



**HAL**  
open science

# Génération de tierce harmonique et production de triplets de photons pour l'optique quantique

Julien Douady

► **To cite this version:**

Julien Douady. Génération de tierce harmonique et production de triplets de photons pour l'optique quantique. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2004. Français. NNT: . tel-00006916

**HAL Id: tel-00006916**

**<https://theses.hal.science/tel-00006916>**

Submitted on 18 Sep 2004

**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.

# THESE

pour obtenir le titre de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER**

soutenue publiquement le 13 juillet 2004 par

**JULIEN DOUADY**

---

## **Génération de tierce harmonique et production de triplets de photons pour l'optique quantique**

---

**Président du jury :** Jean-Louis COUTAZ, Professeur, LAHC–Univ. de Savoie, Chambéry  
**Rapporteurs :** Claude FABRE, Professeur, LKB–Univ. Pierre et Marie Curie, Paris  
François HACHE, Directeur de Recherches, LOB, Palaiseau  
**Examineur :** Pascal BALDI, Maître de Conférences, LPMC–Univ. de Nice  
**Invité :** Alain ASPECT, Directeur de Recherches, LCFIO, Orsay  
**Directeur de thèse :** Benoît BOULANGER, Professeur, SPECTRO–Univ. Joseph Fourier, Grenoble  
**Co-directeur de thèse :** Ariel LEVENSON, Directeur de Recherches, LPN, Marcoussis

## Avant-propos

Ce travail a été réalisé au sein du Laboratoire de Spectrométrie Physique de Grenoble, unité mixte de recherche du CNRS et de l'Université Joseph Fourier, sous la direction de Benoît Boulanger. Je tiens à lui dire ici mon immense reconnaissance, tant pour ses qualités pédagogiques et son admirable rigueur scientifique que pour sa disponibilité permanente et la chaleur de son accueil ; sa détermination inébranlable et la confiance qu'il sait accorder à ses collaborateurs sont pour beaucoup dans l'aboutissement des travaux présentés ici.

Je tiens également à remercier chaleureusement les autres membres du groupe d'optique paramétrique de Spectro pour leur soutien et leur bonne humeur, avec une mention toute particulière à Jean-Philippe Fève dont l'aide m'a été essentielle. Je ne saurais oublier les « collègues de Cristallo » tant leur compagnie aura été agréable.

Je souhaite saluer respectueusement le travail effectué par Ariel Levenson et son équipe ; les discussions que nous avons eues ont été d'un grand secours dans la compréhension des aspects quantiques liés à la problématique de cette thèse.

Ces études n'auraient pas pu être menées sans les compétences précieuses de F. Smektala, qui a synthétisé les verres de chalcogénure dont nous avons besoin, ni celles de F. Laurell pour ses échantillons de ppKTP ; tous deux trouveront ici l'expression de ma gratitude. Je salue de même l'excellente qualité du travail réalisé par l'atelier de mécanique du laboratoire.

Je veux témoigner du profond respect que je porte aux membres du jury, lesquels me font un grand honneur en ayant accepté d'évaluer ce travail ; que chacun d'entre eux soit assuré de mes sincères remerciements.

Je souhaite enfin bonne chance à Fabien, à qui revient désormais la responsabilité de faire aboutir cet enthousiasmant projet.

*à Luce, Robin et Anne,  
le plus lumineux des triplets*

---

# Table des matières

<b>INTRODUCTION</b>	<b>13</b>
<b>CHAPITRE I – ELEMENTS D’OPTIQUE CRISTALLINE LINEAIRE</b>	<b>14</b>
<b>1 Caractéristiques générales des ondes électromagnétiques</b>	<b>14</b>
<b>2 Relations constitutives</b>	<b>14</b>
2.1 Origines de la polarisation induite	15
2.2 Susceptibilité électrique linéaire et déplacement électrique	16
<b>3 Equation de propagation</b>	<b>17</b>
3.1 Expression	17
3.2 Onde plane progressive monochromatique	18
<b>4 Propriétés optiques cristallines linéaires</b>	<b>19</b>
4.1 Les différents repères	19
4.2 Indice de réfraction	21
4.2.1 Dispersion en longueur d’onde	21
4.2.2 Tenseur des indices de réfraction	22
4.2.3 Biréfringence	22
4.3 Classes optiques et surfaces des indices associées	23
4.3.1 Milieux isotropes	24
4.3.2 Milieux uniaxes	25
4.3.3 Milieux biaxes	26
<b>5 Modes propres de polarisation</b>	<b>28</b>
5.1 Cas des uniaxes	29
5.2 Cas des biaxes	29
5.3 Double réfraction	31
5.3.1 Aspects énergétiques	31
5.3.2 Angle de double réfraction	31
<b>CHAPITRE II – ELEMENTS D’OPTIQUE CRISTALLINE NON LINEAIRE PARAMETRIQUE</b>	<b>34</b>
<b>1 Potentiel anharmonique et non-linéarité</b>	<b>34</b>
<b>2 Relations constitutives</b>	<b>36</b>
2.1 Définition	36

2.2	Interactions paramétriques quadratiques	38
2.3	Interactions paramétriques cubiques	42
<b>3</b>	<b>Equations de propagation</b>	<b>47</b>
3.1	Couplage à 3 ondes : $\omega_0 \leftrightarrow \omega_I + \omega_{II}$	47
3.2	Couplage à 4 ondes de schéma A : $\omega_0 \leftrightarrow \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$	49
<b>4</b>	<b>Accord de phase</b>	<b>50</b>
<b>5</b>	<b>Notion de quasi-accord de phase</b>	<b>54</b>
<b>6</b>	<b>Compétition entre les effets quadratique et cubique</b>	<b>57</b>
6.1	Principe	57
6.2	Equations couplées	59
6.3	Coefficient effectif global	60
6.4	Extension au cas de plusieurs cascades	61
<b>CHAPITRE III – ETAT DE L’ART ET DEFINITION DES OBJECTIFS</b>		<b>63</b>
<b>1</b>	<b>Etat de l’art</b>	<b>63</b>
1.1	Photons jumeaux	64
1.2	Triplets de photons	65
1.2.1	Etude théorique des corrélations	65
1.2.2	Approche expérimentale	67
1.2.3	Expériences basées sur deux paires de photons jumeaux	67
1.3	Génération de tierce harmonique et dégroupement de photons	68
<b>2</b>	<b>Définition de nos stratégies expérimentales</b>	<b>69</b>
2.1	Objectifs	69
2.2	Choix de la source laser	69
2.3	Choix des matériaux non linéaires	70
<b>CHAPITRE IV – ETUDE DE LA GENERATION DE TIERCE HARMONIQUE DANS KTP ET PPKTP</b>		<b>72</b>
<b>1</b>	<b>Etude dans KTP</b>	<b>72</b>
1.1	Calculs des conditions d’accord de phase et des rendements de conversion	72
1.1.1	Accord de phase	72
1.1.2	Coefficient effectif cubique	73
1.1.3	Coefficient effectif global	75

1.1.4	Calcul du rendement de conversion	79
1.2	Réalisation expérimentale	82
1.2.1	Dispositif	82
1.2.2	Résultats expérimentaux	84
<b>2</b>	<b>Etude dans ppKTP</b>	<b>87</b>
2.1	Principe	87
2.2	Essais expérimentaux	89
2.2.1	Description de l'échantillon	89
2.2.2	Effet sur les cascades	90
2.2.3	Accord de phase	91
2.2.4	Rendement d'interaction	92
2.3	Perspectives	94
<b>CHAPITRE V – ETUDE PROSPECTIVE DE THG DANS LES VERRES DE CHALCOGENURE</b>		<b>95</b>
<b>1</b>	<b>Effets d'une contrainte mécanique sur les indices de réfraction</b>	<b>95</b>
1.1	Cas d'une contrainte quelconque	95
1.2	Cas d'une contrainte uniaxiale	96
<b>2</b>	<b>Etude de la THG</b>	<b>98</b>
2.1	Accord de phase	98
2.2	Rendement d'interaction	101
2.3	Etude hors accord de phase	103
<b>3</b>	<b>Caractérisation de quelques matériaux potentiels</b>	<b>105</b>
3.1	Choix des échantillons	105
3.2	Etude de la contrainte	106
3.3	Equations de dispersion	108
3.4	Mesures de coefficients élasto-optiques	109
3.5	Calcul des contraintes à l'accord de phase	114
<b>4</b>	<b>Essais expérimentaux de THG hors accord de phase</b>	<b>115</b>
<b>CHAPITRE VI – ETUDE DE LA GENERATION DE TRIPLETS</b>		<b>118</b>
<b>1</b>	<b>Théorie classique des interactions paramétriques optiques cubiques</b>	<b>118</b>
1.1	Continuum d'accord de phase	118
1.2	Evolution des champs et des intensités	120
1.2.1	Etude en pompe non dépeuplée	120

---

1.2.2	Etude en pompe dépeuplée	122
1.3	Gain d'amplification paramétrique	127
1.4	Seuil d'oscillation paramétrique	128
<b>2</b>	<b>Stratégie pour le choix de l'interaction</b>	<b>131</b>
2.1	Accord de phase	131
2.2	Prise en compte des cascades quadratiques	134
<b>3</b>	<b>Réalisations expérimentales</b>	<b>136</b>
3.1	Dispositif	137
3.2	Résultats obtenus	139
3.2.1	Accord de phase	140
3.2.2	Rendement d'interaction	142
<b>CONCLUSION</b>		<b>144</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE</b>		<b>145</b>



## Table des illustrations

Figure 1 : principe de la polarisation électronique.	16
Figure 2 : orientation du vecteur d'onde dans le repère optique.	21
Figure 3 : représentation de la surface des indices pour un milieu isotrope.	25
Figure 4 : représentation de la surface des indices d'un milieu uniaxe ; exemple pour une propagation dans le plan $(xOy)$ ; $\vec{s}$ est le vecteur unitaire dans la direction de propagation des ondes.	26
Figure 5 : représentation de la surface des indices d'un milieu biaxe ; exemple pour une propagation dans le plan $(xOy)$ .	27
Figure 6 : représentation tridimensionnelle de la surface des indices d'un milieu biaxe pour $\frac{1}{4}$ de l'espace.	28
Figure 7 : configuration vectorielle des modes (+) et (-) dans une direction de propagation quelconque d'un milieu biaxe.	32
Figure 8 : configuration vectorielle des modes propres de polarisation pour une propagation dans le plan équatorial d'un biaxe.	33
Figure 9 : un exemple de potentiel réel (en trait plein), et le modèle parabolique associé (en pointillés), en fonction d'une coordonnée d'espace.	35
Figure 10 : diagramme photonique décrivant la génération de second harmonique ; les pointillés représentent des niveaux d'énergie virtuels.	38
Figure 11 : schématisation des interactions optiques non linéaires quadratiques.	41
Figure 12 : représentation des interactions optiques non linéaires cubiques de schéma A.	44
Figure 13 : représentation générique des interactions optiques non linéaires cubiques de schéma B.	44
Figure 14 : éclaircissement généré par une interaction paramétrique quadratique ou cubique de somme de fréquences en fonction de la longueur d'interaction, pour un désaccord de phase nul (en pointillés) et non nul (en trait plein).	52
Figure 15 : dépendance longitudinale de l'éclaircissement généré par une interaction paramétrique quadratique en fonction de la longueur d'interaction $Z$ pour une situation en accord de phase (AP), hors accord de phase (HAP), et en quasi-accord de phase (QAP) ; $\chi_{eff}$ correspond au coefficient non linéaire de second ordre.	55
Figure 16 : différents principes d'accordabilité en quasi-accord de phase.	57

Figure 17 : compétition entre l'interaction cubique et une cascade d'interactions quadratiques dans un milieu non centrosymétrique.	58
Figure 18 : (a) fonction de Wigner pour une génération paramétrique dégénérée en pulsation et en polarisation ; (b) représentation des lignes de niveau matérialisant les régions positives et négatives ([37], 1997).	66
Figure 19 : longueur d'onde fondamentale vérifiant l'accord de phase de la THG en fonction de l'angle $\theta$ ou $\varphi$ définissant la direction de propagation dans le plan principal de KTP considéré.	73
Figure 20 : coefficient effectif non linéaire cubique, en $m^2/V^2$ , en fonction de l'angle d'accord de phase $\varphi$ pour une THG de type II dans le plan $(xOy)$ de KTP.	75
Figure 21 : comparaison des coefficients effectifs du processus cubique et des cascades d'interactions quadratiques pour la THG de type II dans le plan $(xOy)$ de KTP.	78
Figure 22 : taux de cascades pour la THG de type II dans le plan $(xOy)$ de KTP.	78
Figure 23 : évolution longitudinale d'un faisceau gaussien pour le cas idéal ( $M^2 = 1$ ) et pour un cas réel ( $M^2 > 1$ ).	81
Figure 24 : schéma expérimental de la THG dans KTP.	84
Figure 25 : courbe expérimentale de tolérance spectrale pour la THG de type II selon l'axe $(Ox)$ de KTP ; la longueur d'interaction est $L = 3$ mm.	85
Figure 26 : rendement de conversion de fréquences pour la THG en fonction de l'éclairement incident à la pulsation fondamentale ; les points correspondent aux résultats expérimentaux, et la courbe aux prédictions théoriques données par les équations (81) et (83).	86
Figure 27 : effet du renversement périodique de l'axe $(Oz)$ de KTP sur les coefficients non linéaires impliqués dans la THG de type II selon l'axe $(Ox)$ ; $d$ est le pas d'inversion le long de l'axe de propagation.	87
Figure 28 : évolution du taux de cascades en fonction de la longueur des domaines ferroélectriques ; la ligne horizontale correspond au cas de KTP non inversé ([25], 2002).	88
Figure 29 : évolution du rendement de SHG dans l'échantillon de ppKTP en fonction de la position de l'échantillon selon l'axe $(Oy)$ ; la dimension de l'échantillon est de 5 mm dans la direction $(Oy)$ . Une représentation tridimensionnelle de l'échantillon est donnée en médaillon.	90

Figure 30 : éclaircissement correspondant à la pulsation intermédiaire mise en jeu dans la cascade n°4 pour une THG selon l'axe ( $Ox$ ) de KTP et ppKTP avec $d = 4.5 \mu\text{m}$ .	91
Figure 31 : courbe expérimentale de tolérance spectrale pour la THG de type II selon l'axe ( $Ox$ ) de ppKTP ; la longueur d'interaction vaut $L = 3 \text{ mm}$ ; comparaison avec les valeurs obtenues pour KTP.	92
Figure 32 : rendement de conversion de fréquences en fonction de l'éclaircissement incident à la pulsation fondamentale pour KTP et ppKTP ; les points correspondent aux résultats expérimentaux, et les courbes aux prédictions théoriques données par les équations (79) et (84), avec $\tau = 14 \text{ ps}$ .	93
Figure 33 : dispersion de l'indice de réfraction du verre AMTIR-1 ; les points correspondent aux mesures, la courbe aux calculs d'après (95) et (96).	100
Figure 34 : contrainte permettant l'accord de phase pour la THG dans AMTIR-1 en fonction de la longueur d'onde fondamentale.	101
Figure 35 : évolution de l'éclaircissement de troisième harmonique généré dans AMTIR-1 en fonction de la contrainte appliquée, au voisinage de l'accord de phase pour la THG de type I.	104
Figure 36 : évolution de l'éclaircissement généré par une THG de type I dans AMTIR-1 pour de faibles valeurs de la contrainte appliquée.	105
Figure 37 : photographie de l'échantillon de $\text{GeSe}_4$ .	106
Figure 38 : géométrie et maillage de l'échantillon déformé par l'effort appliqué ; en gras, la géométrie au repos.	107
Figure 39 : homogénéité de la contrainte $S_{zz}$ dans l'échantillon, dont la valeur est traduite en niveau de gris ; en médaillon une coupe en milieu d'échantillon, en couleurs inversées.	108
Figure 40 : principe des mesures ellipsométriques.	109
Figure 41 : mesures ellipsométriques pour le verre $\text{GeSe}_4$ .	112
Figure 42 : mesures ellipsométriques pour le verre $\text{GeAsSe}_8$ .	113
Figure 43 : mesures ellipsométriques pour le verre $\text{AsSe}_4$ .	113
Figure 44 : éclaircissement de THG généré dans $\text{GeSe}_4$ hors accord de phase en fonction de l'éclaircissement incident.	116
Figure 45 : calcul des courbes d'accord de phase pour l'interaction $\lambda_0^{(-)} \rightarrow \lambda_1^{(+)} + \lambda_2^{(-)} + \lambda_3^{(+)}$ selon l'axe ( $Ox$ ) de KTP, dans le cas où $\lambda_0 = 532 \text{ nm}$ .	119

- 
- Figure 46 : schéma de principe d'une différence de fréquences cubique doublement injectée. \_\_\_\_\_ 121
- Figure 47 : évolution longitudinale des éclairissements pour une interaction paramétrique cubique de schéma A. \_\_\_\_\_ 127
- Figure 48 : courbes d'accord de phase pour une DFG cubique pompée à  $\lambda_0 = 532$  nm et injectée à  $\lambda_2 = \lambda_3$  dans le plan  $(xOy)$  de KTP ; (//) correspond à des polarisations d'injection parallèles, ( $\perp$ ) à des polarisations orthogonales. \_\_\_\_\_ 133
- Figure 49 : taux de cascades pour une DFG cubique pompée à  $\lambda_0 = 532$  nm et injectée à  $\lambda_2 = \lambda_3$  dans le plan  $(xOy)$  de KTP ; (//) correspond à des polarisations d'injection parallèles, ( $\perp$ ) à des polarisations orthogonales. \_\_\_\_\_ 136
- Figure 50 : dispositif expérimental utilisé pour la réalisation de la DFG cubique doublement injectée, pompée à  $\lambda_0 = 532$  nm selon l'axe  $(Ox)$  de KTP. \_\_\_\_\_ 139
- Figure 51 : profil spectral généré en situation d'accord de phase pour la DFG cubique pompée à  $\lambda_0 = 532$  nm selon l'axe  $(Ox)$  de KTP, les deux injections à  $\lambda_2 = \lambda_3 = 1665$  nm étant polarisées orthogonalement. \_\_\_\_\_ 140
- Figure 52 : longueur d'onde générée en situation d'accord de phase en fonction de la longueur d'onde injectée pour une DFG cubique pompée à  $\lambda_0 = 532$  nm selon l'axe  $(Ox)$  de KTP, les deux injections étant polarisées orthogonalement ; les calculs sont relatifs à l'expression (153). \_\_\_\_\_ 141
- Figure 53 : éclairissement généré à  $\lambda_1 = 1473$  nm en fonction de l'éclairissement incident à  $\lambda_0 = 532$  nm, l'éclairissement d'injection à  $\lambda_2 = \lambda_3 = 1665$  nm étant fixé à 50 GW/cm<sup>2</sup> par mode, soit 100 GW/cm<sup>2</sup> au total. \_\_\_\_\_ 142

## Table des tableaux

Tableau 1 : classe optique des différents systèmes cristallins. _____	24
Tableau 2 : éléments non nuls du tenseur $\chi^{(2)}$ , et égalités entre ces éléments ([4], 2003). ____	40
Tableau 3 : éléments non nuls du tenseur $\chi^{(3)}$ , et égalités entre ces éléments ([4], 2003). ____	47
Tableau 4 : configurations possibles d'accord de phase pour la THG. _____	72
Tableau 5 : cascades d'interactions quadratiques susceptibles de polluer le processus de THG de type II dans le plan $(xOy)$ de KTP. $\varphi$ est l'angle d'accord de phase. _____	76
Tableau 6 : coefficients des équations de Sellmeier pour les verres $\text{GeSe}_4$ , $\text{GeAsSe}_8$ et $\text{AsSe}_4$ . _____	109
Tableau 7 : coefficients élasto-optiques en $\text{TPa}^{-1}$ pour les verres $\text{GeSe}_4$ , $\text{AsSe}_4$ et $\text{GeAsSe}_8$ . _____	114
Tableau 8 : contraintes permettant l'accord de phase pour une THG de type I dans les verres $\text{GeSe}_4$ , $\text{AsSe}_4$ et $\text{GeAsSe}_8$ . _____	115
Tableau 9 : configurations possibles d'accord de phase pour la fission doublement injectée à $\omega_2 = \omega_3$ . _____	132
Tableau 10 : cascades d'interactions quadratiques susceptibles de polluer le processus de DFG cubique de type II $\omega_0^{(-)} \rightarrow \omega_1^{(+)} + \omega_2^{(+)} + \omega_3^{(-)}$ , injectée à $\omega_2 = \omega_3$ dans le plan $(xOy)$ de KTP. $\varphi$ est l'angle d'accord de phase. _____	134
Tableau 11 : cascades d'interactions quadratiques susceptibles de polluer le processus de DFG cubique de type IV $\omega_0^{(-)} \rightarrow \omega_1^{(-)} + \omega_2^{(+)} + \omega_3^{(+)}$ , injectée à $\omega_2 = \omega_3$ dans le plan $(xOy)$ de KTP. $\varphi$ est l'angle d'accord de phase. _____	135

# Introduction

L'objet de cette thèse porte sur l'étude d'interactions optiques non linéaires de conversion de fréquences basées sur la susceptibilité de troisième ordre. Nous nous intéressons ici aux situations faisant intervenir un ensemble de trois photons, que ces photons soient générés ou au contraire consommés.

Les groupes de trois particules qui peuvent être produits par une interaction optique non linéaire cubique sont en effet particuliers : ces trois photons naissent d'un même photon parent et doivent présenter des corrélations quantiques spécifiques, différentes de celles des célèbres « photons jumeaux ». Ces triplets forment l'état intriqué à trois photons, et constituent ainsi un nouvel état de la lumière. Ils ont fait l'objet de plusieurs études théoriques, mais jusqu'à présent aucune réalisation expérimentale n'avait encore vu le jour. La création de tels états constitue donc, aujourd'hui encore, un challenge expérimental. Cette thèse présente la première observation d'états triplets, générés à partir d'une interaction optique non linéaire de différence de fréquences d'ordre 3. Outre l'intérêt théorique évident dont ils font l'objet, ces états ont également des débouchés potentiels dans des applications pratiques, notamment dans le domaine de la communication quantique, où certains protocoles de cryptographie utilisant un tiers quantique de confiance trouveraient en eux un support physique idéal.

Le cas correspondant à la consommation de trois photons est également abordé dans le cadre de ce travail, par le biais de la génération de tierce harmonique. L'objectif est alors l'obtention d'un rendement d'interaction élevé ; c'est en effet la condition nécessaire à l'observation du phénomène de dégroupement, qui trouve une application potentielle dans la production d'états de bruit quantique comprimé.

Cette thèse a l'ambition non seulement de définir et de tester des schémas expérimentaux réalistes pour de futures études d'optique quantique, mais également de proposer une modélisation aboutie des interactions sollicitées, dans le cadre de la théorie classique.

# Chapitre I – Éléments d'optique cristalline linéaire

Ce premier chapitre est préliminaire au travail de thèse proprement dit : il est destiné à donner les notions de base strictement nécessaires à la compréhension des chapitres suivants. Il s'agit de rappels simples sur les propriétés optiques linéaires des milieux anisotropes.

Le cadre retenu pour ce chapitre est celui d'une représentation classique des champs.

## 1 Caractéristiques générales des ondes électromagnétiques

Les ondes lumineuses visibles ou infrarouges décrites dans ce travail sont des exemples d'onde électromagnétique. Dans le vide, une telle onde est classiquement représentée par un couple de champs de vecteurs : l'un *électrique*  $\vec{E}$ , dont l'unité est le Volt par mètre [ $\text{V}\cdot\text{m}^{-1}$ ], et l'autre *magnétique*  $\vec{H}$ , exprimé en Ampère par mètre [ $\text{A}\cdot\text{m}^{-1}$ ] ([1], 1996). Ces deux champs ne sont pas indépendants, leur relation faisant notamment intervenir les caractéristiques du milieu de propagation.

La direction définie par le champ électrique s'appelle la *direction de polarisation* de l'onde. Nous nous limitons dans ce travail au seul cas d'ondes polarisées linéairement, c'est-à-dire qu'en un point donné, le vecteur champ électrique est orienté selon une direction de l'espace fixe dans le référentiel du laboratoire.

## 2 Relations constitutives

Lorsque l'onde électromagnétique se propage dans un milieu matériel homogène, les champs lumineux ont pour effets possibles d'induire dans la matière une *polarisation*  $\vec{P}$ , une aimantation  $\vec{M}$  et une densité de courant  $\vec{j}$  ([2], 1975) ([3], 2003).

Les seuls matériaux considérés dans ce travail sont des cristaux ou des verres non magnétiques, c'est-à-dire qu'il n'y a pas d'aimantation induite, et ce sont tous des diélectriques, donc des isolants, pour lesquels la densité de courant induite est nulle.

Le seul effet est finalement de nature électrique, et se traduit par l'apparition d'une polarisation du matériau sous l'influence du champ électrique de l'onde.

## 2.1 Origines de la polarisation induite

Ce nouveau champ de polarisation,  $\vec{P}$ , est localisé dans le milieu diélectrique et peut avoir plusieurs origines, dont les principales sont citées ci-dessous.

- La polarisation *électronique* est présente quel que soit l'état du matériau, et traduit la modification de la répartition des charges internes à chaque atome ; sous l'effet du champ électrique, les barycentres des charges positives –du noyau– et négatives –du nuage électronique– se dissocient, ce qui donne naissance à un moment dipolaire induit, comme le montre la Figure 1.
- La polarisation *ionique* correspond au déplacement des ions dans l'édifice auquel ils appartiennent sous l'effet du champ électrique.
- La polarisation *d'orientation* apparaît lorsque le milieu comporte des entités polaires, dont le moment dipolaire est susceptible d'être réorienté sous l'action du champ électrique.

D'autres causes de polarisation peuvent intervenir, mais les trois éléments cités précédemment sont prépondérants dans le cas des diélectriques ([1], 1996). Dans les situations abordées dans cette thèse, seule la polarisation électronique est concernée, et dans le domaine énergétique associé au spectre visible et infrarouge, qui est celui qui nous intéresse ici, cette polarisation électronique porte essentiellement sur les électrons de valence.



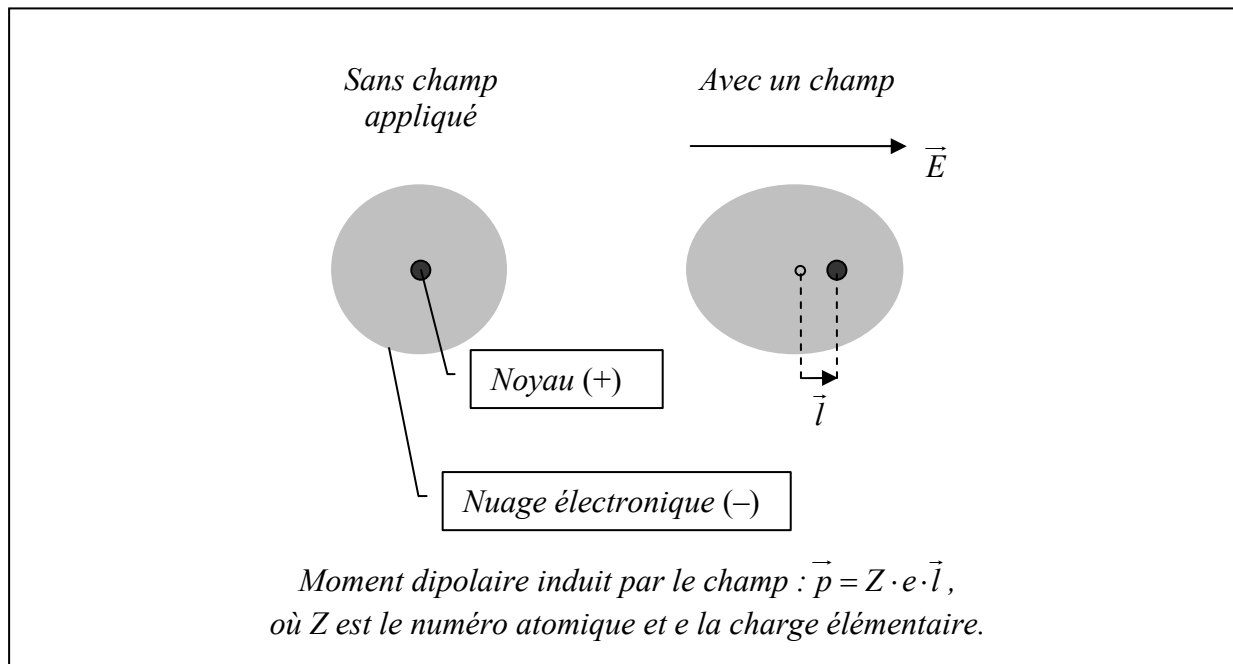


Figure 1 : principe de la polarisation électronique.

## 2.2 Susceptibilité électrique linéaire et déplacement électrique

Lorsque le champ électrique associé à l'onde est suffisamment faible devant la valeur des champs assurant la cohésion de l'édifice atomique<sup>1</sup>, la dépendance de la polarisation vis-à-vis du champ inducteur est bien modélisée par une relation linéaire, soit :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \cdot \chi \cdot \vec{E} \quad (1),$$

où  $\varepsilon_0 \approx 8.85 \cdot 10^{-12} \text{ F} \cdot \text{m}^{-1}$  représente la permittivité diélectrique du vide. L'unité associée à  $\vec{P}$  est le Coulomb par mètre carré [ $\text{C} \cdot \text{m}^{-2}$ ].

Le coefficient  $\chi$  sans dimension ainsi défini est appelé *susceptibilité électrique linéaire*. Dans cet ouvrage, les pertes associées au milieu sont négligeables et  $\chi$  est alors purement réel.

Pour rendre compte à la fois du champ électrique excitateur et de la polarisation induite par celui-ci dans la matière, il est nécessaire d'introduire une nouvelle entité, le vecteur *déplacement électrique*  $\vec{D}$ , défini comme :

<sup>1</sup> Les valeurs des champs intra-atomiques sont typiquement de l'ordre de  $10^{10}$  à  $10^{11} \text{ V} \cdot \text{m}^{-1}$  ([4], 2003) ; le régime reste linéaire pour des valeurs du champ électrique associé à l'onde allant jusqu'à  $10^5$  à  $10^6 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1}$ .

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \cdot \vec{E} + \vec{P} \quad (2),$$

L'unité associée à  $\vec{D}$  est naturellement la même que celle de la polarisation.

En associant les deux équations (1) et (2), il vient :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \cdot (1 + \chi) \cdot \vec{E} = \varepsilon_0 \cdot \varepsilon_r \cdot \vec{E} \quad (3).$$

Le coefficient  $\varepsilon_r = (1 + \chi)$  se nomme *permittivité diélectrique relative*. Comme  $\chi$ , c'est une grandeur sans dimension, qui reste réelle dès lors que les pertes associées au matériau sont négligeables. De plus, dans les situations abordées ici, la permittivité diélectrique relative ne prend que des valeurs positives.

En suivant la même approche, et bien que le milieu soit non magnétique, il est utile d'introduire le vecteur *induction magnétique*, dont l'expression est alors simple :

$$\vec{B} = \mu_0 \cdot \vec{H} \quad (4),$$

où  $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ H} \cdot \text{m}^{-1}$  est la perméabilité magnétique du vide.

### 3 Equation de propagation

#### 3.1 Expression

Les évolutions spatiale et temporelle des ondes électromagnétiques sont décrites par les équations de Maxwell. Dans le cas des diélectriques, elles s'écrivent de la manière suivante ([3], 2003) :

$$\begin{cases} \text{rot}(\vec{E}) + \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = \vec{0} \\ \text{rot}(\vec{H}) - \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} = \vec{0} \\ \text{div}(\vec{D}) = 0 \\ \text{div}(\vec{B}) = 0 \end{cases} \quad (5).$$

En associant les équations de Maxwell et les équations constitutives (3) et (4), l'équation de propagation du champ électrique s'établit aisément sous la forme :

$$\overrightarrow{\text{rot}}\left(\overrightarrow{\text{rot}}(\vec{E})\right) + \mu_0 \cdot \varepsilon_0 \cdot \varepsilon_r \cdot \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (6).$$

### 3.2 Onde plane progressive monochromatique

Une solution de l'équation de propagation du champ électrique (6) est l'onde plane progressive monochromatique ; c'est le seul modèle que nous utilisons par la suite.

La monochromaticité de l'onde permet de définir une pulsation temporelle unique  $\omega$ , à laquelle peut être associée une période temporelle,  $T = \frac{2\pi}{\omega}$ , et une longueur d'onde,  $\lambda = c \cdot T$ , où  $c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0 \cdot \mu_0}}$  correspond à la célérité de l'onde dans le vide<sup>2</sup>.

L'aspect progressif de l'onde se traduit par le fait que sa *direction de propagation (OZ)* peut être représentée par un vecteur : le vecteur d'onde  $\vec{k}$ . Tous les champs électromagnétiques peuvent alors s'écrire sous la forme générique suivante :

$$\vec{A}(X, Y, Z, t) = A(X, Y, Z) \cdot e^{j(\pm k \cdot Z - \omega t)} \cdot \vec{a} \quad (7),$$

dans laquelle  $Z$  représente l'abscisse comptée le long de l'axe de propagation de l'onde, et où  $A(X, Y, Z) = |A(X, Y, Z)| \cdot e^{j\phi}$  est l'amplitude complexe associée, avec  $\phi$  la phase initiale du champ ;  $j$  est le nombre complexe  $\sqrt{-1}$ ,  $\vec{a}$  est le vecteur unitaire dans la direction du champ considéré, et  $k = \|\vec{k}\|$  est le nombre d'onde, ce qui correspond à la pulsation spatiale et s'exprime en  $[\text{m}^{-1}]$ . Le signe (+) correspond à une onde se propageant dans le sens des  $Z$  croissants, le signe (-) à une onde se propageant en sens contraire.

Le nombre d'onde dépend de la permittivité diélectrique relative :

$$k = n \cdot \frac{\omega}{c} \quad (8),$$

avec 
$$n = \sqrt{\varepsilon_r} \quad (9).$$

<sup>2</sup> Depuis 1983, la vitesse de la lumière dans le vide est fixée de manière exacte à  $c = 299\,792\,458 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ .

$n$  est l'indice de réfraction du milieu considéré, dont la valeur peut dépendre entre autres de la direction de polarisation : en effet,  $\chi$ , et donc  $\epsilon_r$  et  $n$ , sont des tenseurs polaires de rang 2 dont les propriétés sont détaillées au § 4.2.2 du présent chapitre.

L'écriture des équations de Maxwell en prenant pour chaque champ une onde plane progressive monochromatique se simplifie considérablement :

$$\begin{cases} j \cdot \vec{k} \wedge \vec{E} - j \cdot \omega \cdot \vec{B} = \vec{0} \\ j \cdot \vec{k} \wedge \vec{H} + j \cdot \omega \cdot \vec{D} = \vec{0} \\ j \cdot \vec{k} \cdot \vec{D} = 0 \\ j \cdot \vec{k} \cdot \vec{B} = 0 \end{cases} \quad (10).$$

Le caractère transverse de l'onde apparaît ainsi clairement : les deux dernières équations du système (10) traduisent l'orthogonalité des vecteurs densité de flux  $\vec{D}$  et  $\vec{B}$  avec la direction de propagation de l'onde ;  $\vec{D}$  et  $\vec{B}$  définissent le plan d'onde, noté  $(XOY)$  dans le référentiel du laboratoire défini au paragraphe 4.1 suivant.

## 4 Propriétés optiques cristallines linéaires

Dans certains milieux ordonnés, notamment dans la plupart des édifices cristallins, certaines propriétés optiques fondamentales, comme l'indice de réfraction par exemple, ne sont plus les mêmes dans toutes les directions de l'espace. Ces milieux sont alors *optiquement anisotropes*<sup>3</sup>.

Pour ces matériaux, les tenseurs de susceptibilité électrique linéaire, de permittivité diélectrique relative et d'indice de réfraction ne peuvent pas s'écrire sous forme scalaire, comme c'est le cas pour les matériaux optiquement isotropes. Ce sont alors des tenseurs polaires de rang 2, qui présentent des propriétés hermitiennes assurant notamment qu'il existe toujours une base orthogonale dans laquelle leurs expressions sont diagonales ([4], 2003).

### 4.1 Les différents repères

Il convient à ce stade de préciser les différents repères susceptibles d'intervenir par la suite :

---

<sup>3</sup> Les milieux étudiés ici étant non magnétiques, l'anisotropie ne concerne en fait que les grandeurs électriques.

- la *base cristallographique*  $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$  est liée à la structure de la maille cristalline ; elle n'est pas toujours orthogonale ;
- le *repère optique*, noté  $(O, x, y, z)$ , est associé à la base  $(x, y, z)$  qui diagonalise le tenseur  $\chi$  ; il est admis que cette base existe toujours, et qu'elle est orthogonale<sup>4</sup> ;
- le *repère du laboratoire*, noté  $(O, X, Y, Z)$  est supposé Galiléen ; l'axe  $(OZ)$  est choisi aligné avec le vecteur d'onde  $\vec{k}$ .

Dans le repère optique, le tenseur de susceptibilité électrique linéaire s'écrit donc :

$$\chi = \begin{bmatrix} \chi_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{zz} \end{bmatrix} \quad (11).$$

Les axes  $(Ox)$ ,  $(Oy)$  et  $(Oz)$  du repère optique s'appellent indifféremment *axes principaux* ou *axes diélectriques*<sup>5</sup> ; les plans  $(xOy)$ ,  $(yOz)$  et  $(xOz)$  sont dénommés *plans principaux*.

Tous les calculs présentés dans la suite sont faits dans le repère optique, car la nature diagonale du tenseur  $\chi$  les rend plus aisés ; la direction de propagation de l'onde incidente, portée par  $\vec{k}$ , est ainsi définie dans le système de coordonnées sphériques par les angles  $\theta$  et  $\varphi$ , comme indiqué sur la Figure 2.

---

<sup>4</sup> Pour les matériaux considérés dans ce travail, les bases optique et cristallographique sont confondues, mais cet état de fait n'est pas systématique et dépend du système cristallin ([5], 1957).

<sup>5</sup> Le repère optique est parfois appelé repère diélectrique ([2], 1975).

