



HAL
open science

Optique non-linéaire

Manuel Joffre

► **To cite this version:**

Manuel Joffre. Optique non-linéaire. DEA. Ce cours est enseigné de DEA de Physique Quantique (57 pages)., 2006. cel-00092964v1

HAL Id: cel-00092964

<https://cel.hal.science/cel-00092964v1>

Submitted on 12 Sep 2006 (v1), last revised 21 Feb 2014 (v4)

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.

DEA de Physique Quantique

Optique non-linéaire

Manuel Joffre

Département de Physique de l'Ecole Polytechnique

et

Laboratoire d'Optique et Biosciences

CNRS - INSERM - ENSTA - Ecole Polytechnique

91128 Palaiseau Cedex

mars 2003

Table des matières

1	Rappels d'optique linéaire	6
1.1	Notations	6
1.2	Réponse linéaire	7
1.3	Propagation	8
1.3.1	Equation de propagation	8
1.3.2	Cas d'un milieu uniaxe	10
1.3.3	Cas d'un matériau isotrope	12
1.4	Approximation paraxiale	12
1.4.1	Equation de propagation dans le cadre de l'approximation paraxiale	13
1.4.2	Propagation d'un faisceau lumineux quelconque	14
1.4.3	Propagation d'un faisceau gaussien	15
1.4.4	Faisceaux gaussiens d'ordre multiple	16
2	Modèle semi-classique de la susceptibilité	18
2.1	Développement non-linéaire de la polarisation induite	18
2.2	Modèle semi-classique de la réponse linéaire et non-linéaire	19
2.2.1	Equation de Bloch	19
2.2.2	Développement perturbatif	21
2.2.3	expression de la polarisation	21
2.2.4	Résolution au premier ordre	22
2.2.5	Calcul de la susceptibilité non-linéaire	23
2.3	Modèle à deux niveaux en continu	23
3	Le Laser	26
3.1	Cavité optique	26
3.1.1	Modes longitudinaux	26
3.1.2	Interprétation impulsionnelle des modes longitudinaux d'une cavité	28
3.1.3	Modes transverses	29
3.2	Amplification optique	30
3.2.1	Equation de Bloch en présence de pompage	31
3.2.2	Propagation en régime de faible signal	32
3.2.3	Propagation en régime saturé	33
3.3	Laser en régime stationnaire	33

3.3.1	Condition d'oscillation	34
3.3.2	Condition sur l'amplitude	35
3.3.3	Condition sur la phase	36
4	Quelques phénomènes d'optique non-linéaire	37
4.1	Equation de propagation	37
4.2	Optique non-linéaire du second ordre	38
4.2.1	Importance de la symétrie	38
4.2.2	Inventaire des effets non-linéaires du deuxième ordre	38
4.2.3	Doublage de fréquence	39
4.2.4	Différence de fréquences et amplification paramétrique	42
4.3	Optique non-linéaire du troisième ordre	46
4.3.1	Un faisceau incident - effet Kerr optique	46
4.3.2	Deux faisceaux incidents - effet Kerr croisé	48
4.3.3	Trois faisceaux incidents - conjugaison de phase	49
5	Introduction aux lasers femtosecondes	50
5.1	Propagation d'une impulsion brève	50
5.2	Principe de fonctionnement d'un oscillateur femtoseconde	53

Introduction

Ce document reprend le contenu de cinq cours de 1h30 donnés dans le cadre de l'option optique quantique du DEA de physique quantique. Certaines parties, notamment le chapitre 3 et une partie du chapitre 4, sont largement inspirées des notes du cours que Claude Fabre a assuré jusqu'en 1999 dans cette même option.

L'optique non-linéaire concerne les processus intervenant lorsqu'un milieu matériel est soumis à un faisceau lumineux suffisamment intense pour modifier la réponse du milieu au champ électromagnétique. A l'inverse de l'optique linéaire, il sera donc impossible de caractériser la réponse du milieu par des coefficients indépendants de l'excitation comme l'indice de réfraction ou le coefficient d'absorption. De nouveaux processus vont intervenir, donnant lieu à une grande richesse de phénomènes comme par exemple la génération de nouvelles fréquences. Ces processus sont dans certains cas nuisibles, par exemple lorsqu'ils perturbent la propagation de faisceaux intenses, mais le plus souvent ils sont exploités pour mettre en oeuvre des expériences ou des dispositifs originaux, en optique classique comme en optique quantique.

Rappelons que le domaine de l'*optique* recouvre la propagation des ondes électromagnétiques oscillant dans une certaine gamme de fréquences. L'optique visible correspond à des longueurs d'onde comprises entre $0.4\mu\text{m}$ (violet) et $0.8\mu\text{m}$ (rouge), qui sont directement détectables par l'oeil humain. Cependant, l'optique au sens large inclut en fait l'ensemble du spectre électromagnétique, de l'infrarouge lointain aux rayons X, et il en sera de même du domaine d'application de l'optique non-linéaire.

Les propriétés quantiques du champ électromagnétique ne seront pas abordées ici mais dans le cours d'optique quantique de Jean-Michel Courty, qui suivra celui-ci. Ce champ se propagera au sein de milieux matériels supposés homogènes. Il pourra s'agir d'une vapeur atomique, d'un matériau solide comme un cristal, ou d'un matériau amorphe comme un verre, éventuellement dopé. La réponse du milieu au faisceau lumineux sera traitée dans le cadre de l'approximation semi-classique (champ classique et matière quantique).

Le cours sera divisé en cinq parties. La première partie, intitulée *rappels d'optique linéaire*, aborde la propagation d'un faisceau lumineux dans le cadre de l'optique linéaire, c'est à dire lorsque l'intensité du faisceau peut être supposée suffisamment faible pour ne pas modifier les propriétés du matériau traversé. Seront rappelées les notions d'absorption, d'indice de réfraction et de propagation dans un milieu anisotrope. De plus, l'approximation paraxiale et la propagation de faisceaux

gaussiens seront aussi développées dans cette partie.

La seconde partie, intitulée *réponse non-linéaire* introduit un modèle semi-classique de la réponse non-linéaire d'un système à plusieurs niveaux.

La troisième partie couvre le LASER, ce qui comprendra ici la cavité optique, le phénomène d'amplification optique, puis le fonctionnement d'un laser en régime stationnaire. Les problèmes plus approfondis comme l'injection d'une cavité, le fonctionnement dynamique d'un laser et la diffusion de phase seront vus en exercice.

La quatrième partie abordera plus en détails la propagation de faisceaux lumineux dans le cas de non-linéarités optiques du deuxième et du troisième ordre.

Enfin, la cinquième et dernière partie abordera les problèmes liés aux lasers produisant des impulsions brèves, de l'ordre de quelques dizaines de femtosecondes.

1 Rappels d'optique linéaire

La propagation d'un faisceau lumineux dans un milieu matériel fait intervenir deux problèmes :

1. D'une part la réponse du milieu à l'onde. Dans le cas d'un matériau diélectrique, les charges liés du milieu se mettent en mouvement sous l'action du champ électrique oscillant associé au faisceau lumineux. Il s'agit donc d'un problème de mécanique, qui doit le plus souvent être traité dans le cadre de la mécanique quantique.
2. D'autre part, l'oscillation de ces charges rayonne un champ électromagnétique qui vient s'ajouter à l'onde incidente. C'est donc un problème de propagation d'onde électromagnétique, que l'on doit traiter à l'aide des équations de Maxwell.

Il faut en fait résoudre ces deux problèmes simultanément, le champ rayonné induisant lui-même une polarisation du diélectrique, qui rayonne un nouveau champ et ainsi de suite. On aboutit alors à un système d'équations couplées.

Le domaine de l'optique linéaire, qui fait l'objet de ce chapitre, correspond au cas où la réponse du milieu peut être considérée comme linéaire, ce qui simplifie considérablement la résolution du problème. En particulier, on pourra s'intéresser dans un premier temps au cas d'ondes planes monochromatiques, puis obtenir la solution générale à l'aide du principe de superposition linéaire.

1.1 Notations

Une onde électromagnétique se propageant dans un milieu matériel est caractérisée par un champ électrique \vec{E} , un vecteur déplacement électrique $\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$ (où \vec{P} est la polarisation induite dans le matériau), un champ magnétique \vec{H} et une induction magnétique $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$ (pour un matériau non magnétique). La densité de puissance transportée par l'onde s'exprime à l'aide du vecteur de Poynting, $\vec{\Pi} = \vec{E} \wedge \vec{H}$.

Dans toute la suite le champ électrique sera supposé polarisé linéairement selon le vecteur unitaire $\vec{\epsilon}$, soit $\vec{E}(\vec{r}, t) = E(\vec{r}, t)\vec{\epsilon}$.

On pourra décomposer ce champ en ondes monochromatiques

$$E(\vec{r}, t) = \int E(\vec{r}, \omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi} \quad (1.1)$$

avec la relation $E(\vec{r}, \omega)^* = E(\vec{r}, -\omega)$, puisque le champ électrique $E(\vec{r}, t)$ est une grandeur réelle. Il sera donc suffisant de connaître le champ pour des valeurs positives de la fréquence, ce qui nous conduit à introduire le champ complexe

$$\mathcal{E}(\vec{r}, \omega) = 2\Theta(\omega)E(\vec{r}, \omega) \quad (1.2)$$

où $\Theta(\omega)$ est la fonction de Heaviside. Le champ complexe ne comporte donc que des composantes spectrales de fréquences positives.

Inversement, le champ électrique se déduit du champ complexe par la relation

$$E(\vec{r}, \omega) = \frac{1}{2} (\mathcal{E}(\vec{r}, \omega) + \mathcal{E}^*(\vec{r}, -\omega)) \quad (1.3)$$

Par transformée de Fourier inverse, on en déduit

$$E(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} (\mathcal{E}(\vec{r}, t) + \mathcal{E}^*(\vec{r}, t)) = \text{Re}\mathcal{E}(\vec{r}, t) \quad (1.4)$$

où l'on retrouve la relation habituelle entre champ complexe et champ réel.

Il est également possible de décomposer le champ électrique en ondes planes en faisant une transformée de Fourier par rapport aux variables spatiales. On obtient ainsi

$$E(\vec{r}, t) = \int E(\vec{k}, \omega) \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r} - i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi} \frac{d^3k}{(2\pi)^3} \quad (1.5)$$

1.2 Réponse linéaire

Nous supposons ici que la polarisation induite dépend de façon linéaire du champ électrique appliqué. De plus la réponse est supposée locale, ce qui signifie que la polarisation en un point \vec{r} ne dépend que de la valeur du champ en ce même point \vec{r} . Cependant, la réponse n'est *a priori* pas instantanée, ce qui implique que $\vec{P}(\vec{r}, t)$ dépend de la fonction du temps $\{\vec{E}(\vec{r}, t)\}$. La réponse étant linéaire, cela signifie que $\vec{P}(\vec{r}, t)$ est une combinaison linéaire des $\{\vec{E}(\vec{r}, t')\}$, pour toutes les valeurs de t' :

$$P_i(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} R_{ij}(t, t') E_j(\vec{r}, t') dt' \quad (1.6)$$

où $R_{ij}(t, t')$ est, par définition, la fonction réponse. Par convention, on sommerait sur les indices répétés lorsqu'ils se réfèrent à des coordonnées spatiales. Dans l'équation ci-dessus, la somme sur l'indice j est donc sous-entendue. L'éq. 1.6 est l'expression la plus générale possible de la polarisation avec les seules hypothèses de *linéarité*, de *localité* et d'*homogénéité*.

Nous pouvons de plus effectuer l'hypothèse d'*invariance par translation dans le temps*. Cela signifie que la réponse du matériau à un champ électrique est la même à un instant donné ou après un intervalle de temps T . En d'autres termes, quel que soit T , si le champ $\vec{E}(\vec{r}, t)$ induit la polarisation $\vec{P}(\vec{r}, t)$, alors le champ $\vec{E}(\vec{r}, t - T)$ induira la polarisation $\vec{P}(\vec{r}, t - T)$, i.e. la même polarisation mais décalée dans le temps d'un intervalle T .

$$\begin{aligned} P_i(\vec{r}, t - T) &= \epsilon_0 \int R_{ij}(t, t') E_j(\vec{r}, t' - T) dt' \\ &= \epsilon_0 \int R_{ij}(t, t' + T) E_j(\vec{r}, t') dt' \end{aligned}$$

Mais on peut aussi calculer directement la valeur de $P_i(\vec{r}, t - T)$ en remplaçant t par $t - T$ dans l'éq. 1.6 :

$$P_i(\vec{r}, t - T) = \epsilon_0 \int R_{ij}(t - T, t') E_j(\vec{r}, t') dt' \quad (1.7)$$

On en déduit immédiatement la relation $R_{ij}(t - T, t') = R_{ij}(t, t' + T)$ ou encore, par un simple changement de variable, $R_{ij}(t, t') = R_{ij}(t + T, t' + T)$. Enfin, en choisissant $T = -t'$, on en déduit

$$R_{ij}(t, t') = R_{ij}(t - t', 0) = R_{ij}(t - t')$$

La fonction réponse ne dépend donc que de l'intervalle de temps entre l'excitation (t') et la mesure (t). La polarisation s'exprime alors comme un produit de convolution entre la fonction réponse et le champ électrique :

$$P_i(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int R_{ij}(t - t') E_j(t') dt' = \epsilon_0 R_{ij}(t) \otimes E_j(t) \quad (1.8)$$

Nous terminons en invoquant le *principe de causalité* : celui-ci implique que la polarisation à un instant t ne peut dépendre que du champ électrique aux instants précédents. La fonction réponse $R_{ij}(t)$ est donc strictement nulle quand son argument est négatif. L'éq. 1.8 devient donc

$$P_i(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int_0^{+\infty} R_{ij}(\tau) E_j(t - \tau) d\tau \quad (1.9)$$

L'expression de la polarisation faisant intervenir un produit de convolution (eq. 1.8), il est naturel de passer dans l'espace des fréquences. La réponse pourra ainsi s'exprimer comme un simple produit. Introduisons la grandeur $\chi_{ij}(\omega)$, transformée de Fourier de la fonction réponse $R_{ij}(\tau)$:

$$R_{ij}(\tau) = \int \chi_{ij}(\omega) e^{-i\omega\tau} \frac{d\omega}{2\pi} \quad (1.10)$$

L'éq. 1.8 devient alors

$$P_i(\vec{r}, \omega) = \epsilon_0 \chi_{ij}(\omega) E_j(\vec{r}, \omega) \quad (1.11)$$

Par définition, $\chi_{ij}(\omega)$ est appelé *susceptibilité linéaire* du matériau. On démontre qu'il s'agit là d'un tenseur symétrique.

1.3 Propagation

1.3.1 Equation de propagation

Rappelons l'expression des équations de Maxwell pour un champ électromagnétique régnant au sein d'un milieu matériel :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0 \quad (1.12)$$

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (1.13)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad (1.14)$$

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (1.15)$$

En prenant le rotationnel de l'éq. 1.13 on obtient, à l'aide de l'éq. 1.15, l'équation de propagation des ondes électromagnétiques :

$$\Delta \vec{E} - \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (1.16)$$

Cette équation aux dérivées partielles s'exprime simplement si l'on effectue une transformée de Fourier par rapport aux variables spatiales et temporelle :

$$-k^2 \vec{E}(\vec{k}, \omega) + \vec{k} \cdot (\vec{k} \cdot \vec{E}(\vec{k}, \omega)) + \frac{\omega^2}{c^2} \vec{E}(\vec{k}, \omega) = -\mu_0 \omega^2 \vec{P}(\vec{k}, \omega) \quad (1.17)$$

Si l'on exprime dans l'équation ci-dessus la polarisation à partir du champ électrique à l'aide de l'éq. 1.11, on obtient :

$$\left(-k^2 \delta_{ij} + k_i k_j + \frac{\omega^2}{c^2} (\delta_{ij} + \chi_{ij}(\omega)) \right) E_j(\vec{k}, \omega) = 0 \quad (1.18)$$

Enfin, χ_{ij} est un tenseur symétrique donc diagonalisable. Si l'on suppose que les axes x , y et z sont choisis de sorte que χ_{ij} soit diagonal, on peut écrire

$$\delta_{ij} + \chi_{ij}(\omega) = n_i^2(\omega) \delta_{ij} \quad (1.19)$$

où $n_i(\omega)$ est par définition l'indice de réfraction du matériau selon l'axe propre i . L'éq. 1.18 devient alors

$$\left(\left(-k^2 + n_i(\omega)^2 \frac{\omega^2}{c^2} \right) \delta_{ij} + k_i k_j \right) E_j = 0 \quad (1.20)$$

Il s'agit d'un système linéaire homogène de trois équations à trois inconnues qui n'admet de solution non triviale que si son déterminant est nul. Cette condition, connue sous le nom d'équation de Fresnel, s'écrit

$$\sum_i \frac{s_i^2}{\frac{1}{n_i^2} - \frac{1}{n^2}} = 0 \quad (1.21)$$

où $\vec{s} = \vec{k}/k$ est un vecteur unitaire orienté selon le vecteur d'onde \vec{k} et n est l'indice de réfraction effectivement vu par l'onde, défini par $k = n\omega/c$.

Pour démontrer l'éq. 1.21, écrivons tout d'abord l'éq. 1.20 à l'aide des notations introduites ci-dessus

$$(n_i^2 - n^2) E_i + n^2 s_i \sum_j s_j E_j = 0 \quad (1.22)$$

On en déduit

$$E_i = \frac{s_i}{1 - \frac{n_i^2}{n^2}} \sum_j s_j E_j \quad (1.23)$$

En multipliant par s_i puis en sommant sur i , on obtient

$$\sum_i s_i E_i = \sum_i \frac{s_i^2}{1 - \frac{n_i^2}{n^2}} \sum_j s_j E_j \quad (1.24)$$

soit,

$$\sum_i s_i^2 \left(\frac{1}{1 - \frac{n_i^2}{n^2}} - 1 \right) = 0 \quad (1.25)$$

d'où l'on peut déduire aisément l'éq. 1.21.

Si l'on multiplie l'éq. 1.21 par le produit $(1/n_x^2 - 1/n^2)(1/n_y^2 - 1/n^2)(1/n_z^2 - 1/n^2)$, on voit que l'expression obtenue est une équation du second degré en $1/n^2$, qui admet deux solutions. Lorsque le vecteur unitaire \vec{s} décrit la sphère unité, ces deux solutions décrivent deux surface, dont l'ensemble est appelé *surface des indices*.

