) \qquad (37)$$

Toute se passe comme si l'indice de réfraction du milieu devait être remplacé par la quantité dépendant de l'intensité $n(I) = n + n_2 I$.

$$\varphi_{NL}(x, y, z) = \frac{\omega}{c} n_2 I(x, y) z \qquad (38)$$

Un exemple de manifestation de l'effet Ken-optique est le phénomène d'auto focalisation, celui-ci résultent du fait que dans le cas d'un faisceau présentant

une extension transverse finie, le déphasage non linéaire n'est pas uniforme le long du faisceau :

$$\varphi_{NL}(x,y,z) = \frac{\omega}{c} n_2 I(x,y) z \qquad (39)$$

Par exemple dans le cas d'un faisceau Gaussien le chemin optique vu par le faisceau lumineux sera plus important au centre du faisceau que sur la périphérie. Cette plus grande épaisseur optique au centre du faisceau se traduit par une lentille effective appelée lentille Kerr qui a pour effet de focaliser le faisceau. On parle alors d'auto focalisation.

2/ Deux faisceaux incident - effet Kerr-Croisé :

Considérons le cas où deux faisceaux non colinéaires appelés pompe (de vecteur d'onde $\vec{k}p$) et signal (de vecteur d'onde $\vec{k}s$), interagissent dans un matériau non linaire. La polarisation non linéaire du 3ème ordre induite dans le matériau s'écrit alors :

$$P^3(t) = \frac{\varepsilon_0 \psi^{(3)}}{8} \left(\varepsilon_p(\vec{r},t) + \varepsilon_p^*(\vec{r},t) + \varepsilon_s(\vec{r},t) + \varepsilon_s^*(\vec{r},t)\right)^3 \qquad (40)$$

Le développement de cette expression fait apparaitre un grand nombre de termes. Considérons l'un d'entre eux, par exemple le terme $\varepsilon_P(r,t)\ \varepsilon_P(r,t)\ \varepsilon^*_S(r,t)$. Sa dépendance spatiale s'écrit $\exp(i(2\vec{k}p - \vec{k}s)\vec{r})$. Ce terme de la polarisation est donc à l' origine du rayonnement d'une onde dont la phase spatiale varie selon $(2\vec{k}p - \vec{k}s)\vec{r}$, ce qui signifie que l'onde se propage dans la direction indiquée par le vecteur $2\vec{k}p - \vec{k}s$. Cet effet peut être interprété de la façon suivante : L'interférence entre les faisceaux pompe et signal induit un réseau dans le matériau, le vecteur d'onde associe à ce réseau s'écrivant $\vec{k}p - \vec{k}s$. Le faisceau pompe est diffracté sur ce réseau, ce qui fait passer sa direction de $\vec{k}p$ à $\vec{k}p + \vec{k}p - \vec{k}s = 2\vec{k}p - \vec{k}s$. Ce phénomène de diffraction sur un réseau induit est l'un des exemples de nombreux processus non linéaire intervenant dans cette configuration.

Par la suite, nous nous intéresserons uniquement à la propagation du faisceau signal, ce qui correspond à une situation expérimentale où l'on aurait bloqué la propagation des autres faisceaux à l'aide d'un diaphragme placé après le matériau non-linéaire. Le faisceau pompe, la diffraction sur le réseau induit de

la pompe et du signal étant bloqué par le diaphragme, seuls nous intéressent les termes pour lesquels la phase spatiale est en $\vec{k}s \,.\, \vec{r}$. Ceux-ci sont soit du type $\varepsilon_P\,(r, t)\ \varepsilon^*_P\,(r, t)\ \varepsilon_S(r, t)$, soit du type $\varepsilon_s\,(r, t)\ \varepsilon^*_s\,(r, t)\ \varepsilon_S(r, t)$. En écrivant la polarisation en notation complexe, et en comptant le nombre de fois où chacun des termes apparaît on obtient :

$$P^3(t) = \frac{\varepsilon_0 \psi^{(3)}}{4}\,(6\left|\varepsilon_p\right|^2 + 3\left|\varepsilon_s\right|^2)\varepsilon_s \qquad (41)$$

En notant l'analogie entre cette expression et l'équation (33) on peut en déduire directement l'expression du déphasage non linéaire du faisceau.

$$\varphi_{NL}(z) = \frac{\omega}{c}(n_2 I_s + 2n_2 I_p)z \qquad (42)$$

- Le 1èr terme correspond à l'effet Kerr-optique du faisceau signal, phénomène intervenant même en l'absence du faisceau pompe et déjà étudié, plus tard.
- Le 2ème terme correspond à l'effet Kerr-optique induit par le faisceau pompe sur le faisceau signal appelé effet Kerr-croisé. En pratique on s'intéressant souvent au faisceau pompe car Ip>>Is (Ip plus intense).

L'effet Kerr-croisé à de nombreuses applications notamment dans le domaine de la commutation optique, de plus, la possibilité de mesurer la puissance d'un faisceau lumineux à l'aide de déphasage introduit sur un autre faisceau sera d'une grande utilité en optique quantique.

3/ Trois faisceau incident-conjugaison de phase :

Les deux faisceaux pompe contra- propagative, ε_p et ε'_p interagissent avec un 3ème faisceau appelé signal ε_s, on s'intéresse seulement au faisceau émis dans la direction opposée à celle du signal, soit $-\vec{k}_s$. La polarisation non linéaire s'écrit :

$$P^3(t) = \frac{\varepsilon_0 \psi^{(3)}}{8}\,(\varepsilon_p(\vec{r},t) + \varepsilon^*_p(\vec{r},t) + \varepsilon'_p(\vec{r},t) + \varepsilon'^*_p(\vec{r},t) + \varepsilon_s(\vec{r},t) + \varepsilon^*_s(\vec{r},t))^3 \qquad (43)$$

Une propriété remarquable de ce terme en $\varepsilon_p\ \varepsilon'_p\ \varepsilon^*_s$ (de vecteur d'onde $\vec{k}p - \vec{k}p - \vec{k}s = -\vec{k}s$) est qu'il fait apparaître le conjugué complexe du champ soude, il s'agit du phénomène de conjugaison de phase et l'ensemble du dispositif est appelé un miroir à conjugaison de phase contrairement au cas d'un

miroir ordinaire, le faisceau ''réfléchi'' n’obéit pas aux lois de Descartes puisqu’il est réémis exactement dans la direction inverse du faisceau incident. De plus, en raison de la conjugaison de phase, le front d’onde du faisceau réémis se trouve retourné, ce qui trouve des applications pour compenser les phénomènes de distorsion de front d’onde.