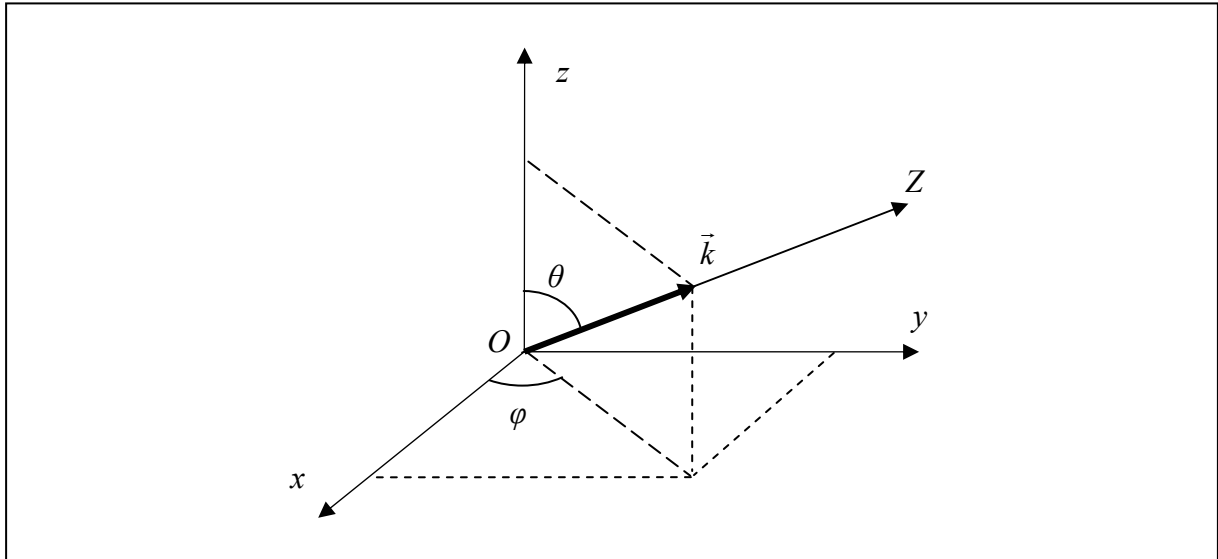


Figure 2 : orientation du vecteur d'onde dans le repère optique.

Notons que la donnée des angles  $\theta$  et  $\varphi$  fixe l'orientation de l'axe  $(OZ)$  du repère du laboratoire dans le repère optique.

## 4.2 Indice de réfraction

### 4.2.1 Dispersion en longueur d'onde

L'indice de réfraction est une grandeur qui dépend de la longueur d'onde associée à l'onde incidente. Cette dépendance, appelée dispersion, peut se comprendre aisément si l'édifice atomique est interprété comme un oscillateur placé dans un puits de potentiel, perturbé par le champ électrique d'une onde incidente. Comme tout oscillateur, sa réponse –la polarisation induite– dépend de la pulsation d'excitation, donc de la longueur d'onde associée à l'onde électromagnétique. La dépendance de l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde est d'une importance capitale vis-à-vis de l'utilisation des propriétés optiques non linéaires, et sa connaissance doit être précise. Les meilleurs modèles font appel à des équations de type Sellmeier, issue de la théorie de Lorentz, dont une forme est par exemple :

$$n^2(\lambda) = a + \frac{b}{1 - \left(\frac{c}{\lambda}\right)^p} + \frac{d}{1 - \left(\frac{e}{\lambda}\right)^q} \quad (12),$$

où  $a, b, c, d, e, p$  et  $q$  sont des coefficients propres au milieu considéré ([6], 1967). Notons que ces coefficients ne sont pas dépourvus de signification physique : en particulier,  $c$  et  $e$  sont les longueurs d'onde de coupure qui définissent le domaine de transparence associé à la plage de

validité de l'expression. La relation (12) traduit une loi de dispersion dite « normale », c'est-à-dire vérifiant le critère  $\frac{\partial n}{\partial \lambda} < 0$ , ce qui correspond au cas des matériaux et des domaines spectraux abordés ici.

#### 4.2.2 Tenseur des indices de réfraction

Compte tenu des équations (3), (9) et (11), le tenseur des indices de réfraction est donné par :

$$n = \begin{bmatrix} n_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & n_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & n_{zz} \end{bmatrix} \quad (13),$$

avec  $n_{ii} = \sqrt{\varepsilon_{ii}} = \sqrt{1 + \chi_{ii}}$ , où  $i = x, y$  ou  $z$ . Dans la suite, nous utilisons la notation contractée  $n_i = n_{ii}$ .

Les composantes cartésiennes du champ et du déplacement électriques sont ainsi reliées par :

$$D_i = \varepsilon_0 \cdot n_i^2 \cdot E_i \quad (14),$$

où  $i = x, y$  ou  $z$ .

Il est alors évident que dans le cas général,  $\vec{E}$  et  $\vec{D}$  ne sont pas colinéaires ; l'angle entre les deux vecteurs est noté  $\gamma$ .

#### 4.2.3 Biréfringence

Considérons une onde définie par sa direction de propagation  $(\theta, \varphi)$  dans le repère optique, comme le précise la Figure 2. En partant des équations de Maxwell et des relations constitutives, il est possible d'établir la dépendance de l'indice de réfraction,  $n$ , en fonction de la direction de propagation ([2], 1975) ([7], 1993) :

$$\frac{\sin^2(\theta) \cdot \cos^2(\varphi)}{n^2 - n_x^2} + \frac{\sin^2(\theta) \cdot \sin^2(\varphi)}{n^2 - n_y^2} + \frac{\cos^2(\theta)}{n^2 - n_z^2} = 0 \quad (15).$$

Cette relation, appelée équation de Fresnel, est quadratique par rapport à l'indice de réfraction ; elle admet donc deux solutions :  $n^{(+)}(\theta, \varphi)$  et  $n^{(-)}(\theta, \varphi)$ , définies de façon unique

en imposant la relation d'ordre  $n^{(+)}(\theta, \varphi) \geq n^{(-)}(\theta, \varphi)$ . Leurs expressions respectives sont données par ([4], 2003) :

$$n^{(\pm)}(\theta, \varphi) = \sqrt{\frac{2}{\alpha \mp \sqrt{\alpha^2 - 4\beta}}} \quad (16),$$

où  $\alpha = \sin^2(\theta) \cdot \cos^2(\varphi) \cdot (n_y^{-2} + n_z^{-2}) + \sin^2(\theta) \cdot \sin^2(\varphi) \cdot (n_x^{-2} + n_z^{-2}) + \cos^2(\theta) \cdot (n_x^{-2} + n_y^{-2})$ ,

et  $\beta = \sin^2(\theta) \cdot \cos^2(\varphi) \cdot n_y^{-2} \cdot n_z^{-2} + \sin^2(\theta) \cdot \sin^2(\varphi) \cdot n_x^{-2} \cdot n_z^{-2} + \cos^2(\theta) \cdot n_x^{-2} \cdot n_y^{-2}$ .

Ainsi, dans une direction de propagation donnée, l'indice de réfraction peut prendre simultanément deux valeurs distinctes. La *biréfringence* est alors définie comme la quantité toujours positive et sans dimension :  $\Delta n = n^{(+)}(\theta, \varphi) - n^{(-)}(\theta, \varphi)$ .

### 4.3 Classes optiques et surfaces des indices associées

Suivant les valeurs relatives des éléments diagonaux du tenseur  $n$ , les matériaux peuvent être regroupés en trois classes, dites classes optiques, dont les propriétés diffèrent.

- Les matériaux *isotropes* correspondent au cas totalement dégénéré, pour lequel  $n_x = n_y = n_z$  ; le tenseur des indices peut alors être assimilé à un simple scalaire.
- Les matériaux *uniaxes* sont ceux pour lesquels deux valeurs propres restent égales. La convention  $n_x = n_y \neq n_z$  est classiquement adoptée<sup>6</sup> ; la valeur double  $n_x = n_y$  est alors appelée indice ordinaire, noté  $n_o$ , tandis que l'indice  $n_z$  est qualifié d'extraordinaire, et noté  $n_e$ .
- Les matériaux *biaxes* sont caractérisés par trois valeurs propres différentes.

S'il est évident que les verres font partie de la classe isotrope, la classe optique d'un système cristallin dépend de sa classe de symétrie d'orientation. Le Tableau 1 permet d'attribuer à chaque système cristallin la classe optique qui lui correspond ([5], 1957).

<sup>6</sup> En effet, la définition du repère optique laisse une liberté quant au choix de l'ordre des indices  $x, y$  et  $z$ .



Système cristallin	Classe de symétrie d'orientation	Classe optique
Cubique	$23, m\bar{3}, \bar{4}3m, 432, m\bar{3}m$	Isotrope
Trigonal	$3, \bar{3}, 3m, 32, \bar{3}m$	
Tétragonal	$4, \bar{4}, \frac{4}{m}, 4mm, \bar{4}2m, 422, \frac{4}{m}mm$	Uniaxe
Hexagonal	$6, \bar{6}, \frac{6}{m}, 6mm, \bar{6}2m, 622, \frac{6}{m}mm$	
Orthorhombique	$mm2, 222, mmm$	
Monoclinique	$m, 2, \frac{2}{m}$	Biaxe
Triclinique	$1, \bar{1}$	

Tableau 1 : classe optique des différents systèmes cristallins.

La surface tridimensionnelle correspondant à la représentation géométrique de la fonction  $n^{(\pm)}(\theta, \varphi)$ , donnée par (16), est appelée *surface des indices*. Dans le cas général, elle comporte deux nappes : pour chaque direction, les distances entre l'origine  $O$  et les nappes (+) et (-) correspondent aux valeurs de  $n^{(+)}(\theta, \varphi)$  et  $n^{(-)}(\theta, \varphi)$  respectivement.

#### 4.3.1 Milieux isotropes

Pour les milieux isotropes, l'indice de réfraction est défini de manière unique, indépendamment de la direction de propagation ; la surface des indices ne comporte qu'une nappe, et constitue une sphère de rayon  $n$ , comme l'indique la Figure 3.

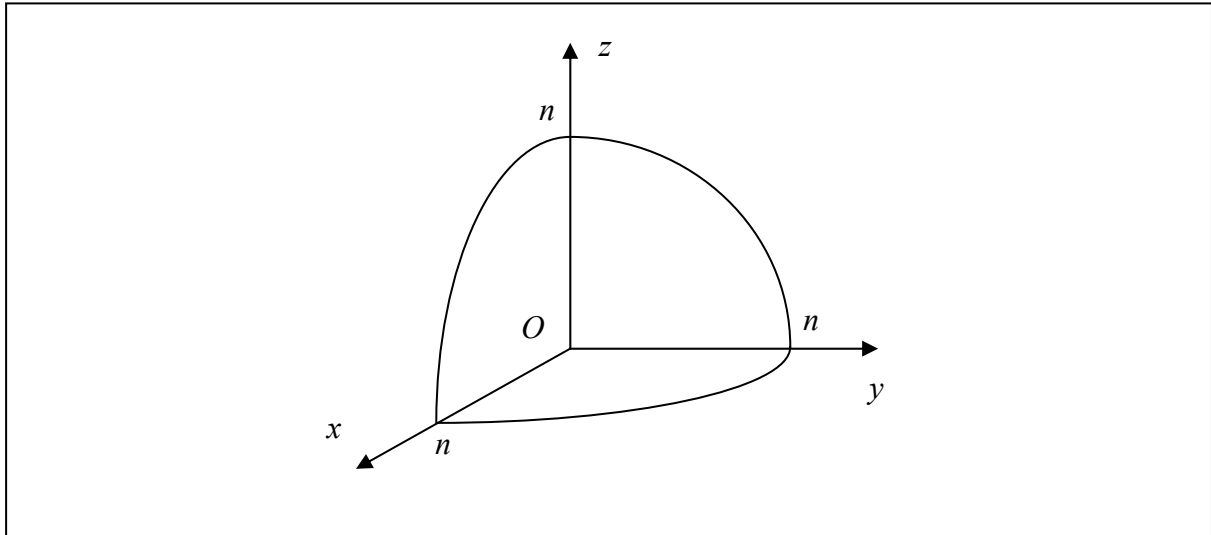


Figure 3 : représentation de la surface des indices pour un milieu isotrope.

#### 4.3.2 Milieux uniaxes

Pour les milieux uniaxes, la surface des indices est formée de deux nappes : une sphère de rayon  $n_o$ , et un ellipsoïde de révolution autour de l'axe ( $Oz$ ). Cette direction particulière ( $Oz$ ) correspond à la solution double de l'équation de Fresnel, et prend le nom d'*axe optique*. Dans les plans principaux ( $xOz$ ) et ( $yOz$ ), la trace laissée par la surface des indices est composée d'un cercle et d'une ellipse ; dans le plan ( $xOy$ ), elle est composée de deux cercles de rayons respectifs  $n_o$  et  $n_e$ , comme le montre la Figure 4. Les deux cas possibles y sont détaillés : uniaxe positif ( $n_o < n_e$ ) ou uniaxe négatif ( $n_o > n_e$ ).

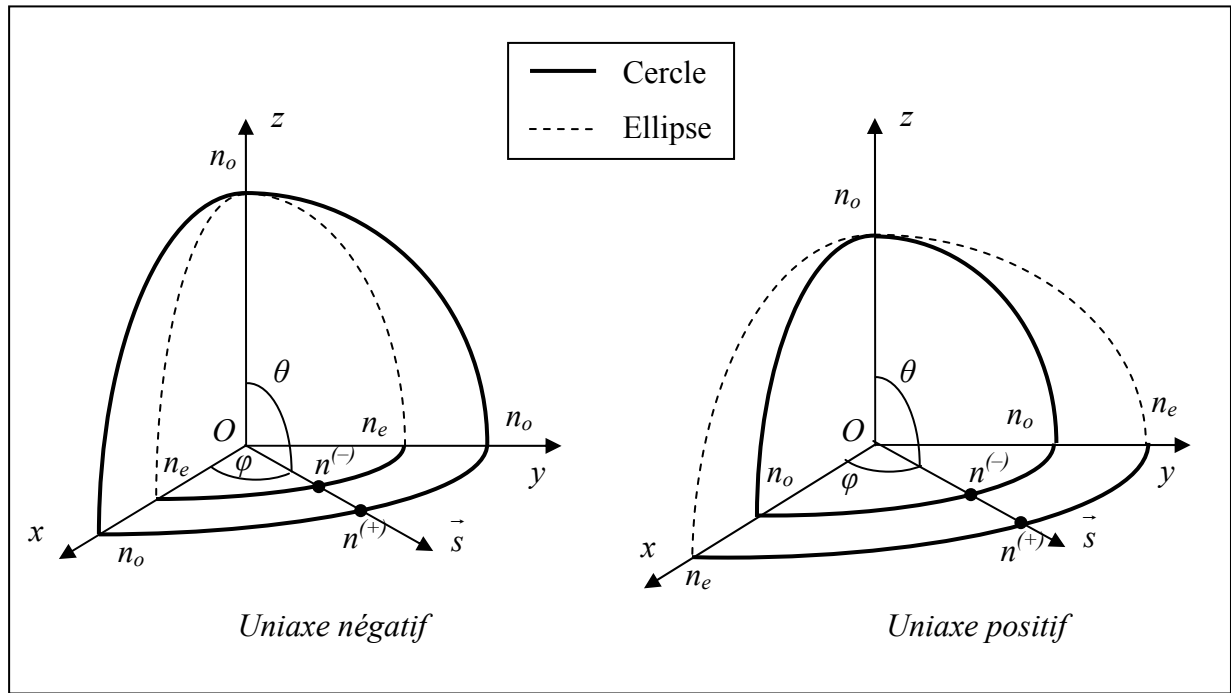


Figure 4 : représentation de la surface des indices d'un milieu uniaxe ; exemple pour une propagation dans le plan  $(xOy)$  ;  $\vec{s}$  est le vecteur unitaire dans la direction de propagation des ondes.

#### 4.3.3 Milieux biaxes

Dans les milieux biaxes, les deux nappes ne présentent plus de symétrie de révolution. Nous utilisons dans ce travail la convention usuelle  $n_x < n_y < n_z$ , ce qui définit de manière unique les axes du repère optique. Il y a alors deux directions particulières pour lesquelles l'équation de Fresnel admet une solution double ; avec la convention choisie, ces deux axes optiques sont situés dans le plan  $(xOz)$  et sont symétriques par rapport à l'axe  $(Oz)$ . Un seul paramètre suffit donc à les positionner : l'angle  $V$ , défini entre un axe optique et l'axe  $(Oz)$ , comme indiqué sur la Figure 5, et dont l'expression s'écrit ([4], 2003) :

$$V = \arcsin \left( \sqrt{\frac{n_x^{-2} - n_y^{-2}}{n_x^{-2} - n_z^{-2}}} \right) \quad (17).$$

La Figure 5 montre également que dans les trois plans principaux, la surface des indices laisse une trace composée d'un cercle et d'une ellipse.

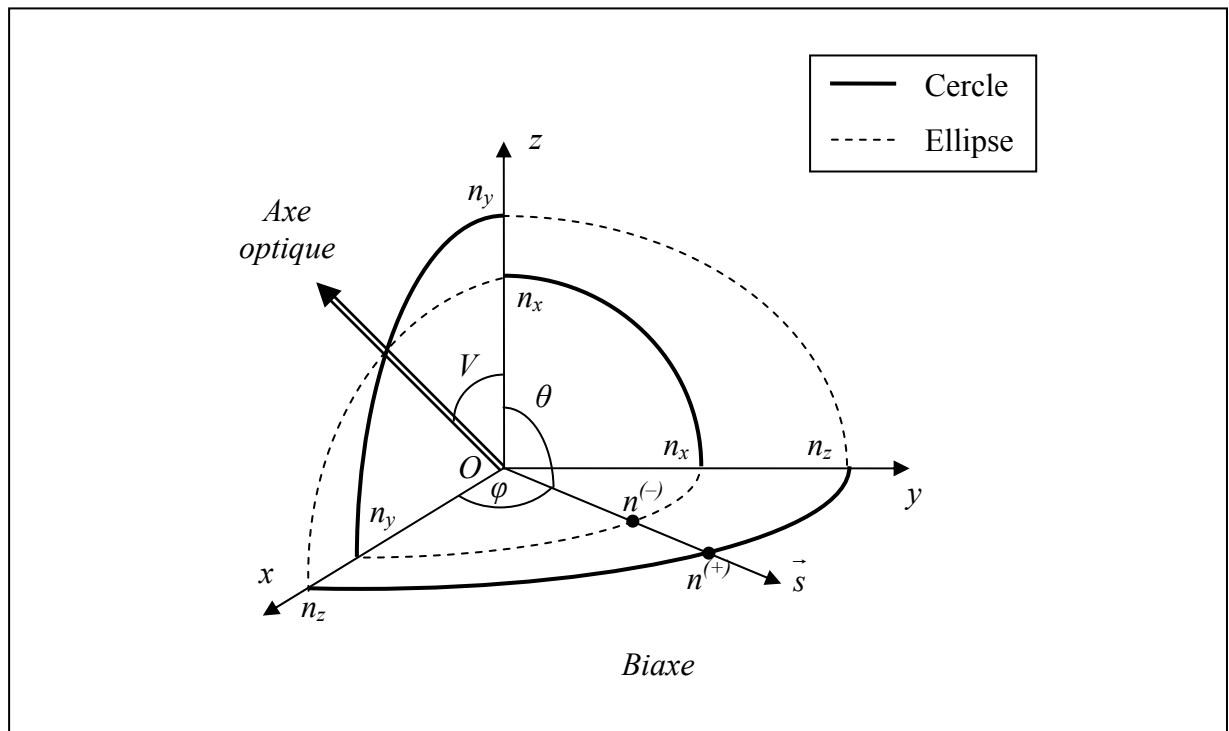


Figure 5 : représentation de la surface des indices d'un milieu biaxe ; exemple pour une propagation dans le plan  $(xOy)$ .

Si la section de la surface des indices dans les plans principaux est donnée dans la plupart des ouvrages traitant d'optique des milieux anisotropes, la surface proprement dite est rarement appréhendée. Nous l'avons tracée sur la Figure 6, les écarts entre les valeurs d'indices principaux ayant été exagérés pour une meilleure visualisation. Cette perspective permet de bien visualiser le voisinage de l'ombilic formé par le contact entre les deux nappes au niveau de l'axe optique : cette géométrie particulière est notamment responsable de la réfraction conique intérieure ([8], 1994).

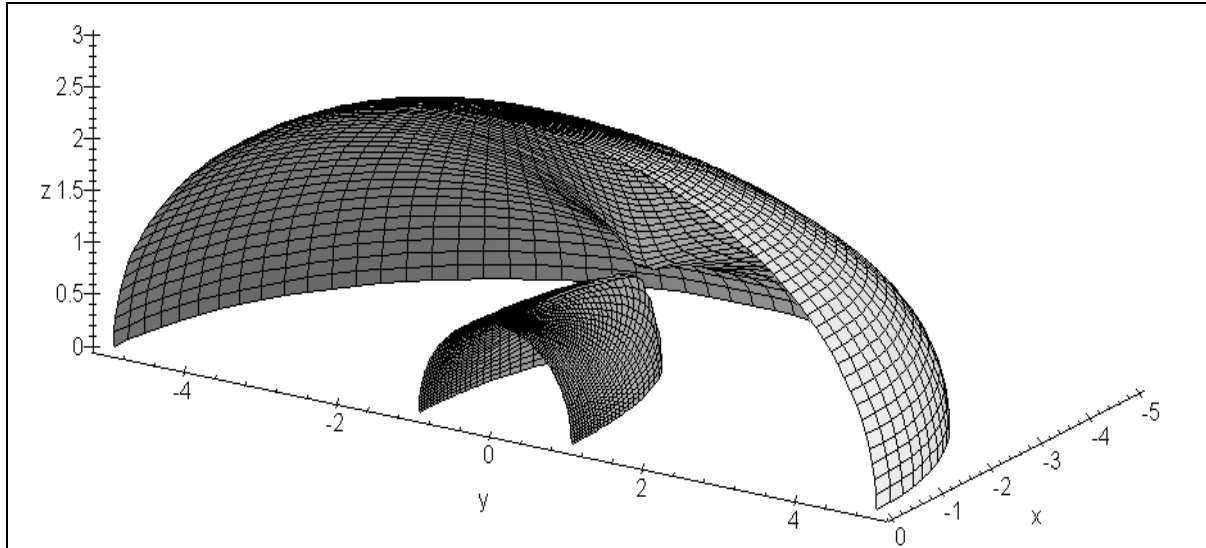


Figure 6 : représentation tridimensionnelle de la surface des indices d'un milieu biaxe pour  $\frac{1}{4}$  de l'espace.

## 5 Modes propres de polarisation

Pour une direction de propagation quelconque dans un milieu anisotrope, les deux valeurs possibles de l'indice de réfraction correspondent à deux ondes planes qui peuvent se propager dans le matériau, chacune étant solution de l'équation de propagation (6). Les équations de Maxwell associées aux relations constitutives d'un milieu anisotrope permettent de calculer les vecteurs unitaires des déplacements électriques  $\vec{d}^{(+)}$  et  $\vec{d}^{(-)}$  des ondes associées respectivement aux indices de réfraction  $n^{(+)}$  et  $n^{(-)}$  dans une direction de propagation quelconque de vecteur unitaire  $\vec{s}$  ([7], 1993). Les vecteurs  $\vec{d}^{(+)}$  et  $\vec{d}^{(-)}$  sont orthogonaux entre eux, de sorte que les plans qu'ils définissent chacun avec le vecteur  $\vec{s}$ , soit  $(\vec{d}^{(+)}, \vec{s})$  et  $(\vec{d}^{(-)}, \vec{s})$ , sont également perpendiculaires : ce sont les deux plans de polarisation associés à la direction de propagation  $\vec{s}$ . Dans le cas général, les deux vecteurs unitaires des champs électriques correspondants,  $\vec{e}^{(+)}$  et  $\vec{e}^{(-)}$ , ne sont pas orthogonaux entre eux, tout en étant contenus dans les plans de polarisation associés, soit  $(\vec{d}^{(+)}, \vec{s})$  et  $(\vec{d}^{(-)}, \vec{s})$  respectivement.

Notons que pour une direction de propagation donnée dans un matériau anisotrope, le déplacement électrique ne peut donc prendre que deux directions particulières :  $\vec{d}^{(+)}$  ou  $\vec{d}^{(-)}$ . Cette sélectivité est la conséquence directe de la nature tensorielle de l'indice de réfraction ;

dans le cas des milieux isotropes, l'égalité des trois valeurs propres du tenseur autorise toutes les directions pour le déplacement électrique.

### 5.1 Cas des uniaxes

Les vecteurs  $\vec{d}^o$  et  $\vec{e}^o$  relatifs à l'onde ordinaire sont colinéaires. Les coordonnées cartésiennes de  $\vec{e}^o$  dans une direction de propagation donnée  $\vec{s}(\theta, \varphi)$  s'expriment par :

$$\begin{cases} e_x^o = -\sin(\varphi) \\ e_y^o = \cos(\varphi) \\ e_z^o = 0 \end{cases} \quad (18).$$

Par contre, les vecteurs  $\vec{d}^e$  et  $\vec{e}^e$  relatifs à l'onde extraordinaire forment l'angle  $\gamma^e$ , qui dépend de la direction de propagation. Les coordonnées cartésiennes de  $\vec{e}^e$  s'écrivent alors :

$$\begin{cases} e_x^e = -\cos(\theta + \gamma^e(\theta)) \cdot \cos(\varphi) \\ e_y^e = -\cos(\theta + \gamma^e(\theta)) \cdot \sin(\varphi) \\ e_z^e = \sin(\theta + \gamma^e(\theta)) \end{cases} \quad (19),$$

$$\text{avec } \gamma^e(\theta) = \pm \arccos\left(\left(n_o^{-2} \cdot \cos^2(\theta) + n_e^{-2} \cdot \sin^2(\theta)\right) \cdot \sqrt{\left(n_o^{-4} \cdot \cos^2(\theta) + n_e^{-4} \cdot \sin^2(\theta)\right)}\right) \quad (20),$$

où le signe  $\pm$  correspond au signe de l'uniaxe.

Dans le cas des milieux uniaxes, les équations (18) et (19) indiquent que les deux vecteurs  $\vec{e}^o$  et  $\vec{e}^e$  restent orthogonaux quelle que soit la direction de propagation ; l'expression (20) montre que les vecteurs  $\vec{d}^e$  et  $\vec{e}^e$  ne sont colinéaires que dans le cas d'une propagation dans une direction pour laquelle  $\theta = \frac{\pi}{2}$ , c'est-à-dire dans le plan  $(xOy)$  de la surface des indices.

### 5.2 Cas des biaxes

Dans les trois plans principaux d'un milieu biaxe, la section de la surface des indices laisse une trace circulaire et une trace elliptique. La situation y est donc analogue à celle des matériaux uniaxes : le mode propre correspondant à la trace elliptique est polarisé

tangentiellement à cette ellipse, alors que le mode propre associé à la trace circulaire est polarisé perpendiculairement au plan principal considéré. Les deux vecteurs  $\vec{e}^{(+)}$  et  $\vec{e}^{(-)}$  sont donc encore orthogonaux dans les plans principaux d'un biaxe.

Nous ne détaillons ici que le cas d'une propagation dans le plan  $(xOy)$ , qui est le plan auquel nous nous intéressons dans les chapitres suivants. Les coordonnées cartésiennes des deux modes propres de polarisation dans la direction de propagation  $\vec{s}(\theta = \frac{\pi}{2}, \varphi)$  sont alors données par ([4], 2003) :

$$\begin{cases} e_x^{(+)} = -\cos(\varphi + \gamma^{(+)}(\varphi)) \\ e_y^{(+)} = \sin(\varphi + \gamma^{(+)}(\varphi)) \\ e_z^{(+)} = 0 \end{cases} \quad (21),$$

et

$$\begin{cases} e_x^{(-)} = 0 \\ e_y^{(-)} = 0 \\ e_z^{(-)} = 1 \end{cases} \quad (22).$$

L'angle  $\gamma^{(+)}$  entre les vecteurs  $\vec{e}^{(+)}$  et  $\vec{d}^{(+)}$  est donné par :

$$\gamma^{(+)}(\varphi) = \arccos\left(\left(n_y^{-2} \cdot \cos^2(\varphi) + n_x^{-2} \cdot \sin^2(\varphi)\right) \cdot \sqrt{\left(n_y^{-4} \cdot \cos^2(\varphi) + n_x^{-4} \cdot \sin^2(\varphi)\right)}\right) \quad (23).$$

L'équation (23) montre que l'angle entre les deux vecteurs  $\vec{e}^{(+)}$  et  $\vec{d}^{(+)}$  est nul seulement pour une propagation selon l'axe  $(Ox)$ , pour lequel  $\varphi = 0$ , et selon l'axe  $(Oy)$ , pour lequel  $\varphi = \frac{\pi}{2}$ .

Hors des plans principaux, les modes propres de polarisation sont calculés en résolvant le système d'équations suivant ([7], 1993) ([4], 2003) :

$$e_i^{(\pm)} = \frac{n^{(\pm)2}}{n^{(\pm)2} - n_i^2} \cdot \left(\vec{s} \cdot \vec{e}^{(\pm)}\right) \cdot s_i \quad (24),$$

avec  $i = x, y$  ou  $z$ ,  $s_i$  et  $e_i^{(\pm)}$  étant respectivement les composantes des vecteurs  $\vec{s}$  et  $\vec{e}^{(\pm)}$  sur l'axe  $(Oi)$ .

### 5.3 Double réfraction

#### 5.3.1 Aspects énergétiques

Les propriétés énergétiques d'une onde plane progressive monochromatique sont décrites par le *vecteur de Poynting* :

$$\vec{\pi} = \vec{E} \wedge \vec{H} \quad (25).$$

La valeur moyenne de sa norme sur une période  $T$  correspond à la puissance rayonnée par unité de surface. Compte tenu de l'expression générique des champs donnée par (7), des équations de Maxwell et des relations constitutives, cette grandeur s'exprime par :

$$I = \left\langle \|\vec{\pi}\| \right\rangle_T = \frac{1}{2} \cdot n \cdot \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \cdot |E|^2 \quad (26).$$

$I$  s'exprime en  $[\text{W} \cdot \text{m}^{-2}]$  et s'appelle l'*éclairement*<sup>7</sup> ([1], 1996) ([3], 2003).

#### 5.3.2 Angle de double réfraction

Les deux modes propres de polarisation  $\vec{e}^{(+)}$  et  $\vec{e}^{(-)}$  étant distincts, et d'après l'équation (25), les deux vecteurs de Poynting correspondant  $\vec{\pi}^{(+)}$  et  $\vec{\pi}^{(-)}$  ne sont donc pas colinéaires : c'est le phénomène de *double réfraction*.

La configuration vectorielle des ondes planes relatives aux modes (+) et (-) est présentée sur la Figure 7 : pour chaque mode, les quatre vecteurs  $\vec{D}^{(\pm)}$ ,  $\vec{E}^{(\pm)}$ ,  $\vec{k}^{(\pm)}$  et  $\vec{\pi}^{(\pm)}$  sont contenus dans le plan de polarisation correspondant. L'angle  $\gamma^{(\pm)}$  qui se forme entre  $\vec{D}^{(\pm)}$  et  $\vec{E}^{(\pm)}$  se retrouve également entre  $\vec{k}^{(\pm)}$  et  $\vec{\pi}^{(\pm)}$  ([2], 1975). L'angle formé par les deux vecteurs de Poynting est appelé *angle de double réfraction*, et noté :

$$\rho = \left( \widehat{\vec{\pi}^{(+)}, \vec{\pi}^{(-)}} \right) \quad (27).$$

<sup>7</sup> Il s'agit là de la définition photométrique rigoureuse de l'éclairement. Par un abus de langage, tellement répandu qu'il est difficile de ne pas l'utiliser, cette grandeur est bien souvent appelée *intensité*, alors même qu'en toute rigueur l'intensité doit être définie comme le carré de l'amplitude du champ électrique (l'unité associée étant  $\text{V}^2 \cdot \text{m}^{-2}$ ).



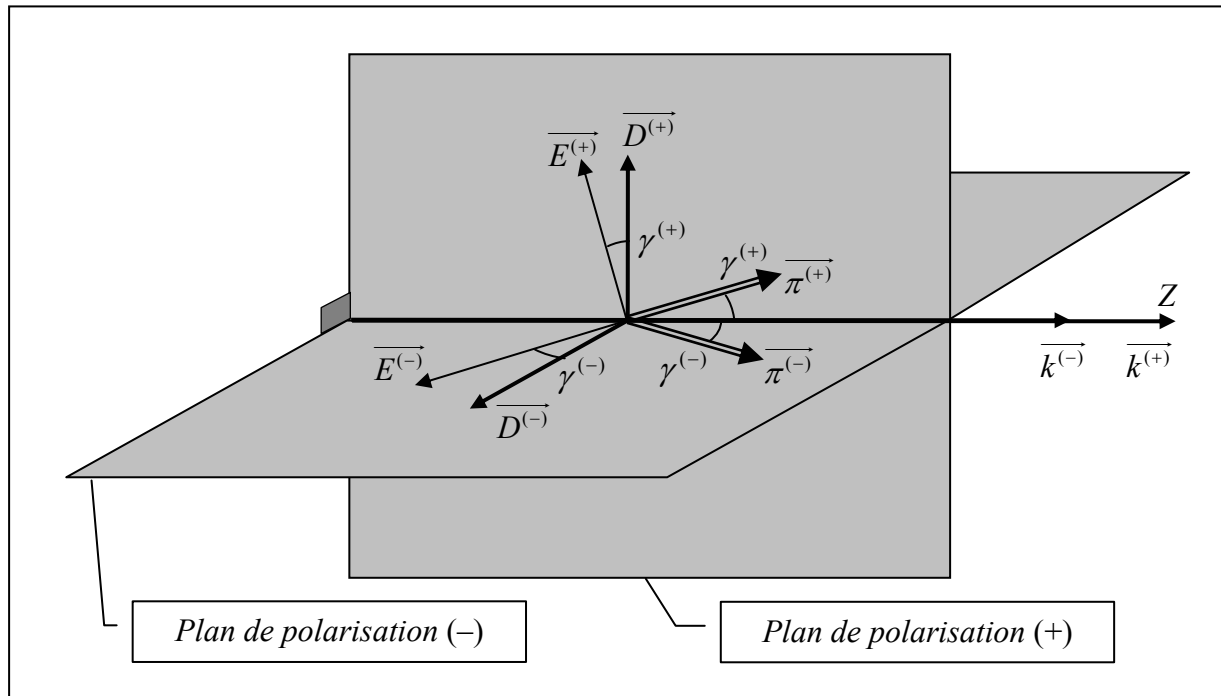


Figure 7 : configuration vectorielle des modes (+) et (-) dans une direction de propagation quelconque d'un milieu biaxe.

Notons que dans les plans principaux d'un milieu biaxe, ou bien quelle que soit la direction de propagation dans un milieu uniaxe, l'angle de double réfraction s'identifie à l'angle  $\gamma$  défini par les expressions (20) et (23).

L'angle de double réfraction n'est donc nul que pour une propagation dans le plan équatorial ( $xOy$ ) ou selon l'axe optique ( $Oz$ ) d'un milieu uniaxe, ou bien encore selon les axes principaux d'un matériau biaxe. Ces directions sont privilégiées pour réaliser des interactions optiques non linéaires paramétriques.

La plupart des interactions présentées dans ce travail concernent le plan ( $xOy$ ) d'un milieu biaxe ; la Figure 8 rappelle pour ce cas particulier la configuration vectorielle des ondes qui peuvent s'y propager.

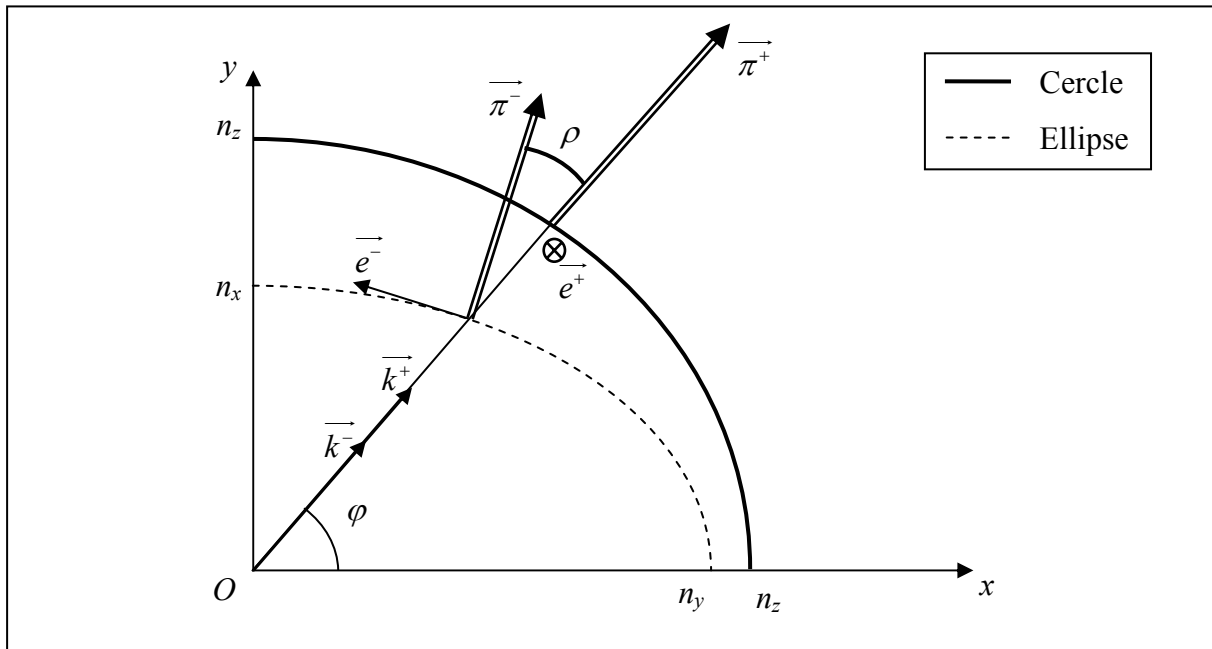


Figure 8 : configuration vectorielle des modes propres de polarisation pour une propagation dans le plan équatorial d'un biaxe.

## Chapitre II – Eléments d’optique cristalline non linéaire paramétrique

Les effets non linéaires qui résultent de l’interaction entre une onde lumineuse et un milieu matériel apparaissent lorsque l’intensité des champs associés à l’onde n’est plus négligeable devant celle des champs internes à l’édifice atomique<sup>8</sup>. Les ondes lumineuses doivent donc être issues de sources intenses, c’est pourquoi il a fallu attendre la découverte de l’effet laser, en 1960, pour observer le premier effet non linéaire en optique ([9], 1961) ; les bases théoriques de l’optique non linéaire ont été ensuite rapidement établies ([10], 1962).

### 1 Potentiel anharmonique et non-linéarité

Le modèle classique de l’électron élastiquement lié, qui représente l’édifice atomique par un oscillateur placé dans un puits de potentiel perturbé par le champ électrique incident, peut paraître naïf mais il permet cependant de rendre compte d’un certain nombre de propriétés, comme l’apparition de termes non linéaires et leur dépendance vis-à-vis des propriétés de symétrie du milieu considéré.