Par la suite, nous nous limiterons à deux cas particuliers, celui des matériaux isotropes et des matériaux uniaxes, et nous n'aborderons donc pas le cas des matériaux biaxes, pour lesquels les trois indices n_x , n_y et n_z prennent des valeurs différentes.

1.3.2 Cas d'un milieu uniaxe

Dans le cas d'un matériau doté d'un axe de symétrie z d'ordre supérieur à 2, on peut montrer que les indices de réfraction selon les axes propres, n_x et n_y , sont nécessairement égaux. Il existe donc deux indices de réfraction pour les axes propres du milieu : l'indice *ordinaire* $n_o = n_x = n_y$ et l'indice *extraordinaire* $n_e = n_z$. L'axe z est alors appelé *axe optique* du matériau.

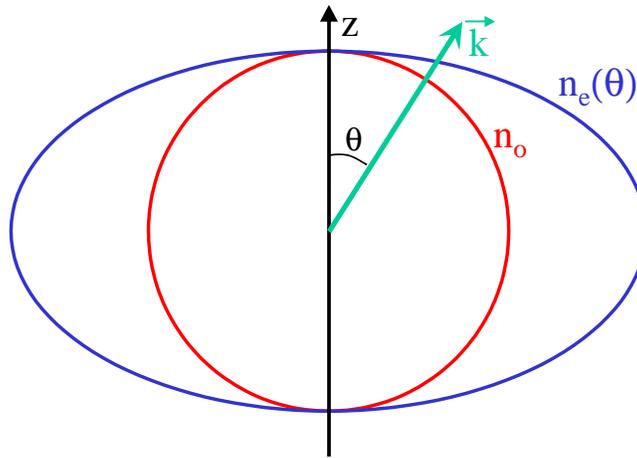


Figure 1.1: Représentation de la surface des indices pour un matériau uniaxe

Dans ce cas, on démontre que la surface des indices, dont une coupe est représentée Fig. 1.3.2, est constituée d'une sphère d'indice n_o et d'un ellipsoïde de révolution d'indice $n_e(\theta)$. θ est l'angle

entre l'axe optique et le vecteur d'onde et $n_e(\theta)$ est donné par la relation

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} \quad (1.26)$$

Pour démontrer l'éq. 1.26, on part de l'éq. 1.21, qui peut s'écrire dans le cas d'un matériau uniaxe de la façon suivante

$$(n^2 - n_o^2) \left((s_x^2 + s_y^2) n_o^2 (n^2 - n_e^2) + s_z^2 n_o^2 (n^2 - n_o^2) \right) = 0 \quad (1.27)$$

Cette équation admet deux solutions : d'une part une sphère $n = n_o$, d'autre part un ellipsoïde de révolution. En écrivant $s_z^2 = \cos^2 \theta$ et $s_x^2 + s_y^2 = \sin^2 \theta$, on obtient

$$n_o^2 (n^2 - n_e^2) \sin^2 \theta + n_e^2 (n^2 - n_o^2) \cos^2 \theta = 0 \quad (1.28)$$

d'où l'on déduit l'éq. 1.26.

Pour une valeur donnée de θ , il existe donc deux ondes de caractéristiques différentes se propageant dans un matériau anisotrope, phénomène dénommé *biréfringence*. La première onde voit l'indice de réfraction n_o - elle est donc appelée *onde ordinaire*, tandis que la seconde voit l'indice de réfraction $n_e(\theta)$ et est appelée *onde extraordinaire*. Dans le cas de l'onde ordinaire, \vec{E} et \vec{D} sont polarisés perpendiculairement au plan $\{\vec{k}, z\}$. A l'inverse, dans le cas de l'onde extraordinaire, \vec{E} et \vec{D} sont dans ce plan. De plus, ils ne sont alors pas exactement colinéaires mais forment un petit angle ρ appelé angle de double réfraction (walkoff en anglais) dont la valeur est déterminée par la relation

$$\tan \rho = \frac{n_e^2(\theta)}{2} \sin(2\theta) \left(\frac{1}{n_e^2} - \frac{1}{n_o^2} \right)$$

Dans ce cas, on a donc $\vec{\nabla} \cdot \vec{E} \neq 0$. De plus, de même que \vec{D} et \vec{E} forment un angle ρ , le vecteur d'onde \vec{k} (perpendiculaire à \vec{D}) et le vecteur de Poynting $\vec{\Pi}$ (perpendiculaire à \vec{E}) forment eux-aussi un angle ρ : le faisceau lumineux ne se propagera pas perpendiculairement aux plans d'ondes.

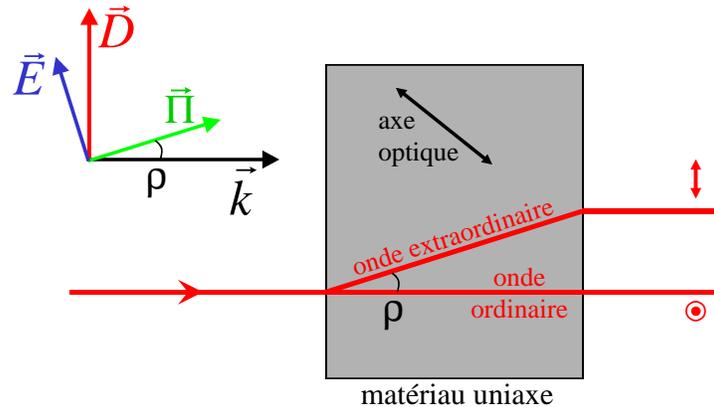


Figure 1.2: Illustration du phénomène de double réfraction

1.3.3 Cas d'un matériau isotrope

Le cas d'un matériau isotrope est évidemment beaucoup plus simple. En effet, \vec{D} et \vec{E} sont alors colinéaires, ce qui implique $k_i E_i = 0$, et l'éq. 1.20 devient

$$\left(-k^2 + n(\omega)^2 \frac{\omega^2}{c^2}\right) E_i = 0 \quad (1.29)$$

dont la solution s'écrit simplement

$$k = n(\omega) \frac{\omega}{c}$$

Le vecteur d'onde associé à une composante spectrale ω est donc indépendant de la direction de propagation : la surface des indices est une sphère. Néanmoins le vecteur d'onde dépend de la fréquence, phénomène connu sous le nom de dispersion chromatique et qui sera étudié plus en détail au chapitre 5. Dans le cas d'une onde plane se propageant selon l'axe z , le champ électrique s'écrira

$$\mathcal{E}(z, \omega) = \mathcal{E}(0, \omega) \exp(ik(\omega)z)$$

En général la susceptibilité $\chi(\omega)$ est une grandeur complexe et il en va donc de même de l'indice de réfraction et du vecteur d'onde. On pourra donc écrire $k = \kappa' + i\kappa''$. Le champ sera donc atténué au cours de sa propagation, l'intensité s'écrivant

$$I(z) = I(0) \exp(-2\kappa'' z)$$

d'où l'on déduit l'expression du coefficient d'absorption

$$\alpha(\omega) = 2\kappa''(\omega) = 2\text{Im}k(\omega) = \frac{2\omega}{c} \text{Im}n(\omega)$$

Dans le cas où la susceptibilité $\chi(\omega)$ est très inférieure à 1, on peut écrire

$$n(\omega) = (1 + \chi(\omega))^{1/2} \approx 1 + \frac{1}{2}\chi(\omega)$$

ce qui nous permet d'exprimer le coefficient d'absorption à partir de la susceptibilité

$$\alpha(\omega) = \frac{\omega}{c} \text{Im}\chi(\omega)$$

1.4 Approximation paraxiale

On se limitera dans cette section au cas d'une propagation dans le vide. Le cas d'un milieu isotrope d'indice de réfraction n pourra s'en déduire en remplaçant la vitesse de la lumière c par c/n .

1.4.1 Equation de propagation dans le cadre de l'approximation paraxiale

En pratique, on n'a jamais affaire à une onde plane mais à un faisceau lumineux d'extension transverse finie. L'onde plane est l'équivalent de l'onde de de Broglie en mécanique quantique, qui n'a pas de réalité physique, tandis qu'un véritable faisceau lumineux est l'équivalent d'un paquet d'ondes. Néanmoins, un faisceau lumineux est souvent assez proche d'une onde plane, et il sera donc intéressant d'écrire le champ électrique associé au faisceau sous la forme du produit d'une enveloppe $u(x, y, z)$ et d'une porteuse $\exp(ikz)$.

$$\mathcal{E}(x, y, z) = A u(x, y, z) \exp(ikz) \quad (1.30)$$

La constante A est choisie de sorte que la fonction $u(x, y, 0)$ soit normalisée

$$\int |u(x, y, 0)|^2 dx dy = 1 \quad (1.31)$$

On s'intéresse ici à une composante spectrale ω unique du champ électrique, qui sera donc sous-entendue dans toute la suite. Dans le cas où le champ n'est pas monochromatique, on pourra toujours retrouver la propagation du champ complet par superposition linéaire (eq. 1.1).

L'approximation paraxiale consiste à supposer que l'enveloppe $u(x, y, z)$ varie selon z lentement à l'échelle de la longueur d'onde. Cela nous permettra de négliger la dérivée seconde de l'enveloppe ($\partial^2 u / \partial z^2 \ll k \partial u / \partial z$). L'équation de propagation $\Delta E(x, y, z) + k^2 E = 0$ devient

$$\left(\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} + 2ik \frac{\partial u}{\partial z} - k^2 u + k^2 u \right) \exp(ikz) = 0 \quad (1.32)$$

soit,

$$\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} + 2ik \frac{\partial u}{\partial z} = 0 \quad (1.33)$$

où l'on a négligé la dérivée seconde de l'enveloppe ($\partial^2 u / \partial z^2 \ll k \partial u / \partial z$).

Cette équation est en tout point analogue à l'équation de Schrödinger d'un état $|\psi(t)\rangle$ évoluant dans $\mathcal{L}^2(\mathbb{R}^2)$ dans le cas d'un potentiel nul. La variable z est l'équivalent du temps en mécanique quantique. De même que l'évolution libre d'un paquet d'ondes donne lieu à un étalement en mécanique quantique, le profil transverse du faisceau lumineux va s'étaler lorsque z augmente.

Remarquons que cette équation s'écrit simplement dans l'espace des vecteurs d'ondes transverses

$$-\left(k_x^2 + k_y^2\right) u(k_x, k_y, z) + 2ik \frac{\partial u(k_x, k_y, z)}{\partial z} = 0 \quad (1.34)$$

dont la solution s'écrit

$$u(k_x, k_y, z) = u(k_x, k_y, 0) \exp\left(-i \frac{k_x^2 + k_y^2}{2k} z\right) \quad (1.35)$$

1.4.2 Propagation d'un faisceau lumineux quelconque

A l'aide de cette solution générale, il est possible de déterminer l'évolution en fonction de z de la position centrale du faisceau et de sa largeur. Ces quantités peuvent être définies en considérant que $|u(x, y, z)|^2$ est une densité de probabilité normalisée, de même que sa transformée de Fourier par rapport à ses coordonnées transverses, $|u(k_x, k_y, z)|^2$. On peut ainsi écrire :

$$\begin{aligned} \langle x \rangle_z &= \int x |u(x, y, z)|^2 dx dy \\ \langle x^2 \rangle_z &= \int x^2 |u(x, y, z)|^2 dx dy \\ \langle k_x \rangle_z &= \int k_x |u(k_x, k_y, z)|^2 \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi}, \text{ etc.} \end{aligned} \quad (1.36)$$

Remarquons tout d'abord que d'après l'éq. 1.35, $|u(k_x, k_y, z)|^2 = |u(k_x, k_y, 0)|^2$ et est donc indépendant de z . On peut donc en déduire que $\langle k_x \rangle$ et $\langle k_x^2 \rangle$ sont constants. En choisissant correctement l'axe z , on peut évidemment supposer que $\langle k_x \rangle = \langle k_y \rangle = 0$, ce qui signifie que le faisceau se propage selon l'axe z .

L'évolution de la position centrale du faisceau selon x s'écrit

$$\begin{aligned} \langle x \rangle_z &= \int x |u(x, y, z)|^2 dx dy \\ &= i \int (-ixu(x, y, z)) u(x, y, z)^* dx dy \\ &= i \int \frac{\partial u(k_x, k_y, z)}{\partial k_x} u(k_x, k_y, z)^* \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi} \end{aligned} \quad (1.37)$$

où l'on a utilisé le théorème de Parseval-Plancherel. Or, d'après la solution 1.35 de l'équation de propagation, on peut écrire

$$\frac{\partial u(k_x, k_y, z)}{\partial k_x} u(k_x, k_y, z)^* = \frac{\partial u(k_x, k_y, 0)}{\partial k_x} u(k_x, k_y, 0)^* - i \frac{k_x}{k} z |u(k_x, k_y, z)|^2 \quad (1.38)$$

L'éq. 1.37 devient ainsi

$$\langle x \rangle_z = \langle x \rangle_{z=0} + z \langle k_x/k \rangle = \langle x \rangle_{z=0} \quad (1.39)$$

En choisissant correctement l'origine de l'axe des x , on peut donc en déduire que $\langle x \rangle_z = 0$.

On peut calculer de la même façon $\langle x^2 \rangle$:

$$\begin{aligned} \langle x^2 \rangle_z &= \int x^2 |u(x, y, z)|^2 dx dy \\ &= \int |-ixu(x, y, z)|^2 dx dy \\ &= \int \left| \frac{\partial u(k_x, k_y, z)}{\partial k_x} \right|^2 \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi} \\ &= \int \left| \frac{\partial u(k_x, k_y, 0)}{\partial k_x} - i \frac{k_x}{k} z u(k_x, k_y, 0) \right|^2 \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi} \end{aligned} \quad (1.40)$$

Il s'agit d'un polynôme du second degré en z . Le coefficient constant de ce polynôme s'écrit

$$\int \left| \frac{\partial u(k_x, k_y, 0)}{\partial k_x} \right|^2 \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi} = \langle x^2 \rangle_{z=0} \quad (1.41)$$

Par ailleurs, le coefficient en z^2 du polynôme s'écrit

$$\int \left| \frac{k_x}{k} u(k_x, k_y, 0) \right|^2 \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi} = \langle k_x^2/k^2 \rangle \quad (1.42)$$

Enfin, en choisissant l'origine de l'axe des z de sorte que l'extremum de la parabole soit en $z = 0$, on annule le coefficient en z du polynôme du second degré. On en déduit donc

$$\langle x^2 \rangle_z = \langle x^2 \rangle_{z=0} + \frac{\langle k_x^2 \rangle}{k^2} z^2 \quad (1.43)$$

On peut donc en déduire la variance du faisceau $\Delta x(z)^2 = \langle x^2 \rangle_z - (\langle x \rangle_z^2) = \langle x^2 \rangle_z$ et l'écart quadratique moyen caractérisant la largeur du faisceau

$$\Delta x(z) = \sqrt{\Delta x(0)^2 + \frac{\Delta k_x^2}{k^2} z^2} \quad (1.44)$$

De même selon l'axe y

$$\Delta y(z) = \sqrt{\Delta y(0)^2 + \frac{\Delta k_y^2}{k^2} z^2} \quad (1.45)$$

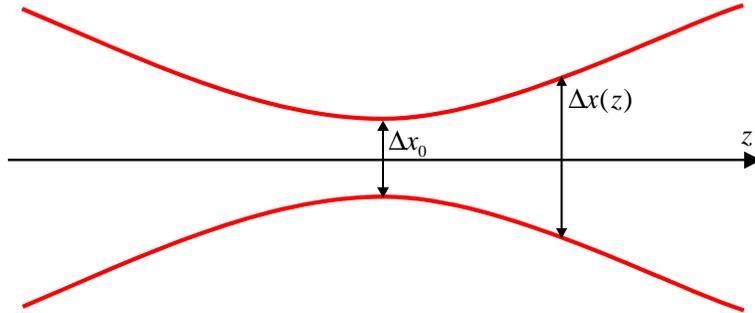


Figure 1.3: Propagation d'un faisceau lumineux

1.4.3 Propagation d'un faisceau gaussien

Considérons un faisceau dont le profil est gaussien en $z = 0$:

$$u(x, y, 0) = u_0(x, y) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{1}{w_0} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{w_0^2}\right) \quad (1.46)$$

$$\Delta x_0 = \Delta y_0 = w_0/2$$

Dans l'espace de Fourier, on a

$$u(k_x, k_y, 0) = \sqrt{2\pi}w_0 \exp\left(-\frac{(k_x^2 + k_y^2)w_0^2}{4}\right) \quad (1.47)$$

d'où, à l'aide de l'éq. 1.35

$$\begin{aligned} u(k_x, k_y, z) &= \sqrt{2\pi}w_0 \exp\left(-\frac{(k_x^2 + k_y^2)w_0^2}{4}\right) \exp\left(-i\frac{k_x^2 + k_y^2}{2k}z\right) \\ &= \sqrt{2\pi}w_0 \exp\left(-i\frac{k_x^2 + k_y^2}{2k}\tilde{q}(z)\right) \end{aligned} \quad (1.48)$$

où l'on a posé $\tilde{q}(z) = z - ikw_0^2/2$. Il s'agit donc d'une fonction gaussienne, dont on déduit aisément la transformée de Fourier

$$u(x, y, z) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{kw_0}{2i\tilde{q}(z)} \exp\left(ik\frac{x^2 + y^2}{2\tilde{q}(z)}\right) \quad (1.49)$$

On écrit habituellement

$$\frac{1}{\tilde{q}(z)} = \frac{1}{R(z)} + i\frac{2}{kw(z)^2} \quad (1.50)$$

où

$$w(z) = w_0\sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \quad (1.51)$$

$$R(z) = z + \frac{z_R^2}{z} \quad (1.52)$$

$$z_R = \frac{kw_0^2}{2} = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (1.53)$$

$$\psi(z) = \arctan \frac{z}{z_R} \quad (1.54)$$

L'éq. 1.49 devient alors

$$u(x, y, z) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{\exp(-i\psi(z))}{w(z)} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{w(z)^2}\right) \exp\left(ik\frac{x^2 + y^2}{2R(z)}\right) \quad (1.55)$$

ou encore

$$u(x, y, z) = \sqrt{\frac{2}{w(z)}} \Phi_0\left(\frac{x\sqrt{2}}{w(z)}\right)\Phi_0\left(\frac{y\sqrt{2}}{w(z)}\right) \exp\left(ik\frac{x^2 + y^2}{2R(z)}\right) \exp(-i\psi_0(z)) \quad (1.56)$$

1.4.4 Faisceaux gaussiens d'ordre multiple

En observant la forme d'un faisceau gaussien comme vu plus haut, par exemple l'éq. 1.56, on peut se demander comment se propage un faisceau obtenu en faisant le produit de deux fonctions de Hermite d'ordre supérieur.

$$u_{nm}(x, y, 0) = \sqrt{\frac{2}{w(z)}} \Phi_n\left(\frac{x\sqrt{2}}{w(z)}\right)\Phi_m\left(\frac{y\sqrt{2}}{w(z)}\right) \quad (1.57)$$

où Φ_n est la fonction de Hermite d'ordre n , solution de l'hamiltonien de l'oscillateur harmonique

$$\left(-\frac{1}{2}\frac{d^2}{d\xi^2} + \frac{1}{2}\xi^2\right)\Phi_n(\xi) = \left(n + \frac{1}{2}\right)\Phi_n(\xi) \quad (1.58)$$

Les calculs sont plus ardu, mais on montre en suivant la démarche de la section précédente que

$$u(x, y, z) = \sqrt{\frac{2}{w(z)}} \Phi_n\left(\frac{x\sqrt{2}}{w(z)}\right) \Phi_m\left(\frac{y\sqrt{2}}{w(z)}\right) \exp\left(ik\frac{x^2 + y^2}{2R(z)}\right) \exp(-i\psi_{nm}(z)) \quad (1.59)$$

où

$$\psi_{nm}(z) = (n + m + 1)\psi_{00}(z) = (n + m + 1) \arctan \frac{z}{z_R} \quad (1.60)$$

2 Modèle semi-classique de la susceptibilité

2.1 Développement non-linéaire de la polarisation induite

L'optique non-linéaire en régime non perturbatif sortant du cadre de ce cours, on supposera ici que $E \ll E_{at}$, de sorte que la convergence du développement ci-dessous soit assurée :

$$P = \epsilon_0 \left(\alpha \frac{E}{E_{at}} + \beta \left(\frac{E}{E_{at}} \right)^2 + \gamma \left(\frac{E}{E_{at}} \right)^3 + \dots \right) \quad (2.1)$$

Plus précisément, on va écrire

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \vec{P}^{(1)}(\vec{r}, t) + \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, t) + \vec{P}^{(3)}(\vec{r}, t) + \dots \quad (2.2)$$

où $\vec{P}^{(n)}(\vec{r}, t)$ est une fonction multilinéaire d'ordre n du champ électrique :

$$P_i^{(n)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int dt_1 \dots \int dt_n T_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(t; t_1, \dots, t_n) E_{i_1}(\vec{r}, t_1) \dots E_{i_n}(\vec{r}, t_n) \quad (2.3)$$

En appliquant maintenant l'invariance par translation dans le temps, on en déduit

$$P_i^{(n)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int d\tau_1 \dots \int d\tau_n R_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\tau_1, \dots, \tau_n) E_{i_1}(\vec{r}, t - \tau_1) \dots E_{i_n}(\vec{r}, t - \tau_n) \quad (2.4)$$

où, d'après le principe de causalité, la fonction réponse $R_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\tau_1, \dots, \tau_n)$ n'est non-nulle que si tous ses arguments sont positifs. A l'aide d'une transformation de Fourier, on en déduit

$$P_i^{(n)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int \frac{d\omega_1}{2\pi} \dots \int \frac{d\omega_n}{2\pi} \chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\omega_1, \dots, \omega_n) E_{i_1}(\vec{r}, \omega_1) \dots E_{i_n}(\vec{r}, \omega_n) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n)t) \quad (2.5)$$

$\chi^{(n)}$ est le *tenseur susceptibilité d'ordre n* , en fait un tenseur d'ordre $n+1$. Pour qu'il soit défini de façon unique, on le suppose invariant par les $n!$ permutations des $\{(i_1, \omega_1), \dots, (i_n, \omega_n)\}$, ce qui revient à permuter les champs dans l'intégrale.

Dans la plupart des ouvrages d'optique non-linéaire, le tenseur susceptibilité non-linéaire est noté $\chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(-\omega_\sigma; \omega_1, \dots, \omega_n)$, où $\omega_\sigma = \omega_1 + \dots + \omega_n$. Une telle notation fait explicitement ressortir la fréquence engendrée et sera parfois utilisé dans ce document.

Un cas particulier important est celui où l'on peut négliger la dépendance en fréquence de $\chi^{(n)}$. Cela correspond physiquement au cas d'un champ tel que les fréquences pour lesquelles le champ prend des valeurs significatives sont très éloignées des résonances du matériau, ce qui correspond donc à la zone de transparence. Dans ce cas, on peut écrire $\chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\omega_1, \dots, \omega_n) \approx \chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}$ et

$$P_i^{(n)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)} E_{i_1}(\vec{r}, t) \dots E_{i_n}(\vec{r}, t) \quad (2.6)$$

La réponse du matériau est alors *instantanée*.

2.2 Modèle semi-classique de la réponse linéaire et non-linéaire

Le problème de l'interaction entre le milieu et le rayonnement électromagnétique est en général extrêmement complexe en raison du nombre considérable de degrés de libertés intervenant dans le matériau, en particulier dans le cas d'un milieu solide ou liquide de dimension macroscopique. Nous serons donc contraints d'effectuer un certain nombre d'approximations. En premier lieu, on divisera le système en deux parties, d'une part un système quantique comportant un faible nombre N de niveaux d'énergie, et d'autre part le reste du système, appelé bain thermique. Nous supposons que seul le système à N niveaux est couplé au rayonnement, tandis que l'effet du bain thermique sera d'introduire des mécanismes de relaxation des populations et des cohérences du système quantique.

Il existe diverses techniques plus ou 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 Bloch. Quoique rudimentaire, cette approche permet de saisir l'essentiel des mécanismes physiques intervenant en optique non-linéaire.

2.2.1 Equation de Bloch

Soit ρ l'opérateur densité restreint aux N niveaux évoqués plus haut. L'évolution libre du système, c'est à dire en l'absence de champ électromagnétique, s'écrira

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [H_0, \rho] + i\hbar \left. \frac{\partial \rho}{\partial t} \right|_{relax} \quad (2.7)$$

où H_0 est le hamiltonien du système, dont les vecteurs propres et valeurs propres sont supposés connus

$$H_0 |n\rangle = \hbar\omega_n |n\rangle \quad (2.8)$$

Le dernier terme de l'éq. 2.7 correspond à la relaxation du système résultant de l'interaction avec le bain. Il sera simplement modélisé par l'expression

$$\left. \frac{\partial \rho_{nm}}{\partial t} \right|_{relax} = -\Gamma_{nm} (\rho_{nm} - \rho_{nm}^{(0)}) \quad (2.9)$$

où Γ_{nm} est le taux de relaxation. Il correspond à un taux de déphasage ($1/T_2$) lorsque $n \neq m$ et à un taux de relaxation de la population ($1/T_1$) lorsque $n = m$. $\rho_{nm}^{(0)}$ correspond à la valeur d'équilibre de l'opérateur densité, dont tous les termes non diagonaux, ou cohérences ($n \neq m$), sont évidemment nuls. Remarquez que cette expression simplifiée des termes de relaxation néglige en particulier les transferts de population entre niveaux.

Le couplage du système avec le faisceau lumineux sera pris en compte dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique, *i.e.* via le terme d'interaction $W(t) = -\vec{\mu} \cdot \vec{E}(t) = -\mu^i E_i(t)$, où $\vec{\mu}$ est

l'opérateur dipôle électrique. L'équation de Bloch en présence du champ devient alors

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [H_0, \rho] + [W(t), \rho] + i\hbar \left. \frac{\partial \rho}{\partial t} \right|_{relax} \quad (2.10)$$

Ecrivons les éléments de matrice de cette expression. Tout d'abord, les éléments de matrice des deux commutateurs s'écrivent

$$\begin{aligned} \langle n|[H_0, \rho]|m \rangle &= \langle n|H_0\rho - \rho H_0|m \rangle = \langle n|\hbar\omega_n\rho - \rho\hbar\omega_m|m \rangle \\ &= \hbar\omega_{nm}\rho_{nm} \end{aligned} \quad (2.11)$$

et

$$\begin{aligned} \langle n|[W, \rho]|m \rangle &= \langle n|W\rho - \rho W|m \rangle \\ &= \sum_l (W_{nl}\rho_{lm} - \rho_{nl}W_{lm}) \\ &= -E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm} - \rho_{nl} \mu_{lm}^i) \end{aligned} \quad (2.12)$$

L'équation d'évolution des éléments de matrice de l'opérateur densité s'écrit alors

$$\left(i \frac{d}{dt} - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm} \right) (\rho_{nm}(t) - \rho_{nm}^{(0)}) = -\frac{E_i(t)}{\hbar} \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}(t) - \rho_{nl}(t) \mu_{lm}^i) \quad (2.13)$$

Afin de résoudre cette équation, on écrit la fonction de Green $G_{nm}(t)$, qui est solution de l'équation dans le cas où le membre de droite est remplacé par une distribution de Dirac $\delta(t)$

$$\left(i \frac{d}{dt} - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm} \right) G_{nm}(t) = -\frac{\delta(t)}{\hbar} \quad (2.14)$$

On peut aisément écrire la solution de cette équation dans l'espace des fréquences

$$G_{nm}(\omega) = \frac{-1/\hbar}{\omega - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm}} \quad (2.15)$$

et dans l'espace des temps

$$G_{nm}(t) = \frac{i}{\hbar} \Theta(t) \exp(-i\omega_{nm}t - \Gamma_{nm}t) \quad (2.16)$$

La fonction de Green permet d'exprimer simplement la solution de l'éq. 2.13. En effet, par transformée de Fourier, cette dernière équation donne

$$\begin{aligned} \rho_{nm}(\omega) - \rho_{nm}^{(0)}(\omega) &= \frac{-1/\hbar}{\omega - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm}} \mathcal{F} \left(E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}(t) - \rho_{nl}(t) \mu_{lm}^i) \right) \\ &= G_{nm}(\omega) \mathcal{F} \left(E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}(t) - \rho_{nl}(t) \mu_{lm}^i) \right) \end{aligned} \quad (2.17)$$

Par transformée de Fourier inverse, on en déduit

$$\rho_{nm}(t) = \rho_{nm}^{(0)} + G_{nm}(t) \otimes \left(E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}(t) - \rho_{nl}(t) \mu_{lm}^i) \right) \quad (2.18)$$

2.2.2 Développement perturbatif

L'expression intégrale de l'équation de Bloch (eq. 2.18) se prête très bien à un développement perturbatif. En effet, développons l'opérateur densité en puissances successives du champ électrique

$$\rho = \rho^{(0)} + \rho^{(1)} + \rho^{(2)} + \dots \quad (2.19)$$

En utilisant cette expression de l'opérateur densité dans l'éq. 2.18, et en écrivant l'égalité des termes du même ordre par rapport au champ électrique, on obtient les équations

$$\rho_{nm}^{(p+1)}(t) = G_{nm}(t) \otimes \left(E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}^{(p)}(t) - \rho_{nl}^{(p)}(t) \mu_{lm}^i) \right) \quad (2.20)$$

Connaissant la solution d'ordre zéro, $\rho^{(0)}$, qui n'est autre que la valeur d'équilibre de l'opérateur densité en l'absence de champ, il est donc aisé de déterminer l'expression de l'opérateur densité aux ordres successifs de perturbation, à l'aide d'une série de produits de convolution.

$$\rho_{nm}^{(1)}(t) = G_{nm}(t) \otimes \left(E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}^{(0)} - \rho_{nl}^{(0)} \mu_{lm}^i) \right) \quad (2.21)$$

$$\rho_{nm}^{(2)}(t) = G_{nm}(t) \otimes \left(E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}^{(1)}(t) - \rho_{nl}^{(1)}(t) \mu_{lm}^i) \right) \quad (2.22)$$

$$\rho_{nm}^{(3)}(t) = G_{nm}(t) \otimes \left(E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}^{(2)}(t) - \rho_{nl}^{(2)}(t) \mu_{lm}^i) \right) \quad (2.23)$$

Dans le cas où l'on souhaite effectuer un calcul numérique, il sera possible d'effectuer de façon très efficace ce calcul itératif à l'aide d'une succession de transformée de Fourier, de produits, et de transformées de Fourier inverses.

2.2.3 expression de la polarisation

Si l'on suppose que le matériau est constitué de \mathcal{N} systèmes identiques et indépendants par unité de volume, la polarisation volumique s'écrit

$$\begin{aligned} P_i(t) &= \mathcal{N} \langle \mu^i(t) \rangle \\ &= \mathcal{N} Tr \mu^i \rho(t) \\ &= \mathcal{N} \sum_{nm} \mu_{mn}^i \rho_{nm}(t) \end{aligned}$$

Le terme d'ordre p de la polarisation se déduit donc aisément du terme d'ordre p de l'opérateur densité

$$P_i^{(p)}(t) = \mathcal{N} \sum_{nm} \mu_{mn}^i \rho_{nm}^{(p)}(t)$$

2.2.4 Résolution au premier ordre

Sachant que seul les termes diagonaux de l'opérateur densité sont non nuls à l'ordre zéro, l'éq. 2.20 permet d'obtenir l'expression de l'opérateur densité à l'ordre 1

$$\begin{aligned}\rho_{nm}^{(1)}(t) &= G_{nm}(t) \otimes \left(E_i(t) (\mu_{nm}^i \rho_{mm}^{(0)}(t) - \rho_{nn}^{(0)}(t) \mu_{nm}^i) \right) \\ &= \mu_{nm}^i \left(\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)} \right) G_{nm}(t) \otimes E_i(t)\end{aligned}\quad (2.24)$$

D'où l'on peut déduire, à l'aide de l'éq. 2.24, l'expression de la polarisation linéaire

$$P_i^{(1)}(t) = \mathcal{N} \left(\sum_{nm} \mu_{mn}^i \mu_{nm}^j \left(\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)} \right) G_{nm}(t) \right) \otimes E_j(t) \quad (2.25)$$

Ce produit de convolution s'écrit comme un simple produit dans l'espace des fréquences

$$P_i^{(1)}(\omega) = \mathcal{N} \sum_{nm} \mu_{mn}^i \mu_{nm}^j \left(\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)} \right) G_{nm}(\omega) E_j(\omega) \quad (2.26)$$

On en déduit ainsi l'expression de la susceptibilité linéaire

$$\chi_{ij}^{(1)}(\omega) = \frac{\mathcal{N}}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{nm} \frac{\mu_{mn}^i \mu_{nm}^j}{\omega - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm}} \left(\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)} \right) \quad (2.27)$$

Dans le cas où la température est nulle, ou très faible devant l'écart en énergie entre l'état fondamental et les états excités, seul l'état fondamental est peuplé, soit $\rho_{gg}^{(0)} = 1$. On obtient alors

$$\chi_{ij}^{(1)}(\omega) = \sum_{n \neq g} \frac{-\mathcal{N}}{\epsilon_0 \hbar} \left(\frac{\mu_{gn}^i \mu_{ng}^j}{\omega - \omega_{ng} + i\Gamma_{ng}} - \frac{\mu_{ng}^i \mu_{gn}^j}{\omega + \omega_{ng} + i\Gamma_{ng}} \right) \quad (2.28)$$

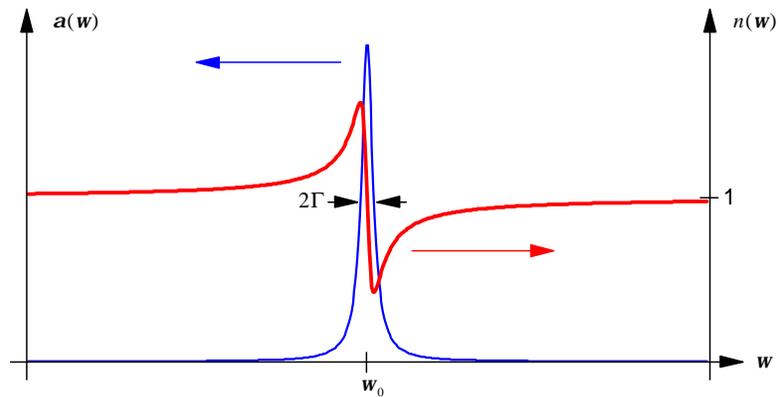


Figure 2.1: Représentation de l'absorption et de l'indice de réfraction obtenus à partir de l'éq. 2.28 dans le cas d'un système à deux niveaux de fréquence de transition ω_0 .

2.2.5 Calcul de la susceptibilité non-linéaire

La susceptibilité non-linéaire peut être calculée en itérant le raisonnement réalisé lors de la section précédente. Cette démarche sera abordée en détail en TD.

2.3 Modèle à deux niveaux en continu

Considérons un système à deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ en interaction avec le champ électrique d'un faisceau laser continu, de fréquence ω_l ($E(t) = E_0 \cos(\omega_l t)$). On suppose $\omega_a < \omega_b$. On supposera de plus que l'on est dans le régime quasi-résonnant, ce qui signifie que la fréquence du laser est très proche de la fréquence de résonance du système ($|\omega_l - \omega_{ba}| \ll \omega_{ba}$). Enfin, on supposera que le système est invariant par parité, ce qui signifie que les états propres sont soit pairs soit impairs. Il n'existe donc pas de dipôle permanent dans le système. On peut en déduire la forme de l'opérateur dipôle électrique

$$\vec{\mu} \cdot \vec{\epsilon} = \begin{pmatrix} 0 & \mu \\ \mu & 0 \end{pmatrix} \quad (2.29)$$

Dans ce cas, on montre que la susceptibilité linéaire s'écrit

$$\chi^{(1)}(\omega) = -\frac{\mathcal{N}\mu^2}{\epsilon_0 \hbar} \left(\frac{1}{\omega - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}} - \frac{1}{\omega + \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}} \right) (\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}) \quad (2.30)$$

On s'intéresse maintenant à la réponse non-linéaire de ce système.