Si le champ électrique, c’est-à-dire l’amplitude de l’excitation, reste faible, le potentiel peut être considéré comme quadratique et la réponse du milieu se fait alors à la même pulsation que l’excitation : c’est le domaine de l’optique linéaire<sup>9</sup> décrit précédemment. En revanche, lorsque l’amplitude du champ exciteur grandit, le modèle quadratique ne suffit plus à décrire correctement le puits de potentiel : le potentiel réel s’éloigne significativement de la parabole osculatrice, comme le montre la Figure 9. Comme pour tout oscillateur excité trop fortement, le rayonnement associé comporte des termes qui oscillent à des pulsations multiples de la pulsation d’excitation : c’est le phénomène paramétrique.

---

<sup>8</sup> L’observation d’un effet non linéaire n’est possible que pour des ondes dont les champs électriques ont une amplitude supérieure à  $10^6 \text{ V}\cdot\text{m}^{-1}$ .

<sup>9</sup> L’appellation *linéaire* vient du fait qu’à une énergie potentielle quadratique  $Ep(x) \propto x^2$  est associée une force  $\vec{f} = -\vec{grad}(Ep) \propto -x \cdot \vec{e}_x$  qui est donc linéaire en la variable d’espace  $x$  choisie.

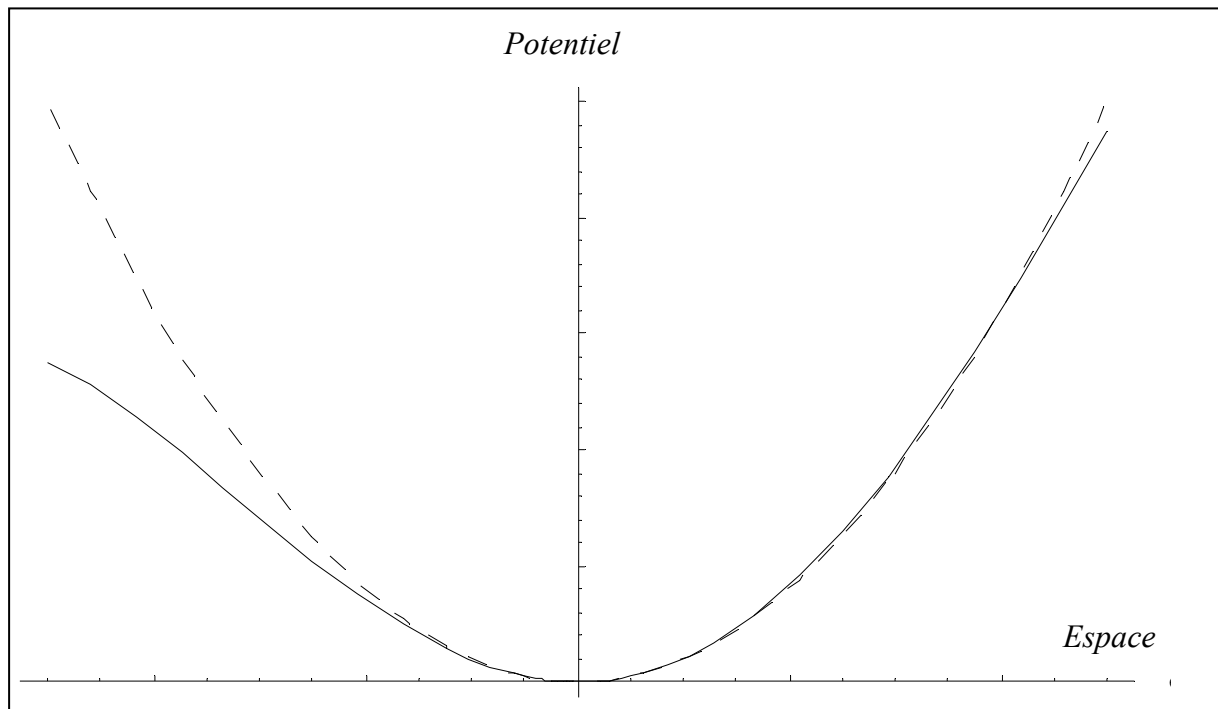


Figure 9 : un exemple de potentiel réel (en trait plein), et le modèle parabolique associé (en pointillés), en fonction d'une coordonnée d'espace.

Dans la pratique, il n'est pas toujours aisé de séparer l'excitation –le champ incident– de la réponse –la polarisation– et les choses sont plus complexes. En effet, la polarisation induite rayonne elle-même un champ de pulsation identique à sa propre pulsation, *via* le vecteur déplacement électrique. C'est donc un couplage global entre les différents champs présents au sein du matériau qu'il faut considérer, sans pouvoir séparer physiquement les contributions des champs incidents et des champs induits<sup>10</sup>.

Cette vision sous l'angle des oscillateurs s'applique avec succès si la non-linéarité reste une perturbation du régime linéaire. Lorsque le potentiel s'écarte d'une simple parabole, il peut encore être décrit convenablement en introduisant des termes supplémentaires à l'expression quadratique ; ainsi, en notant  $x$  la variable d'espace choisie relativement à la position d'équilibre, l'énergie potentielle peut s'écrire<sup>11</sup> :

<sup>10</sup> Le lecteur intéressé par les origines physiques de la non-linéarité optique peut se reporter à quelques ouvrages de référence sur le sujet ([11], 1984) ([12], 1990).

<sup>11</sup> Le terme constant  $E_p(0)$  est choisi nul par convention et la condition d'équilibre annule le terme de premier ordre en imposant  $\frac{\partial E_p}{\partial x}(0) = 0$ .

$$Ep(x) = \frac{1}{2!} \cdot \frac{\partial^2 Ep}{\partial x^2}(0) \cdot x^2 + \frac{1}{3!} \cdot \frac{\partial^3 Ep}{\partial x^3}(0) \cdot x^3 + \frac{1}{4!} \cdot \frac{\partial^4 Ep}{\partial x^4}(0) \cdot x^4 + \dots \quad (28).$$

- Le terme d'ordre 3,  $\frac{1}{3!} \cdot \frac{\partial^3 Ep}{\partial x^3}(0) \cdot x^3$ , correspond à l'effet non linéaire d'ordre le plus bas. Il gouverne les interactions associées à des forces quadratiques en la variable d'espace ; il s'agit donc d'une non-linéarité optique de second ordre, appelée également non-linéarité quadratique.
- Le terme d'ordre 4,  $\frac{1}{4!} \cdot \frac{\partial^4 Ep}{\partial x^4}(0) \cdot x^4$ , est responsable des interactions optiques non linéaires de troisième ordre, dites également cubiques, qui sont celles abordées dans ce travail.

Naturellement, le développement peut être poussé plus loin, mais comme pour tout développement limité, les termes obtenus sont d'autant plus négligeables qu'ils sont d'ordres élevés. Les non-linéarités d'ordres supérieurs à 3 sont négligées dans le cadre de cet ouvrage.

Ce modèle permet également de comprendre les relations qui existent entre les propriétés de symétrie du milieu et la non-linéarité. Si l'entité polarisable –que ce soit un atome ou une liaison chimique– présente un centre de symétrie, le potentiel associé est naturellement symétrique par rapport à la position d'équilibre. Cette symétrie impose alors la nullité des termes d'ordres impairs dans le développement (28) : une structure possédant un centre de symétrie n'offre donc pas de non-linéarité quadratique. Dans ce cas, le premier effet non linéaire correspond à un terme d'ordre 4 dans le développement du potentiel, donc à une non-linéarité cubique ; ce cas est notamment celui des milieux isotropes, et plus généralement celui de tous les milieux centrosymétriques.

## 2 Relations constitutives

### 2.1 Définition

Tant que l'écart au modèle de l'optique linéaire peut être traité comme une perturbation décrite par l'expression (28), la polarisation induite dans la matière est donnée par un développement en une série de puissances du champ électrique exciteur, issu de la relation (28) ([4], 2003) :

$$\vec{P}(\omega) = \vec{P}^{(1)}(\omega) + \vec{P}^{(2)}(\omega) + \vec{P}^{(3)}(\omega) + \dots \quad (29),$$

$$\text{avec} \quad \begin{cases} \vec{P}^{(1)}(\omega) = \varepsilon_0 \cdot \chi^{(1)}(\omega) \cdot \vec{E}(\omega) \\ \vec{P}^{(2)}(\omega) = \varepsilon_0 \cdot \chi^{(2)}(\omega = \omega_A \pm \omega_B) : \{ \vec{E}(\omega_A) \otimes \vec{E}(\pm\omega_B) \} \\ \vec{P}^{(3)}(\omega) = \varepsilon_0 \cdot \chi^{(3)}(\omega = \omega_a \pm \omega_b \pm \omega_c) : \{ \vec{E}(\omega_a) \otimes \vec{E}(\pm\omega_b) \otimes \vec{E}(\pm\omega_c) \} \end{cases} \quad (30).$$

Les vecteurs  $\vec{P}^{(1)}$ ,  $\vec{P}^{(2)}$  et  $\vec{P}^{(3)}$  représentent les polarisations linéaire, quadratique et cubique respectivement ; les vecteurs  $\vec{E}(\pm\omega_n)$  correspondent aux champs électriques associés aux différentes pulsations des ondes en interaction<sup>12</sup> ; les produits contractés d'ordre 2 et 3 sont notés : et : respectivement, alors que  $\otimes$  représente le produit tensoriel.

$\chi^{(1)}(\omega)$  est le tenseur de susceptibilité électrique linéaire  $\chi$  défini précédemment<sup>13</sup>, alors que  $\chi^{(2)}(\omega)$  et  $\chi^{(3)}(\omega)$  sont les tenseurs de susceptibilité électrique non linéaire quadratique<sup>14</sup> et cubique respectivement.

Les relations (29) et (30) montrent que la polarisation induite à la pulsation  $\omega$  est le fruit non seulement d'un champ exciteur à la même pulsation, par le biais de l'optique linéaire, mais peut également résulter de la présence concomitante de plusieurs champs dont la somme<sup>15</sup> des pulsations vaut  $\omega$ . Ces interactions optiques non linéaires paramétriques font intervenir différentes composantes spectrales du champ électromagnétique, et peuvent exister qu'il y ait ou non résonance vis-à-vis d'une ou plusieurs de ces composantes. Dans le travail présenté ici, nous ne considérons que des interactions associées à des transitions énergétiques non résonantes.

Remarquons dans l'expression des polarisations non linéaires (30) que l'égalité concernant les pulsations n'est rien d'autre que la conservation de l'énergie des photons en interaction. Les effets optiques non linéaires permettent ainsi d'appréhender la nature corpusculaire du

<sup>12</sup> La notation  $\vec{E}(-\omega)$  doit être interprétée comme le complexe conjugué de  $\vec{E}(\omega)$ .

<sup>13</sup> Le terme *susceptibilité diélectrique* est parfois rencontré, il correspond à la susceptibilité électrique linéaire.

<sup>14</sup> Certains ouvrages ([3], 2003) utilisent la notation  $d = \frac{1}{2} \cdot \chi^{(2)}$ .

<sup>15</sup> Cette somme s'entend au sens large :  $\omega = \sum_n (\pm\omega_n)$

rayonnement électromagnétique ; il ne faut pas craindre alors de parler de fusion ou de fission de photons ([13], 1991). Par exemple, la génération de l'harmonique  $N$  peut être décrite comme la fusion de  $N$  photons de pulsation fondamentale  $\omega$ , pour donner naissance à un photon de plus haute énergie, égale à  $N\omega$ , comme le suggère la Figure 10 dans le cas emblématique de la génération de second harmonique ( $N = 2$ ).

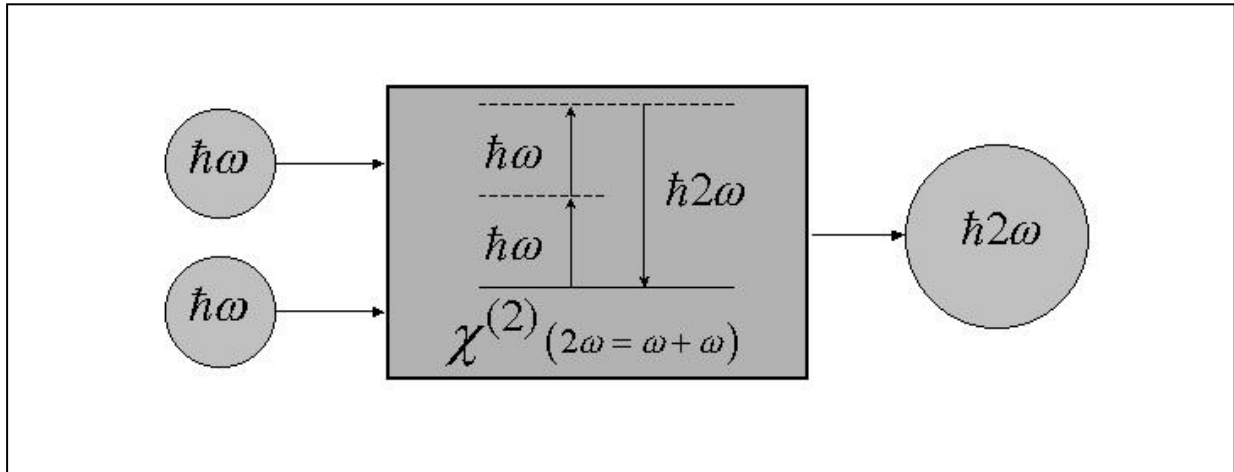


Figure 10 : diagramme photonique décrivant la génération de second harmonique ; les pointillés représentent des niveaux d'énergie virtuels.

## 2.2 Interactions paramétriques quadratiques

Même si ce travail est centré sur les interactions optiques non linéaires de troisième ordre, nous sommes amenés à considérer également des interactions quadratiques lorsqu'elles sont susceptibles de venir « parasiter » les processus cubiques visés.

L'unité de la susceptibilité électrique non linéaire quadratique  $\chi^{(2)}$  est le mètre par Volt [ $\text{m}\cdot\text{V}^{-1}$ ], soit l'inverse d'un champ électrique. La relation constitutive (30) et les valeurs de non-linéarités quadratiques couramment rencontrées –de l'ordre de quelques  $\text{pm}\cdot\text{V}^{-1}$ – donnent une idée de l'amplitude des champs électriques nécessaires pour avoir un effet non linéaire d'ordre 2 ayant l'ampleur d'un phénomène linéaire.

Nous choisissons de noter  $\omega_0$  la plus élevée des pulsations, cette convention étant adoptée pour l'ensemble du document ; en appelant  $\omega_I$  et  $\omega_{II}$  les deux autres pulsations intervenant dans un processus quadratique, l'équation de conservation de l'énergie s'écrit alors :

$$\hbar\omega_0 = \hbar\omega_I + \hbar\omega_{II} \quad (31).$$

$\chi^{(2)}$  est un tenseur polaire de rang 3 ; il possède donc 27 éléments  $\chi_{ijk}^{(2)}$ , indépendants dans le cas général. Compte tenu de l'équation (30), en développant les expressions des produits tensoriels, les composantes cartésiennes des vecteurs de polarisation non linéaire quadratique associés aux différentes pulsations impliquées s'écrivent :

$$\begin{cases} P_i^{(2)}(\omega_0) = \varepsilon_0 \cdot \sum_{j,k} (\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_0 = \omega_I + \omega_{II}) \cdot E_j(\omega_I) \cdot E_k(\omega_{II})) \\ P_i^{(2)}(\omega_I) = \varepsilon_0 \cdot \sum_{j,k} (\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_I = \omega_0 - \omega_{II}) \cdot E_j(\omega_0) \cdot E_k^*(\omega_{II})) \\ P_i^{(2)}(\omega_{II}) = \varepsilon_0 \cdot \sum_{j,k} (\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_{II} = \omega_0 - \omega_I) \cdot E_j(\omega_0) \cdot E_k^*(\omega_I)) \end{cases} \quad (32).$$

Les indices cartésiens  $i, j$  et  $k$  sont relatifs au repère optique  $(O, x, y, z)$  dans lequel le tenseur  $\chi^{(1)}$  est diagonal, et  $E^*(\omega)$  est le complexe conjugué de  $E(\omega)$ .

Lorsque les composantes spectrales concernées sont loin des bandes d'absorption du milieu de propagation, ce qui est le cas dans nos expériences, il est possible d'utiliser l'approximation de Kleinmann ([14], 1962) qui stipule que le tenseur  $\chi^{(2)}$  est symétrique vis-à-vis des 3 indices cartésiens ; le nombre d'éléments indépendants est alors abaissé à 10. Une réduction supplémentaire est apportée par la classe de symétrie d'orientation du milieu : le Tableau 2 donne les éléments indépendants du tenseur  $\chi^{(2)}$  pour les classes de symétrie d'orientation non centrosymétriques dans l'approximation de Kleinmann.

Système cristallin	Classe de symétrie d'orientation	Eléments non nuls et indépendants de $\chi^{(2)}$ en assumant la symétrie de Kleinmann
Cubique	$23, \bar{4}3m$	$xyz = xzy = yzx = yxz = zxy = zyx$
	3	$xxx = -xyy = -yyx = -yxy$ $xzx = xxz = zxx = yyz = yzy = zyy$ $yyy = -yxx = -xxy = -xyx$ $zzz$
Trigonal	32	$xxx = -xyy = -yyx = -yxy$
	$3m$	$xzx = xxz = zxx = yyz = yzy = zyy$ $yyy = -yxx = -xxy = -xyx$ $zzz$



Système cristallin	Classe de symétrie d'orientation	Eléments non nuls et indépendants de $\chi^{(2)}$ en assumant la symétrie de Kleinmann
Tétragonal	$4, 4mm$	$xzx = xxz = zxx = yzy = yyz = zyy$ $zzz$
	$\bar{4}$	$xyz = xzy = yxz = yzx = zxy = zyx$ $xzx = xxz = zxx = -yzy = -yyz = -zyy$
	$\bar{4}2m$	$xyz = xzy = yxz = yzx = zxy = zyx$
Hexagonal	$6, 6mm$	$xzx = xxz = zxx = yyz = yzy = zyy$ $zzz$
	$\bar{6}$	$xxx = -xyy = -yxy = -yyx$ $yyy = -yxx = -xyx = -xxy$
Orthorhombique	$\bar{6}2m$	$yyy = -yxx = -xxy = -xyx$
	$mm2$	$xzx = xxz = zxx$ $yyz = yzy = zyy$ $zzz$
Monoclinique	$222$	$xyz = xzy = yzx = yxz = zxy = zyx$
	$2$	$xyz = xzy = yxz = yzx = zxy = zyx$ $xxz = xzx = zxx$ $yyz = yzy = zyy$ $zzz$
Triclinique	$m$	$xxx$ $xyy = yxy = yyx$ $xzz = zxz = zzx$ $xxz = xzx = zxx$ $xyx = xyx = yxx$ $yyy$ $yzz = zyz = zzy$
	$1$	$xxx$ $xyy = yxy = yyx$ $xzz = zxz = zzx$ $xyz = xzy = yxz = yzx = zxy = zyx$ $xxz = xzx = zxx$ $xxz = xzx = zxx$ $xyx = xyx = yxx$ $yyy$ $yzz = zyz = zzy$ $yyz = yzy = zyy$ $zzz$

Tableau 2 : éléments non nuls du tenseur  $\chi^{(2)}$ , et égalités entre ces éléments ([4], 2003).

Parmi les effets paramétriques d'ordre 2, le plus connu est la génération de second harmonique (dont SHG est l'acronyme anglophone) qui a été le premier effet quadratique

observé<sup>16</sup> ; mais il convient de citer plus généralement la somme de fréquences qui est l'interaction générale de fusion de photons, la fluorescence paramétrique qui correspond à une fission spontanée, et la différence de fréquences qui correspond à une fission stimulée. La Figure 11 propose une façon de schématiser ces processus, les niveaux d'énergie représentés en pointillés étant virtuels puisque les interactions sont supposées hors résonance.

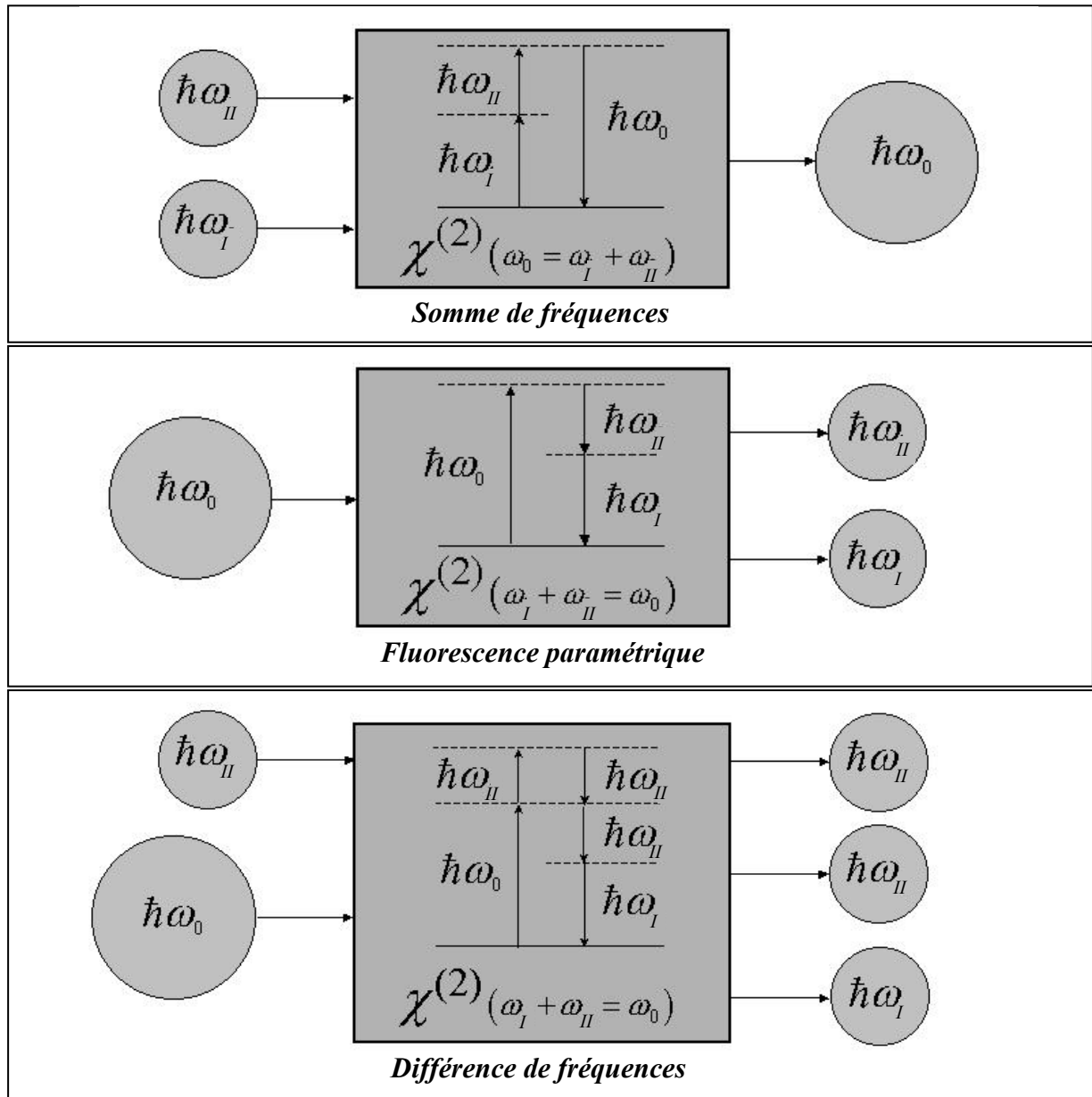


Figure 11 : schématisation des interactions optiques non linéaires quadratiques.

<sup>16</sup> En 1961, Franken observe une onde de longueur d'onde 347.1 nm, correspondant au second harmonique  $2\omega$ , à la sortie d'une lame de quartz éclairée par un faisceau laser de longueur d'onde 694.2 nm, qui correspond à la pulsation fondamentale  $\omega$  ([9], 1961).

### 2.3 Interactions paramétriques cubiques

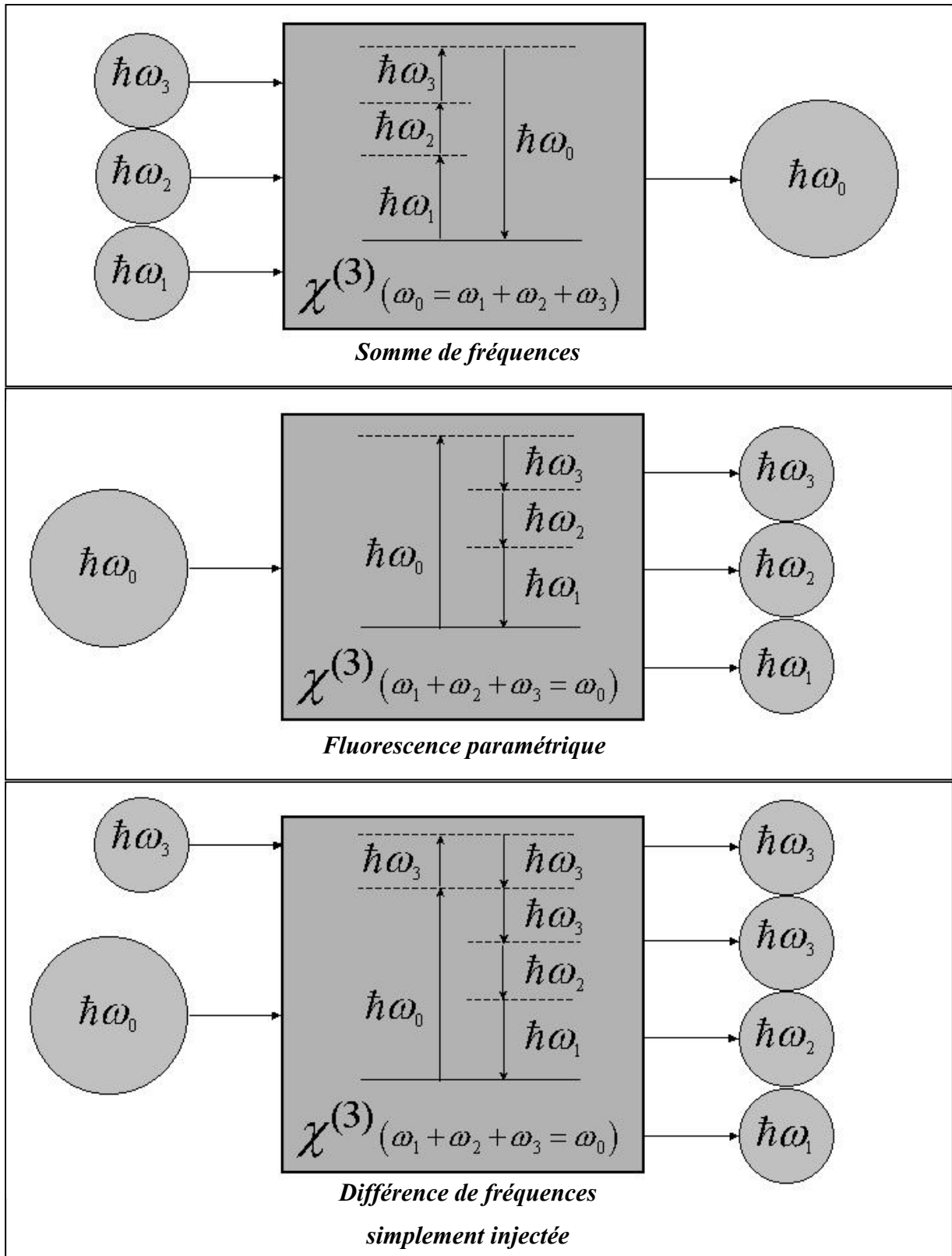
La susceptibilité électrique non linéaire cubique  $\chi^{(3)}$  a pour unité le  $\text{m}^2 \cdot \text{V}^{-2}$ . Pour fixer les idées, les valeurs typiques rencontrées pour les éléments de ce tenseur sont de l'ordre de  $10^{-18}$  à  $10^{-21} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-2}$  ; les champs nécessaires pour observer un effet paramétrique cubique doivent donc avoir une amplitude typique d'au moins  $10^6$  à  $10^7 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1}$ .

La pulsation  $\omega_0$  étant toujours la plus élevée, selon la convention définie au § 2.2 précédent, les trois autres pulsations intervenant dans une interaction cubique sont notées  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  et  $\omega_3$  dans cet ouvrage. Il faut alors distinguer deux situations différentes, dénommées *schéma A* et *schéma B*, et décrites ci-dessous.

Le *schéma A* correspond au cas où l'énergie d'un des quatre photons en interaction est égale à la somme de l'énergie des 3 autres, ce qui s'écrit :

$$\hbar\omega_0 = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 + \hbar\omega_3 \quad (33).$$

Ce schéma est apparenté à celui des interactions quadratiques : il existe alors la fusion de trois photons en un seul et la fission –spontanée ou induite– d'un photon en trois, comme cela est représenté sur la Figure 12.



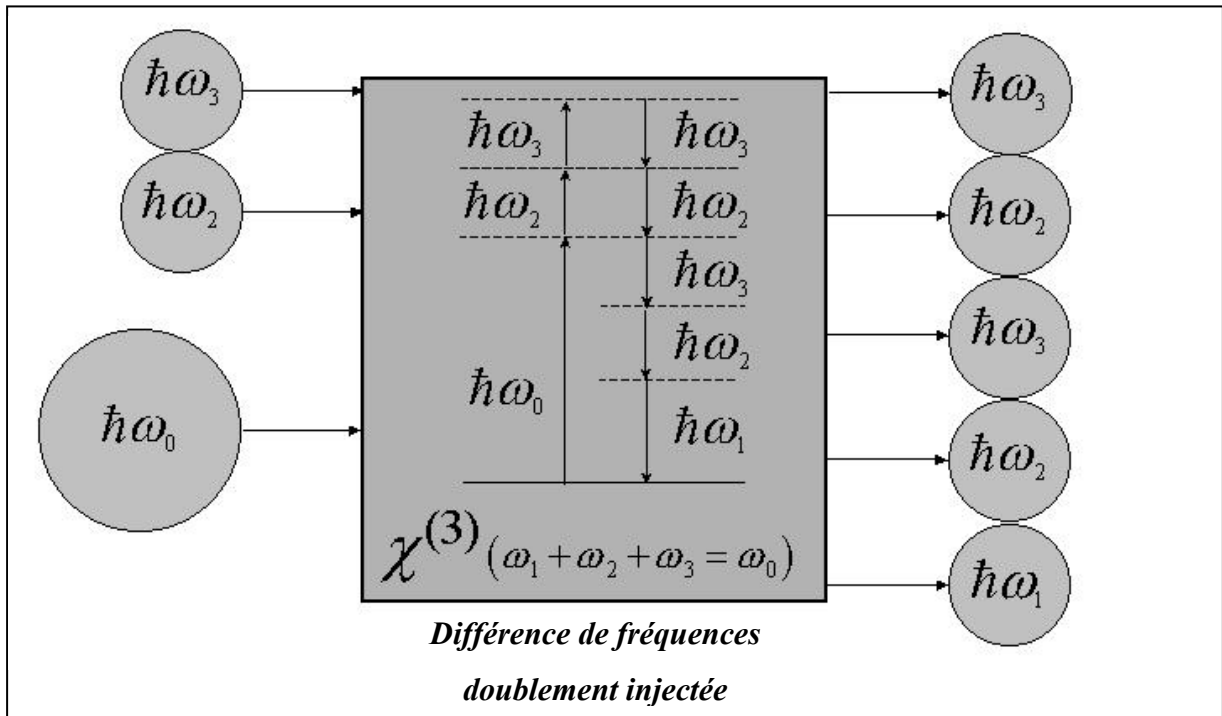


Figure 12 : représentation des interactions optiques non linéaires cubiques de schéma A.

Le schéma B correspond quant à lui à une loi de conservation d'énergie de type :

$$\hbar\omega_0 + \hbar\omega_1 = \hbar\omega_2 + \hbar\omega_3 \quad (34).$$

C'est la situation qui correspond entre autres à l'effet Kerr optique, au cas de l'absorption à deux photons et aux phénomènes de diffusion Raman ou Brillouin ([12], 1990). La Figure 13 donne la représentation générique des interactions de schéma B, dont l'appellation usuelle est le *mélange à 4 ondes*.

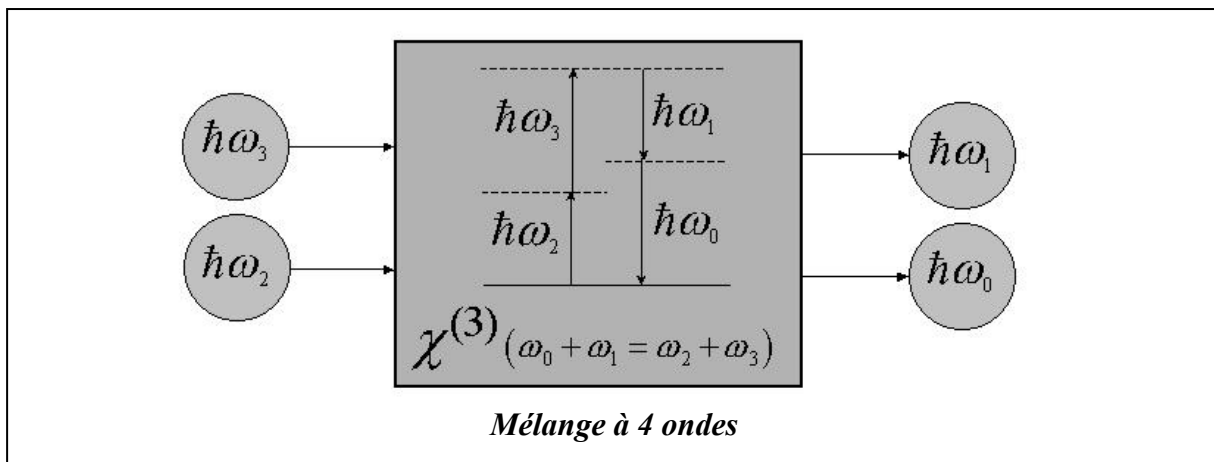


Figure 13 : représentation générique des interactions optiques non linéaires cubiques de schéma B.

Pour revenir à notre problématique, c'est bien évidemment le schéma A qui nous intéresse, puisque c'est le seul qui conduise à la génération de triplets de photons, par fission spontanée ou induite. Nous considérons également la génération de tierce harmonique, qui est le cas dégénéré en pulsation de la fusion de 3 photons, et qui présente également un intérêt potentiel en optique quantique.

La susceptibilité non linéaire cubique  $\chi^{(3)}$  est un tenseur polaire de rang 4. Compte tenu du système (30), nous pouvons écrire les expressions des composantes cartésiennes des vecteurs de polarisation non linéaire cubique aux différentes pulsations concernées. Dans le cas d'une interaction correspondant au schéma A, il vient :

$$\left\{ \begin{array}{l} P_i^{(3)}(\omega_0) = \varepsilon_0 \cdot \sum_{j,k,l} \left( \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3) \cdot E_j(\omega_1) \cdot E_k(\omega_2) \cdot E_l(\omega_3) \right) \\ P_i^{(3)}(\omega_1) = \varepsilon_0 \cdot \sum_{j,k,l} \left( \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_1 = \omega_0 - \omega_2 - \omega_3) \cdot E_j(\omega_0) \cdot E_k^*(\omega_2) \cdot E_l^*(\omega_3) \right) \\ P_i^{(3)}(\omega_2) = \varepsilon_0 \cdot \sum_{j,k,l} \left( \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_2 = \omega_0 - \omega_1 - \omega_3) \cdot E_j(\omega_0) \cdot E_k^*(\omega_1) \cdot E_l^*(\omega_3) \right) \\ P_i^{(3)}(\omega_3) = \varepsilon_0 \cdot \sum_{j,k,l} \left( \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_3 = \omega_0 - \omega_1 - \omega_2) \cdot E_j(\omega_0) \cdot E_k^*(\omega_1) \cdot E_l^*(\omega_2) \right) \end{array} \right. \quad (35).$$

Les indices cartésiens  $i, j, k$ , et  $l$  sont relatifs au repère optique  $(O, x, y, z)$ .

$\chi^{(3)}$  possède 81 éléments indépendants dans le cas général, mais l'approximation de Kleinmann et la symétrie d'orientation de la classe cristalline du milieu considéré permettent de réduire considérablement ce nombre, comme le montre le Tableau 3.