L'équation de Bloch donne

$$\begin{aligned} \left(i \frac{d}{dt} - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba} \right) \rho_{ba}(t) &= -\frac{\mu E(t)}{\hbar} (\rho_{aa}(t) - \rho_{bb}(t)) \\ \left(i \frac{d}{dt} + i\Gamma_{aa} \right) (\rho_{aa} - \rho_{aa}^{(0)}) &= -\frac{\mu E(t)}{\hbar} (\rho_{ba} - \rho_{ab}) \\ \left(i \frac{d}{dt} + i\Gamma_{bb} \right) (\rho_{bb} - \rho_{bb}^{(0)}) &= \frac{\mu E(t)}{\hbar} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) \end{aligned}$$

On cherche une solution stationnaire dans le cadre de l'approximation de l'onde tournante, soit $\rho_{ba} = \tilde{\rho}_{ba} \exp(-i\omega_l t)$, avec $\tilde{\rho}_{ba}$, ρ_{aa} et ρ_{bb} constants. Les trois équations ci-dessus deviennent

$$\begin{aligned} (\omega_l - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}) \tilde{\rho}_{ba} &= -\frac{\mu E_0}{2\hbar} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) \\ (i\Gamma_{aa}) (\rho_{aa} - \rho_{aa}^{(0)}) &= -\frac{\mu E_0}{2\hbar} (\tilde{\rho}_{ba} - \tilde{\rho}_{ab}) \\ (i\Gamma_{bb}) (\rho_{bb} - \rho_{bb}^{(0)}) &= -\frac{\mu E_0}{2\hbar} (\tilde{\rho}_{ab} - \tilde{\rho}_{ba}) \end{aligned}$$

d'où

$$\tilde{\rho}_{ba} = -\frac{\mu E_0}{2\hbar} \frac{1}{\omega_l - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) \quad (2.31)$$

et

$$\rho_{aa} - \rho_{bb} = \rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)} - \frac{\mu^2 E_0^2}{2\hbar^2} \left(\frac{1}{\Gamma_{aa}} + \frac{1}{\Gamma_{bb}} \right) \Gamma_{ba} \frac{1}{(\omega_l - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ba}^2} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) \quad (2.32)$$

Le même résultat peut être obtenu d'une autre façon, en utilisant les fonctions de Green. En effet, d'après l'éq. 2.18, on a

$$\rho_{ba}(t) = \mu G_{ba}(t) \otimes (E(t)(\rho_{aa}(t) - \rho_{bb}(t))) \quad (2.33)$$

$$\rho_{aa}(t) = \mu G_{aa}(t) \otimes (E(t)(\rho_{ba}(t) - \rho_{ab}(t))) \quad (2.34)$$

$$\rho_{bb}(t) = \mu G_{bb}(t) \otimes (E(t)(\rho_{ab}(t) - \rho_{ba}(t))) \quad (2.35)$$

Dans le cadre de l'approximation de l'onde tournante, l'équation sur le terme de cohérence $\rho_{ba}(t)$ et sur l'inversion de population $\rho_{bb}(t) - \rho_{aa}(t)$ s'écrivent

$$\rho_{ba}(t) = -\frac{\mu}{2} G_{ba}(t) \otimes (\mathcal{E}(t)(\rho_{bb}(t) - \rho_{aa}(t))) \quad (2.36)$$

$$\rho_{bb}(t) - \rho_{aa}(t) = \frac{\mu}{2} (G_{aa}(t) + G_{bb}(t)) \otimes (\mathcal{E}(t)\rho_{ab}(t) - \mathcal{E}^*(t)\rho_{ba}(t)) \quad (2.37)$$

En régime forcé, les populations prennent des valeurs constantes et le terme de cohérence oscille à la fréquence du laser. Les deux équations ci-dessus deviennent

$$\rho_{ba}(t) = -\frac{\mu}{2} G_{ba}(\omega_l) E_0 \exp(-i\omega_l t) (\rho_{bb} - \rho_{aa}) = \tilde{\rho}_{ba} \exp(-i\omega_l t) \quad (2.38)$$

$$\rho_{bb} - \rho_{aa} = -\frac{\mu}{2} (G_{aa}(\omega = 0) + G_{bb}(\omega = 0)) (E_0^* \tilde{\rho}_{ba} - c.c.) + (\rho_{bb}^{(0)} - \rho_{aa}^{(0)}) \quad (2.39)$$

En utilisant l'expression 2.15 des fonctions de Green dans l'espace des fréquences, on obtient

$$\begin{aligned} \rho_{bb} - \rho_{aa} &= \frac{\mu}{2i\hbar} \left(\frac{1}{\Gamma_{aa}} + \frac{1}{\Gamma_{aa}} \right) \frac{\mu}{2i\hbar} |E_0|^2 \left(\frac{1}{\omega_l - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}} - \frac{1}{\omega_l - \omega_{ba} - i\Gamma_{ba}} \right) + (\rho_{bb}^{(0)} - \rho_{aa}^{(0)}) \\ &= -\frac{\mu^2 \Gamma_{ba}}{2\hbar^2} \left(\frac{1}{\Gamma_{aa}} + \frac{1}{\Gamma_{aa}} \right) \frac{|E_0|^2}{(\omega_l - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ba}^2} (\rho_{bb} - \rho_{aa}) + (\rho_{bb}^{(0)} - \rho_{aa}^{(0)}) \end{aligned} \quad (2.40)$$

ce qui nous permet de retrouver l'éq. 2.32.

Posons

$$\frac{1}{\Gamma} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\Gamma_{aa}} + \frac{1}{\Gamma_{bb}} \right) : \text{Temps de vie moyen} \quad (2.41)$$

et

$$\Omega_1 = -\frac{\mu E_0}{\hbar} \sqrt{\frac{\Gamma_{ba}}{\Gamma}} \quad (2.42)$$

L'éq. 2.32 devient

$$\rho_{aa} - \rho_{bb} = (\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}) - \frac{\Omega_1^2}{(\omega_l - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ba}^2} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) \quad (2.43)$$

d'où l'on déduit la différence des populations

$$\rho_{aa} - \rho_{bb} = (\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}) \frac{(\omega_l - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ba}^2}{(\omega_l - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ba}^2 + \Omega_1^2} \quad (2.44)$$

$$= (\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}) \left(1 - \frac{\Omega_1^2}{(\omega_l - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ba}^2 + \Omega_1^2} \right) \quad (2.45)$$

La différence de populations peut encore s'écrire

$$\rho_{aa} - \rho_{bb} = \frac{\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}}{1 + I/I_S} \quad (2.46)$$

où I est l'intensité du faisceau, proportionnelle à Ω_1^2 , et I_S est l'intensité de saturation.

La polarisation induite dans le matériau s'écrit

$$P(t) = \mathcal{N}\mu\tilde{\rho}_{ba}\exp(-i\omega_l t) + c.c. \quad (2.47)$$

soit, en notation complexe

$$\begin{aligned} \mathcal{P}(t) &= 2\mathcal{N}\mu\tilde{\rho}_{ba}\exp(-i\omega_l t) \\ &= \frac{\mathcal{N}\mu^2}{\hbar} \frac{1}{\omega_l - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) E_0 \exp(-i\omega_l t) \end{aligned}$$

Ceci peut se mettre sous la forme

$$\mathcal{P}(t) = \epsilon_0 \chi \mathcal{E}_0 \exp(-i\omega_l t) \quad (2.48)$$

avec

$$\begin{aligned} \chi &= \chi^{(1)}(\omega_l) \frac{\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}}{\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}} \\ &= \frac{\chi^{(1)}(\omega_l)}{1 + I/I_S} \end{aligned} \quad (2.49)$$

χ est la susceptibilité non-linéaire effectivement vue par le système, qui dépend maintenant de l'intensité. On pourrait évidemment développer cette expression en puissance de I/I_S et retrouver un développement de la polarisation faisant intervenir $\chi^{(1)}$, $\chi^{(3)}$, $\chi^{(5)}$, etc.

A intensité très faible devant l'intensité de saturation ($I \ll I_S$), $\rho_{aa} - \rho_{bb}$ est très proche de $\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}$ et la susceptibilité est égale à la susceptibilité linéaire. Au contraire, les phénomènes non linéaires commencent à apparaître quand l'intensité est de l'ordre de l'intensité de saturation. A l'extrême, quand $I \gg I_S$, $\rho_{aa} - \rho_{bb}$ tend vers 0 et la susceptibilité tend aussi vers 0. Le système devient transparent : l'absorption est saturée.

3 Le Laser

Le principe du laser fait intervenir deux éléments, un amplificateur et un mécanisme de bouclage. Comme en électronique, on obtient alors dans certaines conditions, i.e. si le gain est suffisamment élevé, une oscillation.

Dans le domaine optique, le mécanisme de bouclage est assuré par une *cavité optique*, qui fera l'objet de la section 3.1, tandis que l'amplification résulte de l'émission stimulée (section 3.2). Enfin, dans la section 3.3, nous étudierons le laser en régime stationnaire.

3.1 Cavité optique

3.1.1 Modes longitudinaux

Une cavité laser peut être soit linéaire soit circulaire. Nous considérerons ce dernier cas dans cette partie mais les résultats sont similaires dans le cas d'une cavité linéaire.

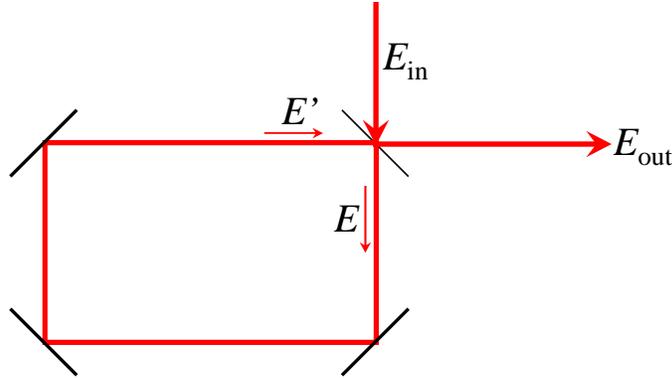


Figure 3.1: *Cavité circulaire*

On suppose que le miroir de couplage, ou de sortie, de la cavité est caractérisé par un coefficient de réflexion \sqrt{R} et un coefficient de transmission \sqrt{T} (en amplitude). Les relations d'entrée-sortie sur le miroir de couplage s'écrivent ainsi

$$\mathcal{E} = \sqrt{T}\mathcal{E}_{in} + \sqrt{R}\mathcal{E}' \quad (3.1)$$

$$\mathcal{E}_{out} = -\sqrt{R}\mathcal{E}_{in} + \sqrt{T}\mathcal{E}' \quad (3.2)$$

Le signe $-$ dans l'éq. 3.2 résulte de la conservation de l'énergie. Par ailleurs, on suppose que l'intensité du faisceau est multipliée par un facteur $\exp(-A)$ à chaque tour de cavité, et que le champ

subit un déphasage φ . Dans le cas où la cavité est vide, ce déphasage peut s'écrire $\varphi = \omega L/c + \varphi_G$, le premier terme correspondant au chemin optique vu par une onde monochromatique de fréquence ω , tandis que le terme φ_G inclut des corrections d'origines diverses (phase de Gouy à laquelle il faudra éventuellement ajouter le déphasage intervenant lors des réflexions sur les autres miroirs).

La relation de bouclage liant les champs \mathcal{E} et \mathcal{E}' s'écrit donc

$$\mathcal{E}' = \mathcal{E} e^{-A/2} e^{i\varphi} \quad (3.3)$$

En remplaçant dans l'éq. 3.1, on obtient

$$\mathcal{E} = \sqrt{T}\mathcal{E}_{in} + \sqrt{R} e^{-A/2} e^{i\varphi} \mathcal{E} \quad (3.4)$$

soit,

$$\mathcal{E} = \frac{\sqrt{T}}{1 - \sqrt{R} e^{-A/2} e^{i\varphi}} \mathcal{E}_{in} \quad (3.5)$$

d'où

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{out} &= \left(-\sqrt{R} + \frac{T e^{-A/2} e^{i\varphi}}{1 - \sqrt{R} e^{-A/2} e^{i\varphi}} \right) \mathcal{E}_{in} \\ &= \frac{e^{-A/2} e^{i\varphi} - \sqrt{R}}{1 - \sqrt{R} e^{-A/2} e^{i\varphi}} \mathcal{E}_{in} \end{aligned} \quad (3.6)$$

L'intensité circulant dans la cavité peut s'écrire $|\mathcal{E}|^2 = S |\mathcal{E}_{in}|^2$, où S est par définition le facteur de surtension. Ce dernier, représenté Fig. 3.1.1, est constitué de pics coïncidant avec les points où la phase φ est un multiple de 2π . L'espacement entre les pics, encore appelé intervalle spectral libre, a donc pour valeur $\Delta\omega = 2\pi c/L$. On dit qu'on a affaire à une "bonne cavité" lorsque les pertes subies après un tour sont faibles. Celles-ci sont caractérisées par la grandeur P définie par $\exp(-P) = R \exp(-A)$, soit $P = \ln(1/R) + A$. Dans le cas de faible pertes, c'est à dire lorsque le coefficient de réflexion R est proche de 1 et lorsque l'absorption A est faible (d'où $P \approx T + A$), on montre que les pics de résonance prennent une forme lorentzienne de largeur $\delta\omega = cP/L$. Enfin, la finesse f définie comme le rapport entre $\Delta\omega$ et $\delta\omega$ a pour valeur $f = 2\pi/P$.

Dans le cas général, le facteur de surtension a pour valeur

$$\begin{aligned} S &= \frac{T}{1 + R e^{-A} - 2\sqrt{R} e^{-A/2} \cos \varphi} \\ &= \frac{T}{1 + R e^{-A} - 2\sqrt{R} e^{-A/2} + 4\sqrt{R} e^{-A/2} \sin^2 \varphi} \\ &= \frac{T}{(1 - \sqrt{R} e^{-A/2})^2 + 4\sqrt{R} e^{-A/2} \sin^2 \varphi} \\ &= \frac{T / (1 - \sqrt{R} e^{-A/2})^2}{1 + \frac{4\sqrt{R} e^{-A/2}}{(1 - \sqrt{R} e^{-A/2})^2} \sin^2 \varphi} \end{aligned} \quad (3.7)$$

La largeur à mi-hauteur est obtenue lorsque

$$\sin^2 \varphi = \frac{(1 - \sqrt{R} e^{-A/2})^2}{4\sqrt{R} e^{-A/2}} \quad (3.8)$$

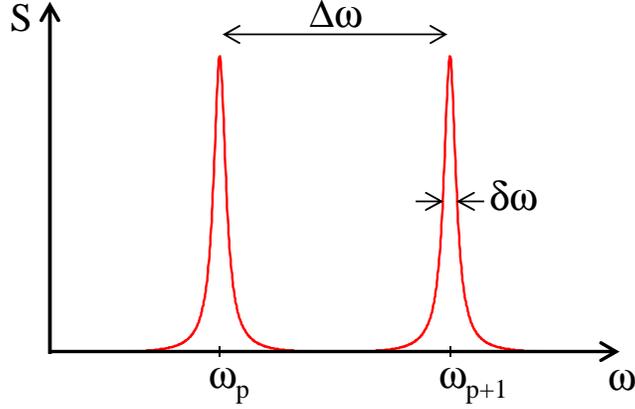


Figure 3.2: Représentation du facteur de surtension en fonction de la fréquence

En remarquant que $\sin \varphi \approx \delta\omega L/2c$, on en déduit la largeur des pics de résonances

$$\delta\omega = \frac{2c}{L} \frac{1 - \sqrt{R} e^{-A/2}}{\sqrt{\sqrt{R} e^{-A/2}}} \quad (3.9)$$

On en déduit la finesse

$$f = \frac{\Delta\omega}{\delta\omega} = \pi \frac{\sqrt{\sqrt{R} e^{-A/2}}}{1 - \sqrt{R} e^{-A/2}} \quad (3.10)$$

Enfin, le facteur de surtension à la résonance s'écrit

$$S_{max} = \frac{T}{(1 - \sqrt{R} e^{-A/2})^2} \approx \frac{T}{P^2} \quad (3.11)$$

Il est simple de déduire des résultats ci-dessus les valeurs énoncées plus haut dans le cas d'une "bonne cavité".

3.1.2 Interprétation impulsionnelle des modes longitudinaux d'une cavité

Il existe une autre méthode pour établir les résultats ci-dessus, consistant à se placer dans le domaine temporel. Supposons que le champ $\mathcal{E}_{in}(t)$ soit non pas un champ monochromatique mais une impulsion brève, dont la durée sera supposée très inférieure au temps nécessaire pour parcourir la cavité, $T_0 = L/c$. Cette impulsion va effectuer un certain nombre de tours dans la cavité, son amplitude étant multipliée à chaque tour par la grandeur $\sqrt{R} \exp(-A/2 + i\varphi_G) = \exp(-P/2 + i\varphi_G)$. Le champ dans la cavité s'écrit donc

$$\begin{aligned} \mathcal{E}(t) &= \sqrt{T} \sum_{n=0}^{+\infty} \left(e^{-P/2 + i\varphi_G} \right)^n \mathcal{E}_{in}(t - nT_0) \\ &= \sqrt{T} \sum_{n=0}^{+\infty} \exp(n(-P/2 + i\varphi_G)) \mathcal{E}_{in}(t - nT_0) \\ &= \sqrt{T} \sum_{n=0}^{+\infty} f(nT_0) \delta(t - nT_0) \otimes \mathcal{E}_{in}(t) \end{aligned} \quad (3.12)$$

où l'on a posé $f(t) = \Theta(t) \exp(-\gamma t/2 + it\varphi_G/T_0)$, avec $\gamma = P/T_0$ le taux de décroissance de la cavité. L'éq. 3.12 peut encore s'écrire

$$\mathcal{E}(t) = \sqrt{T} (f(t)\Pi_{T_0}(t)) \otimes \mathcal{E}_{in}(t) \quad (3.13)$$

où $\Pi_{T_0}(t) = \sum \delta(t - nT_0)$ est un peigne de Dirac de pas T_0 . En passant dans l'espace des fréquences, on obtient

$$\mathcal{E}(\omega) = \sqrt{T} \left(f(\omega) \otimes \Pi_{2\pi/T_0}(\omega) \right) \mathcal{E}_{in}(\omega) \quad (3.14)$$

On en déduit que la réponse spectrale de la cavité est constituée de pics espacés de $\Delta\omega = 2\pi/T_0 = 2\pi c/L$. Dans le cas d'une cavité de bonne qualité, le chevauchement de ces pics peut être négligé et on peut donc se concentrer sur un pic unique. Celui-ci a pour forme spectrale la transformée de Fourier d'une exponentielle, soit une lorentzienne, dont la largeur $\delta\omega$ est inversement proportionnelle au temps de vie dans la cavité.

3.1.3 Modes transverses

Le calcul effectué ci-dessus n'est valable que dans le cas d'une onde plane, ce qui impliquerait des miroirs d'extension spatiale infinie. Dans une cavité réelle, l'extension transverse est bien évidemment finie, ce qui donne lieu à une diffraction qu'il faut compenser à l'aide d'éléments convergents comme des lentilles ou des miroirs sphériques. L'exemple le plus simple d'une telle cavité est constitué d'un miroir plan faisant face à un miroir sphérique. La longueur de la cavité est noté D et le rayon de courbure du miroir est noté R_0 .

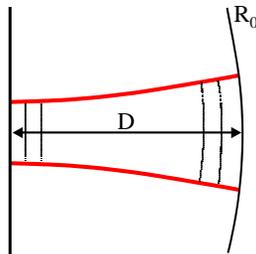


Figure 3.3: *Cavité plan - sphérique utilisée dans la détermination du mode transverse*

Nous savons que quel que soit le profil spatial du faisceau sur le miroir plan, il pourra se décomposer sur les fonctions $u_{nm}(x, y, 0)$ qui forment une base de l'espace $\mathcal{L}^2(R)$. Cherchons donc une solution de l'équation de propagation dans la cavité sous la forme d'une fonction $u_{nm}(x, y, z)$. De façon générale, on démontre que le rayon de courbure de l'onde doit coïncider avec le rayon du miroir sur lequel elle se réfléchit. Cela signifie que le rayon de courbure du faisceau doit être

infini au niveau du miroir plan, ou encore que ce dernier se situe au waist du faisceau. Par ailleurs, le rayon de courbure du faisceau gaussien au niveau du miroir sphérique, $R(D)$, doit être égal au rayon R_0 du miroir sphérique. On obtient donc

$$R_0 = R(D) = D + \frac{z_R^2}{D}$$

La longueur de Rayleigh du faisceau est donc entièrement déterminée par la longueur de la cavité :

$$z_R = \sqrt{D(R_0 - D)}$$

ce qui impose $R_0 > D$. Cette condition détermine la *zone de stabilité* de la cavité, représentée sur la Fig. 3.1.3.

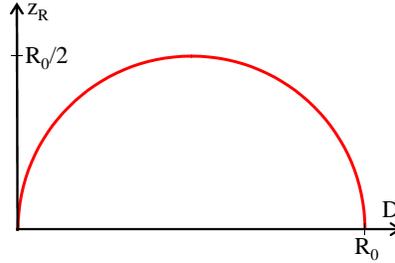


Figure 3.4: Zone de stabilité de la cavité

On peut en déduire le waist du faisceau, qui dépend de la géométrie de la cavité

$$w_0 = \sqrt{\frac{2c}{\omega}} (D(R_0 - D))^{\frac{1}{4}} = \sqrt{\frac{\lambda z_R}{\pi}}$$

Enfin, si l'on tient compte des conditions de résonance longitudinales de la cavité, on doit écrire que la phase vue par le faisceau après un aller-retour doit être égale à un multiple de 2π , soit

$$\frac{2\omega_{pnm}D}{c} + 2(n + m + 1) \arctan \frac{D}{z_R} = 2p\pi$$

ce qui permet de déterminer la fréquence d'un mode de la cavité

$$\omega_{pnm} = \frac{c}{2D} \left(2p\pi - 2(n + m + 1) \arctan \frac{D}{z_R} \right)$$

3.2 Amplification optique

Comme vu au chapitre précédent, il faut établir une inversion de population, $\rho_{aa} < \rho_{bb}$, si l'on veut obtenir une amplification. Par ailleurs, nous avons vu que dans le cas d'un système à deux niveaux couplé à un champ, il est impossible de changer le signe de la différence des populations simplement par un couplage avec le champ électromagnétique. On peut donc en déduire qu'il faut trois ou quatre niveaux pour pouvoir obtenir une inversion de population par un pompage sous forme optique.

3.2.1 Equation de Bloch en présence de pompage

Nous nous contenterons ici du modèle simplifié à deux niveaux représenté Fig. 3.2.1, les autres niveaux étant incorporés au bain thermique.

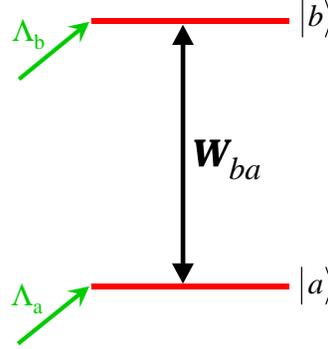


Figure 3.5: Modèle à deux niveaux incorporant des taux de pompage Λ_a et Λ_b des deux niveaux a et b

On introduira donc des termes de pompage des deux niveaux a et b

$$\left. \frac{\partial \rho_{aa}}{\partial t} \right|_{\text{pompage}} = \Lambda_a \quad (3.15)$$

$$\left. \frac{\partial \rho_{bb}}{\partial t} \right|_{\text{pompage}} = \Lambda_b \quad (3.16)$$

Il faut donc maintenant résoudre de nouveau l'équation de Bloch avec ces termes supplémentaires, en suivant l'approche de la section 2.3.

Considérons dans un premier temps l'évolution des populations en l'absence de champ électrique. L'équation d'évolution s'écrit

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{nn} &= \left. \frac{\partial \rho_{nn}}{\partial t} \right|_{\text{relax}} + \left. \frac{\partial \rho_{nn}}{\partial t} \right|_{\text{pompage}} \\ &= -\Gamma_{nn} (\rho_{nn} - \rho_{nn}^{(0)}) + \Lambda_n \\ &= -\Gamma_{nn} \left(\rho_{nn} - \rho_{nn}^{(0)} - \frac{\Lambda_n}{\Gamma_{nn}} \right) \end{aligned} \quad (3.17)$$

Il en résulte que les populations tendent vers les valeurs d'équilibre

$$\rho_{nn}^{(eq)} = \rho_{nn}^{(0)} + \frac{\Lambda_n}{\Gamma_{nn}} \quad (3.18)$$

Enfin, il est intéressant de remarquer que la somme des termes de relaxation et de pompage s'écrit

$$\left. \frac{\partial \rho_{nn}}{\partial t} \right|_{\text{relax}} + \left. \frac{\partial \rho_{aa}}{\partial t} \right|_{\text{pompage}} = -\Gamma_{nn} (\rho_{nn} - \rho_{nn}^{(eq)}) \quad (3.19)$$

Cette expression est parfaitement analogue au terme de relaxation seul, à condition de remplacer $\rho_{nn}^{(0)}$ par $\rho_{nn}^{(eq)}$. Cette remarque nous permet d'utiliser directement les résultats obtenus à la section 2.3 pour déterminer la susceptibilité d'un système à deux niveaux en présence de pompage.

On obtient

$$\begin{aligned}\chi &= \chi^{(1)}(\omega_l) \frac{\rho_{bb} - \rho_{aa}}{\rho_{bb}^{(eq)} - \rho_{aa}^{(eq)}} \\ &= -\frac{\mathcal{N}\mu^2}{\epsilon_0\hbar} \left(\frac{1}{\omega - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}} - \frac{1}{\omega + \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}} \right) \left(\rho_{aa}^{(eq)} - \rho_{bb}^{(eq)} \right) \frac{1}{1 + \frac{I}{I_S}}\end{aligned}\quad (3.20)$$

Dans le cas où $\rho_{aa}^{(eq)} < \rho_{bb}^{(eq)}$, le champ subit donc un gain

$$g(\omega_l) = \frac{g_0(\omega_l)}{1 + \frac{I}{I_S}} \quad (3.21)$$

où $g_0(\omega_l)$ est le gain faible signal

$$g_0(\omega_l) = \frac{\omega_l \mathcal{N}\mu^2}{c \epsilon_0\hbar} \frac{\Gamma_{ba}}{(\omega_l - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ba}^2} \left(\rho_{bb}^{(eq)} - \rho_{aa}^{(eq)} \right) \quad (3.22)$$

Un cas particulier important est la situation idéale où les niveaux a et b sont initialement vides ($\rho_{aa}^{(0)} = \rho_{bb}^{(0)} = 0$) et où seul le niveau b est pompé ($\Lambda_a = 0$). On a alors $\rho_{aa}^{(eq)} = 0$ et $\rho_{bb}^{(eq)} = \Lambda_b/\Gamma_{bb}$. Dans ce cas, l'équation 3.22 devient

$$g_0(\omega_l) = \frac{\omega_l \mathcal{N}\mu^2}{c \epsilon_0\hbar} \frac{\Gamma_{ba}}{(\omega_l - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ba}^2} \frac{\Lambda_b}{\Gamma_{bb}} \quad (3.23)$$

et le gain en faible signal est simplement proportionnel au taux de pompage du niveau supérieur.

3.2.2 Propagation en régime de faible signal

L'intensité du faisceau se propageant dans le milieu amplificateur obéit à l'équation

$$\frac{dI}{dz} = g(\omega_l)I \quad (3.24)$$

Dans le cas où le faisceau est de faible intensité, on peut supposer que $g(\omega_l) = g_0(\omega_l)$ (noté simplement g_0 par la suite) et est donc indépendant de l'intensité. Dans ce cas, l'équation ci-dessus donne immédiatement

$$I(z) = I(0) \exp(g_0 z) \quad (3.25)$$

L'intensité croît donc exponentiellement avec z .

3.2.3 Propagation en régime saturé

L'expression ci-dessus cesse d'être valable dès que $I(z)$ n'est plus négligeable devant l'intensité de saturation. Dans ce cas l'équation d'évolution de l'intensité s'écrit

$$\frac{dI}{dz} = g_0 \frac{I}{1 + \frac{I}{I_S}} \quad (3.26)$$

que l'on peut encore écrire

$$\left(\frac{1}{I} + \frac{1}{I_S}\right) dI = g_0 dz \quad (3.27)$$

Cette équation aux variables séparables s'intègre simplement

$$\ln \frac{I}{I_0} + \frac{I - I_0}{I_S} = g_0 L \quad (3.28)$$

On retrouve évidemment une variation exponentielle lorsque $I \ll I_S$. A l'inverse, lorsque $I \gg I_S$, la variation de l'intensité avec z devient linéaire.

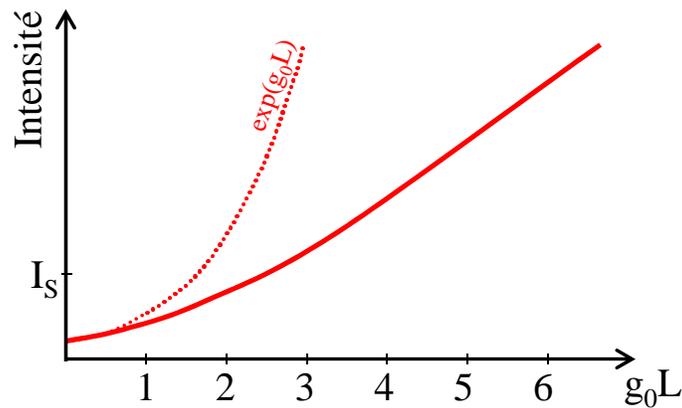


Figure 3.6: Intensité obtenue après amplification sur une Longueur L . La courbe en pointillé représente ce que l'on aurait obtenu en l'absence de saturation ($g = g_0$).

3.3 Laser en régime stationnaire

Considérons ici le cas d'une cavité circulaire en supposant que le champ se propage dans un sens de rotation bien déterminé, que l'on pourra imposer à l'aide d'un composant optique comme un isolateur de Faraday. Le rôle de cette hypothèse est de simplifier le problème en évitant la présence de franges d'interférences dans le milieu amplificateur.

3.3.1 Condition d'oscillation

On appellera L la longueur de la cavité et L_A l'épaisseur du milieu amplificateur. Considérons le champ sur l'axe du faisceau et appelons \mathcal{E} le champ à l'entrée du milieu amplificateur, \mathcal{E}' le champ en sortie du milieu amplificateur et \mathcal{E}'' le champ à l'entrée du milieu amplificateur après un tour de cavité. Comme à la section 3.1 on appellera R le coefficient de réflexion du miroir de sortie de la cavité et A les pertes par absorption.

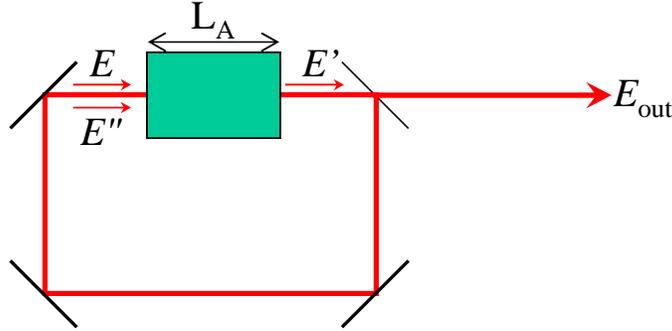


Figure 3.7: Cavité laser utilisée dans le modèle

On supposera de plus que le milieu amplificateur est suffisamment mince pour que le gain g puisse être considéré comme constant dans le milieu. Cette approximation nous permet d'écrire

$$\mathcal{E}' = \mathcal{E} e^{i\frac{n\omega L_A}{c}} e^{gL_A/2} \quad (3.29)$$

Par ailleurs, le champ \mathcal{E}'' après un tour de cavité peut s'exprimer à partir de \mathcal{E}' selon la relation

$$\mathcal{E}'' = \mathcal{E}' \sqrt{Re^{-A}} e^{i\frac{\omega}{c}(L-L_A)} e^{i\varphi_G} \quad (3.30)$$

où l'on a tenu compte des pertes par réflexion et absorption, du déphasage résultant de la propagation sur une distance $L - L_A$ et du déphasage de Gouy φ_G .

En régime stationnaire, le champ doit se reproduire identique à lui-même après un tour de cavité. C'est la condition de bouclage, qui s'exprime ici $\mathcal{E}'' = \mathcal{E}$, soit

$$\mathcal{E} = \mathcal{E} \sqrt{Re^{-A}} e^{gL_A/2} e^{i\frac{\omega}{c}(L-L_A)} e^{i\frac{n\omega L_A}{c}} e^{i\varphi_G} \quad (3.31)$$

Cette équation admet deux solutions : soit $\mathcal{E} = 0$, ce qui signifie que le laser ne fonctionne pas, soit

$$\sqrt{Re^{-A}} e^{gL_A/2} \exp\left(i\left(\frac{\omega}{c}((n-1)L_A + L) + \varphi_G\right)\right) = 1 \quad (3.32)$$

qui est la condition d'oscillation du laser. Cette expression impose une condition sur l'amplitude et une condition sur la phase, conditions que nous allons examiner successivement.

3.3.2 Condition sur l'amplitude

La condition d'oscillation sur l'amplitude s'écrit

$$Re^{-A} e^{gL_A} = 1 \quad (3.33)$$

En notant $P = A + \ln(1/R)$ les pertes dans la cavités, on obtient

$$gL_A = P \quad (3.34)$$

En d'autre termes en régime stationnaire le gain compense exactement les pertes. En remplaçant le gain par son expression, on obtient

$$\frac{g_0 L_A}{1 + \frac{I}{I_S}} = P \quad (3.35)$$

soit

$$I = I_S \left(\frac{g_0 L_A}{P} - 1 \right) \quad (3.36)$$

L'intensité étant positive, on en déduit que le laser ne peut fonctionner que si le gain en faible signal est strictement supérieur aux pertes.

Dans le cas simplifié où seul le niveau supérieur est pompé, on sait d'après l'eq. 3.23 que le gain faible signal est directement proportionnel au taux de pompage : $g_0 \propto \Lambda_b$. On peut alors exprimer l'intensité circulant dans le laser selon la relation

$$I = I_S \left(\frac{\Lambda_b}{\Lambda_{b,seuil}} - 1 \right) \quad (3.37)$$

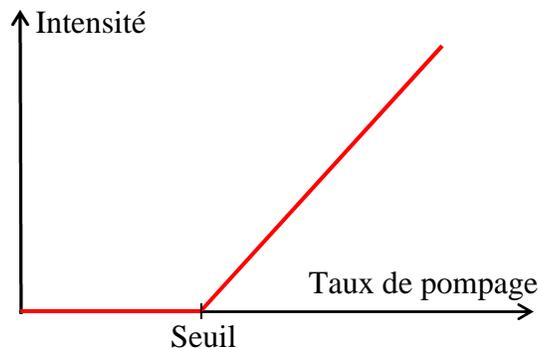


Figure 3.8: Puissance émise en fonction du taux de pompage

3.3.3 Condition sur la phase

La condition sur la phase s'écrit

$$\frac{\omega}{c}((n(\omega, I) - 1)L_A + L) + \varphi_G = p2\pi \quad (3.38)$$

Cette condition fait intervenir l'indice de réfraction du milieu amplificateur qui dépend non seulement de la fréquence mais aussi de l'intensité du faisceau laser. La position exacte des modes longitudinaux est donc fonction de la puissance de fonctionnement du laser.

4 Quelques phénomènes d'optique non-linéaire

4.1 Equation de propagation

Si l'on tient compte de la réponse non-linéaire du milieu, l'équation de propagation peut s'écrire

$$\Delta \vec{E} - \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(1)}}{\partial t^2} + \underbrace{\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(2)}}{\partial t^2} + \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(3)}}{\partial t^2} + \dots}_{\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(NL)}}{\partial t^2}} \quad (4.1)$$

où l'on a explicité le terme non-linéaire de la polarisation $\vec{P}^{(NL)}(t)$. Ce terme source supplémentaire dans l'équation de propagation est à l'origine de nombreux processus qui font l'objet de ce chapitre.