Système cristallin	Classe de symétrie d'orientation	Eléments non nuls et indépendants de $\chi^{(3)}$ en assumant la symétrie de Kleinmann
Cubique	432, $m3m$ , $m3$ , $23$ , $\bar{4}3m$	$xxxx = yyyy = zzzz$ $xxzz = xzxx = xzzx = xxyy = xyxy = xyyx$ $= yyzz = yzyz = yzzy = yyxx = yxyx = yxxy$ $= zzyy = zyzy = zyzz = zzxx = zxzx = zxxz$

Système cristallin	Classe de symétrie d'orientation	Eléments non nuls et indépendants de $\chi^{(3)}$ en assumant la symétrie de Kleinmann
Trigonal	$\bar{3}, \bar{3}$	$\begin{aligned} xxx &= yyy = xxy + xyx + xyx \\ xyx &= xzy = xzy = -xxx = -xxz = -xzx \\ &= yxz = yxz = yzx = yzx = yzy = yzy \\ &= -zxx = zxy = zyx = zyx \\ xxz &= xzx = xzx = yzz = yzy = yzy \\ &= zyz = zyz = zzy = zxx = zxx = zxx \\ xxy &= xyx = xyx = yxx = yxx = yxx \\ xyx &= xzy = xyx = xyx = xzx = xzx \\ &= -yyz = -yyz = -yyz = yxx = yxx = yxx \\ &= -zyy = zxy = zyx = zyx \\ zzz & \end{aligned}$
	$\bar{3}, 3m, \bar{3}m$	$\begin{aligned} xxx &= yyy = xxy + xyx + xyx \\ xxz &= xzx = xzx = yzz = yzy = yzy \\ &= zyz = zyz = zzy = zxx = zxx = zxx \\ xxy &= xyx = xyx = yxx = yxx = yxx \\ xyx &= xzy = xyx = xyx = xzx = xzx \\ &= -yyz = -yyz = -yyz = -zyy \\ &= yxx = yxx = yxx = zxy = zyx = zyx \\ zzz & \end{aligned}$
Tétragonal	$\bar{4}, \bar{4}, \frac{4}{m}$	$\begin{aligned} xxx &= yyy \\ xyx &= yxy = xyx = -xxy = -xxy = -xyx = -yxx \\ xxz &= xzx = xzx = yzz = yzy = yzy \\ &= zyz = zyz = zzy = zxx = zxx = zxx \\ xxy &= xyx = xyx = yxx = yxx = yxx \\ xyx &= xzy = xyx = xyx = xzx = xzx \\ zzz & \end{aligned}$
	$\bar{4}mm, 42m, 422, \frac{4}{m}mm$	$\begin{aligned} xxx &= yyy \\ xxz &= xzx = xzx = yzz = yzy = yzy \\ &= zyz = zyz = zzy = zxx = zxx = zxx \\ xxy &= xyx = xyx = yxx = yxx = yxx \\ xyx &= xzy = xyx = xyx = xzx = xzx \\ zzz & \end{aligned}$
Hexagonal	$\bar{6}, \bar{6}, \frac{6}{m}, 6mm, \bar{6}2m, 622, \frac{6}{m}mm$	$\begin{aligned} xxx &= yyy = xxy + xyx + xyx \\ xxz &= xzx = xzx = yxx = yzy = yzy \\ &= zyz = zyz = zzy = zxx = zxx = zxx \\ xxy &= xyx = xyx = yxx = yxx = yxx \\ xyx &= xzy = xyx = xyx = xzx = xzx \\ zzz & \end{aligned}$
Orthorhombique	$222, mm2, mmm$	$\begin{aligned} xxx & \\ xxz &= xzx = xzx = zxx = zxx = zxx \\ xxy &= xyx = xyx = yxx = yxx = yxx \\ yyy & \\ yzz &= yzy = yzy = zyx = zyx = zzy \\ zzz & \end{aligned}$
Monoclinique	$2, m, \frac{2}{m}$	$\begin{aligned} xxx &= xyx = yxx = yxx = yxx \\ xyx &= xzy = xzy = yxx = yxx = yxx \\ &= zyx = zyx = zyx = zyx = zzy = zzy \\ xxz &= xzx = xzx = zxx = zxx = zxx \\ xxy &= xyx = xyx = yxx = yxx = yxx \\ xxy &= xxy = xyx = yxx \\ yyy & \\ yzz &= yzy = yzy = zyx = zyx = zzy \\ zzz & \end{aligned}$

Système cristallin	Classe de symétrie d'orientation	Eléments non nuls et indépendants de $\chi^{(3)}$ en assumant la symétrie de Kleinmann
Triclinique	$\bar{1}, \bar{1}$	$xxxx$ $xyxy = yxyx = yxyx = yxyx$ $xzzz = zxzz = zzzx = zzzx$ $xyzz = xzyz = xzzy = yxzz = yzxx = yzzx$ $= zxyx = zxyz = zyxz = zyxx = zzyx = zzyx$ $xyyz = xyzy = xzyy = yxzy = yxzy = yxzy$ $= yzyx = yzxy = yzyx = zxyy = zyxy = zyxy$ $xxzz = xzxx = xzxx = zxxx = zxxx = zxxx$ $xxzx = xxzx = xzxx = zxxx$ $xyxy = xyxy = xyxy = yxyx = yxyx = yxyx$ $xxxy = xxxy = xyxx = yxxx$ $xyyz = xxyy = xyxx = xzxy = xzxy = yxxx$ $= yxxz = yzxx = zxyx = zxyx = zxyx$ $yxyy$ $yzzz = zyzz = zzyz = zzyz$ $yzyz = yzyz = yzyz = zyzy = zyzy = zzyy$ $yzyy = yzyy = yzyy = zyyy$ $zzzz$

Tableau 3 : éléments non nuls du tenseur  $\chi^{(3)}$ , et égalités entre ces éléments ([4], 2003).

### 3 Equations de propagation

Les équations de propagation relatives aux différentes ondes en interactions sont obtenues en résolvant les équations de Maxwell (5) pour chacune de ces ondes. Il est alors nécessaire d'établir au préalable les relations constitutives relatives à chaque composante spectrale impliquée.

#### 3.1 Couplage à 3 ondes : $\omega_0 \leftrightarrow \omega_I + \omega_{II}$

Compte tenu des relations (2), (3), (29) et (30), le vecteur déplacement électrique s'écrit :

$$\vec{D}(\omega_i) = \epsilon_0 \cdot \epsilon_r(\omega_i) \cdot \vec{E}(\omega_i) + \vec{P}^{(2)}(\omega_i) \quad (36),$$

avec  $i = 0, I$  ou  $II$ , les composantes cartésiennes de  $\vec{P}^{(2)}$  étant données par (32).

Tenant compte de ces relations, la résolution des équations de Maxwell, écrites pour chaque composante spectrale, conduisent aux différentes équations de propagation, soit :

$$\overline{rot} \left( \overline{rot} \left( \vec{E}(\omega_i) \right) \right) + \mu_0 \cdot \epsilon_0 \cdot \epsilon_r(\omega_i) \cdot \frac{\partial^2 \vec{E}(\omega_i)}{\partial t^2} = -\mu_0 \cdot \frac{\partial^2 \vec{P}^{(2)}(\omega_i)}{\partial t^2} \quad (37).$$



Cette équation se différentie de l'équation (6) donnée dans le cas du régime linéaire par la présence du terme source  $-\mu_0 \cdot \frac{\partial^2 \bar{P}^{(2)}(\omega_i)}{\partial t^2}$  dans le membre de droite.

L'intégration de chaque équation de propagation (37) permet d'obtenir la variation de l'amplitude complexe du champ électrique à la pulsation correspondante. Outre le modèle d'ondes planes, le champ d'approximation retenu ici stipule également que les vecteurs des ondes en interaction sont colinéaires, que l'absorption est négligée, de même que la diffraction, la dispersion des vitesses de groupe et la dispersion en longueur d'onde des éléments de  $\chi^{(2)}$ . Il vient alors le système suivant, disponible dans de nombreux ouvrages de références ([15], 1965) :

$$\begin{cases} \frac{\partial E(\omega_0)}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi}{n(\omega_0) \cdot \lambda_0 \cdot \cos^2(\gamma(\omega_0))} \cdot \chi_{eff}^{(2)} \cdot E(\omega_I) \cdot E(\omega_{II}) \cdot e^{-j \cdot \Delta k \cdot Z} \\ \frac{\partial E(\omega_I)}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi}{n(\omega_I) \cdot \lambda_I \cdot \cos^2(\gamma(\omega_I))} \cdot \chi_{eff}^{(2)} \cdot E(\omega_0) \cdot E^*(\omega_{II}) \cdot e^{+j \cdot \Delta k \cdot Z} \\ \frac{\partial E(\omega_{II})}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi}{n(\omega_{II}) \cdot \lambda_{II} \cdot \cos^2(\gamma(\omega_{II}))} \cdot \chi_{eff}^{(2)} \cdot E(\omega_0) \cdot E^*(\omega_I) \cdot e^{+j \cdot \Delta k \cdot Z} \end{cases} \quad (38).$$

$n(\omega_i)$  est l'indice de réfraction correspondant à  $E(\omega_i)$ , qui est l'amplitude de la composante spectrale de pulsation  $\omega_i$  du champ électrique,  $\lambda_i = \frac{2\pi \cdot c}{\omega_i}$  est la longueur d'onde associée et  $\gamma(\omega)$  l'angle défini au § 5.3.2 du Chapitre I.

Le système (38) fait intervenir deux nouveaux paramètres très importants :  $\chi_{eff}^{(2)}$  et  $\Delta k$ .

- Le *coefficient effectif quadratique*,  $\chi_{eff}^{(2)}$ , dépend non seulement du tenseur  $\chi^{(2)}$ , mais aussi des directions de polarisation des champs en interaction. Si  $\vec{e}(\omega_i)$  est le vecteur unitaire définissant la direction du champ  $\vec{E}(\omega_i)$ , le coefficient effectif est donné par ([4], 2003) :

$$\chi_{eff}^{(2)} = \vec{e}(\omega_0) \cdot \left( \chi^{(2)}(\omega_0 = \omega_I + \omega_{II}) : \left\{ \vec{e}(\omega_I) \otimes \vec{e}(\omega_{II}) \right\} \right) \quad (39).$$

- Le désaccord de phase est défini par :  $\Delta k = k_0 - k_1 - k_2$ , où  $k_i$  est le nombre d'onde associé à  $\vec{E}(\omega_i)$ . D'un point de vue corpusculaire,  $\Delta k$  correspond à la différence des impulsions des photons en interaction ; au niveau ondulatoire,  $\Delta k \cdot Z$  est le déphasage entre la polarisation non linéaire et le champ qu'elle rayonne.

### 3.2 Couplage à 4 ondes de schéma A : $\omega_0 \leftrightarrow \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$

Une procédure analogue à celle décrite au paragraphe 3.1 précédent permet d'aboutir aux équations de propagation des quatre ondes en interaction, soit :

$$\overrightarrow{\text{rot}}\left(\overrightarrow{\text{rot}}\left(\vec{E}(\omega_i)\right)\right) + \mu_0 \cdot \varepsilon_0 \cdot \varepsilon_r(\omega_i) \cdot \frac{\partial^2 \vec{E}(\omega_i)}{\partial t^2} = -\mu_0 \cdot \frac{\partial^2 \vec{P}^{(3)}(\omega_i)}{\partial t^2} \quad (40),$$

où  $i = 0, 1, 2$ , ou  $3$ , les composantes cartésiennes de  $\vec{P}^{(3)}$  étant données par (35).

En négligeant la dispersion en longueur d'onde des éléments de  $\chi^{(3)}$ , l'équation (40) conduit alors au système suivant :

$$\begin{cases} \frac{\partial E(\omega_0)}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi}{n(\omega_0) \cdot \lambda_0 \cdot \cos^2(\gamma(\omega_0))} \cdot \chi_{\text{eff}}^{(3)} \cdot E(\omega_1) \cdot E(\omega_2) \cdot E(\omega_3) \cdot e^{-j \cdot \Delta k \cdot Z} \\ \frac{\partial E(\omega_1)}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi}{n(\omega_1) \cdot \lambda_1 \cdot \cos^2(\gamma(\omega_1))} \cdot \chi_{\text{eff}}^{(3)} \cdot E(\omega_0) \cdot E^*(\omega_2) \cdot E^*(\omega_3) \cdot e^{+j \cdot \Delta k \cdot Z} \\ \frac{\partial E(\omega_2)}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi}{n(\omega_2) \cdot \lambda_2 \cdot \cos^2(\gamma(\omega_2))} \cdot \chi_{\text{eff}}^{(3)} \cdot E(\omega_0) \cdot E^*(\omega_1) \cdot E^*(\omega_3) \cdot e^{+j \cdot \Delta k \cdot Z} \\ \frac{\partial E(\omega_3)}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi}{n(\omega_3) \cdot \lambda_3 \cdot \cos^2(\gamma(\omega_3))} \cdot \chi_{\text{eff}}^{(3)} \cdot E(\omega_0) \cdot E^*(\omega_1) \cdot E^*(\omega_2) \cdot e^{+j \cdot \Delta k \cdot Z} \end{cases} \quad (41).$$

Le coefficient effectif cubique,  $\chi_{\text{eff}}^{(3)}$ , s'écrit :

$$\chi_{\text{eff}}^{(3)} = \vec{e}(\omega_0) \cdot \left( \chi^{(3)}(\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3) \cdot \left\{ \vec{e}(\omega_1) \otimes \vec{e}(\omega_2) \otimes \vec{e}(\omega_3) \right\} \right) \quad (42),$$

et le désaccord de phase a pour expression :  $\Delta k = k_0 - k_1 - k_2 - k_3$ .

Quel que soit l'ordre de non-linéarité impliqué, le couplage non linéaire est donc essentiellement gouverné par deux paramètres : le désaccord de phase, qui ne dépend que des propriétés optiques linéaires *via* les indices de réfraction, et le coefficient effectif qui est

fonction des propriétés optiques tant non linéaires que linéaires par le biais des tenseurs de susceptibilité et des directions de polarisation des champs.

## 4 Accord de phase

Dans le cas général, l'établissement d'une formule analytique pour décrire l'intensité lumineuse générée par un processus paramétrique est complexe, et fait notamment intervenir des fonctions elliptiques de Jacobi. Lorsque le rendement de conversion de fréquences est suffisamment faible pour que les faisceaux incidents ne soient pas réellement affectés par l'interaction, l'approximation de la pompe non dépeuplée peut alors être utilisée et les calculs sont plus simples ; l'éclairement généré par une somme de fréquences quadratique  $\omega_0 = \omega_I + \omega_{II}$  s'obtient ainsi en résolvant le système suivant, issu de (38) :

$$\begin{cases} \frac{\partial E(\omega_I)}{\partial Z} = \frac{\partial E(\omega_{II})}{\partial Z} = 0 \\ \frac{\partial E(\omega_0)}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi}{n(\omega_0) \cdot \lambda_0 \cdot \cos^2(\gamma(\omega_0))} \cdot \chi_{eff}^{(2)} \cdot E(\omega_I, Z=0) \cdot E(\omega_{II}, Z=0) \cdot e^{-j \cdot \Delta k \cdot Z} \end{cases} \quad (43).$$

En supposant que  $E(\omega_0, Z=0) = 0$ , l'intégration se fait aisément, pour donner :

$$E(\omega_0, Z) = \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(2)}}{n(\omega_0) \cdot \lambda_0 \cdot \cos^2(\gamma(\omega_0))} \cdot E(\omega_I, Z=0) \cdot E(\omega_{II}, Z=0) \cdot \frac{e^{-j \cdot \Delta k \cdot Z} - 1}{-\Delta k} \quad (44),$$

ce qui s'écrit également :

$$E(\omega_0, Z) = \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(2)}}{n(\omega_0) \cdot \lambda_0 \cdot \cos^2(\gamma(\omega_0))} \cdot E(\omega_I, Z=0) \cdot E(\omega_{II}, Z=0) \cdot \frac{2 \cdot j \cdot \sin\left(\frac{\Delta k \cdot Z}{2}\right)}{\Delta k} \cdot e^{-j \cdot \frac{\Delta k \cdot Z}{2}} \quad (45).$$

En utilisant l'expression (26), nous obtenons finalement l'expression relative aux éclairagements :

$$I(\omega_0, Z) = \frac{2 \cdot \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \cdot \left( \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(2)} \cdot Z}{\lambda_0 \cdot \cos^2(\gamma(\omega_0))} \right)^2 \cdot \left( \frac{\sin\left(\frac{\Delta k \cdot Z}{2}\right)}{\frac{\Delta k \cdot Z}{2}} \right)^2}{n(\omega_0) \cdot n(\omega_I) \cdot n(\omega_{II})} \cdot I(\omega_I, Z=0) \cdot I(\omega_{II}, Z=0) \quad (46).$$

En suivant la même démarche, l'éclairement généré par une somme de fréquences cubique  $\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$  s'écrit :

$$I(\omega_0, Z) = \frac{4 \cdot \frac{\mu_0}{\epsilon_0} \cdot \left( \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)} \cdot Z}{\lambda_0 \cdot \cos^2(\gamma(\omega_0))} \right)^2 \cdot \left( \frac{\sin\left(\frac{\Delta k \cdot Z}{2}\right)}{\frac{\Delta k \cdot Z}{2}} \right)^2}{n(\omega_0) \cdot n(\omega_1) \cdot n(\omega_2) \cdot n(\omega_3)} \cdot I(\omega_1, Z=0) \cdot I(\omega_2, Z=0) \cdot I(\omega_3, Z=0) \quad (47).$$

Les éclaircements incidents  $I(\omega_i, Z=0)$  étant donnés, c'est alors le paramètre  $\Delta k$  qui pilote la dépendance longitudinale de la puissance générée. Les relations (46) et (47) montrent que si le désaccord de phase n'est pas nul, l'éclairement généré est une fonction oscillante de  $Z$  : l'onde à la fréquence  $\omega_0$  est alternativement construite puis détruite avec une périodicité spatiale égale à :

$$2l_c = \left| \frac{2\pi}{\Delta k} \right| \quad (48).$$

$l_c$  est appelée la *longueur de cohérence*.

L'interaction est alors qualifiée de « hors accord de phase », et ne permet pas d'atteindre des puissances générées conséquentes. La Figure 14 donne l'éclairement à la pulsation  $\omega_0$  à la fois pour la valeur nulle et pour une valeur non nulle du désaccord de phase ; nous voyons ici tout l'intérêt d'avoir une interaction qui vérifie la condition d'accord de phase,  $\Delta k = 0$  : le rendement associé est alors quadratique en  $Z$ , et l'onde harmonique est construite tout au long de la propagation dans le milieu non linéaire.

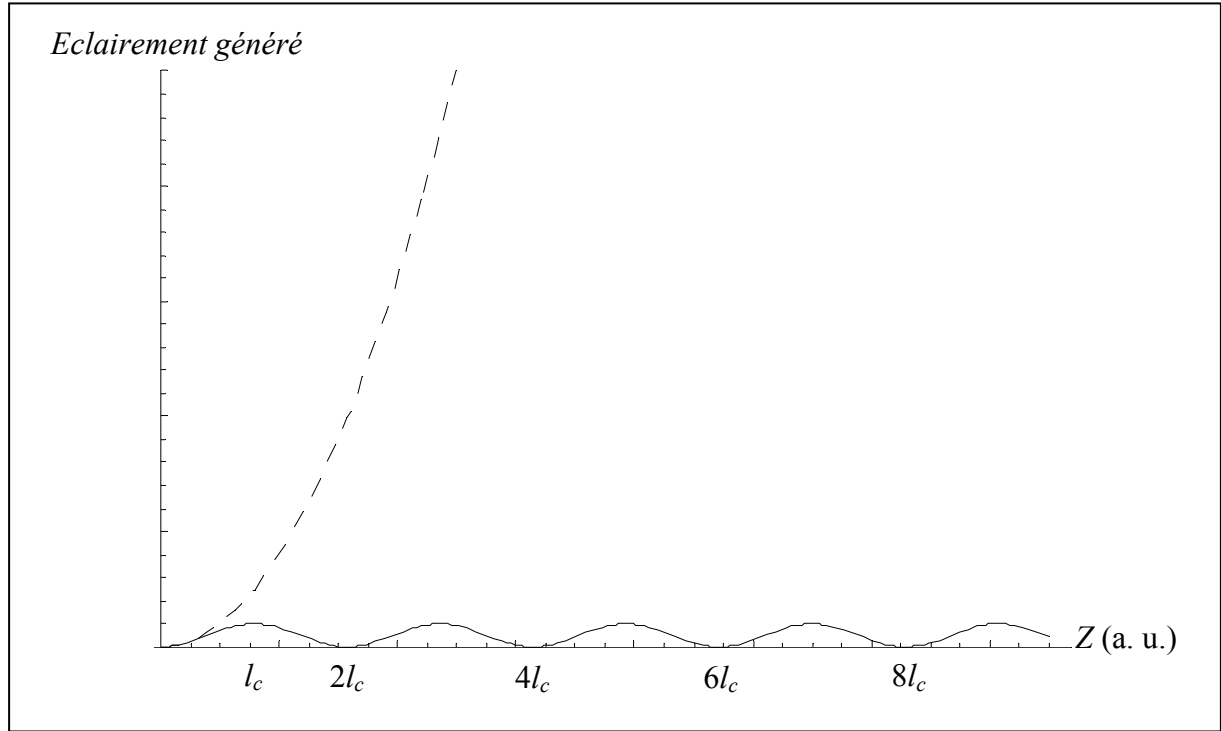


Figure 14 : éclairement généré par une interaction paramétrique quadratique ou cubique de somme de fréquences en fonction de la longueur d'interaction, pour un désaccord de phase nul (en pointillés) et non nul (en trait plein).

La condition d'accord de phase est une condition nécessaire à la maximisation de l'efficacité d'une interaction non linéaire, quel qu'en soit l'ordre, mais elle s'avère particulièrement délicate à vérifier dans la pratique. En effet, la conservation de l'énergie impose déjà une relation entre les pulsations :

$$\Delta\xi = \hbar\omega_0 - \sum_{i \neq 0} (\hbar\omega_i) = 0 \Rightarrow \omega_0 - \sum_{i \neq 0} (\omega_i) = 0 \quad (49).$$

La condition d'accord de phase, qui correspond d'un point de vue corpusculaire à la conservation des impulsions des photons en interaction<sup>17</sup>, est une seconde relation, qui lie pulsations et indices :

$$\Delta p = \hbar k_0 - \sum_{i \neq 0} (\hbar k_i) = 0 \Rightarrow n(\omega_0) \cdot \omega_0 - \sum_{i \neq 0} (n(\omega_i) \cdot \omega_i) = 0 \quad (50).$$

Compte tenu de la dispersion évoquée au § 4.2.1 du Chapitre I, il est impossible de vérifier simultanément ces deux équations dans les milieux isotropes. Pour compenser cette

<sup>17</sup> La condition d'accord de phase peut en effet s'écrire en terme de nombre d'onde,  $k$ , ou bien en terme d'impulsion,  $p$ .

dispersion, qui est généralement normale et vérifie donc  $n(\omega_i) > n(\omega_j)$  lorsque  $\omega_i > \omega_j$ , l'astuce la plus courante consiste à utiliser des matériaux anisotropes, pour lesquels l'indice de réfraction à la plus élevée des pulsations,  $n(\omega_0)$ , est choisi relatif à la nappe interne de la surface des indices,  $n^{(-)}$ , alors qu'au moins un des autres indices est pris sur la nappe externe,  $n^{(+)}$ .

Pour les interactions quadratiques, il y a 3 combinaisons possibles des indices de réfraction pour lesquelles les relations (49) et (50) peuvent être vérifiées simultanément :

$$\begin{cases} n^{(-)}(\omega_0) \cdot \omega_0 - n^{(+)}(\omega_I) \cdot \omega_I - n^{(+)}(\omega_{II}) \cdot \omega_{II} = 0 \\ n^{(-)}(\omega_0) \cdot \omega_0 - n^{(+)}(\omega_I) \cdot \omega_I - n^{(-)}(\omega_{II}) \cdot \omega_{II} = 0 \\ n^{(-)}(\omega_0) \cdot \omega_0 - n^{(-)}(\omega_I) \cdot \omega_I - n^{(+)}(\omega_{II}) \cdot \omega_{II} = 0 \end{cases} \quad (51).$$

Le nombre de combinaisons possibles permettant de vérifier les relations de conservations d'énergie et d'impulsion s'étend à 7 dans le cas des interactions cubiques ([16], 2002) :

$$\begin{cases} n^{(-)}(\omega_0) \cdot \omega_0 - n^{(+)}(\omega_1) \cdot \omega_1 - n^{(+)}(\omega_2) \cdot \omega_2 - n^{(+)}(\omega_3) \cdot \omega_3 = 0 \\ n^{(-)}(\omega_0) \cdot \omega_0 - n^{(+)}(\omega_1) \cdot \omega_1 - n^{(+)}(\omega_2) \cdot \omega_2 - n^{(-)}(\omega_3) \cdot \omega_3 = 0 \\ n^{(-)}(\omega_0) \cdot \omega_0 - n^{(+)}(\omega_1) \cdot \omega_1 - n^{(-)}(\omega_2) \cdot \omega_2 - n^{(+)}(\omega_3) \cdot \omega_3 = 0 \\ n^{(-)}(\omega_0) \cdot \omega_0 - n^{(-)}(\omega_1) \cdot \omega_1 - n^{(+)}(\omega_2) \cdot \omega_2 - n^{(+)}(\omega_3) \cdot \omega_3 = 0 \\ n^{(-)}(\omega_0) \cdot \omega_0 - n^{(+)}(\omega_1) \cdot \omega_1 - n^{(-)}(\omega_2) \cdot \omega_2 - n^{(-)}(\omega_3) \cdot \omega_3 = 0 \\ n^{(-)}(\omega_0) \cdot \omega_0 - n^{(-)}(\omega_1) \cdot \omega_1 - n^{(+)}(\omega_2) \cdot \omega_2 - n^{(-)}(\omega_3) \cdot \omega_3 = 0 \\ n^{(-)}(\omega_0) \cdot \omega_0 - n^{(-)}(\omega_1) \cdot \omega_1 - n^{(-)}(\omega_2) \cdot \omega_2 - n^{(+)}(\omega_3) \cdot \omega_3 = 0 \end{cases} \quad (52).$$

La condition d'accord de phase impose donc une configuration de polarisation spécifique pour les ondes en interaction : les modes propres de polarisation associés à chaque indice,  $n^{(+)}$  ou  $n^{(-)}$ , sont déterminés à l'aide de la méthode donnée au § 5 du Chapitre I. Les indices de réfraction des milieux anisotropes étant fonction de la direction de propagation, comme cela est détaillé au § 4.3 du Chapitre I, la condition d'accord de phase pour un ensemble de pulsations donné ne sera vérifiée que dans certaines directions particulières, appelées *directions d'accord de phase*.

Pour une symétrie des tenseurs de susceptibilités non linéaires quadratique et cubique donnée<sup>18</sup>, la direction de propagation et la configuration de polarisation des ondes en interaction imposent ainsi la valeur du coefficient effectif. Celui-ci peut alors être nul, même si la condition d'accord de phase est vérifiée. La détermination de la direction d'accord de phase pour laquelle le coefficient effectif est maximal est donc un enjeu majeur pour la réalisation d'interactions optiques non linéaires efficaces.

## 5 Notion de quasi-accord de phase

Lorsqu'il est impossible de compenser la dispersion des indices de réfraction par la biréfringence comme décrit au § 4 précédent, il existe une solution alternative qui consiste à utiliser un matériau dont le signe de la non-linéarité est périodiquement inversé, avec une demi-période égale à la longueur de cohérence  $l_c$  définie par la relation (48). Ce procédé équivaut à remettre en phase la polarisation induite et le champ qu'elle rayonne au bout de chaque longueur de cohérence, de manière à être toujours en situation constructive vis-à-vis de l'onde générée ; l'éclairement généré est alors nettement amélioré par rapport à la situation hors accord de phase, comme le montre la Figure 15, sans toutefois égaler le cas idéal de l'accord de phase ([4], 2003).

---

<sup>18</sup> Voir Tableau 2 et Tableau 3.

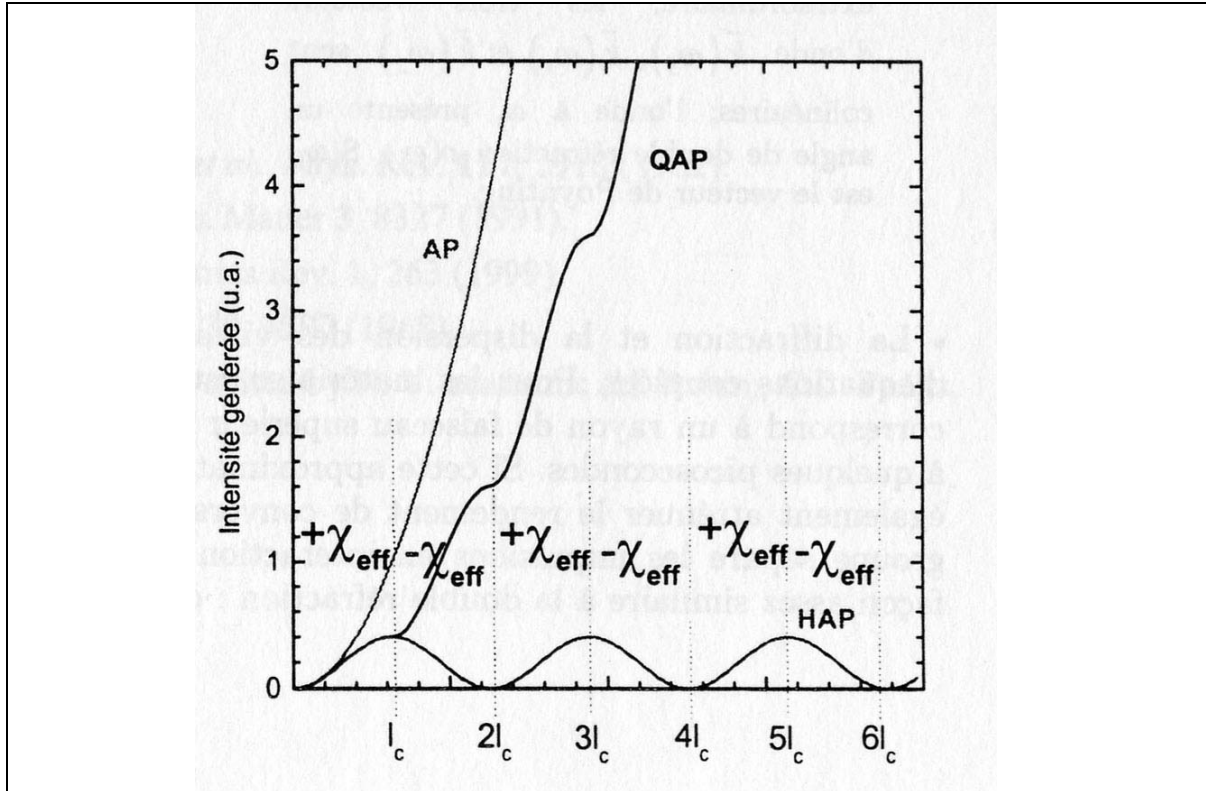


Figure 15 : dépendance longitudinale de l'éclairement généré par une interaction paramétrique quadratique en fonction de la longueur d'interaction  $Z$  pour une situation en accord de phase (AP), hors accord de phase (HAP), et en quasi-accord de phase (QAP) ;  $\chi_{\text{eff}}$  correspond au coefficient non linéaire effectif de second ordre.

Cette technique a été envisagée dès 1962 ([10], 1962) mais compte tenu des difficultés technologiques liées à l'élaboration des matériaux, elle s'est surtout développée depuis une dizaine d'année ([17], 1992) ; en effet, il a fallu attendre la conception des cristaux polaires à domaines ferroélectriques alternés, dits *périodiquement polés* (pp), comme ppLiNbO<sub>3</sub> (ppLN), ppLiTaO<sub>3</sub> (ppLT) et ppKTiOPO<sub>4</sub> (ppKTP) ([18], 1995) ([19], 1997) ([20], 1999) ([21], 2004). Le renversement alterné des domaines correspond alors à un renversement de l'axe polaire ( $Oz$ ) des cristaux, obtenu pendant ou après leur cristallogénèse ; c'est donc un basculement périodique de la structure cristalline qui est réalisé. Ainsi, d'un domaine à l'autre, c'est-à-dire de  $+(Oz)$  à  $-(Oz)$ , il y a changement de signe de tous les coefficients faisant intervenir un nombre impair de fois l'indice cartésien relatif à l'axe polaire, soit :  $\chi_{zjk}^{(2)}$ ,  $\chi_{izk}^{(2)}$ ,  $\chi_{ijz}^{(2)}$  et  $\chi_{zzz}^{(2)}$ , avec  $i, j, k = x$  ou  $y$ . En effet, l'élément  $\chi_{ijk}^{(2)}$  du tenseur de susceptibilité électrique non linéaire quadratique macroscopique est donné par la somme, sur toutes les entités polarisables microscopiques, du produit des projections des moments dipolaires correspondants sur les axes ( $Oi$ ), ( $Oj$ ), et ( $Ok$ ) ([22], 1973). C'est classiquement  $\chi_{zzz}^{(2)}$  qui est



utilisé dans les cristaux cités précédemment, car c'est le coefficient de plus forte amplitude ([23], 1991) ; l'interaction paramétrique quadratique correspondante implique alors trois ondes polarisées selon l'axe polaire ( $Oz$ ).

Pour la problématique qui nous intéresse ici, il est important de noter que le renversement de l'axe ( $Oz$ ) n'entraîne pas de changement de signe de  $\chi_{zzzz}^{(3)}$  puisqu'il implique un nombre pair de fois l'indice  $z$ . Il n'est donc pas envisageable de réaliser une interaction optique paramétrique cubique en quasi-accord de phase avec  $\chi_{zzzz}^{(3)}$  comme coefficient effectif. C'est bien dommage, car il est probable que ce coefficient soit un ordre de grandeur supérieur aux autres coefficients du tenseur  $\chi^{(3)}$ , comme c'est le cas pour  $\chi^{(2)}$ . Il serait toutefois possible de réaliser un couplage paramétrique cubique en quasi-accord de phase dans des matériaux comme ppLN ou ppLT, car ceux-ci possèdent des éléments de type  $\chi_{zjkl}^{(3)}$ ,  $\chi_{izkl}^{(3)}$ ,  $\chi_{ijzk}^{(3)}$  et  $\chi_{ijkz}^{(3)}$ , avec  $i, j, k, l = x$  ou  $y$ , d'après le Tableau 3.

Le principal avantage du quasi-accord de phase est donc qu'il offre la possibilité d'obtenir un rendement de conversion de fréquences important en sollicitant le plus fort élément du tenseur de susceptibilité. D'autre part, le quasi-accord de phase peut être réalisé sur toute la plage de transparence du matériau, en ajustant simplement le pas d'inversion en fonction des longueurs d'onde incriminées. Enfin, les interactions peuvent être conduites selon des directions pour lesquelles l'angle de double réfraction est nul. Cependant, la technique souffre de limitations technologiques fortes qui restreignent encore son champ d'application. Ainsi, l'inversion des matériaux les plus prometteurs, comme ppKTP ou ppLN, ne peut se faire que sur des épaisseurs maximales de 2 à 3 millimètres, ce qui limite considérablement l'énergie qu'il est possible d'engouffrer dans ces structures. De plus, l'accordabilité reste problématique, puisqu'il faut pouvoir faire varier le pas d'inversion ; comme le montre la Figure 16, différentes possibilités ont été proposées : plusieurs réseaux présentent l'inconvénient d'une accordabilité discontinue, un réseau en éventail crée un élargissement spectral du faisceau généré, et la géométrie cylindrique nécessite une focalisation qui ne convient que pour les faibles énergies.

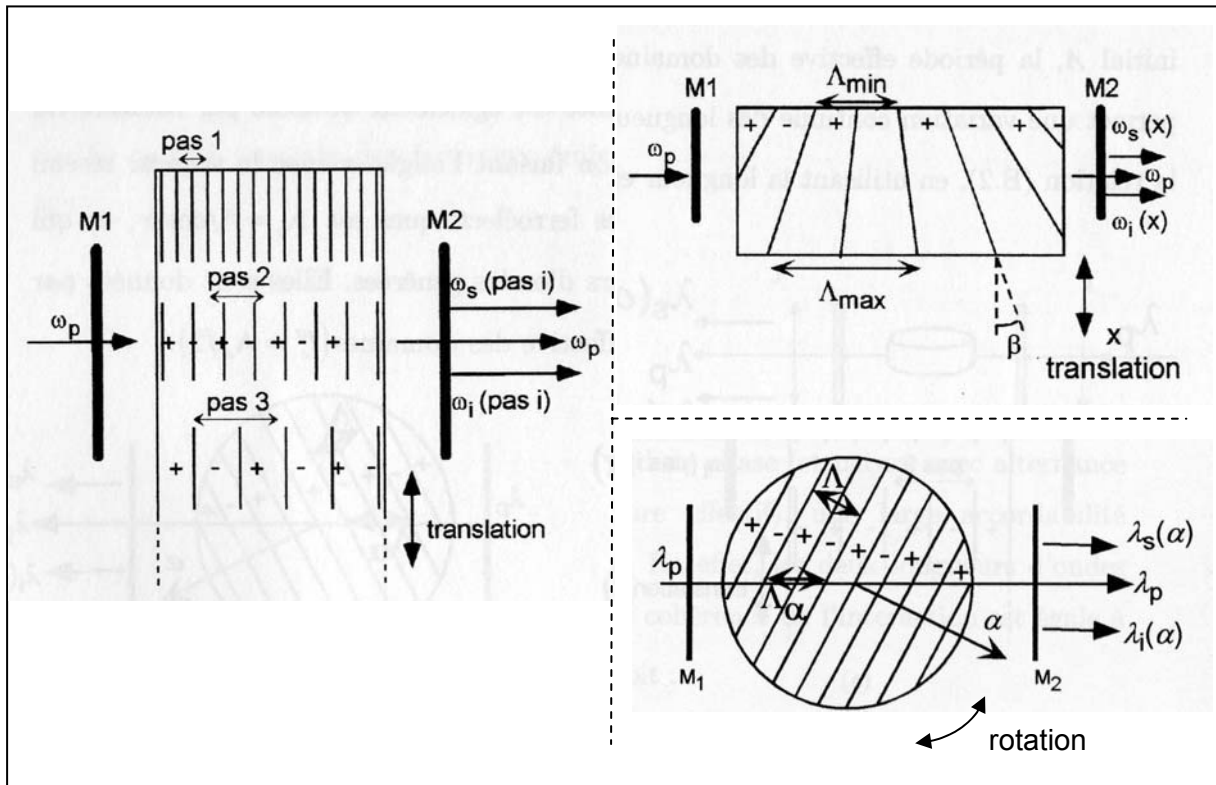


Figure 16 : différents principes d'accordabilité en quasi-accord de phase.

Le chapitre IV traite d'une utilisation originale de cette technique, non plus pour exalter les propriétés de second ordre, mais au contraire pour les minimiser.

## 6 Compétition entre les effets quadratique et cubique

Dans ce paragraphe, nous souhaitons aborder un aspect original des effets non linéaires : la compétition qui peut se produire entre différents ordres de la non-linéarité. C'est une vision qui est rarement développée, mais qui s'avère d'une importance capitale dès lors que notre intérêt se porte sur la seule non-linéarité d'ordre 3 dans des milieux non centrosymétriques ([24], 1999) ([25], 2002).

### 6.1 Principe

Du fait de la faible amplitude de  $\chi^{(3)}$  devant celle de  $\chi^{(2)}$ , une cascade d'interactions quadratiques est à même de venir concurrencer un processus cubique, en consommant et en générant les mêmes photons que celle-ci. Pour illustrer le propos, prenons l'exemple d'une différence de fréquences cubique de type :  $\omega_0 - \omega_1 - \omega_2 \rightarrow \omega_3$ . Une des cascades susceptibles de se produire en parallèle de ce processus cubique est par exemple l'association des deux

différences de fréquences quadratiques suivantes :  $\omega_0 - \omega_1 \rightarrow \Omega$  (I) et  $\Omega - \omega_2 \rightarrow \omega_3$  (II). La cascade fait intervenir un photon intermédiaire à la pulsation  $\Omega$ , qui est produit par le premier étage de la cascade et consommé par le second, comme le montre la Figure 17. Les calculs développés dans les paragraphes suivants sont destinés à établir les contributions respectives des processus cubique et quadratiques vis-à-vis de la génération à la pulsation  $\omega_3$ .