Par la suite, on ne s'intéressera pas aux effets tensoriels de la réponse non-linéaire et on considérera donc uniquement des grandeurs scalaires. De plus, on négligera l'angle de double réfraction, de l'ordre de quelques degrés, ce qui nous permettra de négliger le terme $\vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E})$ dans l'équation de propagation. En utilisant la notation complexe comme définie au chapitre 1, l'équation de propagation devient alors

$$\Delta \mathcal{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathcal{E}}{\partial t^2} - \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathcal{P}^{(1)}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathcal{P}^{(NL)}}{\partial t^2} \quad (4.2)$$

Dans le cadre de l'approximation paraxiale, introduite à la section 1.4, on peut écrire la composante de fréquence ω du champ électrique sous la forme

$$\mathcal{E}(x, y, z, \omega) = \mathcal{A}(x, y, z, \omega) \exp(ik(\omega)z) \quad (4.3)$$

où $\mathcal{A}(x, y, z, \omega)$ est une enveloppe supposée lentement variable avec z . $k(\omega) = n(\omega)\omega/c$ est le vecteur d'onde dans le milieu. Avec ces nouvelles notations, l'éq. 1.33 devient

$$\frac{\partial^2 \mathcal{A}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{A}}{\partial y^2} + 2ik(\omega) \frac{\partial \mathcal{A}}{\partial z} = 0 \quad (4.4)$$

Si l'on tient compte du terme non-linéaire dans la réponse du milieu, il convient d'ajouter un terme source à l'équation ci-dessus

$$\frac{\partial^2 \mathcal{A}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{A}}{\partial y^2} + 2ik(\omega) \frac{\partial \mathcal{A}}{\partial z} = -\frac{\omega^2}{\epsilon_0 c^2} \mathcal{P}^{(NL)}(x, y, z, \omega) \exp(-ik(\omega)z) \quad (4.5)$$

qui est l'équation de propagation en régime non-linéaire dans le cadre de l'approximation paraxiale. Le traitement des phénomènes transverses requiert des simulations numériques souvent ardues et qui sortent du cadre de ce cours. On se contentera ici de la version unidimensionnelle de l'équation de propagation, valable pour des ondes planes, que l'on peut écrire

$$\frac{\partial \mathcal{A}}{\partial z} = \frac{i\omega}{2n(\omega)\epsilon_0 c} \mathcal{P}^{(NL)}(z, \omega) \exp(-ik(\omega)z) \quad (4.6)$$

Cette équation sera utilisée en TD dans le cas de la propagation en régime soliton d'une impulsion brève. Dans la suite de ce chapitre nous nous limiterons au cas particulier où le champ est constitué d'une superposition d'ondes monochromatiques

$$\mathcal{E}(\vec{r}, t) = \sum_i \mathcal{E}_i(\vec{r}) \exp(-i\omega_i t) \quad (4.7)$$

soit

$$\mathcal{E}(\vec{r}, \omega) = 2\pi \sum_i \mathcal{E}_i(\vec{r}) \delta(\omega - \omega_i) \quad (4.8)$$

La polarisation non-linéaire est alors elle aussi constituée d'une somme discrète de pics de Dirac

$$\mathcal{P}(\vec{r}, \omega) = 2\pi \sum_i \mathcal{P}_i(\vec{r}) \delta(\omega - \omega_i) \quad (4.9)$$

L'équation de propagation 4.6 devient un système non-linéaire d'équations différentielles couplées

$$\frac{d\mathcal{A}_i}{dz} = \frac{i\omega}{2n_i\epsilon_0 c} \mathcal{P}_i^{(NL)} \exp(-ik_i z) \quad (4.10)$$

où $n_i = n(\omega_i)$ et $k_i = k(\omega_i) = n_i\omega_i/c$.

C'est ce système non-linéaire que nous allons résoudre dans la suite de ce chapitre.

4.2 Optique non-linéaire du second ordre

Les processus non-linéaires du second ordre résultent de la polarisation d'ordre deux induite dans le matériau

$$P_i^{(2)}(t) = \epsilon_0 \int \chi_{ijk}^{(2)} E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) e^{-i(\omega_1+\omega_2)t} \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} \quad (4.11)$$

4.2.1 Importance de la symétrie

Dans une transformation $\vec{r} \rightarrow -\vec{r}$, les vecteurs sont transformés en leurs opposés, soit $\vec{E} \rightarrow -\vec{E}$ et $\vec{P} \rightarrow -\vec{P}$. D'après l'éq. 4.11, on peut donc en déduire que $\chi^{(2)} \rightarrow -\chi^{(2)}$ lors d'une telle transformation. Considérons maintenant le cas particulier d'un matériau dit centro-symétrique, ce qui signifie qu'il admet un centre d'inversion et qu'il est donc inchangé par la symétrie ponctuelle $\vec{r} \rightarrow -\vec{r}$. En conséquence, la susceptibilité non-linéaire du matériau doit rester identique lors de cette symétrie, d'où l'on peut déduire $\chi^{(2)} = -\chi^{(2)}$ et donc $\chi^{(2)} = 0$. En conclusion, la réponse non-linéaire du deuxième ordre d'un matériau centro-symétrique est rigoureusement nulle. Le raisonnement peut évidemment s'étendre à toutes les susceptibilités non-linéaires d'ordre pair.

4.2.2 Inventaire des effets non-linéaires du deuxième ordre

L'éq. 4.11 montre que le mélange de fréquences entre les composantes spectrales ω_1 et ω_2 du champ électrique donne naissance à un terme de la polarisation non-linéaire oscillant à la fréquence

$\omega_1 + \omega_2$. Ce processus de somme de fréquences peut être caractérisé à l'aide de la notation complète du tenseur susceptibilité, $\chi^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2; \omega_1, \omega_2)$. Comme ω_1 et ω_2 prennent dans l'intégrale de l'éq. 4.11 des valeurs positives et négatives, ce processus peut aussi correspondre à un phénomène de différence de fréquences (par exemple si $\omega_1 > 0$ et $\omega_2 < 0$). 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

4.2.3 Doublage de fréquence

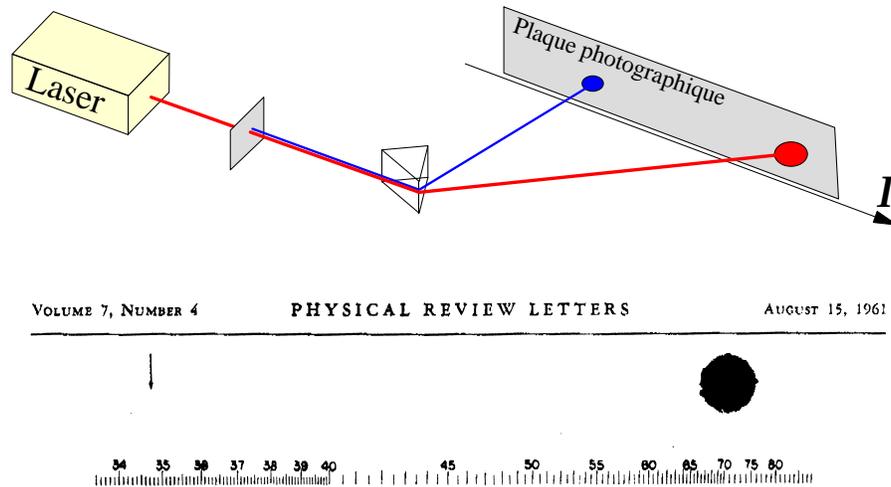


Figure 4.1: Première observation du phénomène de doublage de fréquence (Franken et al., *Phys. Rev. Lett.* **7**, 118 (1961)). Le faisceau transmis par le cristal non-linéaire est dispersé à l'aide d'un prisme afin d'isoler la composante à 2ω . L'image du faisceau doublé, normalement présente sous la flèche, a malheureusement été effacée car confondue avec une tache lors de l'édition du manuscrit par *Physical Review Letters*.

On s'intéresse ici au cas où un faisceau monochromatique de fréquence ω_1 se propage dans un cristal non-linéaire. Le champ complexe du faisceau incident s'écrira $\mathcal{E}_1(z, t) = \mathcal{E}_1(z) \exp(-i\omega_1 t)$, donnant lieu à une polarisation non-linéaire du second ordre s'écrivant

$$P^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} \left(\frac{\mathcal{E}_1 + \mathcal{E}_1^*}{2} \right)^2$$

$$= \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{4} \left(\underbrace{\mathcal{E}_1^2 + \mathcal{E}_1^{*2}}_{\text{doublage}} + \underbrace{2\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_1^*}_{\text{redressement}} \right) \quad (4.12)$$

Seul le premier terme, correspondant au doublage de fréquence, sera conservé ici. En utilisant la notation complexe, on obtient

$$\mathcal{P}_2^{(2)} = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} \mathcal{E}_1^2 = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} \mathcal{A}_1(z)^2 \exp(2ik_1 z) \quad (4.13)$$

Cette polarisation oscille à la fréquence $\omega_2 = 2\omega_1$ et donne donc naissance à un champ $\mathcal{A}_2(z)$ se propageant dans le cristal. On parle de doublage de fréquence, ou encore de génération de second harmonique. Ce champ obéit à l'éq. 4.10, qui s'écrit ici

$$\frac{d\mathcal{A}_2}{dz} = \frac{i\omega_2 \chi^{(2)}}{4n_2 c} \mathcal{A}_1(z)^2 \exp(i\Delta k z) \quad (4.14)$$

où $\Delta k = 2k_1 - k_2$. De même, $\mathcal{A}_1(z)$ obéit à une équation de propagation faisant intervenir un terme source en $\mathcal{A}_2(z)\mathcal{A}_1(z)^*$ correspondant au processus de différence de fréquences entre le champ à $2\omega_1$ et le champ à ω_1 . On obtient donc un système de deux équations différentielles couplées. Cependant, nous nous limiterons ici au cas simple où la génération de second harmonique est très faible, ce qui signifie que le champ fondamental peut être considéré comme à peu près constant lors de la propagation dans le cristal ($\mathcal{A}_1(z) \approx \mathcal{A}_1(0) = \mathcal{A}_1$). L'éq. 4.14 peut être alors aisément résolue :

$$\mathcal{A}_2(z) = \frac{i\omega_2 \chi^{(2)}}{4n_2 c} \mathcal{A}_1^2 \frac{\exp(i\Delta k z) - 1}{i\Delta k} \quad (4.15)$$

L'intensité du second harmonique, $I_2(z) \propto |\mathcal{A}_2(z)|^2 \propto \sin^2 \Delta k z / 2$, est donc une fonction périodique de z . La période a pour valeur $2L_C$, où $L_C = \pi / \Delta k$ est par définition la longueur de cohérence. C'est la longueur au delà de laquelle la puissance du second harmonique cesse d'augmenter en raison des interférences destructives entre le faisceau engendré au point z , dont la phase est $2k_1 z$, et celui qui a été engendré plus tôt dans le cristal puis s'est propagé avec le vecteur d'onde k_2 , donnant lieu à une phase $k_2 z$. Ce phénomène limite fortement l'épaisseur utilisable pour le cristal non-linéaire, et donc la quantité de second harmonique engendré. Pour obtenir un taux de conversion optimal il est nécessaire de s'affranchir de ce processus en se plaçant dans des conditions telles que $\Delta k = 0$, ce qui correspond à la condition dite d'*accord de phase*. Dans le cas du doublage de fréquence cette condition s'écrit $k_2 = 2k_1$, soit $n_2 = n_1$. Cette condition n'est pas réalisée naturellement dans le matériau car l'indice est en général bien plus grand à la fréquence double qu'à la fréquence du fondamental en raison de la dispersion chromatique. Il existe cependant deux méthodes couramment employées permettant de réaliser l'accord de phase. La première technique, dite de l'accord de phase par biréfringence et schématisée Fig. 4.2.3, consiste à utiliser un cristal

non-linéaire biréfringent de sorte que le fondamental et le second harmonique soient polarisés selon des axes perpendiculaires. Si la biréfringence est suffisante (par exemple $n_e(2\omega_1) < n_o(\omega_1)$) il sera possible de choisir un angle θ tel que $n_e(\theta, 2\omega_1) = n_o(\omega_1)$, réalisant ainsi la condition d'accord de phase.

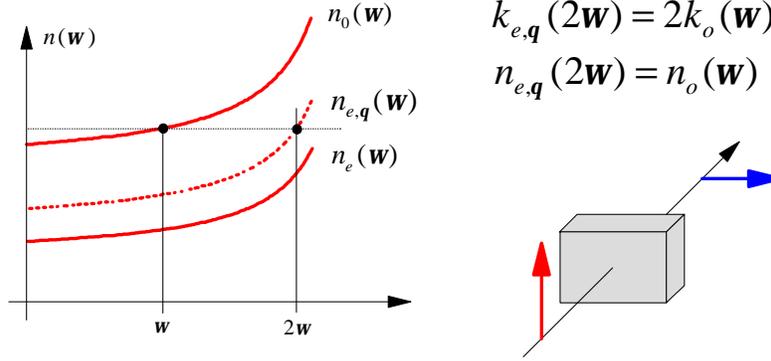


Figure 4.2: Accord de phase par biréfringence

L'autre technique, dite du quasi-accord de phase et schématisée Fig. 4.2.3, 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 $\chi^{(2)}$ résulte de l'inversion de domaines ferro-électriques.

Dans le cas où $\Delta k = 0$, l'éq. 4.14 devient

$$\frac{d\mathcal{A}_2}{dz} = \frac{i\omega_2\chi^{(2)}}{4n_2c} \mathcal{A}_1^2 \quad (4.16)$$

dont la solution s'écrit simplement

$$\mathcal{A}_2(z) = \frac{i\omega_2\chi^{(2)}}{4n_2c} \mathcal{A}_1^2 z \quad (4.17)$$

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 sommes placés ici, puisque la variation réelle de la puissance sera en fait bornée supérieurement par la puissance incidente du fondamental.

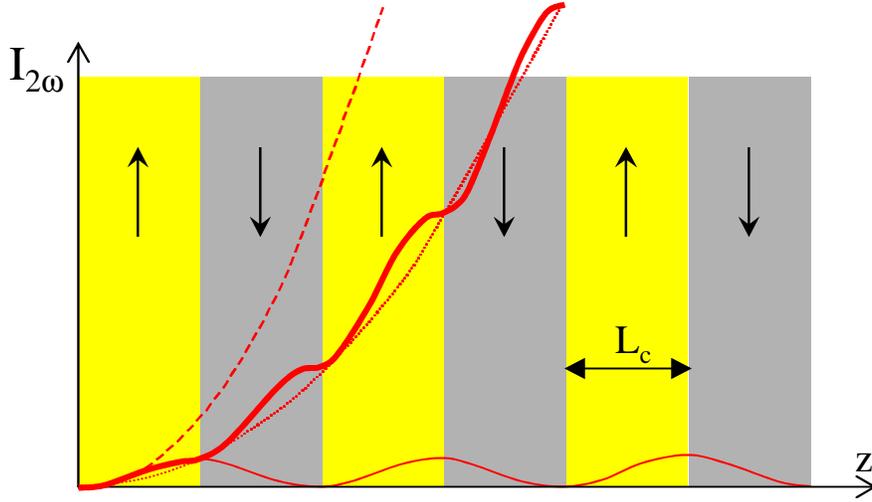


Figure 4.3: *Quasi accord de phase*

4.2.4 Différence de fréquences et amplification paramétrique

On considère ici le cas où deux faisceaux de fréquences ω_1 et ω_2 se propagent dans un matériau non-linéaire du second ordre (on suppose $\omega_1 > \omega_2$). On s'attend à voir apparaître différents phénomènes comme le doublage de chacune des deux ondes, la somme de fréquences et la différence de fréquences, ainsi que des phénomènes en cascade obtenus à partir des processus précédents. On supposera néanmoins que parmi tous ces phénomènes, seule la différence de fréquences donnera lieu à une conversion efficace, condition qui sera réalisée si seul ce processus est proche des conditions d'accord de phase. Trois ondes vont donc se propager dans le cristal, les deux ondes incidentes ainsi qu'une onde de fréquence $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$. On parle de mélange à trois ondes, ou Three Wave Mixing. La condition d'accord de phase s'écrira ici $\Delta k = 0$ où $\Delta k = k_1 - k_2 - k_3$. On constate que dès que le processus $\omega_1 - \omega_2 \rightarrow \omega_3$ est en accord de phase, il en va de même des processus $\omega_1 - \omega_3 \rightarrow \omega_2$ et $\omega_2 + \omega_3 \rightarrow \omega_1$. La polarisation non-linéaire en résultant pourra s'écrire

$$\begin{aligned}
 P^{(NL)} &= \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{4} (\mathcal{E}_1 + \mathcal{E}_1^* + \mathcal{E}_2 + \mathcal{E}_2^* + \mathcal{E}_3 + \mathcal{E}_3^*)^2 \\
 &= \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} (\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* + \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_3^* + \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3)
 \end{aligned} \tag{4.18}$$

où l'on n'a conservé que les termes proches de l'accord de phase. On peut en déduire les polarisations non-linéaires intervenant dans l'équation de propagation de chacune des trois ondes

$$\mathcal{P}_1^{(2)}(z) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3 = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{A}_2 \mathcal{A}_3 e^{i(k_2 + k_3)z}$$

$$\mathcal{P}_2^{(2)}(z) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_3^* = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{A}_1 \mathcal{A}_3^* e^{i(k_1 - k_3)z}$$

$$\mathcal{P}_3^{(2)}(z) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{A}_1 \mathcal{A}_2^* e^{i(k_1 - k_2)z}$$

A l'aide de l'éq. 4.10, on peut en déduire le système non-linéaire ci-dessous

$$\begin{aligned} \frac{d\mathcal{A}_1}{dz} &= \frac{i\omega_1 \chi^{(2)}}{2n_1 c} \mathcal{A}_2 \mathcal{A}_3 e^{-i\Delta k z} \\ \frac{d\mathcal{A}_2}{dz} &= \frac{i\omega_2 \chi^{(2)}}{2n_2 c} \mathcal{A}_1 \mathcal{A}_3^* e^{i\Delta k z} \\ \frac{d\mathcal{A}_3}{dz} &= \frac{i\omega_3 \chi^{(2)}}{2n_3 c} \mathcal{A}_1 \mathcal{A}_2^* e^{i\Delta k z} \end{aligned}$$

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

$$\alpha_i(z) = \sqrt{\frac{n_i c \epsilon_0}{2 \hbar \omega_i}} \mathcal{A}_i(z) \quad (4.19)$$

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

$$\Phi_i(z) = |\alpha_i(z)|^2 = \frac{n_i c \epsilon_0}{2 \hbar \omega_i} |\mathcal{A}_i(z)|^2 = \frac{n_i c \epsilon_0 |\mathcal{A}_i(z)|^2 / 2}{\hbar \omega_i} \quad (4.20)$$

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

Calculons la dérivée de α_1 par rapport à z :

$$\begin{aligned} \frac{d\alpha_1}{dz} &= \sqrt{\frac{n_1 c \epsilon_0}{2 \hbar \omega_1}} \frac{d\mathcal{A}_1}{dz} \\ &= \sqrt{\frac{n_1 c \epsilon_0}{2 \hbar \omega_1}} \frac{i\omega_1 \chi^{(2)}}{2n_1 c} \sqrt{\frac{2 \hbar \omega_2}{n_2 c \epsilon_0}} \alpha_2 \sqrt{\frac{2 \hbar \omega_3}{n_3 c \epsilon_0}} \alpha_3 e^{-i\Delta k z} \\ &= i\chi^{(2)} \sqrt{\frac{\hbar \omega_1 \omega_2 \omega_3}{2 \epsilon_0 c^3 n_1 n_2 n_3}} \alpha_2 \alpha_3 e^{-i\Delta k z} \\ &= i\xi \alpha_2 \alpha_3 e^{-i\Delta k z} \end{aligned}$$

où l'on a posé

$$\xi = \chi^{(2)} \sqrt{\frac{\hbar \omega_1 \omega_2 \omega_3}{2 \epsilon_0 c^3 n_1 n_2 n_3}} \quad (4.21)$$

En procédant de même pour α_2 et α_3 , on obtient le système d'équations couplées

$$\frac{d\alpha_1}{dz} = i\xi \alpha_2 \alpha_3 e^{-i\Delta k z} \quad (4.22)$$

$$\frac{d\alpha_2}{dz} = i\xi \alpha_1 \alpha_3^* e^{i\Delta k z} \quad (4.23)$$

$$\frac{d\alpha_3}{dz} = i\xi \alpha_1 \alpha_2^* e^{i\Delta k z} \quad (4.24)$$

Calculons la dérivée par rapport à z de $\Phi_1 = \alpha_1 \alpha_1^*$

$$\begin{aligned}\frac{d\Phi_1}{dz} &= \frac{d\alpha_1}{dz} \alpha_1^* + \alpha_1 \frac{d\alpha_1^*}{dz} \\ &= 2\text{Re} \alpha_1^* \frac{d\alpha_1}{dz} \\ &= 2\text{Re} i \xi \alpha_1^* \alpha_2 \alpha_3 e^{-i\Delta k z}\end{aligned}\quad (4.25)$$

De même

$$\frac{d\Phi_2}{dz} = 2\text{Re} i \xi \alpha_1 \alpha_2^* \alpha_3^* e^{i\Delta k z} \quad (4.26)$$

et

$$\frac{d\Phi_3}{dz} = 2\text{Re} i \xi \alpha_1 \alpha_2^* \alpha_3^* e^{i\Delta k z} \quad (4.27)$$

On peut donc en déduire

$$\frac{d\Phi_2}{dz} = \frac{d\Phi_3}{dz} = -\frac{d\Phi_1}{dz} \quad (4.28)$$

En particulier, on en déduit que $\Phi_2 - \Phi_3$ reste constant. C'est la relation de Manley - Rowe : toute variation sur le flux de photons du faisceau signal se traduit par une variation identique du flux de photons du faisceau complémentaire. Par ailleurs, on déduit aussi l'expression

$$\frac{d}{dz} (\hbar\omega_1 \Phi_1 + \hbar\omega_2 \Phi_2 + \hbar\omega_3 \Phi_3) = 0 \quad (4.29)$$

ce qui signifie que la puissance totale se conserve : 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.

L'ensemble de ces relations s'interprète facilement en terme 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 toute la suite, on se placera dans les conditions d'accord de phase ($\Delta k = 0$). On considérera de plus le cas simple où le faisceau 1 (pompe) reste très intense devant les faisceaux signal et complémentaire lors de toute la propagation non-linéaire dans le cristal. On pourra alors négliger la déplétion du faisceau pompe et supposer que α_1 reste constant. Par un choix judicieux de l'origine des temps, on pourra de plus supposer α_1 imaginaire pur et de partie imaginaire négative ($\alpha_1 = \alpha_1(0) = -i|\alpha_1(0)|$). Les équations de propagation pour le signal et le complémentaire deviennent alors

$$\frac{d\alpha_2}{dz} = i\xi \alpha_1 \alpha_3^* = g\alpha_3^* \quad (4.30)$$

$$\frac{d\alpha_3}{dz} = i\xi \alpha_1 \alpha_2^* = g\alpha_2^* \quad (4.31)$$

où $g = i\xi\alpha_1 = \xi\alpha_1(0)$, nombre réel positif, est le gain paramétrique. En dérivant les équations ci-dessus par rapport à z , on voit que α_2 et α_3 obéissent à une même équation

$$\frac{d^2\alpha}{dz^2} = g^2\alpha \quad (4.32)$$

On peut donc en déduire la solution pour α_2 et α_3 :

$$\alpha_2(z) = \alpha_2(0) \cosh gz + \alpha_3^*(0) \sinh gz \quad (4.33)$$

$$\alpha_3(z) = \alpha_3(0) \cosh gz + \alpha_2^*(0) \sinh gz \quad (4.34)$$

Dans le cas particulier où l'on n'injecte que le faisceau signal dans le cristal en plus du faisceau pompe ($\alpha_3(0) = 0$), on obtient

$$\alpha_2(z) = \alpha_2(0) \cosh gz \quad (4.35)$$

$$\alpha_3(z) = \alpha_2^*(0) \sinh gz \quad (4.36)$$

On voit donc que le faisceau signal est amplifié, de façon très similaire à ce qui se produit lors du phénomène d'émission stimulée. Il sera donc possible de réaliser des *amplificateurs paramétriques optiques* (OPA) ou des *oscillateurs paramétriques optiques* (OPO). Ce dernier cas sera traité en détail en TD. Dans un OPO, la courbe de gain est déterminée par les conditions d'accord de phase. Ceci confère à l'OPO un immense avantage par rapport à un laser traditionnel : sa fréquence d'émission pourra être accordée sur une très grande largeur spectrale, simplement en modifiant l'angle ou la température du cristal non-linéaire.

Pour terminer, intéressons nous au cas dégénéré, où $\omega_2 = \omega_3$. Il devient alors impossible de distinguer entre signal et complémentaire, et les équations 4.30 et 4.31 se réduisent à l'unique équation

$$\frac{d\alpha_2}{dz} = g\alpha_2^* \quad (4.37)$$

dont la solution s'écrit

$$\begin{aligned} \alpha_2(L) &= \alpha_2(0) \cosh gL + \alpha_2^*(0) \sinh gL \\ &= \operatorname{Re} \alpha_2(0) \exp(gL) + i \operatorname{Im} \alpha_2(0) \exp(-gL) \end{aligned} \quad (4.38)$$

Si l'on revient au champ électrique $\mathcal{A}(z) = \mathcal{A}_P(z) + i\mathcal{A}_Q(z)$ que l'on a décomposé sur ses deux quadrature P et Q, on voit que le champ après propagation s'écrit

$$\mathcal{A}(L) = \mathcal{A}_P(0)e^{gL} + i\mathcal{A}_Q(0)e^{-gL} \quad (4.39)$$

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 la 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 amplifier 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).

4.3 Optique non-linéaire du troisième ordre

Les phénomènes non-linéaires du troisième ordre sont *a priori* d'amplitude plus faible que ceux du deuxième ordre. Ils jouent cependant un rôle très important en optique non-linéaire pour deux raisons. Tout d'abord, dans le cas des matériaux centro-symétriques, nous avons vu qu'il n'existait pas de non-linéarité du second ordre. La non-linéarité du troisième correspond dans ce cas au premier effet non-linéaire observable. La seconde raison sera démontrée plus loin dans cette section : contrairement aux phénomènes du second ordre, certains processus du troisième ordre obéissent automatiquement à l'accord de phase. Dans ce cas, l'effet de la non-linéarité optique pourra se cumuler sur de très grandes distances, voire sur des milliers de kilomètre dans le cas de la propagation d'une impulsions 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.

4.3.1 Un faisceau incident - effet Kerr optique

Intéressons nous au cas où un seul faisceau, associé au champ $E(t)$, est incident sur le matériau. La polarisation non-linéaire du troisième ordre s'écrit alors

$$\begin{aligned} P^{(3)}(t) &= \epsilon_0 \chi^{(3)} E(t)^3 \\ &= \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{8} \left(\mathcal{E}(t)^3 + \mathcal{E}^*(t)^3 + 3\mathcal{E}^*(t)\mathcal{E}(t)^2 + 3\mathcal{E}^*(t)^2\mathcal{E}(t) \right) \end{aligned} \quad (4.40)$$

Si le champ oscille à une fréquence ω , les deux premiers termes de l'équation ci-dessus oscilleront à la fréquence 3ω , ce qui correspond à une génération de troisième harmonique. Cependant, ce phénomène n'est pas particulièrement intéressant car en pratique il est plus efficace d'engendrer la troisième harmonique à l'aide de deux processus du deuxième ordre en cascade : doublage de fréquence $\omega \rightarrow 2\omega$ puis somme de fréquence $\omega + 2\omega \rightarrow 3\omega$. Par la suite, on supposera que les termes en $\mathcal{E}(t)^3$ n'obéissent pas à la condition d'accord de phase et peuvent donc être négligés. En notation complexe, la polarisation non-linéaire se réduit donc à l'expression

$$\mathcal{P}^{(3)}(t) = \frac{3\epsilon_0 \chi^{(3)}}{4} |\mathcal{E}(t)|^2 \mathcal{E}(t) \quad (4.41)$$

Comme annoncé plus haut, on voit 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 Kerr optique*. Le cas de la propagation d'une impulsion brève sera étudié en TD et nous nous limiterons ici au cas d'un champ monochromatique. Nous pouvons donc directement utiliser l'éq. 4.10 qui s'écrit ici

$$\frac{d\mathcal{A}}{dz} = \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} |\mathcal{A}|^2 \mathcal{A} \quad (4.42)$$

Remarquons que, malgré la non-linéarité optique, l'intensité du faisceau reste constante. En effet,

$$\begin{aligned} \frac{d|\mathcal{A}|^2}{dz} &= \mathcal{A}^* \frac{d\mathcal{A}}{dz} + \frac{d\mathcal{A}^*}{dz} \mathcal{A} \\ &= \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} |\mathcal{A}|^2 (\mathcal{A}^* \mathcal{A} - \mathcal{A}^* \mathcal{A}) \\ &= 0 \end{aligned} \quad (4.43)$$

Donc $|\mathcal{A}(z)| = |\mathcal{A}(0)| = |\mathcal{E}_0|$. L'éq. 4.42 devient

$$\frac{d\mathcal{A}}{dz} = \frac{3i\omega\chi^{(3)}|\mathcal{E}_0|^2}{8nc} \mathcal{A} \quad (4.44)$$

La solution de cette équation s'obtient immédiatement

$$\mathcal{A}(z) = \mathcal{A}(0) \exp(i\varphi_{NL}(z)) \quad (4.45)$$

où

$$\varphi_{NL}(z) = \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} |\mathcal{E}_0|^2 z \quad (4.46)$$

On remarque que le déphasage non-linéaire $\varphi_{NL}(z)$ est proportionnel à la densité de puissance, I , du faisceau lumineux. On l'écrit en général sous la forme

$$\varphi_{NL}(z) = \frac{\omega}{c} n_2 I z \quad (4.47)$$

où n_2 , quantité proportionnelle à $\chi^{(3)}$, est par définition l'*indice non-linéaire* du matériau et s'exprime en m^2/W . En revenant à l'expression du champ électrique $\mathcal{E}(z)$, on voit que celui-ci se met sous la forme

$$\mathcal{E}(z) = \mathcal{E}(0) \exp\left(i\frac{\omega}{c}(n + n_2 I)z\right) \quad (4.48)$$

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

Un exemple de manifestation de l'effet Kerr optique est le phénomène d'autofocalisation. Celui-ci résulte 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 :

$$\varphi_{NL}(x, y, z) = \frac{\omega}{c} n_2 I(x, y) z \quad (4.49)$$

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 de Kerr*, qui a pour effet de focaliser le faisceau. On parle alors d'autofocalisation.

4.3.2 Deux faisceaux incidents - effet Kerr croisé

Considérons le cas où deux faisceaux non colinéaires, appelés pompe et signal, interagissent dans un matériau non-linéaire. Les vecteurs d'onde de ces deux faisceaux seront notés respectivement \vec{k}_P et \vec{k}_S . La polarisation non-linéaire du troisième ordre induite dans le matériau s'écrit alors

$$P^{(3)}(\vec{r}, t) = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{8} (\mathcal{E}_P(\vec{r}, t) + \mathcal{E}_P^*(\vec{r}, t) + \mathcal{E}_S(\vec{r}, t) + \mathcal{E}_S^*(\vec{r}, t))^3 \quad (4.50)$$

Le développement de cette expression fait apparaître un grand nombre de termes. Considérons l'un d'entre eux, par exemple le terme $\mathcal{E}_P(\vec{r}, t)\mathcal{E}_P(\vec{r}, t)\mathcal{E}_S^*(\vec{r}, t)$. Sa dépendance spatiale s'écrit $\exp(i(2\vec{k}_P - \vec{k}_S) \cdot \vec{r})$. Ce terme de la polarisation est donc à l'origine du rayonnement d'une onde dont la phase spatiale varie selon $(2\vec{k}_P - \vec{k}_S) \cdot \vec{r}$, 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 associé 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 des nombreux processus non-linéaires 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 de l'éq. 4.50 pour lesquels la phase spatiale est en $\vec{k}_S \cdot \vec{r}$. Ceux-ci sont soit du type $\mathcal{E}_P \mathcal{E}_P^* \mathcal{E}_S$, soit du type $\mathcal{E}_S \mathcal{E}_S^* \mathcal{E}_S$. En écrivant la polarisation en notation complexe, et en comptant le nombre de fois où chacun des termes apparaît, on obtient

$$\mathcal{P}^{(3)} = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{4} (6|\mathcal{E}_P|^2 + 3|\mathcal{E}_S|^2) \mathcal{E}_S \quad (4.51)$$

En notant l'analogie entre cette expression et l'éq. 4.41, on peut en déduire directement l'expression du déphasage non-linéaire du faisceau sonde :

$$\varphi_{NL}(z) = \frac{\omega}{c}(n_2 I_S + 2n_2 I_P)z \quad (4.52)$$

Le premier terme correspond à l'effet Kerr optique du faisceau signal, phénomène intervenant même en l'absence du faisceau pompe et déjà étudié plus haut. Le second terme correspond à l'effet Kerr optique induit par le faisceau pompe sur le faisceau signal, appelé effet Kerr croisé. En pratique, on s'intéressera souvent au cas où le faisceau pompe est beaucoup plus intense que le faisceau signal ($I_P \gg I_S$), et le second terme sera donc prédominant.

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

4.3.3 Trois faisceaux incidents - conjugaison de phase

Dans le cas où trois faisceaux sont incidents sur le matériau un très grand nombre de processus pourra intervenir. Nous nous limiterons ici à une configuration particulière où deux faisceaux pompe contra-propagatifs, \mathcal{E}_P et \mathcal{E}'_P , interagissent avec un troisième faisceau appelé signal, \mathcal{E}_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

$$P^{(3)}(\vec{r}, t) = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{8} (\mathcal{E}_P(\vec{r}, t) + \mathcal{E}'_P(\vec{r}, t) + \mathcal{E}'_P(\vec{r}, t) + \mathcal{E}_P^*(\vec{r}, t) + \mathcal{E}_S(\vec{r}, t) + \mathcal{E}_S^*(\vec{r}, t))^3 \quad (4.53)$$

En suivant la même démarche que celle utilisée précédemment, on voit que seul le terme en $\mathcal{E}_P \mathcal{E}'_P \mathcal{E}_S^*$ donnera lieu à un champ se propageant dans la bonne direction. En effet, le vecteur d'onde associé à ce terme s'écrit $\vec{k}_P + \vec{k}'_P - \vec{k}_S = \vec{k}_P - \vec{k}_P - \vec{k}_S = -\vec{k}_S$. Une propriété remarquable de ce terme en $\mathcal{E}_P \mathcal{E}'_P \mathcal{E}_S^*$ est qu'il fait apparaître le conjugué complexe du champ sonde. 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 distorsions de front d'onde.