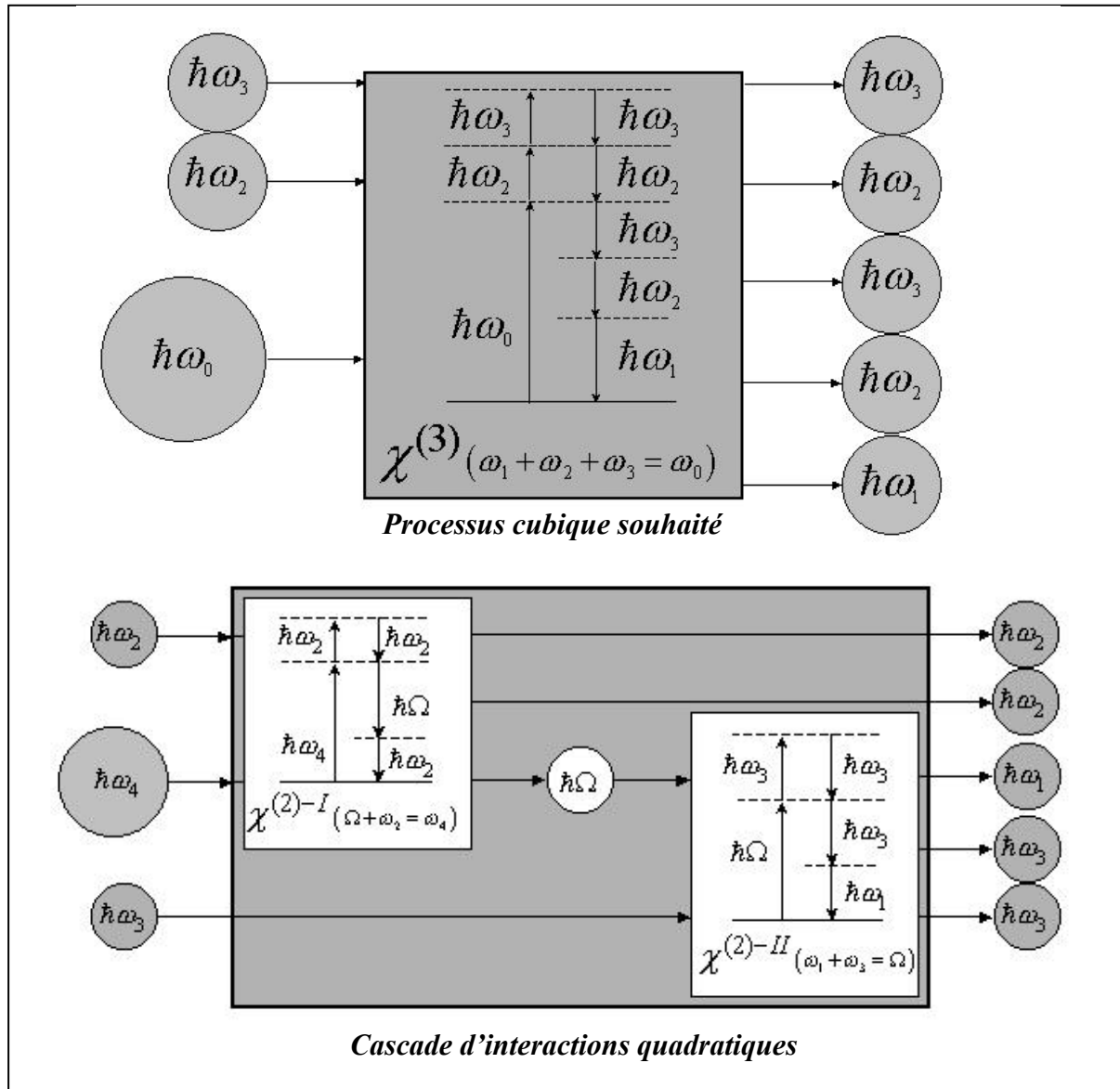


Figure 17 : compétition entre l'interaction cubique et une cascade d'interactions quadratiques dans un milieu non centrosymétrique.

## 6.2 Equations couplées

Cet exemple simple nous permet de détailler la modélisation de cette compétition. Les désaccords de phase associés respectivement à l'interaction cubique et à chaque étage de la cascade sont :

$$\begin{cases} \Delta k^{cub} = k_0 - k_1 - k_2 - k_3 \\ \Delta k^{quad-I} = k_0 - k_1 - k_\Omega \\ \Delta k^{quad-II} = k_\Omega - k_2 - k_3 \end{cases} \quad (53).$$

Remarquons dès à présent que si l'interaction cubique est en accord de phase, soit  $\Delta k^{cub} = 0$ , l'ensemble de la cascade l'est également : en effet, le système (53) montre que  $\Delta k^{quad-I} + \Delta k^{quad-II} = \Delta k^{cub}$ , et ce même si chacun des processus quadratiques est hors accord de phase, c'est à dire si  $\Delta k^{quad-I} \neq 0$  et  $\Delta k^{quad-II} \neq 0$ . Le cas traité ici correspond à un accord de phase pour l'interaction cubique, l'objectif étant d'obtenir une conversion de fréquences efficace. Les coefficients effectifs associés à chaque interaction élémentaire sont :  $\chi_{eff}^{(3)}$ ,  $\chi_{eff}^{(2)-I}$  et  $\chi_{eff}^{(2)-II}$ .

En se plaçant dans le cadre de l'approximation de la pompe non dépeuplée, qui stipule un rendement d'interaction faible, les équations de propagation prenant en compte les deux ordres de non-linéarité s'écrivent :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial E(\omega_0)}{\partial Z} = \frac{\partial E(\omega_1)}{\partial Z} = \frac{\partial E(\omega_2)}{\partial Z} = 0 \\ \frac{\partial E(\omega_3)}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi}{n(\omega_3) \cdot \lambda_3 \cdot \cos^2(\gamma(\omega_3))} \cdot \chi_{eff}^{(3)} \cdot E(\omega_0) \cdot E^*(\omega_1) \cdot E^*(\omega_2) \cdot e^{+j \cdot \Delta k^{cub} \cdot Z} \\ \quad + j \cdot \frac{\pi}{n(\omega_3) \cdot \lambda_3 \cdot \cos^2(\gamma(\omega_3))} \cdot \chi_{eff}^{(2)-II} \cdot E(\Omega) \cdot E^*(\omega_2) \cdot e^{-j \cdot \Delta k^{quad-II} \cdot Z} \\ \frac{\partial E(\Omega)}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi}{n(\Omega) \cdot \lambda_\Omega \cdot \cos^2(\gamma(\Omega))} \cdot \chi_{eff}^{(2)-I} \cdot E(\omega_0) \cdot E^*(\omega_1) \cdot e^{-j \cdot \Delta k^{quad-I} \cdot Z} \\ \quad + j \cdot \frac{\pi}{n(\Omega) \cdot \lambda_\Omega \cdot \cos^2(\gamma(\Omega))} \cdot \chi_{eff}^{(2)-II} \cdot E(\omega_2) \cdot E(\omega_3) \cdot e^{+j \cdot \Delta k^{quad-II} \cdot Z} \end{array} \right. \quad (54).$$

### 6.3 Coefficient effectif global

Le champ à la pulsation  $\omega_3$  n'étant pas présent initialement dans le milieu, la deuxième partie du second membre de l'équation relative à  $E(\Omega)$  peut être négligée du fait de l'inégalité forte suivante :

$$|E(\omega_0) \cdot E^*(\omega_1)| \gg |E(\omega_2) \cdot E(\omega_3)| \quad (55).$$

En prenant évidemment  $E(\Omega, Z=0) = 0$ , la composante du champ à la pulsation  $\Omega$  s'exprime par :

$$E(\Omega) = -\frac{\pi}{n(\Omega) \cdot \lambda_\Omega \cdot \cos^2(\gamma(\Omega))} \cdot \frac{\chi_{eff}^{(2)-I}}{\Delta k^{quad-I}} \cdot E(\omega_0, Z=0) \cdot E^*(\omega_1, Z=0) \cdot \left( e^{-j \cdot \Delta k^{quad-I} \cdot Z} - 1 \right) \quad (56).$$

Si l'interaction cubique est en accord de phase, et donc la cascade quadratique dans sa globalité également, soit  $\Delta k^{quad-I} + \Delta k^{quad-II} = \Delta k^{cub} = 0$ , l'équation relative à la composante du champ à la pulsation  $\omega_3$  s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \frac{\partial E(\omega_3)}{\partial Z} = & j \cdot \frac{\pi}{n(\omega_3) \cdot \lambda_3 \cdot \cos^2(\gamma(\omega_3))} \cdot E(\omega_0, Z=0) \cdot E^*(\omega_1, Z=0) \cdot E^*(\omega_2, Z=0) \\ & \cdot \left\{ \chi_{eff}^{(3)} - \frac{\pi}{n(\Omega) \cdot \lambda_\Omega \cdot \cos^2(\gamma(\Omega))} \cdot \frac{\chi_{eff}^{(2)-I} \cdot \chi_{eff}^{(2)-II}}{\Delta k^{quad-I}} \cdot \left( 1 - e^{-j \cdot \Delta k^{quad-II} \cdot Z} \right) \right\} \end{aligned} \quad (57),$$

Lorsque le deuxième étage de la cascade est hors accord de phase, soit  $\Delta k^{quad-II} \neq 0$ , le terme en  $e^{-j \cdot \Delta k^{quad-II} \cdot Z}$  dans l'expression (57) peut alors être négligé, puisque sa contribution est oscillante et de faible amplitude une fois l'équation intégrée. Nous voyons donc ici que seules les cascades qui sont globalement en accord de phase ont une contribution qui est à même de concurrencer le processus cubique.

L'équation différentielle relative à  $E(\omega_3)$  se met alors sous la forme simplifiée suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\partial E(\omega_3)}{\partial Z} = & j \cdot \frac{\pi}{n(\omega_3) \cdot \lambda_3 \cdot \cos^2(\gamma(\omega_3))} \cdot E(\omega_0, Z=0) \cdot E^*(\omega_1, Z=0) \cdot E^*(\omega_2, Z=0) \\ & \cdot \left\{ \chi_{eff}^{(3)} - \frac{\pi}{n(\Omega) \cdot \lambda_\Omega \cdot \cos^2(\gamma(\Omega))} \cdot \frac{\chi_{eff}^{(2)-I} \cdot \chi_{eff}^{(2)-II}}{\Delta k^{quad-I}} \right\} \end{aligned} \quad (58).$$

Ainsi, l'interaction globale est formellement équivalente à une simple interaction cubique, mais dont le *coefficient effectif global* est défini par :

$$\chi_{\text{eff}}^{\text{global}} = \chi_{\text{eff}}^{(3)} - \frac{\pi}{n(\Omega) \cdot \lambda_{\Omega} \cdot \cos^2(\gamma(\Omega))} \cdot \frac{\chi_{\text{eff}}^{(2)-I} \cdot \chi_{\text{eff}}^{(2)-II}}{\Delta k^{\text{quad}-I}} \quad (59).$$

Notons que la contribution de la cascade quadratique peut aller dans le sens d'une altération ou au contraire d'une exaltation du coefficient effectif cubique, suivant le signe du désaccord de phase du premier étage de la cascade  $\Delta k^{\text{quad}-I}$ .

#### 6.4 Extension au cas de plusieurs cascades

Le principe du calcul précédent se généralise aisément au cas de plusieurs cascades, ce qui correspond aux situations abordées dans cet ouvrage. Sur la base de l'expression (59), le coefficient effectif global se définit alors comme :

$$\chi_{\text{eff}}^{\text{global}} = \chi_{\text{eff}}^{(3)} - \sum_i \left( \frac{\pi}{n(\Omega_i) \cdot \lambda_{\Omega,i} \cdot \cos^2(\gamma(\Omega_i))} \cdot \frac{\chi_{\text{eff},i}^{(2)-I} \cdot \chi_{\text{eff},i}^{(2)-II}}{\Delta k_i^{\text{quad}-I}} \right) \quad (60),$$

où l'indice  $i$  correspond à la  $i^{\text{ème}}$  cascade, faisant intervenir la pulsation intermédiaire  $\Omega_i$ .

Pour aller au bout du calcul, il convient d'exprimer l'effet de cette compétition sur les éclaircissements associés, qui sont les grandeurs mesurables par le biais de l'énergie. Nous définissons alors le *taux de cascades* comme le rapport des éclaircissements générés à la pulsation  $\omega_3$ , respectivement par les seules cascades quadratiques d'une part, et par l'interaction cubique d'autre part. Ce taux de cascades traduit directement la « pureté » associée au processus cubique, et s'exprime par :

$$\eta = \frac{I^{\text{quad}}(\omega_3)}{I^{\text{cub}}(\omega_3)} = \frac{|E^{\text{quad}}(\omega_3)|^2}{|E^{\text{cub}}(\omega_3)|^2} = \left( \frac{\sum_i \left( \frac{\pi}{n(\Omega_i) \cdot \lambda_{\Omega,i} \cdot \cos^2(\gamma(\Omega_i))} \cdot \frac{\chi_{\text{eff},i}^{(2)-I} \cdot \chi_{\text{eff},i}^{(2)-II}}{\Delta k_i^{\text{quad}-I}} \right)}{\chi_{\text{eff}}^{(3)}} \right)^2 \quad (61).$$

Remarquons pour clore ce chapitre que si plusieurs cascades interviennent, leurs effets peuvent être opposés, notamment si les  $\Delta k_i^{\text{quad}-I}$  sont de signes contraires. Ainsi, plusieurs cascades simultanées, si leurs effets se compensent, peuvent être moins polluantes vis-à-vis

du processus cubique qu'une seule cascade. C'est une situation très intéressante au regard de notre problématique, et qui est exploitée au Chapitre IV.

## Chapitre III – Etat de l’art et définition des objectifs

Après les éléments d’optique classique donnés dans les Chapitres I et II, ce troisième chapitre aborde la problématique du point de vue de l’optique quantique.

### 1 Etat de l’art

L’intérêt pour l’étude des états intriqués<sup>19</sup> à plusieurs particules est d’ordre théorique, et également historique : dès 1935, Einstein, Podolsky et Rosen avaient émis un certain nombre de propositions reliant *intrication*, *localité*, *réalité* et *complétude*, qui mettaient à mal la théorie de la mécanique quantique ([26], 1935). Une reformulation par Greenberger ([27], 1990) en est donnée ci-dessous, et s’adapte au cas de 2 particules dont le spin possède deux degrés de liberté.

- *Intrication* : si les spins des particules 1 et 2 sont mesurés selon la même direction, alors le résultat sera obtenu avec certitude sous la forme de deux spins opposés<sup>20</sup>.
- *Localité* : si, au moment de la mesure, les deux systèmes ne sont plus en interaction, la seconde particule ne peut subir aucune modification résultant d’une quelconque action sur la première.
- *Réalité* : si, sans perturber un système d’aucune façon, nous pouvons prédire avec certitude –*i. e.* avec une probabilité égale à l’unité– la valeur d’une quantité physique, alors il existe un élément de la réalité correspondant à cette quantité physique.
- *Complétude* : tout élément de la réalité doit avoir un élément correspondant dans une théorie physique complète.

Les incompatibilités de ces assertions avec la théorie de la mécanique quantique ont été synthétisées par Bell trente ans après leur évocation par Einstein ([28], 1965), sous la forme

---

<sup>19</sup> L’*intrication* peut être vue comme une parfaite corrélation quantique : la mesure d’une observable permet de prédire un résultat certain pour une autre observable. Notons qu’en toute rigueur, l’intrication est l’état du N-uplet de particules *avant* la mesure, cette dernière projetant les particules dans l’état mesuré.

<sup>20</sup> Il s’agit là d’une anti-corrélation, la corrélation traduisant en toute rigueur deux mesures identiques, et non opposées.



d'inégalités devenues célèbres depuis. Pour résoudre ce conflit, certains ont fait intervenir un jeu de variables, les fameuses *variables cachées*, qui ne seraient pas accessibles à la mesure mais qui joueraient un rôle dans la communication entre deux systèmes ayant été en interaction ([29], 1969) ; d'autres ont émis l'idée contre intuitive de *non-localité* : il serait impossible de confiner un système dans une zone précise de l'espace, ce qui interdirait alors la séparation parfaite de deux systèmes après interaction.

Depuis la formulation des inégalités de Bell, quarante ans de science ont permis de tester de nombreuses situations, avec un résultat systématiquement en faveur de la mécanique quantique au détriment de l'hypothèse pourtant intuitive de localité.

### 1.1 Photons jumeaux

La première démonstration claire de violation des inégalités de Bell date de 1981 : conduites par A. Aspect, ces expériences ont apporté la preuve de l'existence de non-localité et ont grandement contribué à balayer les dernières réticences suscitées par la mécanique quantique ([30], 1981) ([31], 1982). Dans ces tests et dans les expériences qui ont suivi, les paires de photons émises par fluorescence paramétrique quadratique jouent un rôle important : les deux photons d'une même paire sont appelés photons jumeaux, et forment l'état intriqué à 2 photons. Les corrélations entre les deux photons d'une telle paire issue d'une interaction non linéaire de second ordre ont fait l'objet de nombreuses validations en régime classique ([32], 1986) et quantique ([33], 1997), et ont permis d'obtenir des états de bruit quantique comprimé ([34], 1987) ([35], 1995). Des expériences récentes ont montré que l'intrication peut se conserver alors que les deux particules sont « séparées » par plusieurs dizaines de kilomètres ([36], 1998). Cependant, les violations des inégalités de Bell obtenues grâce à un état intriqué à 2 particules ne concernent que des prédictions statistiques ([27], 1990).

Des matériaux comme  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (BBO), KTiOPO<sub>4</sub> (KTP), et ppLiNbO<sub>3</sub> (ppLN) ont des coefficients non linéaires quadratiques suffisamment importants pour que la génération de paires de photons jumeaux par fluorescence paramétrique soit possible avec des sources laser conventionnelles. Notons que la plupart des expériences mettent en jeu des paires de photons dégénérés en pulsation, l'intrication se faisant alors sur l'état de polarisation ; des réalisations concernent malgré tout des paires de photons de pulsations différentes, comme c'est le cas pour des faisceaux issus d'un oscillateur paramétrique non dégénéré ([35], 1995).

## 1.2 Triplets de photons

Les états intriqués à  $N$  particules,  $N > 2$ , sont bien plus riches que les états à 2 particules ([27], 1990) : les signatures des corrélations doivent notamment apparaître de manière bien plus évidente par le biais d’interférences dans l’espace des phases ([37], 1997). Ces états correspondent à de nouveaux états de la lumière, présentant un caractère non classique fortement prononcé. L’état *triplet*, constitué de trois particules corrélées ( $N=3$ ), est naturellement le premier pas vers l’étude des états intriqués à  $N$  particules,  $N > 2$ , communément dénommés états GHZ en référence à Greenberger, Horne et Zeilinger ([27], 1990).

### 1.2.1 Etude théorique des corrélations

Dans l’attente d’expériences de génération de triplets, nombreux sont ceux à s’être penchés sur les aspects théoriques ([38], 1987) ([39], 1991) ([37], 1997) ([40], 1997) ([41], 1998), en essayant non seulement d’identifier les corrélations qui peuvent être raisonnablement attendues mais aussi de savoir comment elles peuvent être accessibles à la mesure.

La communauté scientifique semble s’accorder sur le fait que la méthode de calcul utilisée dans le cas des corrélations à deux particules est inefficace en présence d’un triplet, du fait de l’impossibilité de linéariser l’interaction ([42], 1996). L’alternative consiste alors à étendre la notion de distribution de probabilité dans l’espace des phases, qui pilote notamment les propriétés statistiques du système considéré ([43], 2002). Dans le cas de l’optique, les observables conjuguées généralement choisies sont les deux quadratures généralisées du champ électrique, notées  $q$  et  $p$ . L’incertitude relative au principe d’Heisenberg peut entraîner des valeurs négatives de la distribution de probabilité ; la sémantique est alors modifiée pour parler de distribution de quasi-probabilité, également appelée *fonction de Wigner*, qui est définie par :

$$W(q, p) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{j \cdot p \cdot x} \left\langle q - \frac{x}{2} \left| \hat{\rho} \right| q + \frac{x}{2} \right\rangle dx \quad (62),$$

où  $\hat{\rho}$  est la matrice densité du système considéré.

Outre le fait que la fonction définie par (62) permet de remonter aux corrélations quantiques du triplet, elle présente également l’intérêt d’être accessible à la mesure par le biais de

méthodes de type tomographie quantique ; elle offre enfin une visualisation directe du caractère non classique de l'état considéré par la présence de valeurs négatives, qui sont des signatures fortes d'une cohérence quantique non triviale. Les études théoriques publiées concernent essentiellement des situations triplement dégénérées en pulsation, selon le schéma  $3\omega \rightarrow \omega + \omega + \omega$ , et les résultats s'accordent sur une forme étoilée de la fonction de Wigner, appelée *Star Gate*, et dont une représentation est donnée sur la Figure 18 pour le cas dégénéré également en polarisation.

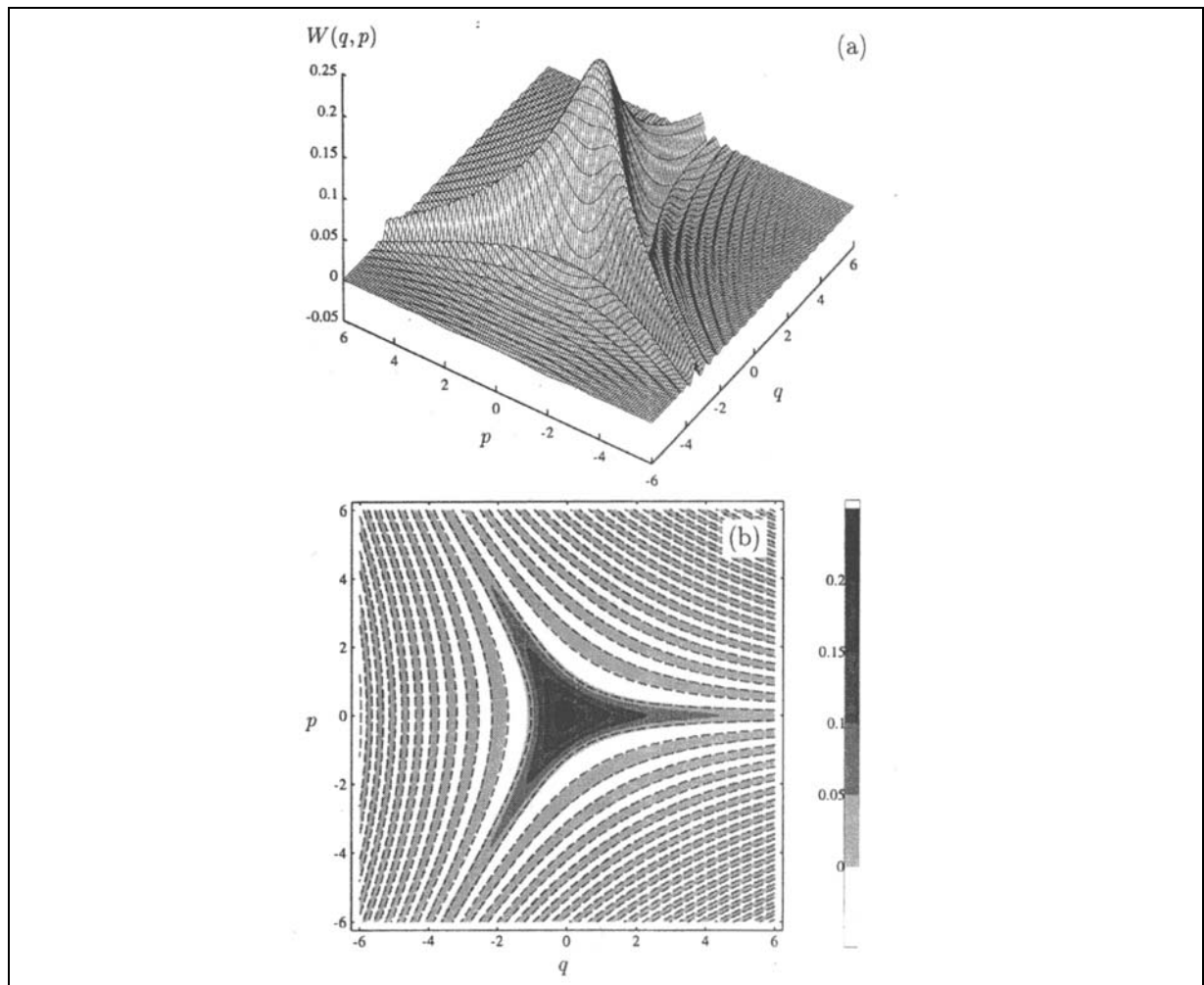


Figure 18 : (a) fonction de Wigner pour une génération paramétrique dégénérée en pulsation et en polarisation ; (b) représentation des lignes de niveau matérialisant les régions positives et négatives ([37], 1997).

Si quelques essais théoriques ont été menés dans des cas non dégénérés en polarisation, nous n'avons trouvé aucune étude des fonctions de Wigner dans des cas non dégénérés en pulsation.

### 1.2.2 Approche expérimentale

Sur le même principe que celui stipulant que l'interaction non linéaire quadratique constitue l'approche la plus efficace pour la génération d'états intriqués à deux photons, l'interaction non linéaire cubique est supposée être le meilleur candidat pour la génération d'états triplets. Le schéma le plus souvent considéré à propos des interactions paramétriques cubiques est celui du *mélange à 4 ondes*, relatif au schéma B présenté au Chapitre II § 2.3, soit :  $\omega_0 + \omega_1 \leftrightarrow \omega_2 + \omega_3$  ([44], 1988) ([45], 1995) ([46], 2001). Ce couplage peut s'interpréter comme la fusion de deux photons en une particule intermédiaire fictive, cette dernière étant à son tour l'objet d'une fission pour donner les deux photons résultants. Les réalisations expérimentales de mélange à 4 ondes sont nombreuses, mais ne sont pas pertinentes face à notre problématique puisque ce processus ne fait pas intervenir de triplet de photons.

La production de triplets de photons ne peut exister que dans le cadre du schéma A défini au Chapitre II § 2.3, et passe nécessairement par la réalisation d'une expérience de fission d'un photon de grande énergie en trois autres photons d'énergies moindres,  $\omega_0 \rightarrow \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ , que cette fission soit spontanée ou stimulée. En dépit de l'intérêt suscité par ces états et de la pertinence de cette approche, aucune génération d'état triplet n'avait encore été démontrée jusqu'à présent, que ce soit par fluorescence, amplification ou oscillation paramétriques cubiques. Les raisons qui expliquent ces échecs tiennent pour l'essentiel aux valeurs extrêmement faibles de la non-linéarité cubique, ainsi qu'à d'importantes difficultés d'ordre expérimental.

### 1.2.3 Expériences basées sur deux paires de photons jumeaux

En marge des essais infructueux de génération de triplets par le biais d'interactions cubiques, une alternative expérimentale a été proposée par Zeilinger et ses collaborateurs : elle est basée sur la production simultanée par des processus quadratiques de deux paires de photons jumeaux. Un post-traitement habile permet d'effacer toute trace d'appartenance à la paire d'origine, si bien qu'après la détection d'un photon de synchronisation, la détection des trois particules restantes les projette dans un état intriqué ([47], 1997). Outre sa facilité de mise en œuvre, cette méthode a permis d'observer des corrélations sur les états GHZ ainsi formés ; de nouveaux tests des inégalités de Bell ont ainsi pu être menés, concluant comme tous les précédents à réfuter l'hypothèse de localité ([48], 2000) ([49], 2001). Enfin, cette technique a été récemment étendue à la création d'états intriqués à 4 particules.

Cependant, il est délicat de parler d'état triplet pour ces expériences, puisque le processus non linéaire de création reste basé sur une susceptibilité de second ordre. De plus, cette technique souffre de deux inconvénients majeurs : d'une part, le protocole de mesure est conditionnel puisque c'est la mesure conjointe du photon de synchronisation et des trois autres particules qui valident l'état GHZ ; d'autre part, c'est le processus de détection lui-même qui projette les trois photons dans l'état GHZ, au prix d'une destruction de celui-ci. Les états ainsi obtenus ne sont donc pas préparés à l'avance, ce qui interdit toute manipulation sur les triplets.

### 1.3 Génération de tierce harmonique et dégroupement de photons

La génération de tierce harmonique  $\omega + \omega + \omega \rightarrow 3\omega$  n'est pas pertinente au regard de la génération de triplets de photons, mais elle présente néanmoins un double intérêt :

- elle est bien plus simple à mettre en œuvre et permet d'évaluer l'efficacité d'un processus non linéaire de troisième ordre ;
- elle pourrait être utilisée pour la compression de bruit quantique.

Une telle approche a déjà été validée pour le cas de la génération de second harmonique ; les études théoriques ([50], 1993) montrent alors que pour une situation en accord de phase, le taux de compression de bruit quantique varie comme l'efficacité de conversion, les effets étant plus subtils pour une situation hors accord de phase. Le rendement de conversion de fréquences nécessaire à l'observation de cette évolution est de l'ordre de la dizaine de pourcents, valeur qui est atteinte sans difficulté pour une interaction quadratique ([51], 1997) ; pour que la situation puisse être exploitable de manière compétitive, il est cependant nécessaire d'obtenir une efficacité bien supérieure, de l'ordre de 80 %.

Nous envisageons de transposer cette situation au cas des interactions cubiques ; cependant, et contrairement au cas à deux photons, le dégroupement à trois photons n'a encore jamais été étudié. Le premier pas consiste alors à réaliser une génération de tierce harmonique efficace. Plusieurs équipes ont travaillé à cet objectif, mais à ce jour et à notre connaissance, aucune n'a encore réussi à obtenir un rendement de conversion de fréquences supérieur à quelques pourcents avec une pureté satisfaisante : des résultats ont été obtenus dans BBO avec un rendement annoncé autour de 5 %, mais le taux de cascades quadratiques correspondant, voisin de 160 %, reste prohibitif ([52], 1999). Les meilleurs résultats ont été obtenus dans

KTP avec un rendement de 2,4 % et un taux de cascades associé de l'ordre de seulement 10 % ([53], 2000).

## 2 Définition de nos stratégies expérimentales

### 2.1 Objectifs

Avant de pouvoir étudier les propriétés quantiques des photons impliqués dans un processus cubique, il faut les produire, ce qui reste aujourd'hui encore un véritable challenge. Le défi adresse d'abord le champ disciplinaire de l'optique non linéaire cristalline ; or la théorie classique des interactions paramétriques optiques cubiques n'a pas été étudiée de façon aussi exhaustive que celle de leurs homologues quadratiques. Le premier enjeu de ce travail est donc de mener à bien cette étude. Le deuxième objectif porte sur la réalisation d'une expérience de génération de tierce harmonique en accord de phase, avec un rendement de conversion de fréquences le plus élevé possible. Enfin, le but ultime concerne la génération de triplets de photons.

### 2.2 Choix de la source laser

La motivation de ce travail étant la démonstration de corrélations quantiques, il est souhaitable que les photons à étudier aient des longueurs d'onde inférieures à 1500 nm pour être compatibles avec les chaînes de détection quantique usuelles. D'autre part, la faible amplitude de la non-linéarité cubique impose de travailler avec des éclaircissements de l'ordre de la centaine de  $\text{GW}/\text{cm}^2$ , que ce soit pour la génération de troisième harmonique ou pour la génération de triplets de photons ; il est donc nécessaire d'utiliser des sources fonctionnant en régime sub-nanoseconde. Pour ce travail, nous avons utilisé une source disponible au laboratoire qui répond à nos exigences : il s'agit d'un laser Nd:YAG triplé en fréquence (EKSPLA PL2143A) qui pompe un générateur paramétrique optique (EKSPLA PG401 VIR/DFG) utilisant un cristal de BBO et dont l'accordabilité en longueur d'onde va de 420 nm à 2300 nm ; le faisceau ainsi généré peut être utilisé tel quel, ou bien faire l'objet d'une différence de fréquences (DFG) avec une portion du faisceau fondamental à 1064 nm, pour couvrir la plage spectrale allant de 2.3  $\mu\text{m}$  à 10  $\mu\text{m}$ . La durée des impulsions du laser de pompe est de 22 ps et le taux de répétition de 10 Hz.

### 2.3 Choix des matériaux non linéaires

Le premier réflexe est évidemment de considérer des milieux avec les coefficients non linéaires cubiques les plus élevés possibles. De ce point de vue, les verres de chalcogénure sont les meilleurs candidats, avec des coefficients de l'ordre de  $10^{-18}$  m<sup>2</sup>/V<sup>2</sup>, soit trois ordres de grandeur supérieurs à ceux des oxydes. Les non-linéarités cubiques de ces verres sont, quoi qu'il en soit, toujours très faibles, et la condition d'accord de phase reste encore d'une absolue nécessité pour espérer réaliser un effet paramétrique efficace ; or les verres sont isotropes, de sorte que l'accord de phase par biréfringence est impossible. Nous proposons alors une alternative reposant sur l'application d'une contrainte mécanique anisotrope aux verres de chalcogénure afin d'y induire une biréfringence ; ce travail exploratoire est présenté au Chapitre V.

Nous avons également considéré les matériaux « naturellement » biréfringents : ce sont tous les cristaux qui n'appartiennent pas au système cubique. Dans le cadre de notre problématique, nous pouvons choisir tout type de cristal biréfringent, qu'il soit ou non centrosymétrique, puisque c'est la susceptibilité cubique qui nous intéresse. Mais afin d'éviter les problèmes potentiels liés aux cascades d'interactions quadratiques évoqués au § 6 du Chapitre II, il paraît sage –tout au moins en première approche– de considérer des cristaux centrosymétriques, donc sans non-linéarité quadratique. Les données bibliographiques concernant les indices de réfraction de ces matériaux sont peu nombreuses, et ne sont hélas pas assez fiables pour faire des calculs d'accord de phase ; il y a encore moins d'informations sur leur non-linéarité cubique. Nous n'avons trouvé qu'une seule référence bibliographique pertinente, qui traite de la génération de tierce harmonique dans la calcite ([54], 1988), mais la non-linéarité mesurée est beaucoup trop faible au regard des objectifs que nous avons définis.

Reste donc le choix d'un cristal non centrosymétrique : le compromis à trouver doit prendre en compte les possibilités d'accord de phase aux longueurs d'onde évoquées au paragraphe 2.2 précédent, l'existence d'une forte non-linéarité cubique utilisable dans la configuration d'accord de phase associée, et la maîtrise des propriétés non linéaires de second ordre pour limiter au mieux la pollution par des cascades d'interactions quadratiques.

Notre choix s'est porté sur KTP, qui est un milieu biaxe. Ses propriétés optiques linéaires sont très bien connues ([55], 1991), ce qui est impératif pour assurer un calcul précis des directions d'accord de phase. Ses propriétés optiques non linéaires d'ordre 2 sont également bien maîtrisées ([56], 1997), ce qui nous donne la possibilité de modéliser correctement l'influence

des cascades d’interactions quadratiques. De plus, les mesures de propriétés optiques non linéaires d’ordre 3 sont prometteuses, avec une non-linéarité cubique effective utilisable relativement importante, de l’ordre de  $10^{-21}$  m<sup>2</sup>/V<sup>2</sup> ([24], 1999). Enfin, le choix de KTP est également motivé par un seuil de dommage optique très élevé ([57], 1995) ([58], 1999) : l’éclairement maximal possible est de l’ordre de la centaine de GW/cm<sup>2</sup> en régime picoseconde.



# Chapitre IV – Etude de la génération de tierce harmonique dans KTP et ppKTP

Le challenge expérimental abordé dans ce chapitre concerne la réalisation d'une interaction de génération de tierce harmonique (THG) aussi pure que possible, et dont le rendement de conversion de fréquences dépasse la barre des 10 %.

## 1 Etude dans KTP

### 1.1 Calculs des conditions d'accord de phase et des rendements de conversion

#### 1.1.1 Accord de phase

Compte tenu des relations (52) et de la dégénérescence en pulsation pour les trois photons incidents,  $\omega = \omega_1 = \omega_2 = \omega_3$ , il n'y a que 3 configurations possibles permettant l'accord de phase pour la THG ; ces possibilités sont données dans le Tableau 4.

Relations d'accord de phase	Dénomination
$n^{(-)}(3\omega) \cdot 3\omega - n^{(+)}(\omega) \cdot \omega - n^{(+)}(\omega) \cdot \omega - n^{(+)}(\omega) \cdot \omega = 0$	Type I
$n^{(-)}(3\omega) \cdot 3\omega - n^{(+)}(\omega) \cdot \omega - n^{(+)}(\omega) \cdot \omega - n^{(-)}(\omega) \cdot \omega = 0$	Type II
$n^{(-)}(3\omega) \cdot 3\omega - n^{(+)}(\omega) \cdot \omega - n^{(-)}(\omega) \cdot \omega - n^{(-)}(\omega) \cdot \omega = 0$	Type III

Tableau 4 : configurations possibles d'accord de phase pour la THG.

Connaissant la dispersion des trois indices principaux de KTP ([55], 1991), nous sommes à même de calculer les longueurs d'onde et les directions pour lesquelles les relations du Tableau 4 sont vérifiées. La Figure 19 donne les courbes d'accord de phase obtenues pour une propagation dans les plans principaux de KTP pour les types I et II, le type III n'offrant aucune solution.

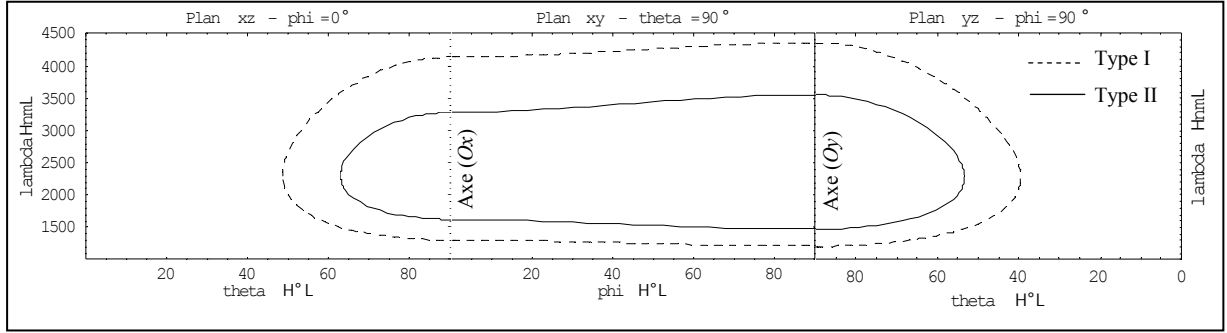


Figure 19 : longueur d'onde fondamentale vérifiant l'accord de phase de la THG en fonction de l'angle  $\theta$  ou  $\varphi$  définissant la direction de propagation dans le plan principal de KTP considéré.

Comme le montre la Figure 19, le plan  $(xOy)$  de KTP présente l'intérêt majeur d'offrir des situations d'accord de phase impliquant des longueurs d'onde en adéquation avec nos contraintes de détection, soit une longueur d'onde fondamentale autour de 1500 nm. De plus, ce plan est aussi le seul pour lequel l'angle de double réfraction n'excède pas quelques dixièmes de degré, limitant ainsi les effets de séparation spatiale des faisceaux. C'est donc le plan  $(xOy)$  que nous choisissons pour mener notre étude.

### 1.1.2 Coefficient effectif cubique

Le coefficient effectif de THG associé à chaque direction d'accord de phase se calcule à partir de l'équation (42) ; en faisant apparaître les sommations, et en utilisant la notation relative au tenseur champ  $F$  ([59], 1993), il s'écrit donc :

$$\chi_{eff}^{(3)} = \sum_i \left\{ e_i^{(-)}(3\omega) \cdot \sum_{j,k,l} \left( \chi_{ijkl}^{(3)}(3\omega = \omega + \omega + \omega) \cdot F_{jkl} \right) \right\} \quad (63),$$

avec  $i, j, k, l = x, y$  ou  $z$ , et où les éléments du tenseur champ sont donnés en fonction du type de la THG par :

$$\begin{cases} F_{jkl}^{Type I} = e_j^{(+)}(\omega) \cdot e_k^{(+)}(\omega) \cdot e_l^{(+)}(\omega) \\ F_{jkl}^{Type II} = e_j^{(+)}(\omega) \cdot e_k^{(+)}(\omega) \cdot e_l^{(-)}(\omega) \\ F_{jkl}^{Type III} = e_j^{(+)}(\omega) \cdot e_k^{(-)}(\omega) \cdot e_l^{(-)}(\omega) \end{cases} \quad (64).$$

KTP appartient à la classe de symétrie d'orientation  $mm2$  ; ainsi, compte tenu du Tableau 3, les éléments indépendants  $\chi_{ijkl}^{(3)}$  correspondants sont :

$$\left\{ \begin{array}{l} \chi_{11}^{(3)} = \chi_{xxxx}^{(3)} \\ \chi_{16}^{(3)} = \chi_{xxzz}^{(3)} = \chi_{xzxz}^{(3)} = \chi_{zzzx}^{(3)} = \chi_{zzxx}^{(3)} = \chi_{zxzx}^{(3)} = \chi_{zxxz}^{(3)} \\ \chi_{18}^{(3)} = \chi_{xxyy}^{(3)} = \chi_{xyxy}^{(3)} = \chi_{xyyx}^{(3)} = \chi_{yyxx}^{(3)} = \chi_{yyxy}^{(3)} = \chi_{yxxy}^{(3)} \\ \chi_{22}^{(3)} = \chi_{yyyy}^{(3)} \\ \chi_{24}^{(3)} = \chi_{yyzz}^{(3)} = \chi_{yzyz}^{(3)} = \chi_{zyzy}^{(3)} = \chi_{zzyy}^{(3)} = \chi_{zyzy}^{(3)} = \chi_{zyyz}^{(3)} \\ \chi_{33}^{(3)} = \chi_{zzzz}^{(3)} \end{array} \right. \quad (65).$$

La notation à 2 indices  $\chi_{im}^{(3)}$  utilisée ici est la notation contractée conventionnelle ([4], 2003), qui permet d'alléger l'écriture. La contraction se fait sur les trois derniers indices selon la règle suivante :

1<sup>er</sup> indice (non contracté) :  $x \rightarrow 1$ ,  $y \rightarrow 2$  et  $z \rightarrow 3$  ;

2<sup>nd</sup>, 3<sup>ème</sup> et 4<sup>ème</sup> indices (contractés) :  $xxx \rightarrow 1$ ,  $yyy \rightarrow 2$ ,  $zzz \rightarrow 3$ ,  $yzz = zyz = zzy \rightarrow 4$ ,  
 $yyz = yzy = zyy \rightarrow 5$ ,  $xzz = zxz = zzx \rightarrow 6$ ,  $xxz = xzx = zxx \rightarrow 7$ ,  $xyy = yxy = yyx \rightarrow 8$ ,  
 $xyx = yxy = yxx \rightarrow 9$  et  $xyz = xzy = yxz = yzx = zxy = zyx \rightarrow 0$ .

Les composantes cartésiennes des champs électriques se calculent comme indiqué dans le § 5.2 du Chapitre I, où les expressions (21) et (22) peuvent être utilisées directement car elles correspondent à une propagation dans le plan ( $xOy$ ) d'un cristal biaxe ; les angles de double réfraction peuvent être négligés car ils sont très faibles dans le plan ( $xOy$ ) de KTP. Les coefficients effectifs relatifs aux différents types de THG s'expriment alors simplement :

$$\left\{ \begin{array}{l} \chi_{eff}^{(3)-Type I} = 0 \\ \chi_{eff}^{(3)-Type II} = \chi_{16}^{(3)} \cdot \sin^2(\varphi) + \chi_{24}^{(3)} \cdot \cos^2(\varphi) \\ \chi_{eff}^{(3)-Type III} = 0 \end{array} \right. \quad (66).$$

Seul l'accord de phase de type II est donc associé à un coefficient effectif non nul. Connaissant les valeurs des coefficients non linéaires mis en jeu ([24], 1999), soit  $\chi_{16}^{(3)} = 8.0 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2/\text{V}^2$ , et  $\chi_{24}^{(3)} = 14.6 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2/\text{V}^2$ , nous pouvons tracer  $\chi_{eff}^{(3)}$  en fonction de l'angle définissant la direction d'accord de phase, ce que montre la Figure 20.

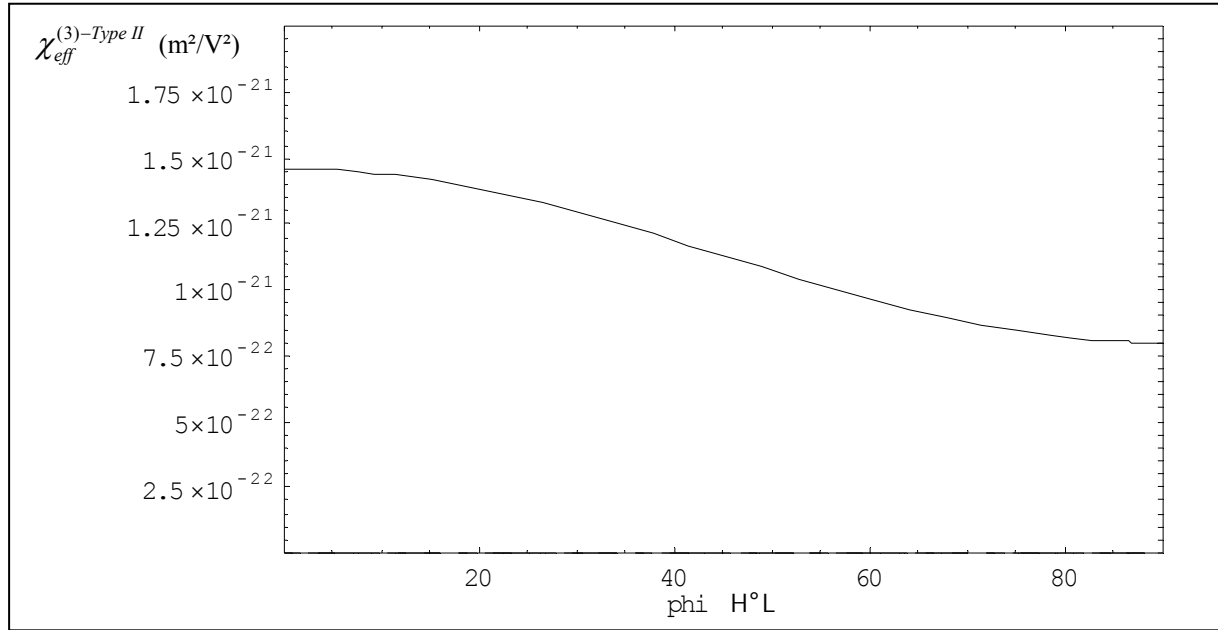


Figure 20 : coefficient effectif non linéaire cubique, en  $\text{m}^2/\text{V}^2$ , en fonction de l'angle d'accord de phase  $\phi$  pour une THG de type II dans le plan (xOy) de KTP.

Ce graphe montre clairement que la direction de propagation ( $Ox$ ) maximise le coefficient effectif d'ordre 3. C'est donc cette direction que nous avons choisie pour une réalisation expérimentale ; les données numériques correspondantes sont :

$$\left\{ \begin{array}{l} \lambda_{\omega} = 1624 \text{ nm} \\ \lambda_{3\omega} = 541 \text{ nm} \\ n^{(-)}(\omega) = 1.73556 \\ n^{(+)}(\omega) = 1.81414 \\ n^{(-)}(3\omega) = 1.78803 \\ \chi_{24}^{(3)} = 14.6 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2/\text{V}^2 \end{array} \right. \quad (67).$$

### 1.1.3 Coefficient effectif global

Notre objectif étant non seulement d'obtenir une interaction efficace mais également purement cubique, il convient de s'intéresser de près aux effets des cascades d'interactions quadratiques. En reprenant les résultats développés au Chapitre II § 6, nous pouvons quantifier l'effet des cascades qui peuvent avoir lieu en parallèle du processus cubique. Les coefficients effectifs associés aux deux interactions quadratiques, notées (I) et (II), se calculent d'après l'équation (39) donnée au Chapitre II, en prenant les expressions (21) et (22)

pour expliciter les champs électriques des différentes ondes concernées. Dans le cas de KTP, les coefficients indépendants du tenseur  $\chi^{(2)}$  sont donnés par le Tableau 2, soit :

$$\begin{cases} \chi_{15}^{(2)} = \chi_{xzz}^{(2)} = \chi_{zxx}^{(2)} = \chi_{zzx}^{(2)} \\ \chi_{24}^{(2)} = \chi_{yzz}^{(2)} = \chi_{zyz}^{(2)} = \chi_{zzy}^{(2)} \\ \chi_{33}^{(2)} = \chi_{zzz}^{(2)} \end{cases} \quad (68).$$

Pour la notation courante  $\chi_{im}^{(2)}$  utilisée ici, la contraction se fait sur les deux derniers indices :

1<sup>er</sup> indice (non contracté) :  $x \rightarrow 1$ ,  $y \rightarrow 2$  et  $z \rightarrow 3$  ;

2<sup>nd</sup> et 3<sup>ème</sup> indices (contractés) :  $xx \rightarrow 1$ ,  $yy \rightarrow 2$ ,  $zz \rightarrow 3$ ,  $yz = zy \rightarrow 4$ ,  $xz = zx \rightarrow 5$  et  $xy = yx \rightarrow 6$ .

Les cascades d'interactions quadratiques susceptibles de se produire consomment et produisent les mêmes photons<sup>21</sup> que le processus cubique associé. Les différentes possibilités sont résumées dans le Tableau 5.

Cascade n°i	Détail des interactions	Coefficient non linéaire effectif d'ordre 2 associé au plan (xOy)
n°1	I - $\omega^{(+)} + \omega^{(+)} \rightarrow 2\omega^{(+)}$	$\chi_{eff,1}^{(2)-I} = \chi_{33}^{(2)}$
	II - $2\omega^{(+)} + \omega^{(-)} \rightarrow 3\omega^{(-)}$	$\chi_{eff,1}^{(2)-II} = \chi_{15}^{(2)} \cdot \sin(\varphi)^2 + \chi_{24}^{(2)} \cdot \cos(\varphi)^2$
n°2	I - $\omega^{(+)} + \omega^{(+)} \rightarrow 2\omega^{(-)}$	$\chi_{eff,2}^{(2)-I} = 0$
	II - $2\omega^{(-)} + \omega^{(-)} \rightarrow 3\omega^{(-)}$	$\chi_{eff,2}^{(2)-II} = 0$
n°3	I - $\omega^{(+)} + \omega^{(-)} \rightarrow 2\omega^{(+)}$	$\chi_{eff,3}^{(2)-I} = 0$
	II - $2\omega^{(+)} + \omega^{(+)} \rightarrow 3\omega^{(-)}$	$\chi_{eff,3}^{(2)-II} = 0$
n°4	I - $\omega^{(+)} + \omega^{(-)} \rightarrow 2\omega^{(-)}$	$\chi_{eff,4}^{(2)-I} = \chi_{15}^{(2)} \cdot \sin(\varphi)^2 + \chi_{24}^{(2)} \cdot \cos(\varphi)^2$
	II - $2\omega^{(-)} + \omega^{(+)} \rightarrow 3\omega^{(-)}$	$\chi_{eff,4}^{(2)-II} = \chi_{15}^{(2)} \cdot \sin(\varphi)^2 + \chi_{24}^{(2)} \cdot \cos(\varphi)^2$

Tableau 5 : cascades d'interactions quadratiques susceptibles de polluer le processus de THG de type II dans le plan (xOy) de KTP.  $\varphi$  est l'angle d'accord de phase.

<sup>21</sup> Mêmes pulsations et mêmes polarisations.

Comme pour le calcul du coefficient effectif cubique, les angles de double réfraction ont été négligés. Le Tableau 5 montre que seules les cascades n°1 et n°4 peuvent avoir un effet susceptible de polluer le processus cubique, les coefficients non linéaires effectifs d'ordre 2 associés aux autres cascades étant nuls. A partir des valeurs des éléments de  $\chi^{(2)}$  sollicités ([56], 1997), soit  $\chi_{15}^{(2)} = 2.9 \cdot 10^{-12}$  m/V,  $\chi_{24}^{(2)} = 4.8 \cdot 10^{-12}$  m/V et  $\chi_{33}^{(2)} = 19.2 \cdot 10^{-12}$  m/V, nous pouvons calculer d'après l'expression (60) le coefficient effectif global qui prend en compte les deux cascades quadratiques, soit :

$$\chi_{eff}^{global} = \chi_{eff}^{(3)} - \frac{\pi}{n^{(+)}(2\omega) \cdot \lambda_{2\omega}} \cdot \frac{\chi_{eff,1}^{(2)-I} \cdot \chi_{eff,1}^{(2)-II}}{\Delta k_1^{quad-I}} - \frac{\pi}{n^{(-)}(2\omega) \cdot \lambda_{2\omega}} \cdot \frac{\chi_{eff,4}^{(2)-I} \cdot \chi_{eff,4}^{(2)-II}}{\Delta k_4^{quad-I}} \quad (69).$$

$\Delta k_1^{quad-I}$  et  $\Delta k_4^{quad-I}$  sont les désaccords de phase des premiers étages des cascades n°1 et n°4 respectivement, et s'expriment par :

$$\begin{cases} \Delta k_1^{quad-I} = \frac{\omega}{c} \cdot (2 \cdot n^{(+)}(2\omega) - 2 \cdot n^{(+)}(\omega)) \\ \Delta k_4^{quad-I} = \frac{\omega}{c} \cdot (2 \cdot n^{(-)}(2\omega) - n^{(-)}(\omega) - n^{(+)}(\omega)) \end{cases} \quad (70).$$

S'il est évident que  $\Delta k_1^{quad-I} > 0$  du fait de la dispersion « normale » de KTP, les calculs relatifs à  $\Delta k_4^{quad-I}$  donnent des valeurs négatives. Les deux cascades interviennent donc de manières opposées : l'une tend à contrer le processus cubique tandis que l'autre apporte une contribution en phase avec ce dernier. Ceci peut être montré explicitement, comme sur la Figure 21, en représentant simultanément le coefficient effectif non linéaire d'ordre 3 et chaque contribution de cascade, soit :

$$\chi_{eff,i}^{casc} = - \frac{\pi}{n^{(\pm)}(2\omega) \cdot \lambda_{2\omega}} \cdot \frac{\chi_{eff,i}^{(2)-I} \cdot \chi_{eff,i}^{(2)-II}}{\Delta k_i^{quad-I}} \quad (71).$$

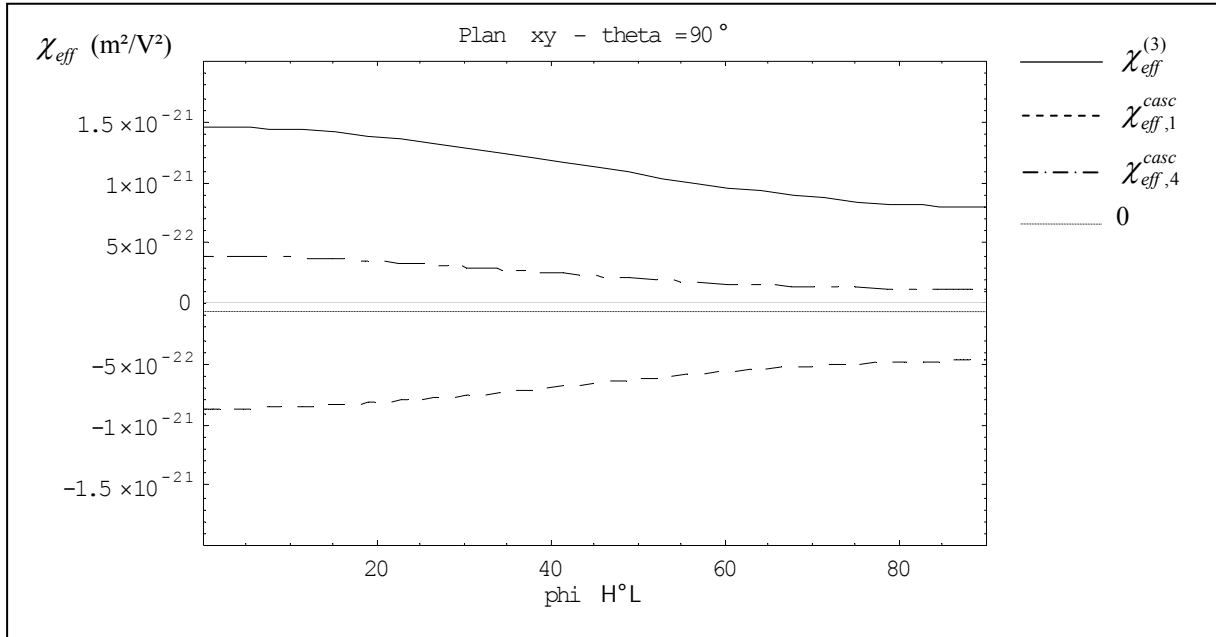


Figure 21 : comparaison des coefficients effectifs du processus cubique et des cascades d'interactions quadratiques pour la THG de type II dans le plan  $(xOy)$  de KTP.

La Figure 21 montre également que la somme des contributions des deux cascades est en opposition de phase par rapport au processus purement cubique. Ainsi, en plus d'une éventuelle pollution au niveau des corrélations quantiques, le rendement de conversion de fréquences est altéré par la présence de ces cascades.

Pour quantifier la pureté de l'éclairement généré à la pulsation de tierce harmonique, le taux de cascades est calculé à partir de la relation (61) ; il est tracé sur la Figure 22.

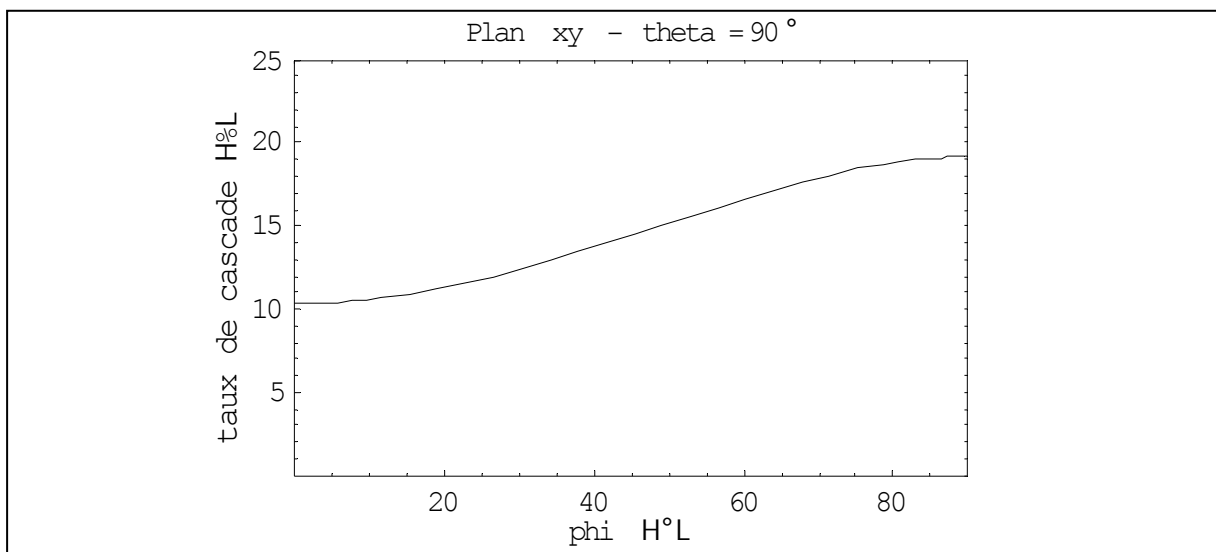


Figure 22 : taux de cascades pour la THG de type II dans le plan  $(xOy)$  de KTP.

Ce calcul vient appuyer notre choix de la direction d'accord de phase ( $Ox$ ), soit  $\varphi = 0$  : le taux de cascades y est minimal, de l'ordre de 10 % ; le coefficient effectif non linéaire d'ordre 3 y est de plus maximal, et l'angle de double réfraction est nul selon cette direction. Les données calculées supplémentaires à celles de (67) sont :

$$\left\{ \begin{array}{l} \lambda_{2\omega} = 812 \text{ nm} \\ n^{(-)}(2\omega) = 1.75829 \\ n^{(+)}(2\omega) = 1.843 \\ \Delta k_1^{quad-I} = 2.23 \cdot 10^5 \text{ m}^{-1} \\ \Delta k_4^{quad-I} = -1.28 \cdot 10^5 \text{ m}^{-1} \\ \chi_{eff}^{(3)} = 14.6 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2/\text{V}^2 \\ \chi_{eff,1}^{casc} = -8.7 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2/\text{V}^2 \\ \chi_{eff,4}^{casc} = 4.0 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2/\text{V}^2 \\ \chi_{eff}^{global} = 9.9 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2/\text{V}^2 \\ \eta = 10.4 \% \end{array} \right. \quad (72).$$

#### 1.1.4 Calcul du rendement de conversion

En assumant l'hypothèse de la pompe non dépeuplée et en adaptant l'expression (47) au cas de la THG de type II en accord de phase et sans double réfraction, il vient :

$$I(3\omega, Z) = \frac{4 \cdot \frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \cdot \left( \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{global} \cdot Z}{\lambda_\omega} \right)^2}{3 \cdot n^{(-)}(3\omega) \cdot n^{(-)}(\omega) \cdot n^{(+)^2}(\omega)} \cdot I_{tot}^3(\omega, Z=0) \quad (73)$$

où  $I_{tot}(\omega)$  est l'éclairement total incident à la pulsation fondamentale.

L'énergie, qui est la seule grandeur accessible expérimentalement, s'obtient en intégrant l'éclairement sur la section transverse du faisceau et sur la durée de l'impulsion, soit :

$$\xi(Z) = \int_{t \in \mathbb{R}} \left( \iint_{(X,Y) \in \mathbb{R}^2} I(X, Y, Z, t) \cdot dX \cdot dY \right) \cdot dt \quad (74).$$

Pour calculer les énergies incidentes et générées correspondant à l'expression (73), il est donc nécessaire de connaître le profil spatio-temporel des faisceaux. Dans ce travail, nous



considérons des faisceaux gaussiens, à la fois spatialement et temporellement. Le profil transverse de l'éclairement s'écrit alors dans le repère du laboratoire :

$$I(X, Y, Z) = I(Z) \cdot e^{-2 \frac{X^2 + Y^2}{W^2(Z)}} \quad (75),$$

où  $I(Z)$  est l'éclairement sur l'axe de propagation (OZ). L'évolution du rayon transverse du faisceau, défini comme sa demi largeur à  $1/e^2$  du maximum, obéit à la loi générale suivante :

$$W^2(Z) = W_0^2 \cdot \left( 1 + \left( \frac{M^2 \cdot \lambda \cdot Z}{\pi \cdot W_0^2} \right)^2 \right) \quad (76).$$

$M^2$  est le facteur de qualité du faisceau ([60], 1986) :  $M^2 = 1$  dans le cas d'un faisceau idéal, et  $M^2 > 1$  dans la réalité. Cette écriture place par convention le col du faisceau<sup>22</sup> en  $Z = 0$  ; son extension spatiale est alors minimale et vaut  $W_0$ . La Figure 23 montre un exemple d'évolution longitudinale de l'extension spatiale d'un faisceau gaussien. De part et d'autre de  $Z = 0$ , les ondes peuvent être considérées comme planes sur une distance  $Z_r$ , nommée longueur de Rayleigh, et définie par :

$$Z_r = \frac{\pi \cdot W_0^2}{M^2 \cdot \lambda} \quad (77).$$

---

<sup>22</sup> Le terme anglophone correspondant est « beam waist ».

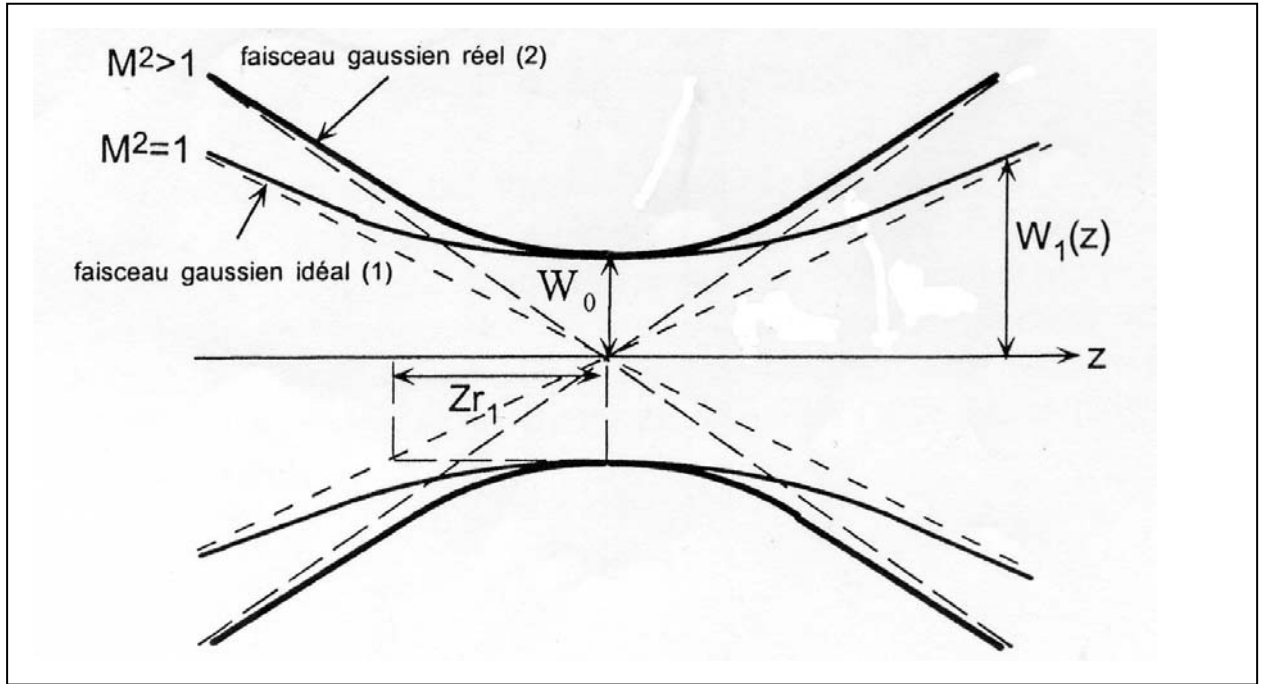


Figure 23 : évolution longitudinale d'un faisceau gaussien pour le cas idéal ( $M^2 = 1$ ) et pour un cas réel ( $M^2 > 1$ ).

L'évolution temporelle de l'impulsion s'écrit quant à elle :

$$I(X, Y, Z, t) = I(X, Y, Z) \cdot e^{-2\left(\frac{t}{\tau/2}\right)^2} \quad (78),$$

où  $\tau$  est la durée totale de l'impulsion.

Compte tenu des expressions précédentes, l'énergie par impulsion s'exprime alors en fonction de l'éclairement par :

$$\xi(Z) = \left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2} \cdot W^2(Z) \cdot \frac{\tau}{2} \cdot I(Z) \quad (79),$$

où il convient de considérer  $W(Z) = W_0$  lorsque le modèle d'onde plane peut s'appliquer.

D'après l'expression (73), les caractéristiques  $W(Z)$  et  $\tau$  aux pulsations fondamentale et de tierce harmonique sont différentes ; nous avons ainsi :

$$\begin{cases} W(Z, 3\omega) = \frac{1}{\sqrt{3}} \cdot W(Z, \omega) \\ \tau(3\omega) = \frac{1}{\sqrt{3}} \cdot \tau(\omega) \end{cases} \quad (80).$$

En combinant (79), écrite pour chaque composante spectrale, et (80), nous sommes à même de réécrire la relation de conversion de fréquences (73) vis-à-vis de l'énergie, soit :

$$\xi(3\omega, Z) = \frac{128 \cdot \frac{\mu_0}{\varepsilon_0}}{9 \cdot \pi \cdot \sqrt{3}} \cdot \frac{T^{(-)}(3\omega) \cdot T^{(-)}(\omega) \cdot T^{(+)^2}(\omega)}{n^{(-)}(3\omega) \cdot n^{(-)}(\omega) \cdot n^{(+)^2}(\omega)} \cdot \left( \frac{\chi_{eff}^{global} \cdot Z}{\lambda_\omega \cdot W^2(Z, \omega) \cdot \tau(\omega)} \right)^2 \cdot \xi_{tot}^3(\omega, Z=0) \quad (81),$$

où les paramètres  $T^{(\pm)}(\omega_i)$  sont les transmissions de Fresnel à l'interface air-cristal aux différentes pulsations et polarisations concernées :

$$T^{(\pm)}(\omega_i) = \frac{4 \cdot n^{(\pm)}(\omega_i)}{(1 + n^{(\pm)}(\omega_i))^2} \quad (82).$$

Le rendement de conversion de fréquences est défini comme le rapport de l'énergie générée à l'énergie incidente, soit :

$$\sigma = \frac{\xi(3\omega)}{\xi(\omega)} \quad (83).$$

Il s'exprime alors en fonction de l'éclairement incident :

$$\sigma = \frac{4 \cdot \frac{\mu_0}{\varepsilon_0}}{9 \cdot \sqrt{3}} \cdot \frac{T^{(-)}(3\omega) \cdot T^{(-)}(\omega) \cdot T^{(+)^2}(\omega)}{n^{(-)}(3\omega) \cdot n^{(-)}(\omega) \cdot n^{(+)^2}(\omega)} \cdot \left( \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{global} \cdot Z}{\lambda_\omega} \right)^2 \cdot I_{tot}^2(\omega, Z=0) \quad (84).$$

## 1.2 Réalisation expérimentale

### 1.2.1 Dispositif

La source est celle décrite au § 2.2 du Chapitre III, et nous utilisons ici le faisceau directement issu du générateur paramétrique. Étant donné les nombreux processus paramétriques qui interviennent dans la génération de ce faisceau, son aspect temporel n'est pas caractérisé avec précision. Nous menons les calculs avec une durée d'impulsion de 14 ps, cette valeur trouvant sa justification plus loin dans ce chapitre. L'énergie maximale disponible par impulsion est proche de 100  $\mu$ J pour une longueur d'onde voisine de 1624 nm. Une lame demi-onde achromatique placée juste derrière la source permet d'ajuster la polarisation correspondant à une THG de type II dans KTP, soit à 30 ° de l'axe ( $Oz$ ) pour une propagation selon l'axe ( $Ox$ ).

Le rayon du faisceau en sortie du générateur paramétrique est voisin de 5 mm, ce qui correspond à un éclairement de l'ordre de 30 MW/cm<sup>2</sup> ; c'est très insuffisant pour nos expériences, et il convient donc de focaliser ce faisceau dans l'échantillon de KTP. Dès lors, deux restrictions sont à considérer :

- l'éclairement au niveau du col du faisceau doit être inférieur au seuil de dommage optique de KTP, qui est de l'ordre de la centaine de GW/cm<sup>2</sup> pour la durée d'impulsion considérée et une longueur d'onde voisine de 1500 nm ([57], 1995) ([53], 2000) ;
- la longueur de Rayleigh doit être supérieure à la longueur du cristal pour pouvoir utiliser les éléments théoriques basés sur le modèle de l'onde plane.

Pour choisir la lentille de focale adaptée, nous avons utilisé une méthode déjà validée lors des premiers essais de THG ([53], 2000) : comme le montre l'expression (81), l'énergie générée sur la troisième harmonique en fonction de la position  $Z$  du cristal varie comme  $W^{-4}(Z)$  et permet grâce à (76) de remonter aux valeurs de  $W_0$  et de  $M^2$ . Le profil relevé avec une lentille de distance focale +300 mm permet d'extraire une valeur du facteur de qualité de cette source à  $M^2 \approx 1.8$  et un rayon au col d'environ  $W_0 = 102 \mu\text{m}$  pour le faisceau fondamental ; l'éclairement maximal correspondant est de l'ordre de 70 GW/cm<sup>2</sup>, et la longueur de Rayleigh associée voisine de 11 mm.

L'échantillon utilisé pour nos expériences est un monocristal de KTP de 3 millimètres de long, taillé dans la direction ( $Ox$ ). La longueur d'interaction est donc bien inférieure à la longueur de Rayleigh, de sorte que l'approximation de l'onde plane peut être assumée lorsque le faisceau est focalisé au centre du cristal. De même, le fait de ne pas prendre en compte la dispersion des vitesses de groupe reste valide : il faudrait 58 mm de cristal pour diminuer la valeur du rendement de moitié ([53], 2000).

Derrière l'échantillon, une lentille de reprise de focale +100 mm permet de collimater à nouveau les faisceaux fondamental et harmonique sortant du cristal ; un filtre interférentiel et un prisme achèvent la séparation des composantes spectrales, la mesure étant enfin réalisée sur les faisceaux relatifs aux harmoniques 2 et 3 par une sonde pyroélectrique Moletron. Toutes les données sont corrigées de la valeur des pertes relatives à la transmission des optiques placées en aval du cristal. Enfin, un prélèvement du faisceau incident en amont de

l'échantillon permet de s'affranchir des fluctuations de puissance de la source. Le schéma expérimental correspondant est donné sur la Figure 24.

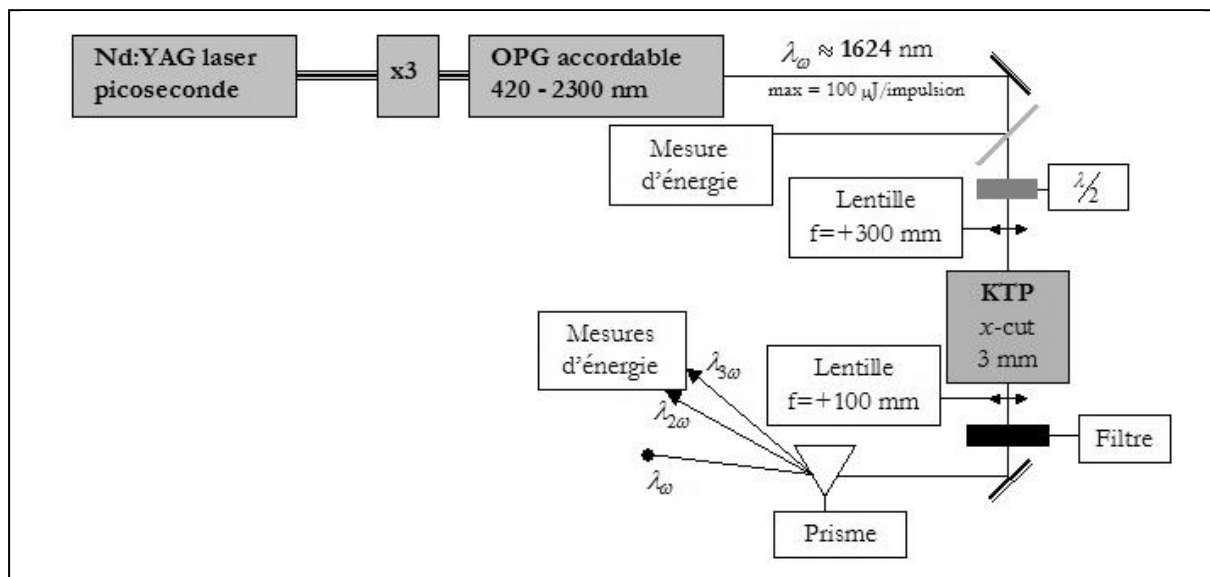


Figure 24 : schéma expérimental de la THG dans KTP.

### 1.2.2 Résultats expérimentaux

L'accordabilité en longueur d'onde de la source est un aspect important pour l'obtention d'un accord de phase parfait. En effet, si la longueur d'onde théorique pour la THG de type II selon la direction ( $Ox$ ) est de 1624 nm, les imprécisions des équations de dispersion utilisées pour le calcul peuvent conduire à un léger écart. Pour obtenir un rendement maximal, il est alors nécessaire d'ajuster finement la longueur d'onde. La Figure 25 montre ainsi l'énergie générée dans le vert pour une longueur d'onde incidente évoluant autour de 1624 nm.

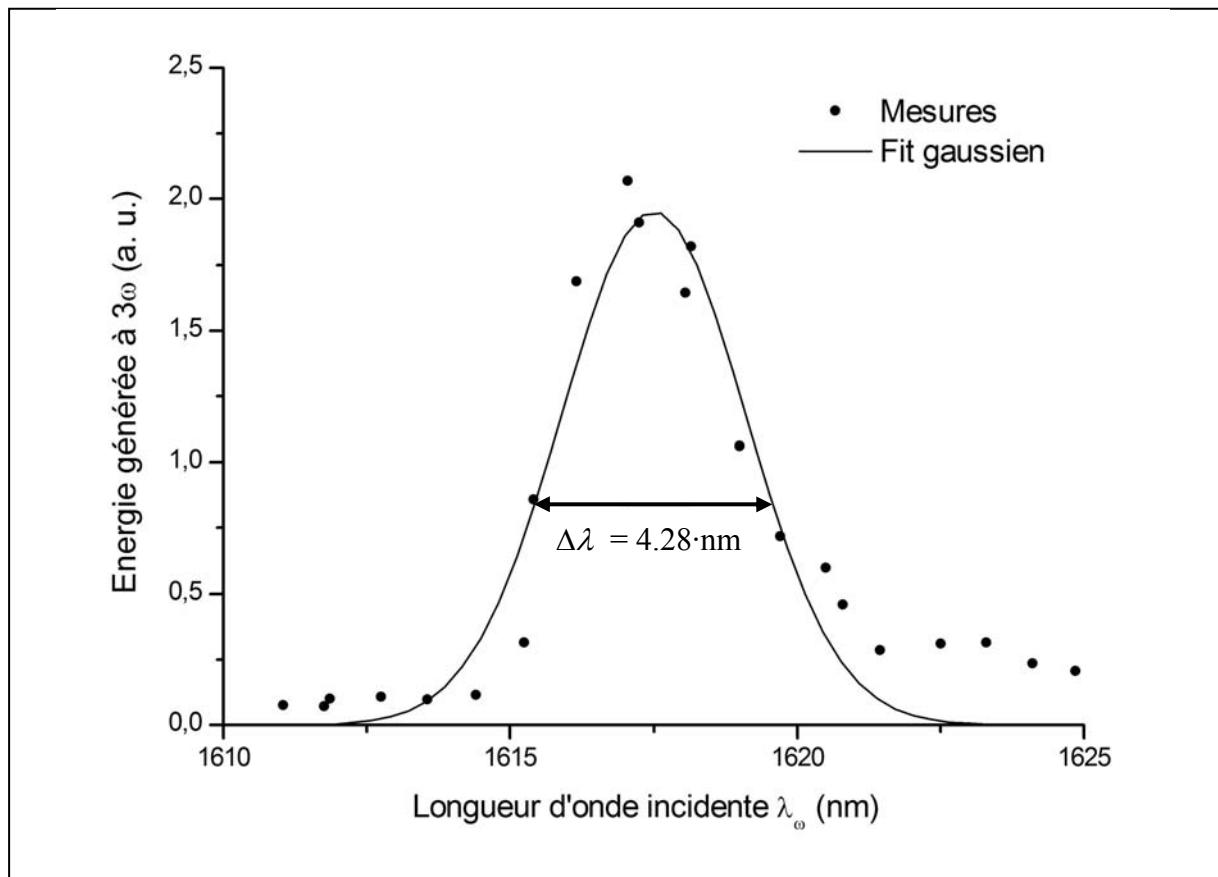


Figure 25 : courbe expérimentale de tolérance spectrale pour la THG de type II selon l'axe ( $Ox$ ) de KTP ; la longueur d'interaction est  $L = 3$  mm.