5 Introduction aux lasers femtosecondes

5.1 Propagation d'une impulsion brève

Au chapitre IV, nous avons posé

$$\mathcal{E}(z, \omega) = \mathcal{A}(z, \omega) \exp(ik(\omega)z)$$

et nous avons établi l'équation de propagation pour une onde plane dans le cas de l'approximation de l'enveloppe lentement variable

$$\frac{\partial \mathcal{A}}{\partial z} = \frac{i\omega}{2n(\omega)\epsilon_0 c} \mathcal{P}^{(NL)}(z, \omega) \exp(-ik(\omega)z)$$

Revenons ici à $\mathcal{E}(z, \omega)$ et écrivons l'équation de propagation pour cette grandeur. Sachant que $\partial \mathcal{E} / \partial z = (\partial \mathcal{A} / \partial z + ik\mathcal{A}) \exp(ik(\omega)z)$, on en déduit

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z} - ik(\omega)\mathcal{E}(z, \omega) = \frac{i\omega}{2n(\omega)\epsilon_0 c} \mathcal{P}^{(NL)}(z, \omega) \quad (5.1)$$

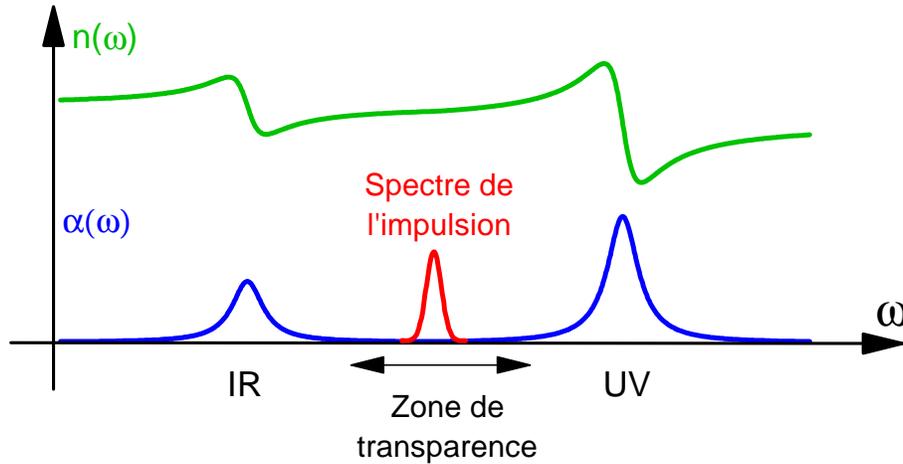


Figure 5.1: *Tout milieu matériel comporte des pics d'absorption dans l'infrarouge et dans l'ultraviolet, résultant respectivement de transitions vibrationnelles et électroniques. En conséquence, l'indice de réfraction croît avec la fréquence dans la zone de transparence (dispersion normale). Il en résulte une variation non linéaire de $k(\omega)$ avec la fréquence. En pratique, la dérivée seconde de $k(\omega)$ est positive dans le visible en raison de la proximité des résonances ultraviolettes (dispersion positive).*

Il est important de tenir compte de la dépendance spectrale du vecteur d'onde, $k(\omega) = n(\omega)\omega/c$, résultant de la dispersion chromatique du matériau. Toutefois, dans une première approximation on peut se contenter d'effectuer un développement limité au second ordre. Cette approximation

sera valable si la largeur spectrale de l'impulsion reste modérée. En développant le vecteur d'onde autour de la fréquence centrale ω_0 de l'impulsion, on obtient

$$k(\omega) = k_0 + (\omega - \omega_0)k'_0 + \frac{1}{2}(\omega - \omega_0)^2 k_0'' \quad (5.2)$$

L'éq. 5.1 s'écrit alors

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z} - ik_0 \mathcal{E}(z, \omega) - i(\omega - \omega_0)k'_0 \mathcal{E}(z, \omega) - \frac{i}{2}(\omega - \omega_0)^2 k_0'' \mathcal{E}(z, \omega) = \frac{i\omega_0}{2n_0 \epsilon_0 c} \mathcal{P}^{(NL)}(z, \omega) \quad (5.3)$$

Remarquons que l'on a négligé la dispersion chromatique du préfacteur intervenant dans le membre de droite de l'équation. Ici encore, cette approximation ne sera valable que pour des impulsions (et donc des polarisations non-linéaires) pour lesquelles la largeur spectrale reste modérée.

Ecrivons le champ électrique comme le produit d'une enveloppe $u(z, t)$ par une porteuse prenant en compte les dépendances temporelles et spatiales aux fréquences centrales ω_0 et k_0 :

$$\mathcal{E}(z, t) = u(z, t)e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} \quad (5.4)$$

La fonction $u(z, t)$ sera donc lentement variable par rapport à z et par rapport à t , les variations rapides étant incluses dans la porteuse. Si l'on dérive $u(z, t)$ par rapport à z , on obtient

$$\frac{\partial u}{\partial z} = \left(\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z} - ik_0 \mathcal{E} \right) e^{i(k_0 z - \omega_0 t)}$$

où l'on reconnaît les deux premiers termes de l'éq. 5.3. Par ailleurs, si l'on écrit l'éq. 5.4 dans le domaine spectral, on obtient

$$\mathcal{E}(z, \omega) = u(z, \omega - \omega_0)e^{ik_0 z}$$

Alors que $\mathcal{E}(z, \omega)$ était centré autour de $\omega = \omega_0$, $u(z, \omega)$ sera donc centré autour de $\omega = 0$, ce qui traduit simplement dans l'espace de Fourier le fait que l'enveloppe $u(z, t)$ varie lentement avec le temps. En exprimant l'éq. 5.3 à l'aide de l'enveloppe $u(z, t)$ et en effectuant le changement de variable $\omega - \omega_0 \rightarrow \omega$, on obtient donc

$$\frac{\partial u}{\partial z} - ik'_0 \omega u(z, \omega) - \frac{i}{2}k_0'' \omega^2 u(z, \omega) = \frac{i\omega_0}{2n_0 \epsilon_0 c} \mathcal{P}^{(NL)}(z, \omega + \omega_0)e^{-ik_0 z} \quad (5.5)$$

Cette équation peut encore s'exprimer dans le domaine temporel

$$\frac{\partial u}{\partial z} + k'_0 \frac{\partial u}{\partial t} + \frac{i}{2}k_0'' \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = \frac{i\omega_0}{2n_0 \epsilon_0 c} \mathcal{P}^{(NL)}(z, t)e^{i\omega_0 t - ik_0 z} \quad (5.6)$$

Considérons dans un premier temps le cas où la dérivée seconde du vecteur d'onde peut être négligée ($k_0'' = 0$) et où la propagation est de plus supposée linéaire ($\mathcal{P}^{(NL)} = 0$). L'équation de propagation se réduit alors simplement à

$$\frac{\partial u}{\partial z} + k'_0 \frac{\partial u}{\partial t} = 0 \quad (5.7)$$

Il s'agit de l'équation de propagation d'une onde progressive se déplaçant à la vitesse $v_g = 1/k'_0$, dite vitesse de groupe. La solution de cette équation ne dépend que de $t - k'_0 z$ et l'impulsion se propage donc sans déformation. Dans le cas général, on posera

$$u(z, t) = a(z, t - k'_0 z)$$

La variation de a par rapport à son premier paramètre z traduira la déformation de l'impulsion lors de sa propagation à l'intérieur du matériau. En remarquant que $a(z, t) = u(z, t + k'_0 z)$, on en déduit

$$\frac{\partial a}{\partial z} = \frac{\partial u}{\partial z} + k'_0 \frac{\partial u}{\partial t}$$

où l'on reconnaît les deux premiers termes de l'éq. 5.6. Cette dernière équation devient alors

$$\frac{\partial a}{\partial z} + \frac{i}{2} k_0'' \frac{\partial^2 a}{\partial t^2} = \frac{i\omega_0}{2n_0\epsilon_0 c} \mathcal{P}^{(NL)}(z, t) e^{i\omega_0 t - ik_0 z} \quad (5.8)$$

C'est l'équation de propagation d'une impulsion brève dans un milieu non-linéaire. Comme dans le domaine spatial, on reconnaît ici une équation de Schrödinger non-linéaire. La résolution de cette équation sera vue en travaux dirigés dans le cas d'une non-linéarité du troisième ordre, qui pourra donner lieu à la propagation d'un soliton.

Intéressons nous ici simplement au cas linéaire, où le second membre de l'équation peut être négligé. L'équation de propagation devient alors

$$\frac{\partial a}{\partial z} + \frac{i}{2} k_0'' \frac{\partial^2 a}{\partial t^2} = 0 \quad (5.9)$$

Cette équation est bien sûr analogue à l'équation de Schrödinger, mais aussi à l'équation paraxiale vue au chapitre I. Rappelons que cette dernière équation s'écrivait

$$\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} + 2ik \frac{\partial u}{\partial z} = 0 \quad (5.10)$$

tandis que l'éq. 5.9 peut encore s'écrire

$$\frac{\partial^2 a}{\partial t^2} - \frac{2i}{k_0''} \frac{\partial a}{\partial z} = 0 \quad (5.11)$$

On constate que les deux équations sont parfaitement analogues, à condition de remplacer $k = 2\pi/\lambda$ par $-1/k_0''$. On avait obtenu dans le cas spatial la relation

$$\Delta x(z) = \sqrt{\Delta x(0)^2 + \frac{\Delta k_x^2}{k^2} z^2} \quad (5.12)$$

De la même façon on pourra caractériser l'étalement temporel d'une impulsion brève en un point z par l'écart quadratique moyen $\Delta t(z)$. En remplaçant k par $-1/k_0''$, on en déduit

$$\Delta t(z) = \sqrt{\Delta t(0)^2 + k_0''^2 \Delta \omega^2 z^2} \quad (5.13)$$

On trouve donc ici encore une variation hyperbolique de la durée de l'impulsion lors de la propagation. L'étalement d'une impulsion brève est un phénomène parfaitement analogue à l'étalement d'un paquet d'onde en mécanique quantique, ou à la diffraction d'un faisceau lumineux.

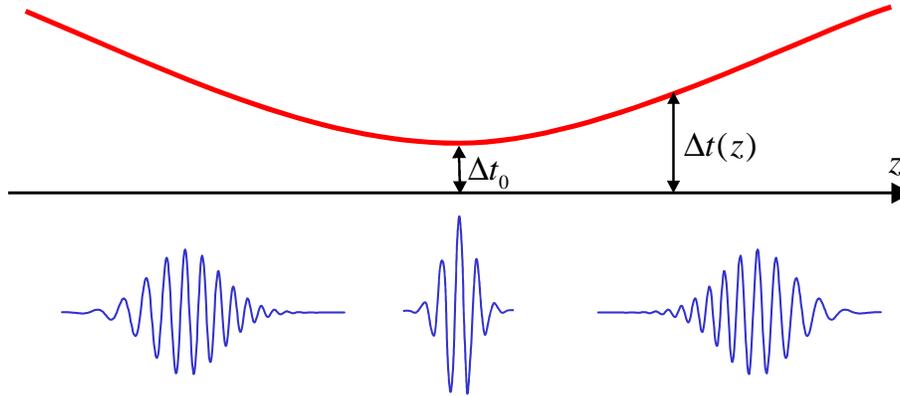


Figure 5.2: Représentation de la durée d'une impulsion brève au cours de sa propagation, montrant une variation hyperbolique, en parfaite analogie avec le diamètre d'un faisceau lumineux. La dispersion joue un rôle analogue à la diffraction.

Afin de mieux comprendre l'origine physique de l'étalement de l'impulsion, considérons la limite asymptotique de $\Delta t(z)$ lorsque z tend vers $+\infty$. On voit que dans ce cas, $\Delta t(z) \sim k_0'' \Delta \omega z$. Or, $k_0'' \Delta \omega = \Delta k_0'$ est la variation de $1/v_g$ sur la largeur spectrale de l'impulsion. On peut donc en déduire que $\Delta t(z) \sim \Delta z / v_g$. La durée de l'impulsion lorsque $z \rightarrow +\infty$ correspond donc à la variation du retard de groupe sur la largeur spectrale de l'impulsion. C'est le phénomène de dispersion de vitesse de groupe : les différentes composantes spectrales de l'impulsion ne se propagent pas à la même vitesse dans le matériau. Les composantes de plus petite fréquence allant plus vite que celles de plus grande fréquence, elles se retrouvent sur le front avant de l'impulsion. On dit que l'impulsion étalée présente un glissement de fréquence, ou *chirp*, mot anglais signifiant gazouillis pour exprimer le fait que la fréquence varie avec le temps.

5.2 Principe de fonctionnement d'un oscillateur femtoseconde

L'objet de cette section est de donner une très brève introduction au principe de fonctionnement d'un laser femtoseconde. Un tel laser produit un train d'impulsions dont la durée peut être extrêmement courte, de l'ordre d'une dizaine de femtosecondes pour les dispositifs les plus performants. Un laser femtoseconde est avant tout un laser, constitué d'une cavité et d'un milieu am-

plificateur, avec bien entendu des caractéristiques particulières. Tout d’abord, nous savons d’après les propriétés générales de la transformée de Fourier que pour produire une impulsion de ”durée” Δt il faudra disposer d’un spectre dont la ”largeur” spectrale $\Delta\omega$ soit telle que $\Delta\omega\Delta t \geq 1/2$. Rappelons que largeur et durée s’entendent ici au sens de l’écart quadratique moyen. La **première condition** pour pouvoir obtenir des impulsions femtosecondes est donc de disposer d’un milieu amplificateur dont la courbe de gain présente une **très grande largeur spectrale**. Le matériau le plus couramment utilisé est le saphir dopé au titane, qui présente une bande de gain s’étendant de 700 nm à plus de 1 μm .

L’émission laser se faisant sur une grande largeur spectrale, un grand nombre de modes longitudinaux contribueront à cette émission. Dans le cas d’une cavité laser dont la longueur est de l’ordre de 1.5 m, l’intervalle spectral libre $c/2L$ vaut 100 MHz. $\Delta\omega$ pouvant atteindre une centaine de THz, on aura donc jusqu’à un million de modes longitudinaux intervenant dans la production d’impulsions. Le spectre émis est le produit d’une courbe de largeur $\Delta\omega$ par un peigne de Dirac correspondant aux modes longitudinaux de la cavité. Dans le domaine temporel, cela signifie que le champ émis est le produit de convolution entre un champ de durée Δt et un peigne de Dirac de période $2L/c$. Le laser produit donc un train d’impulsions, le temps entre deux impulsions étant simplement le temps qu’il faut à la lumière pour parcourir la cavité.

Comme tout laser, un laser femtoseconde doit satisfaire aux conditions de bouclage du champ. Il faut donc que l’impulsion se reproduise identique à elle-même après chaque tour de cavité. Mais, comme nous l’avons vu à la section précédente, l’impulsion va nécessairement s’étaler temporellement en raison de la dispersion de vitesse de groupe dans le saphir. La **seconde condition** pour produire des impulsions est donc d’introduire dans la cavité un mécanisme de **compensation de la dispersion de vitesse de groupe**. Une première technique consiste à utiliser un ensemble de deux prismes permettant de séparer les différentes composantes spectrales de l’impulsion et de retarder les plus grandes longueurs d’onde qui sont précisément les plus rapides lors de la propagation dans le saphir. En ajustant correctement la distance entre les prismes on peut compenser l’étalement de l’impulsion intervenant lors de la propagation dans le saphir. Une seconde technique consiste à utiliser de multiples réflexions sur des miroirs diélectriques ayant été spécialement conçus pour introduire une phase quadratique dont la courbure s’oppose à celle résultant de la propagation dans le saphir.

Les deux premières conditions mentionnées plus haut sont nécessaires à l’obtention d’un train d’impulsions brèves mais elles ne sont pas suffisantes. En effet, le laser peut *a priori* osciller sur ses différents modes longitudinaux sans qu’il y ait une relation de phase particulière entre les modes. La **troisième condition** consiste à assurer le **blocage des modes**. En d’autres termes, il s’agit

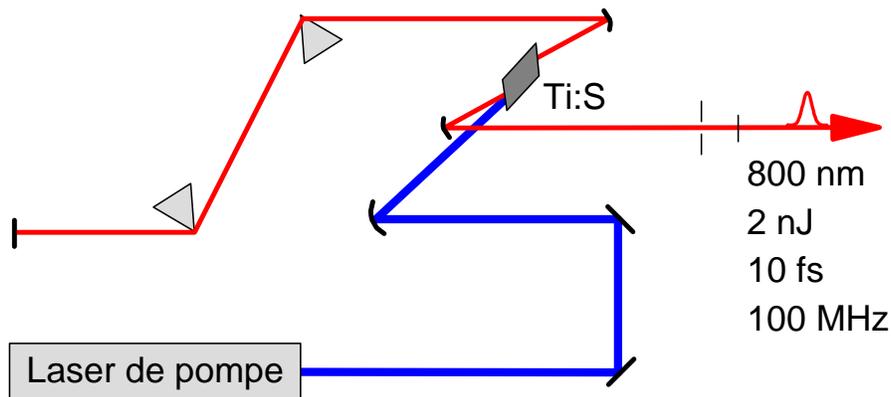


Figure 5.3: Schéma de principe d'un oscillateur Saphir:Titane. La compensation de dispersion de vitesse de groupe est assurée par l'ensemble des deux prismes, produisant une dispersion de vitesse de groupe négative. Le blocage de mode est assuré par effet Kerr. D'une part dans le domaine temporel, la phase non-linéaire permet de compenser la composante quadratique négative résultant de la dispersion de la cavité en régime linéaire, ce qui permet d'avoir des modes longitudinaux parfaitement équidistants. D'autre part dans le domaine spatial, l'autofocalisation par lentille de Kerr permet de diminuer les pertes lorsque les différents modes longitudinaux sont en phase, privilégiant ainsi le régime impulsionnel.

de s'assurer que le laser fonctionne en régime impulsionnel en favorisant ce régime par rapport aux autres. Une technique appelé blocage des modes par lentille de Kerr consiste à tirer parti de l'effet Kerr optique intervenant dans le saphir. Comme mentionné section 4.3.1, la lentille de Kerr induite dans le saphir aura tendance à focaliser le faisceau. Cependant, cet effet, proportionnel à la densité de puissance du faisceau, sera significatif uniquement dans le cas où le laser fonctionne en régime impulsionnel puisque la puissance crête est alors bien supérieure. Si l'on place un diaphragme à une distance appropriée du saphir, le faisceau focalisé grâce à la lentille de Kerr sera transmis plus efficacement et subira donc moins de pertes. On peut ainsi se placer dans une situation où le gain n'est supérieur aux pertes que lorsque le laser fonctionne en régime impulsionnel. Le fonctionnement du laser en régime continu est alors rendu impossible et l'on obtiendra un train d'impulsions brèves.

Références

- [1] J.L.Basdevant, J.Dalibard, *Mécanique Quantique*, Ecole Polytechnique.
- [2] A. Aspect et C. Fabre, *Lasers et atomes*, Cours de majeure 1, Ecole Polytechnique.
- [3] A. E. Siegman, *Lasers*, University Science Books, California, (1986).
- [4] W. Koechner *Solid-state laser engineering*, Springer series in optical sciences **1**, Springer Verlag, Berlin (1988).
- [5] P.N. Butcher et D. Cotter, *The Elements of Nonlinear Optics*, Cambridge studies in modern optics, Cambridge University Press, Cambridge (1990).
- [6] A. Aspect, P. Grangier et G. Grynberg, *Optique quantique 2* Cours de majeure 2, Ecole Polytechnique.
- [7] Franken et al., Phys. Rev. Lett. **7**, 118 (1961).
- [8] V.G. Dmitriev, G.G. Gurzadyan et D.N. Nikogosyan, *Handbook of nonlinear optical crystals*, Springer series in optical sciences **64**, Springer Verlag, Berlin (1991).
- [9] S. Mukamel, *Principles of nonlinear optical spectroscopy*, Oxford University Press (1995).
- [10] E. Rosencher et C. Fabre, *Oscillation characteristics of continuous-wave optical parametric oscillators: beyond the mean-field approximation*, J. Opt. Soc. Am. B **19**, 1107 (2002).
- [11] *Femtosecond laser pulses*, C. Rullière Ed., Springer Verlag (1998).