Le maximum est obtenu pour  $\lambda_\omega = 1617,5$  nm, ce qui est très proche de la valeur théorique ; de plus, en prenant une longueur d'interaction de 3 mm, la tolérance spectrale associée<sup>23</sup> est évaluée à  $L \cdot \Delta\lambda = 1,28$  cm·nm. Ces deux résultats sont en bon accord avec les essais antérieurs réalisés dans le groupe avec d'autres échantillons de KTP ([53], 2000).

Enfin, pour un éclairement incident de 70 GW/cm<sup>2</sup>, c'est-à-dire au maximum des possibilités de la source, la valeur calculée du rendement de conversion de fréquences est d'environ 4,2 %, le taux de cascades étant de 10 % comme indiqué sur la Figure 22.

<sup>23</sup> La tolérance spectrale est la largeur totale de la courbe à 0,405 de son maximum, que multiplie la longueur du cristal.

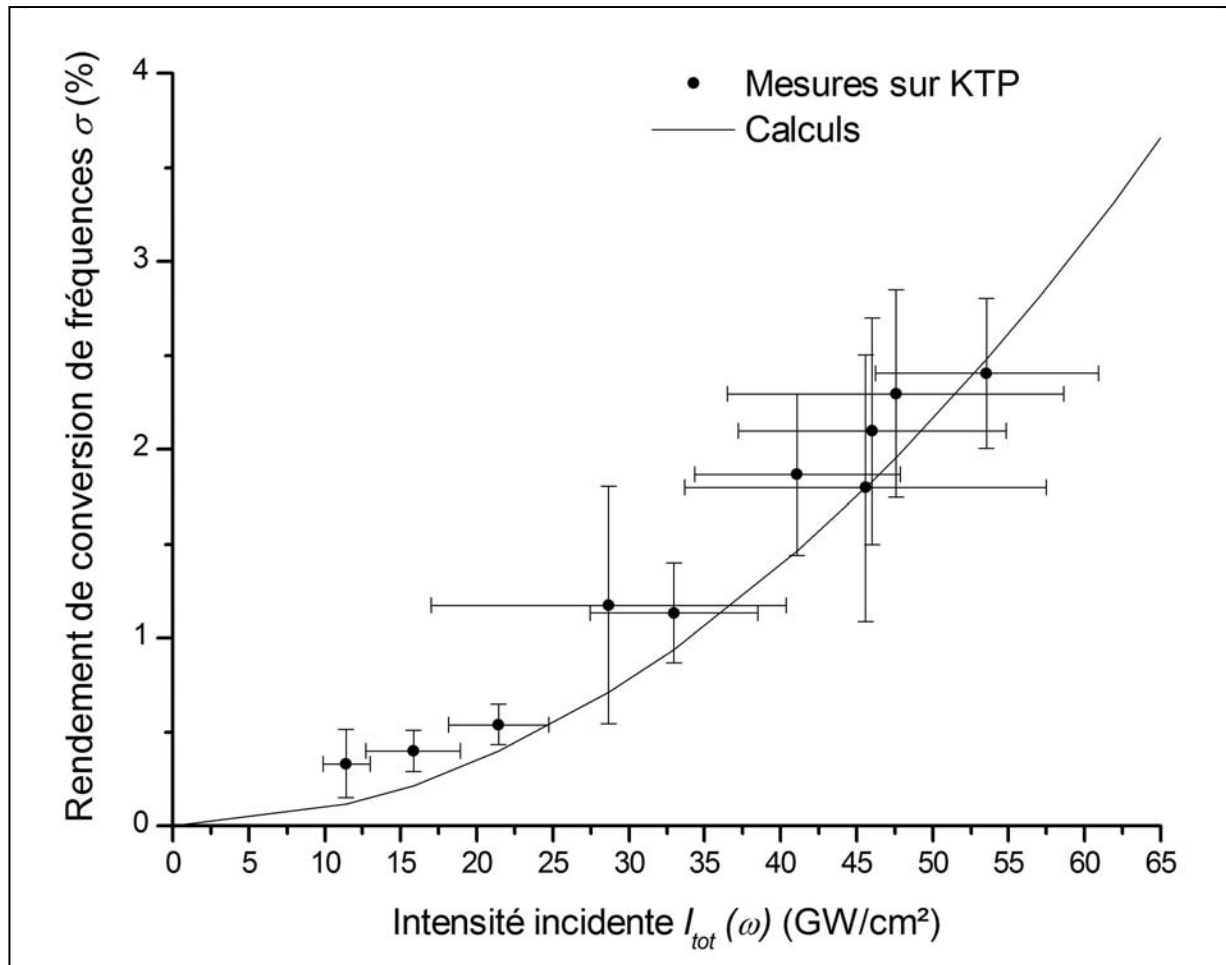


Figure 26 : rendement de conversion de fréquences pour la THG en fonction de l'éclairement incident à la pulsation fondamentale ; les points correspondent aux résultats expérimentaux, et la courbe aux prédictions théoriques données par les équations (81) et (83).

L'allure de la courbe de rendement présentée sur la Figure 26 montre la bonne correspondance entre les résultats expérimentaux, mesurés en terme d'énergie et traduits en éclairements, et les attentes théoriques. Cet accord est optimisé pour une durée d'impulsion du faisceau fondamental fixée à 14 ps, ce qui vient justifier *a posteriori* la valeur choisie au § 1.2.1 précédent.

La valeur maximale de l'éclairement incident est limitée par la détérioration du cristal, qui intervient aux alentours de 55 GW/cm<sup>2</sup>, ce qui est légèrement inférieur à la valeur attendue. Le rendement maximal observé est de 2.4 % ; ce résultat est en parfait accord avec les précédentes tentatives réalisées dans le groupe ([24], 1999) ([53], 2000).

## 2 Etude dans ppKTP

Pour améliorer à la fois la pureté et l'efficacité de l'interaction de THG envisagée, une solution élégante a été proposée dans le groupe en 2001 ([61], 2001) : il s'agit d'utiliser un cristal à domaines ferroélectriques alternés pour rendre inefficaces les interactions d'ordre 2 sans pour autant affecter le processus cubique.

### 2.1 Principe

L'axe polaire de KTP, ( $Oz$ ), peut être renversé par application d'un champ électrique extérieur, cette inversion étant conservée lorsque le champ disparaît. Comme le montre la Figure 27, ce processus inverse le signe des coefficients non linéaires d'ordre 2  $\chi_{24}^{(2)} = \chi_{yyz}^{(2)}$  et  $\chi_{33}^{(2)} = \chi_{zzz}^{(2)}$ , mais laisse invariant le coefficient d'ordre 3  $\chi_{24}^{(3)} = \chi_{yyz}^{(3)}$ , en vertu des explications données au § 5 du Chapitre II. Ces trois coefficients sont ceux qui interviennent lors de la THG de type II selon l'axe ( $Ox$ ) de KTP.

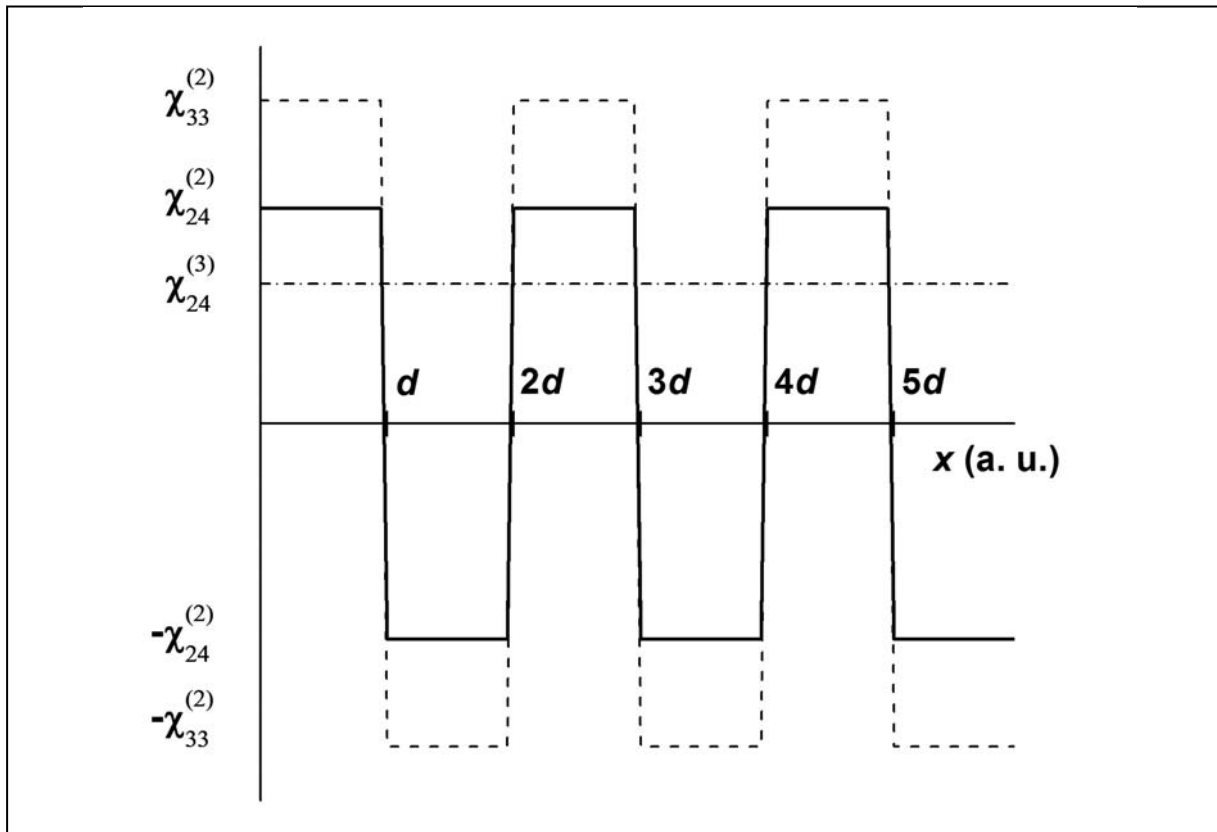


Figure 27 : effet du renversement périodique de l'axe ( $Oz$ ) de KTP sur les coefficients non linéaires impliqués dans la THG de type II selon l'axe ( $Ox$ ) ;  $d$  est le pas d'inversion le long de l'axe de propagation.



Cette opération modifie uniquement le taux de cascades, dont il convient d'étudier la dépendance en fonction du pas d'inversion. La Figure 28 montre cette évolution, et permet de dégager deux zones d'intérêt :

- pour un pas d'inversion d'environ  $37 \mu\text{m}$ , le calcul montre que les deux cascades ont une efficacité similaire, mais sont en opposition de phase l'une par rapport à l'autre ;
- pour les faibles valeurs du pas d'inversion (quelques  $\mu\text{m}$ ), chacun des processus quadratiques est inefficace puisque la longueur d'un domaine est bien inférieure à toutes les longueurs de cohérence :  $l_{c,1} = 14.1 \mu\text{m}$  et  $l_{c,4} = 24.5 \mu\text{m}$ .

Ces deux situations conduisent à un taux de cascades qui est de plusieurs ordres de grandeur inférieur à celui du matériau massif.

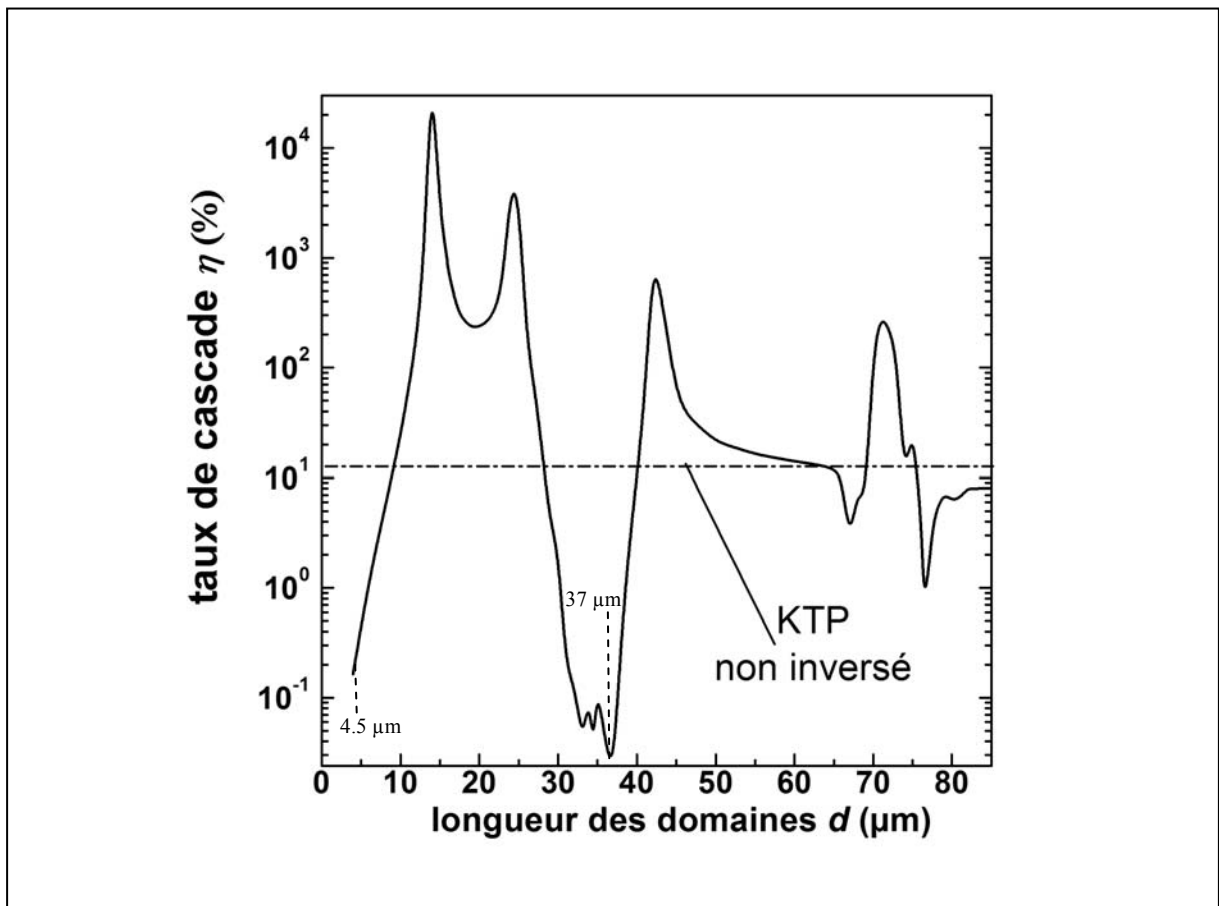


Figure 28 : évolution du taux de cascades en fonction de la longueur des domaines ferroélectriques ; la ligne horizontale correspond au cas de KTP non inversé ([25], 2002).

D'après les équations (69) et (73), et conformément aux courbes de la Figure 21, la suppression des cascades quadratiques doit également conduire à une augmentation du rendement de conversion de fréquences : dans la même configuration expérimentale qu'au paragraphe précédent, mais en prenant cette fois la seule contribution du coefficient effectif d'ordre 3, le rendement maximal devrait passer de 4.2 % à environ 10 % pour un éclairement incident de 70 GW/cm<sup>2</sup> !

## 2.2 Essais expérimentaux

### 2.2.1 Description de l'échantillon

Un échantillon de ppKTP taillé selon ( $Ox$ ) nous a été fourni par l'équipe de F. Laurell du laboratoire KTH à Stockholm dans le cadre d'une collaboration. Le pas d'inversion correspond à un standard pour la SHG à 1064 nm, c'est-à-dire  $d = 4.5 \mu\text{m}$ . L'épaisseur selon ( $Ox$ ) est de 3 mm, ce qui permet une comparaison immédiate avec l'échantillon massif présenté au paragraphe 1.2.1 précédent ; la dimension dans la direction de l'axe polaire est de 1 mm, ce qui constitue déjà une véritable prouesse technologique au regard des ordres de grandeur donnés au § 5 du Chapitre II.

Afin de caractériser l'homogénéité de cet échantillon, nous avons réalisé une cartographie transverse sur la base d'une interaction de SHG à partir d'un laser émettant à 1064 nm. Les résultats, présentés sur la Figure 29, sont plutôt préoccupants puisque de fortes inhomogénéités apparaissent lorsque nous déplaçons l'échantillon selon la direction ( $Oy$ ).

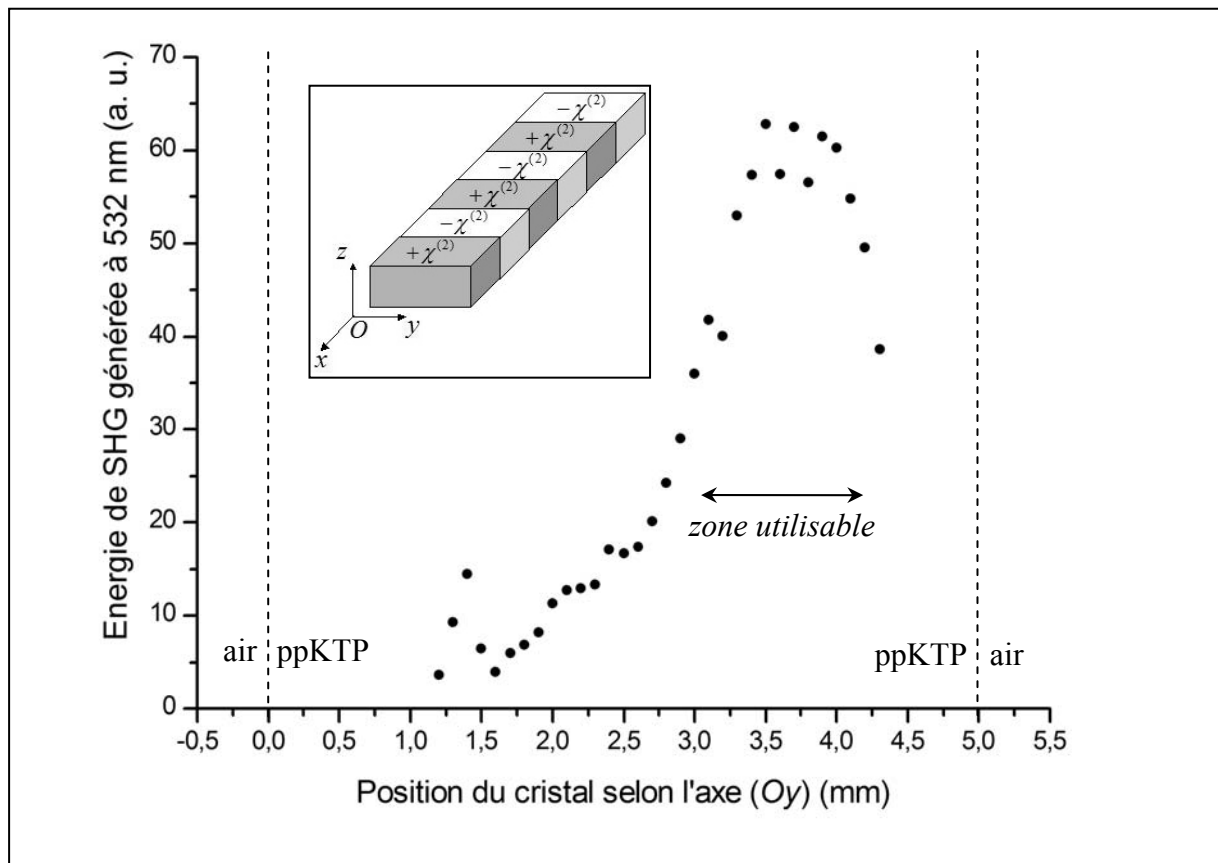


Figure 29 : évolution du rendement de SHG dans l'échantillon de ppKTP en fonction de la position de l'échantillon selon l'axe ( $Oy$ ) ; la dimension de l'échantillon est de 5 mm dans la direction ( $Oy$ ). Une représentation tridimensionnelle de l'échantillon est donnée en médaillon.

Cette cartographie nous permet de sélectionner une fenêtre à peu près homogène, dont la taille est heureusement largement supérieure à celle de nos faisceaux.

### 2.2.2 Effet sur les cascades

Compte tenu du pas d'inversion et de la Figure 28, le taux de cascades doit être réduit de presque deux ordres de grandeur, passant alors de 10 % dans le matériau massif à 0.17 % dans notre échantillon inversé ([25], 2002) ; ainsi, le coefficient non linéaire global pourra raisonnablement être assimilé au coefficient effectif d'ordre 3, et le rendement d'interaction devrait être multiplié par un facteur compris entre 2 et 3 par rapport au cas de KTP.

Pour vérifier l'effet de l'inversion des domaines sur les cascades quadratiques, nous avons mesuré l'éclairement généré à la pulsation intermédiaire qui intervient dans les cascades -c'est-à-dire à  $2\omega$ - en fonction de la longueur d'onde incidente, dans KTP massif d'une part et dans ppKTP d'autre part. L'exemple présenté sur la Figure 30 concerne la composante  $I_{2\omega}^{(-)}$  ;

il va clairement dans le sens d'une diminution sévère de l'efficacité du premier étage de la cascade n°4, et donc d'un amoindrissement de sa contribution globale à la génération de troisième harmonique.

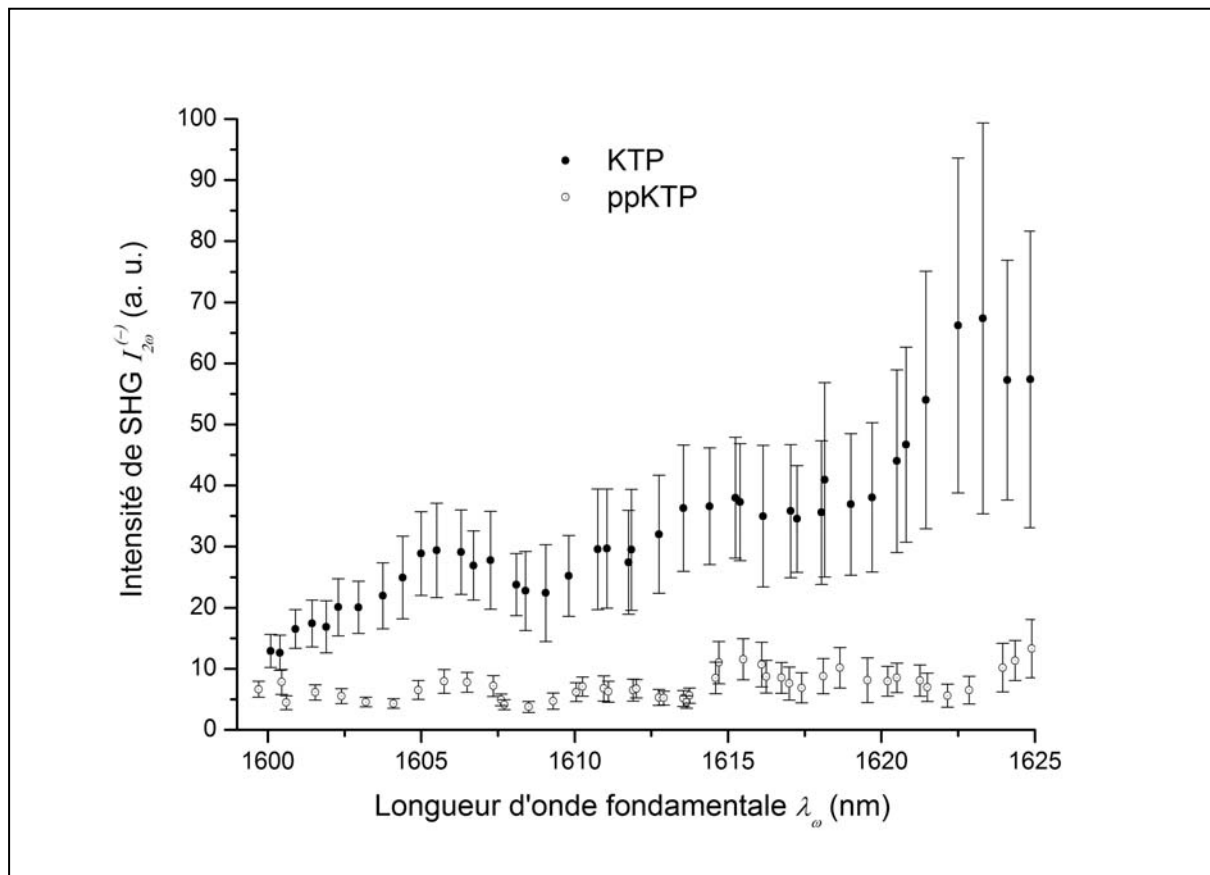


Figure 30 : éclaircissement correspondant à la pulsation intermédiaire mise en jeu dans la cascade n°4 pour une THG selon l'axe ( $Ox$ ) de KTP et ppKTP avec  $d = 4.5 \mu\text{m}$ .

Ces résultats originaux valident la méthode de calcul des effets des cascades, et viennent appuyer une autre méthode de vérification datant de 1999 ([24], 1999).

### 2.2.3 Accord de phase

Comme pour l'échantillon de KTP monocristallin, nous pouvons relever la courbe de tolérance spectrale, donnée sur la Figure 31.

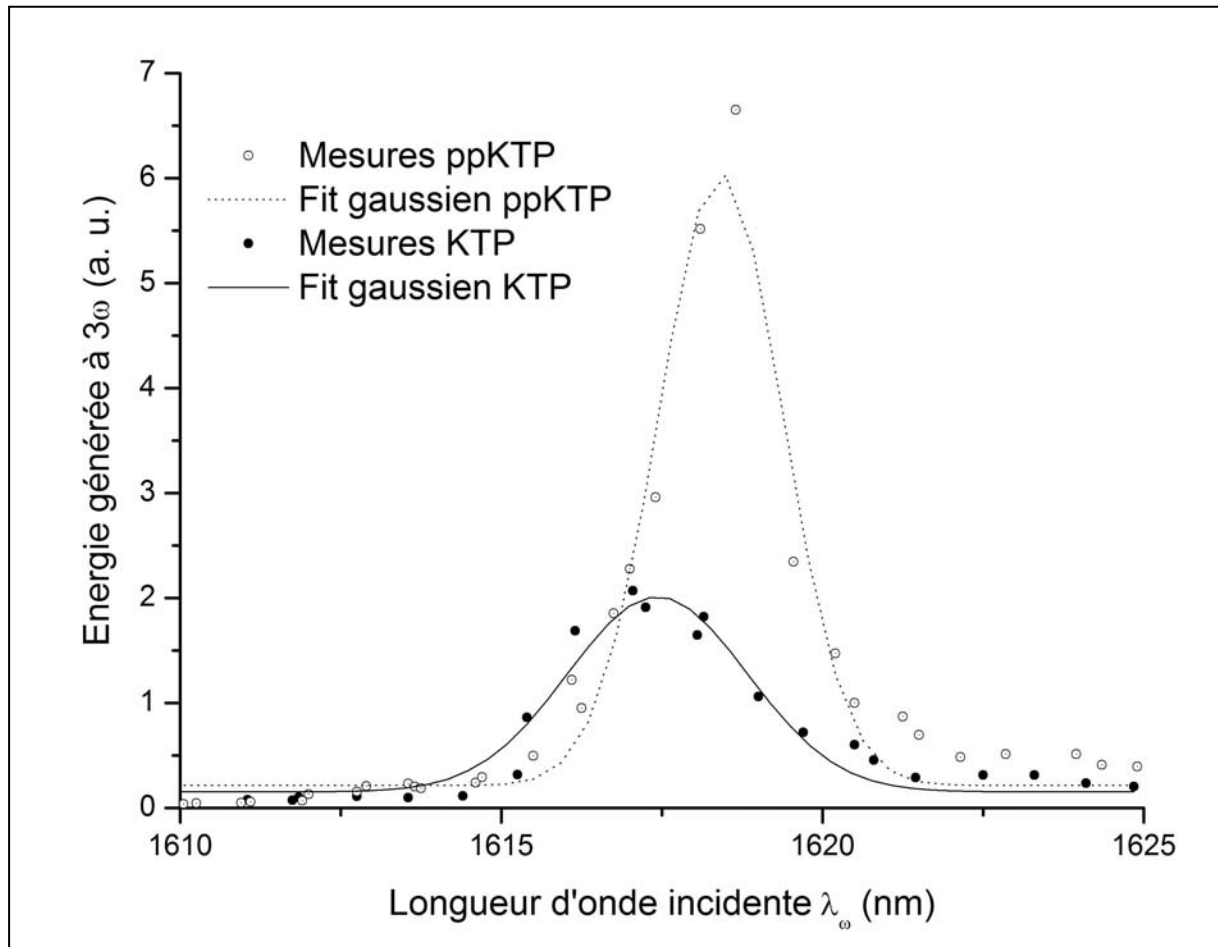


Figure 31 : courbe expérimentale de tolérance spectrale pour la THG de type II selon l'axe ( $Ox$ ) de ppKTP ; la longueur d'interaction vaut  $L = 3$  mm ; comparaison avec les valeurs obtenues pour KTP.

Conformément à nos attentes, les propriétés optiques linéaires sont pour ainsi dire inchangées par l'inversion : l'accord de phase est obtenu pour  $\lambda_\omega = 1618.5$  nm, l'écart avec le matériau massif n'étant donc que de 1 nm ; la tolérance spectrale est du même ordre de grandeur que pour KTP, quoique légèrement inférieure, autour de  $L \cdot \Delta\lambda = 0.8$  cm·nm. Notons que le gain attendu sur le rendement de conversion apparaît déjà, puisque les conditions expérimentales sont identiques pour les deux échantillons.

#### 2.2.4 Rendement d'interaction

Enfin, comme pour l'échantillon massif, nous avons mesuré le rendement de conversion de fréquences en fonction de l'éclairement incident. La comparaison entre KTP et ppKTP est présentée sur la Figure 32, en échelle log-log pour vérifier la similitude entre la dépendance des deux rendements en fonction de l'éclairement incident, cette dépendance devant être quadratique.

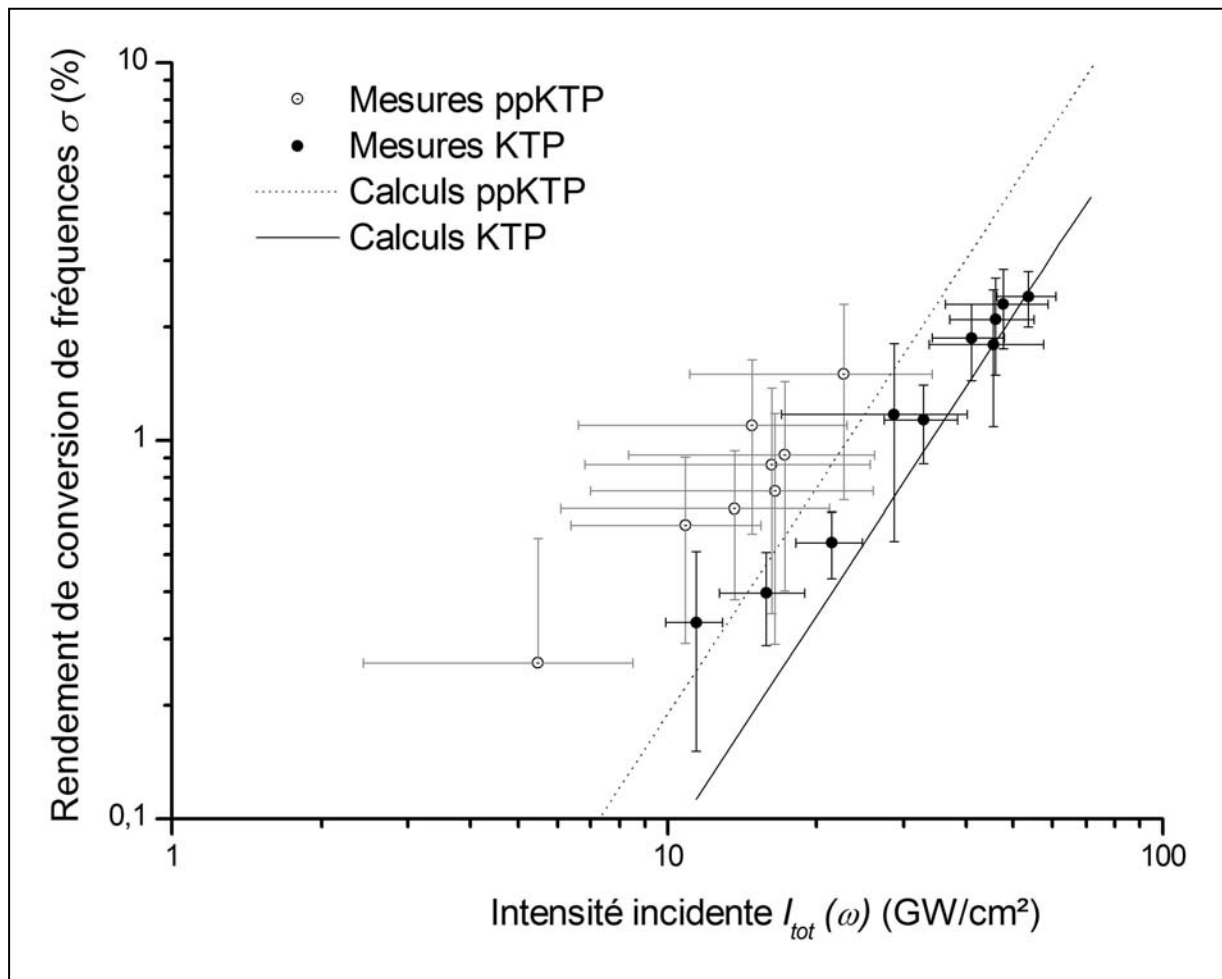


Figure 32 : rendement de conversion de fréquences en fonction de l'éclairement incident à la pulsation fondamentale pour KTP et ppKTP ; les points correspondent aux résultats expérimentaux, et les courbes aux prédictions théoriques données par les équations (79) et (84), avec  $\tau = 14$  ps.

Il apparaît clairement que le rendement d'interaction est supérieur lorsque les cascades ont été annihilées. Cependant, l'échantillon de ppKTP a un seuil de dommage optique inférieur à celui de KTP : l'intensité qui occasionne une détérioration est ainsi ramenée à 23 GW/cm<sup>2</sup>. Le rendement correspondant ne dépasse alors pas 1.5 %, de sorte que les meilleurs résultats restent encore ceux obtenus dans le cristal de KTP massif.

Nous avons également commencé une série de mesures sur un second échantillon de ppKTP, avec un pas d'inversion de 37  $\mu\text{m}$ , afin de tester l'autre stratégie évoquée au § 2.1 précédent, c'est-à-dire placer les deux cascades en opposition de phase. Si les résultats sont encourageants pour de faibles valeurs de l'intensité incidente, le seuil de dommage optique de ce second cristal est encore inférieur à celui du premier échantillon, et il nous a été impossible de tracer une courbe de rendement exploitable.

### 2.3 Perspectives

Cette déception relative à la faible valeur du rendement obtenue doit être abordée avec réserve car la qualité des échantillons inversés est susceptible de s'améliorer. Les inhomogénéités relevées sur notre premier échantillon suggèrent que l'inversion des domaines ne s'est pas réalisée dans les meilleures conditions, ce qui est probablement à corréluer au faible seuil de dommage optique observé. La mauvaise qualité spatiale et notamment les fortes inhomogénéités transverses du faisceau issu de la source utilisée dans nos expériences est certainement aussi une cause de l'endommagement prématuré des échantillons.

L'amélioration des résultats décrits précédemment passe désormais par l'obtention de nouveaux échantillons de ppKTP de meilleure qualité, et par l'utilisation d'une source performante fonctionnant en régime picoseconde et émettant aux alentours de 1618 nm. Nous pourrions alors espérer atteindre des rendements de conversion de fréquences de l'ordre de 10 à 15 %, et commencer l'étude quantique du dégroupement à trois photons.

## Chapitre V – Etude prospective de THG dans les verres de chalcogénure

Il s'agit dans ce chapitre d'explorer un nouvel espace de réalisations potentielles pour des interactions non linéaires cubiques relatives au schéma A, tel que défini au Chapitre II.

Les coefficients non linéaires cubiques des verres de chalcogénure sont plusieurs ordres de grandeur supérieurs à ceux de KTP. Néanmoins, comme les verres sont optiquement isotropes, l'accord de phase classique basé sur la biréfringence est en principe impossible à réaliser. Nous proposons une alternative qui repose sur l'application d'une contrainte mécanique anisotrope à ces verres : il apparaît alors une biréfringence induite par effet élasto-optique qui, si elle est suffisante, doit théoriquement pouvoir conduire à une situation d'accord de phase. L'efficacité des interactions non linéaires ainsi réalisées serait donc bien supérieure, d'autant plus qu'aucune cascade d'interactions quadratiques ne viendrait polluer le processus puisque le verre, même contraint, reste un milieu centrosymétrique. Le domaine de transparence de ces verres, compris approximativement entre 1  $\mu\text{m}$  et 14  $\mu\text{m}$ , constitue cependant une limitation expérimentale importante tant au niveau de la source que des optiques et de la détection.

### 1 Effets d'une contrainte mécanique sur les indices de réfraction

#### 1.1 Cas d'une contrainte quelconque

Prenons le cas le plus général d'une contrainte mécanique, définie par le tenseur de rang 2  $S$ , appliquée sur un matériau caractérisé par un tenseur élasto-optique de rang 4  $P$ . Dans la base  $(x_1, x_2, x_3)$  choisie, l'ellipsoïde des indices qui caractérise les indices de réfraction est alors défini par l'équation suivante ([3], 2003) :

$$\sum_i \left( \frac{x_i}{n} \right)^2 + \sum_{i,j,k,l} (P_{ijkl} \cdot S_{kl} \cdot x_i \cdot x_j) = 1 \quad (85),$$

où  $n$  est l'indice du verre sans contrainte appliquée.



D'un point de vue physique, l'élément du tenseur de contrainte  $S_{ij}$  traduit la déformation dans la direction  $(Oj)$  occasionnée par un effort exercé selon l'axe  $(Oi)$ . Ce tenseur  $S$  est symétrique et ses éléments diagonaux  $S_{ii}$  sont toujours positifs ; de plus, le tenseur élasto-optique d'un matériau isotrope ne possède que trois éléments non nuls ([3], 2003). Le développement de l'expression (85) donne :

$$\begin{aligned} & x_1^2 \cdot \left( \frac{1}{n^2} + P_{11} \cdot S_{11} + P_{12} \cdot (S_{22} + S_{33}) \right) + x_2 \cdot x_3 \cdot \left( \frac{1}{2} \cdot (P_{11} - P_{12}) \cdot S_{23} \right) \\ & + x_2^2 \cdot \left( \frac{1}{n^2} + P_{11} \cdot S_{22} + P_{12} \cdot (S_{11} + S_{33}) \right) + x_1 \cdot x_3 \cdot \left( \frac{1}{2} \cdot (P_{11} - P_{12}) \cdot S_{13} \right) \\ & + x_3^2 \cdot \left( \frac{1}{n^2} + P_{11} \cdot S_{33} + P_{12} \cdot (S_{11} + S_{22}) \right) + x_1 \cdot x_2 \cdot \left( \frac{1}{2} \cdot (P_{11} - P_{12}) \cdot S_{12} \right) = 1 \end{aligned} \quad (86).$$

$P_{11} = P_{1111} = P_{2222} = P_{3333}$  et  $P_{12} = P_{1122} = P_{1133} = P_{2233} = P_{2211} = P_{3322} = P_{3311}$  font référence à la notation contractée conventionnelle.

L'équation (86) correspond à l'expression de l'ellipsoïde des indices d'un matériau biaxe : ainsi le milieu isotrope est devenu anisotrope sous l'effet de la contrainte, et il appartient alors à la classe optique biaxe dans le cas le plus général. Dans le repère optique  $(O, x, y, z)$  qui lui est associé, l'ellipsoïde des indices prend la forme diagonalisée suivante :

$$\frac{x^2}{n_x^2} + \frac{y^2}{n_y^2} + \frac{z^2}{n_z^2} = 1 \quad (87),$$

où  $n_x$ ,  $n_y$  et  $n_z$  sont les indices principaux correspondants tels que définis au Chapitre I.

## 1.2 Cas d'une contrainte uniaxiale

Dans la suite, nous considérons l'application d'une contrainte purement uniaxiale, définie dans la base  $(x_1, x_2, x_3)$  par :

$$S = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & S_{33} \end{bmatrix} \quad (88).$$

L'équation (86) indique alors que le matériau ainsi contraint correspond à un uniaxe, dont la base du repère optique  $(x, y, z)$  s'identifie à  $(x_1, x_2, x_3)$ . Moyennant l'approximation stipulant que l'effet de la contrainte reste faible, ce qui est cohérent avec un régime mécanique élastique, un développement limité conduit aisément aux expressions des indices principaux ordinaire et extraordinaire du milieu contraint :

$$\begin{cases} n_o = n_x = n_y = n - \frac{1}{2} \cdot n^3 \cdot P_{12} \cdot S_{zz} \\ n_e = n_z = n - \frac{1}{2} \cdot n^3 \cdot P_{11} \cdot S_{zz} \end{cases} \quad (89),$$

avec  $S_{zz} = S_{33}$ .

Le comportement observé est donc celui d'un uniaxe positif si  $P_{12} > P_{11}$ , et négatif dans le cas contraire. La biréfringence induite par l'application d'une telle contrainte mécanique lui est proportionnelle, définissant ainsi le coefficient élasto-optique<sup>24</sup> B :

$$\Delta n = |n_e - n_o| = B \cdot S_{zz} \quad (90),$$

avec :

$$B = \frac{1}{2} \cdot n^3 \cdot |P_{11} - P_{12}| \quad (91).$$

En étude préalable, nous considérons le cas du verre commercial AMTIR-1, dont la composition  $\text{Ge}_{33}\text{As}_{12}\text{Se}_{55}$  est proche de celles des verres qui nous intéressent, et dont les propriétés optiques sont bien connues : l'indice de réfraction au repos est  $n = 2.5$  pour  $\lambda = 10 \mu\text{m}$ , et les valeurs des éléments du tenseur élasto-optique sont  $P_{11} = -P_{12} = 0.21 \text{ TPa}^{-1}$  ([3], 2003), ce qui correspond à un comportement uniaxe négatif. La valeur du coefficient élasto-optique obtenue est alors  $B = 3.28 \text{ TPa}^{-1}$  : ainsi, une contrainte de l'ordre de la tonne/cm<sup>2</sup> induit une biréfringence de  $3.28 \cdot 10^{-4}$ . La recherche de matériaux ayant un coefficient élasto-optique important est donc primordiale pour limiter l'intensité de la contrainte à appliquer en vue de compenser la dispersion, et obtenir ainsi un accord de phase. Notons que cette valeur est en parfait accord avec des mesures effectuées sur des matériaux de compositions voisines ([62], 1994) :  $B = 2.6 \text{ TPa}^{-1}$  pour le verre  $\text{Ge}_{30}\text{As}_{10}\text{Se}_{60}$  et  $B = 5.7 \text{ TPa}^{-1}$  pour  $\text{Ge}_{30}\text{As}_{20}\text{Se}_{50}$ .

<sup>24</sup> Les termes anglo-saxons consacrés sont « stress-optic coefficient » ou « strain-optic coefficient ».

## 2 Etude de la THG

L'étude de la génération de tierce harmonique est illustrée en considérant le verre AMTIR-1.

### 2.1 Accord de phase

L'application d'une contrainte mécanique uniaxiale ayant induit une biréfringence, nous pouvons désormais envisager d'utiliser celle-ci pour réaliser une interaction non linéaire en accord de phase. Nous étudions ici le cas simple de la génération de tierce harmonique :  $\omega + \omega + \omega \rightarrow 3\omega$ .

Prenons l'exemple qui correspond aux expériences que nous souhaitons réaliser, à savoir le cas d'une contrainte appliquée en compression, et d'un matériau pour lequel  $P_{11} > P_{12}$ . Les différentes configurations d'accord de phase sont données par le système (52), avec  $n^{(+)} = n_o$  et  $n^{(-)} = n_e$  puisque notre situation correspond au cas d'un uniaxe négatif. La direction de propagation est naturellement choisie dans le plan équatorial pour maximiser la biréfringence et profiter de l'absence de double réfraction. Nous pouvons alors calculer la contrainte qu'il faut appliquer pour réaliser l'accord de phase ; pour la THG de type I par exemple, compte tenu de (89), la relation d'accord de phase s'écrit :

$$3\omega \cdot \left( n(3\omega) - \frac{1}{2} \cdot n^3(3\omega) \right) \cdot P_{11} \cdot S_{zz}^{Type I} = 3 \cdot \omega \cdot \left( n(\omega) - \frac{1}{2} \cdot n^3(\omega) \right) \cdot P_{12} \cdot S_{zz}^{Type I} \quad (92).$$

Nous pouvons déduire de (92) l'expression de la contrainte nécessaire à l'obtention de l'accord de phase, soit :

$$S_{zz}^{Type I} = \frac{2 \cdot (n(3\omega) - n(\omega))}{P_{11} \cdot n^3(3\omega) - P_{12} \cdot n^3(\omega)} \quad (93).$$

En suivant la même méthode, nous obtenons aussi les expressions des contraintes permettant de vérifier les conditions d'accord de phase de types II et III, qui s'écrivent :

$$\begin{cases} S_{zz}^{Type II} = \frac{2 \cdot (n(3\omega) - n(\omega))}{P_{11} \cdot n^3(3\omega) - \frac{P_{11} + 2 \cdot P_{12}}{3} \cdot n^3(\omega)} \\ S_{zz}^{Type III} = \frac{2 \cdot (n(3\omega) - n(\omega))}{P_{11} \cdot n^3(3\omega) - \frac{2 \cdot P_{11} + P_{12}}{3} \cdot n^3(\omega)} \end{cases} \quad (94).$$

Dans le cas d'un matériau contraint ayant le comportement d'un uniaxe positif, les expressions correspondantes s'obtiennent en permutant simplement les éléments  $P_{11}$  et  $P_{12}$  dans (93) et (94).

Pour calculer les valeurs de ces contraintes, les expressions (93) et (94) montrent qu'il est nécessaire de connaître la dispersion de l'indice de réfraction. Nous proposons de choisir à nouveau le matériau AMTIR-1 pour illustrer ces calculs ; en effet, de nombreuses mesures d'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde sont disponibles<sup>25</sup>. Nous pouvons alors à partir de ces données déterminer une équation de dispersion fiable pour ce matériau ; une interpolation satisfaisante est obtenue avec une équation du type :

$$n^2(\lambda) = a - b \cdot \lambda^2 + \frac{c}{\lambda^2 - d} \quad (95).$$

Pour  $\lambda$  exprimé en  $\mu\text{m}$ , les valeurs des paramètres sont :

$$\begin{cases} a = 6.31232 \\ b = 7.80344 \cdot 10^{-4} \\ c = 3.51329 \cdot 10^{-1} \\ d = 2.82438 \cdot 10^{-1} \end{cases} \quad (96).$$

Le graphe correspondant est tracé sur la Figure 33.

---

<sup>25</sup> Par exemple sur le site dédié : <http://www.amorphousmaterials.com>.

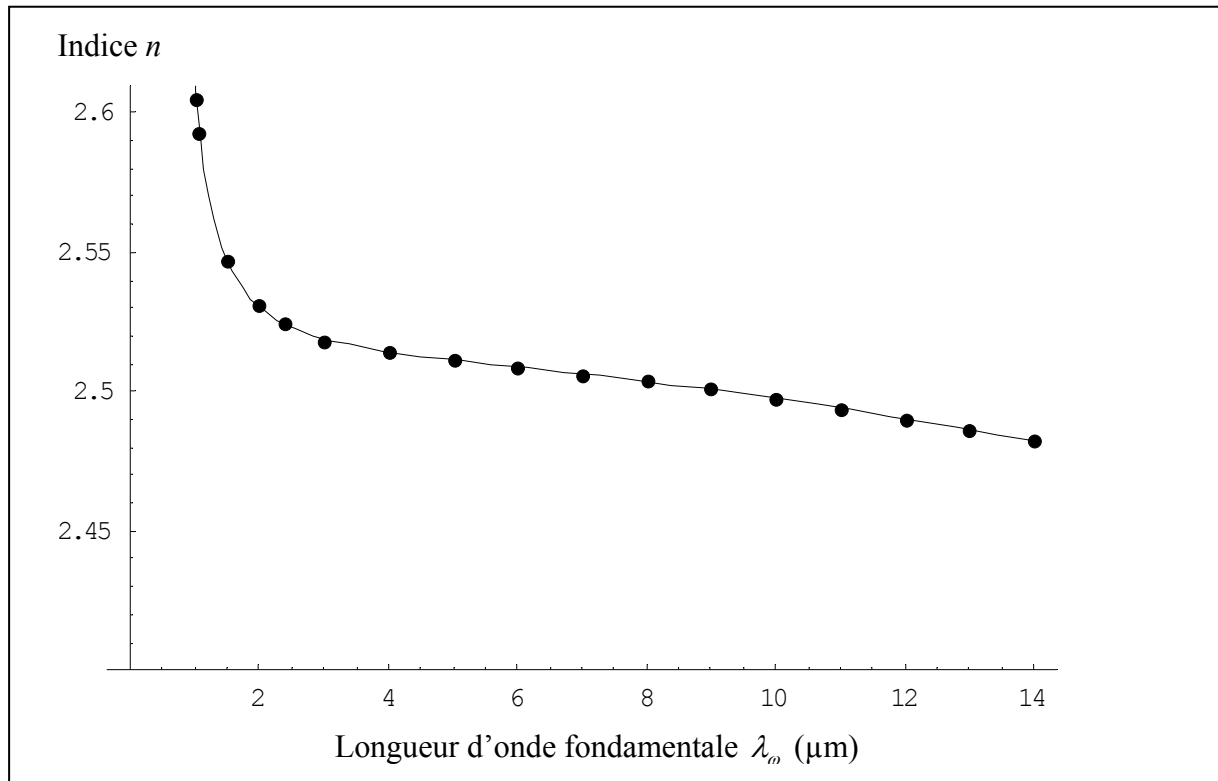


Figure 33 : dispersion de l'indice de réfraction du verre AMTIR-1 ; les points correspondent aux mesures, la courbe aux calculs d'après (95) et (96).

Cette détermination de la dispersion nous permet alors d'étudier la dépendance de la contrainte nécessaire à l'obtention de l'accord de phase pour la THG en fonction de la longueur d'onde fondamentale ; les résultats sont présentés sur la Figure 34.

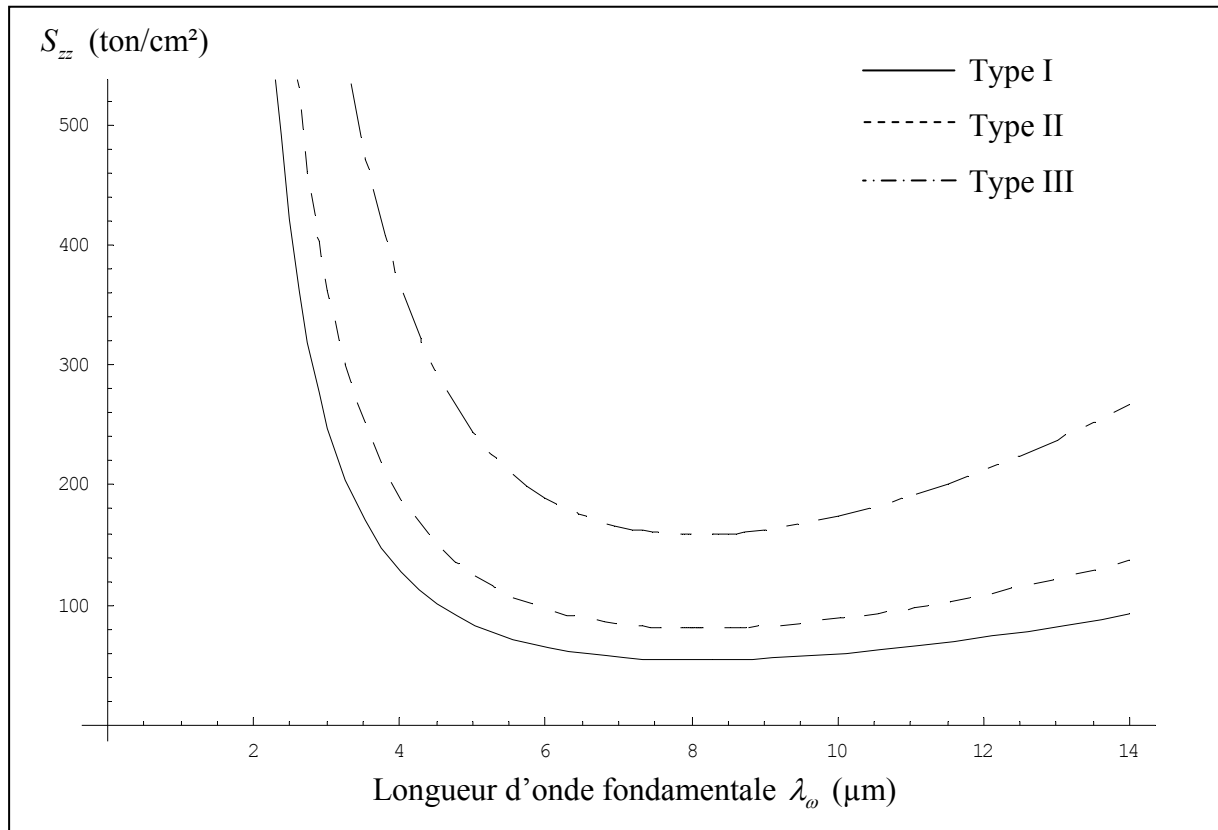


Figure 34 : contrainte permettant l'accord de phase pour la THG dans AMTIR-1 en fonction de la longueur d'onde fondamentale.

Il apparaît une longueur d'onde optimale,  $\lambda_{\omega,opt} \approx 8 \mu\text{m}$ , pour laquelle la contrainte à appliquer est minimale, et ce quelle que soit la configuration de polarisation considérée. Pour cette longueur d'onde, les valeurs des contraintes que nous calculons sont :

$$\begin{cases} S_{zz}^{Type I} = 54 \text{ ton/cm}^2 \\ S_{zz}^{Type II} = 80 \text{ ton/cm}^2 \\ S_{zz}^{Type III} = 158 \text{ ton/cm}^2 \end{cases} \quad (97).$$

Ces valeurs sont naturellement très élevées, et certainement supérieures à la limite de rupture mécanique du verre considéré ; elles illustrent la difficulté d'une telle réalisation. D'autres compositions de verres peuvent toutefois offrir des situations plus accessibles.

## 2.2 Rendement d'interaction

Bien que ces verres soient isotropes, le tenseur de susceptibilité optique non linéaire cubique n'est cependant pas un scalaire. Ainsi, dans le cas d'une contrainte uniaxiale, l'expression de

ce tenseur est similaire à celle correspondant à un matériau hexagonal, qui est donnée dans le Tableau 3 ([12], 1990). De plus, dans le plan équatorial du verre contraint, les coefficients effectifs associés aux différents types d'accord de phase se calculent aisément :

$$\begin{cases} \chi^{(3), Type I} = 0 \\ \chi^{(3), Type II} = \chi_{eff}^{(3)} \\ \chi^{(3), Type III} = 0 \end{cases} \quad (98).$$

C'est donc avec une interaction de type II que nous illustrerons désormais le propos. En assumant l'hypothèse de la pompe non dépeuplée, l'éclairement généré par une somme de fréquences cubique est donné par (47) ; dans le cas de la THG de type II sans double réfraction, l'éclairement généré s'écrit :

$$I(3\omega, Z) = \frac{4 \cdot \frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \cdot \left( \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)} \cdot Z}{\lambda_\omega} \right)^2 \cdot \left( \frac{\sin\left(\frac{\Delta k \cdot Z}{2}\right)}{\frac{\Delta k \cdot Z}{2}} \right)^2}{3 \cdot n^{(-)}(3\omega) \cdot n^{(-)}(\omega) \cdot n^{(+)^2}(\omega)} \cdot I_{tot}^3(\omega, Z=0) \quad (99),$$

où  $I_{tot}(\omega)$  est l'éclairement total incident à la pulsation fondamentale. En se basant sur l'expression (84), le rendement de conversion de fréquences en accord de phase peut s'exprimer ici par :

$$\sigma = \frac{4 \cdot \frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \cdot T^{(-)}(3\omega) \cdot T^{(-)}(\omega) \cdot T^{(+)^2}(\omega)}{9 \cdot \sqrt{3} \cdot n^{(-)}(3\omega) \cdot n^{(-)}(\omega) \cdot n^{(+)^2}(\omega)} \cdot \left( \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)} \cdot Z}{\lambda_\omega} \right)^2 \cdot I_{tot}^2(\omega, Z=0) \quad (100).$$

L'expression (100) montre tout l'intérêt qu'il y a à considérer les verres de chalcogénure, pour lesquels le produit  $\chi_{eff}^{(3)} \cdot Z$  peut être bien plus grand que dans le cas des oxydes. Les méthodes de synthèse autorisent la production d'échantillons de verres de chalcogénure de grande longueur, typiquement plusieurs centimètres, alors qu'il est déjà difficile d'obtenir des cristaux de KTP de plus de quelques millimètres de long. De plus, les coefficients non linéaires cubiques des verres de chalcogénure sont 3 ordres de grandeur supérieurs à ceux de KTP ([63], 2000). Cependant, les indices de réfraction des verres et les longueurs d'onde impliquées sont bien supérieurs au cas des oxydes, et le seuil de dommage optique est méconnu, de sorte qu'il n'est pas évident de comparer directement les deux matériaux. Nous proposons malgré tout de faire un parallèle en considérant les deux situations réalistes suivantes :

- l'une concerne KTP dans le cadre de la THG de type II étudiée au Chapitre IV ; pour un éclaircissement incident de 55 GW/cm<sup>2</sup> et une longueur de cristal de 3 mm, le rendement de conversion de fréquences donné par (84) est de l'ordre de quelques pourcents ;
- l'autre est relative à une THG de type II dans un verre de chalcogénure de coefficient effectif cubique valant 10<sup>-18</sup> V<sup>2</sup>/m<sup>2</sup>, en accord de phase sous contrainte pour une longueur d'onde fondamentale de 8 μm ; pour un éclaircissement incident de seulement 150 MW/cm<sup>2</sup> et une longueur d'interaction de 30 mm, le rendement de conversion de fréquence donné par (100) est aussi de l'ordre de quelques pourcent.

Nous voyons ainsi que si le seuil de dommage optique du verre l'autorise, une plus forte intensité incidente permettrait d'atteindre des valeurs de rendement de conversion de fréquences bien supérieures à celles obtenues dans KTP ; mais ces espérances sont bien entendu conditionnées par le fait que le verre considéré résiste à la contrainte requise.

### 2.3 Etude hors accord de phase

Si l'accord de phase ne peut être réalisé parfaitement, le désaccord de phase est non nul et dépend de la contrainte appliquée. Pour une interaction de type II, il s'écrit :

$$\Delta k = n^{(-)}(3\omega) \cdot \frac{3\omega}{c} - \left( n^{(-)}(\omega) + 2n^{(+)}(\omega) \right) \cdot \frac{\omega}{c} \quad (101),$$

ce qui donne d'après les expressions (89) :

$$\Delta k = \left( n(3\omega) - \frac{1}{2} \cdot n^3(3\omega) \cdot P_{11} \cdot S_{zz}'' \right) \cdot \frac{3\omega}{c} - \left( 3 \cdot n(\omega) - \frac{1}{2} \cdot n^3(\omega) \cdot (P_{11} + 2P_{12}) \cdot S_{zz}'' \right) \cdot \frac{\omega}{c} \quad (102).$$

Compte tenu de (99) et (102), nous avons calculé l'évolution de l'éclaircissement généré au voisinage de la contrainte d'accord de phase dans le verre AMTIR-1 pour une longueur d'interaction de 3 cm, un coefficient effectif non linéaire d'ordre 3 égal à 10<sup>-18</sup> m<sup>2</sup>/V<sup>2</sup>, et une intensité de pompe de 150 MW/cm<sup>2</sup> à la longueur d'onde optimale de 8 μm ; le résultat est présenté sur la Figure 35.



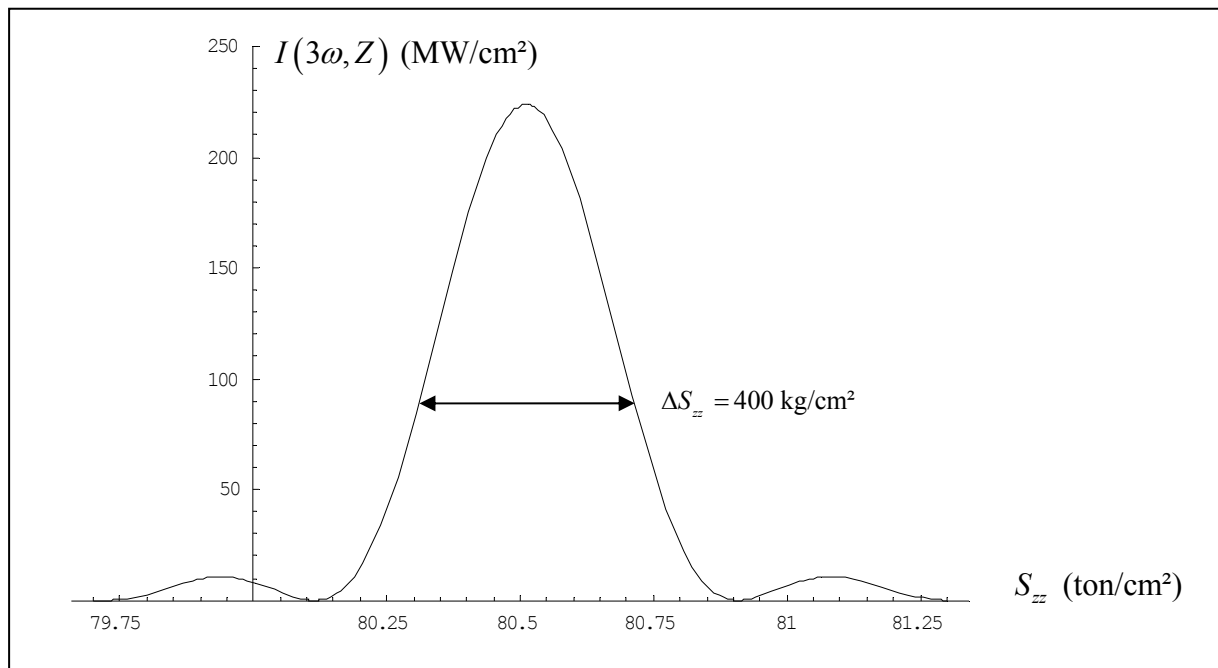


Figure 35 : évolution de l'éclairement de troisième harmonique généré dans AMTIR-1 en fonction de la contrainte appliquée, au voisinage de l'accord de phase pour la THG de type II.

Comme pour la tolérance spectrale, nous pouvons définir une tolérance en contrainte comme la largeur totale prise à 0.405 du maximum de la courbe tracée sur la Figure 35, multipliée par la longueur d'interaction. Pour la THG de type II, nous obtenons ainsi :

$$L \cdot \Delta S_{zz}'' = 1.2 \text{ ton/cm} \quad (103).$$

Ce résultat souligne une autre difficulté expérimentale : outre les fortes valeurs de contraintes à appliquer pour obtenir un accord de phase, ces contraintes doivent être appliquées avec une précision remarquable, de l'ordre de 2 à 3 ‰ !

Etudions désormais une situation réaliste qui serait franchement loin de l'accord de phase, aux faibles compressions. L'éclairement généré est alors une fonction oscillante de la contrainte appliquée, comme en témoigne la Figure 36 qui est tracée pour des conditions similaires à celles de la figure précédente.

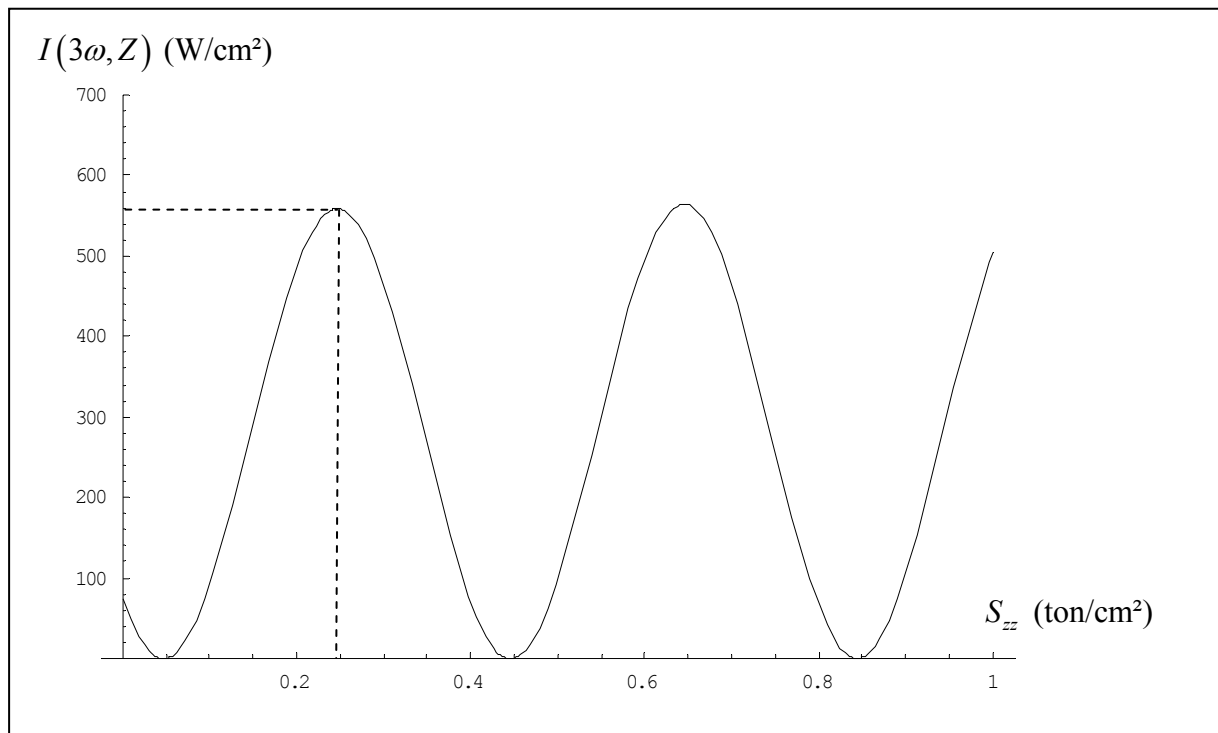


Figure 36 : évolution de l'éclairement généré par une THG de type II dans AMTIR-1 pour de faibles valeurs de la contrainte appliquée.

Sans vouloir atteindre l'accord de phase, l'application d'une contrainte plus modeste doit néanmoins permettre de se placer sur un maximum de cette fonction oscillante. Avec un éclairement de pompe de  $10 \text{ GW/cm}^2$ , la forte non-linéarité permettrait alors d'obtenir un rendement du même ordre de grandeur que pour la THG étudiée dans KTP.

### 3 Caractérisation de quelques matériaux potentiels

#### 3.1 Choix des échantillons

L'élément de base des verres de chalcogénure est le Sélénium ; bien d'autres composants peuvent être ajoutés en proportions variées. Pour la réalisation d'interactions optiques non linéaires, les meilleurs candidats correspondent à une adjonction d'Arsenic et de Germanium. Il existe quelques références bibliographiques relatives aux études élasto-optiques des verres de chalcogénure de composition générique Ge-As-Se ([62], 1994). Parmi les nombreuses compositions testées dans ces études, nous en avons retenu trois dont les coefficients élasto-optiques s'annonçaient prometteurs :  $\text{GeSe}_4$ ,  $\text{GeAsSe}_8$ , et  $\text{AsSe}_4$ . Nous avons alors travaillé sur des échantillons synthétisés par F. Smektala au Laboratoire Verres et Céramique de Rennes dans le cadre d'une collaboration. Ils se présentent sous la forme de cylindres

d'environ 1 cm de diamètre et 3 cm de long, sur lesquels ont été usinés deux méplats pour permettre l'application de la contrainte. Une photographie de l'échantillon de GeSe<sub>4</sub> est présentée sur la Figure 37.

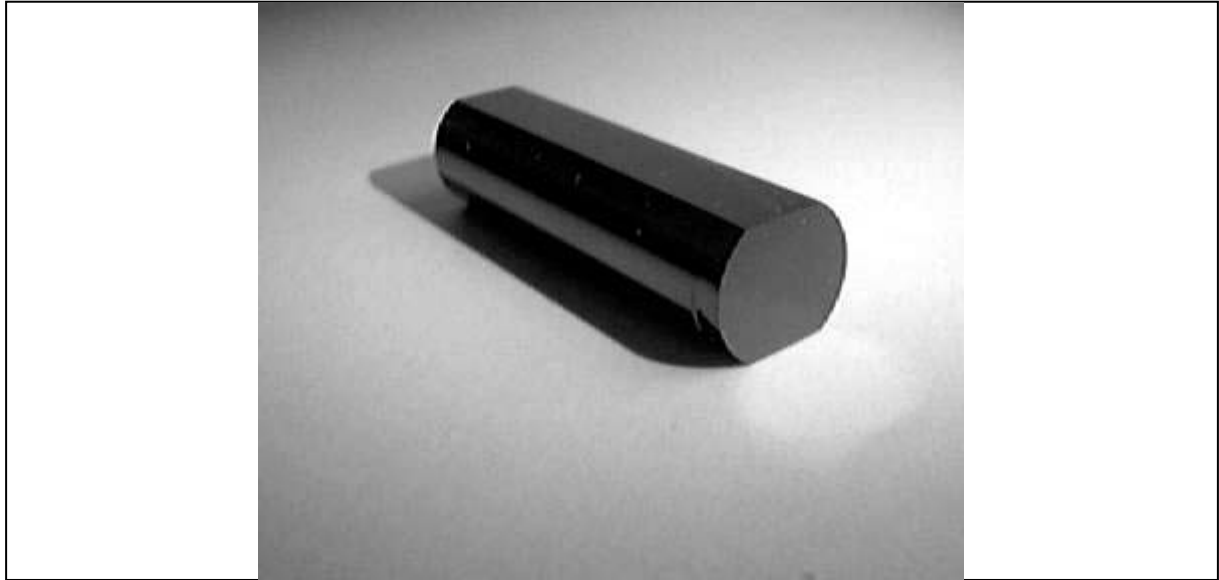


Figure 37 : photographie de l'échantillon de GeSe<sub>4</sub>.

### 3.2 Etude de la contrainte

Il est important d'étudier la répartition de la contrainte au sein du matériau lorsqu'un effort est appliqué sur les méplats. Cette étude a été réalisée à Grenoble avec l'aide du Laboratoire Sols, Solides et Structures de l'Université Joseph Fourier, sur le logiciel de modélisation par éléments finis ANSYS. Un maillage du volume a d'abord été réalisé, puis l'effort a été traduit par un abaissement de 8  $\mu\text{m}$  du méplat supérieur, soit 2‰ par rapport à la dimension originale ; nous restons ainsi dans un régime mécanique élastique. La Figure 38 présente le maillage déformé par l'effort, qui a été exagéré pour permettre une meilleure visualisation.

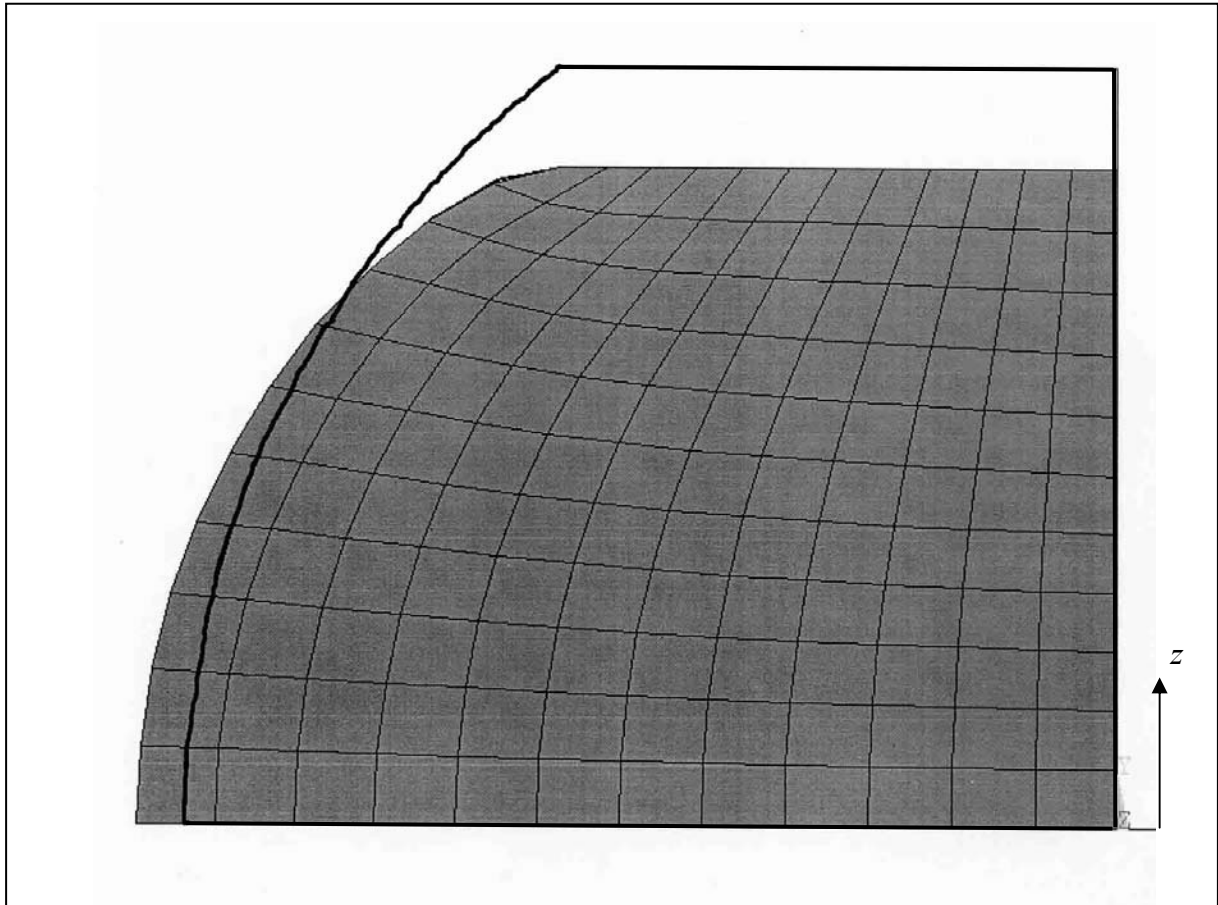


Figure 38 : géométrie et maillage de l'échantillon déformé par l'effort appliqué ; en gras, la géométrie au repos.

Les coefficients de Poisson et d'Young étant inconnus pour ces verres, nous avons utilisé les valeurs correspondant à la silice. Les différentes composantes de la contrainte au sein du matériau ont alors été calculées. Nous retrouvons bien le fait que la contrainte est principalement uniaxiale : les autres contraintes principales  $S_{yy}$  et  $S_{xx}$  sont dix fois inférieures à  $S_{zz}$ , et les contraintes croisées  $S_{ij, i \neq j}$  sont plus faibles d'encore un ordre de grandeur. La coupe présentée sur la Figure 39 traduit la bonne homogénéité de la contrainte dans tout le volume compris entre les deux méplats, tant transversalement que longitudinalement.

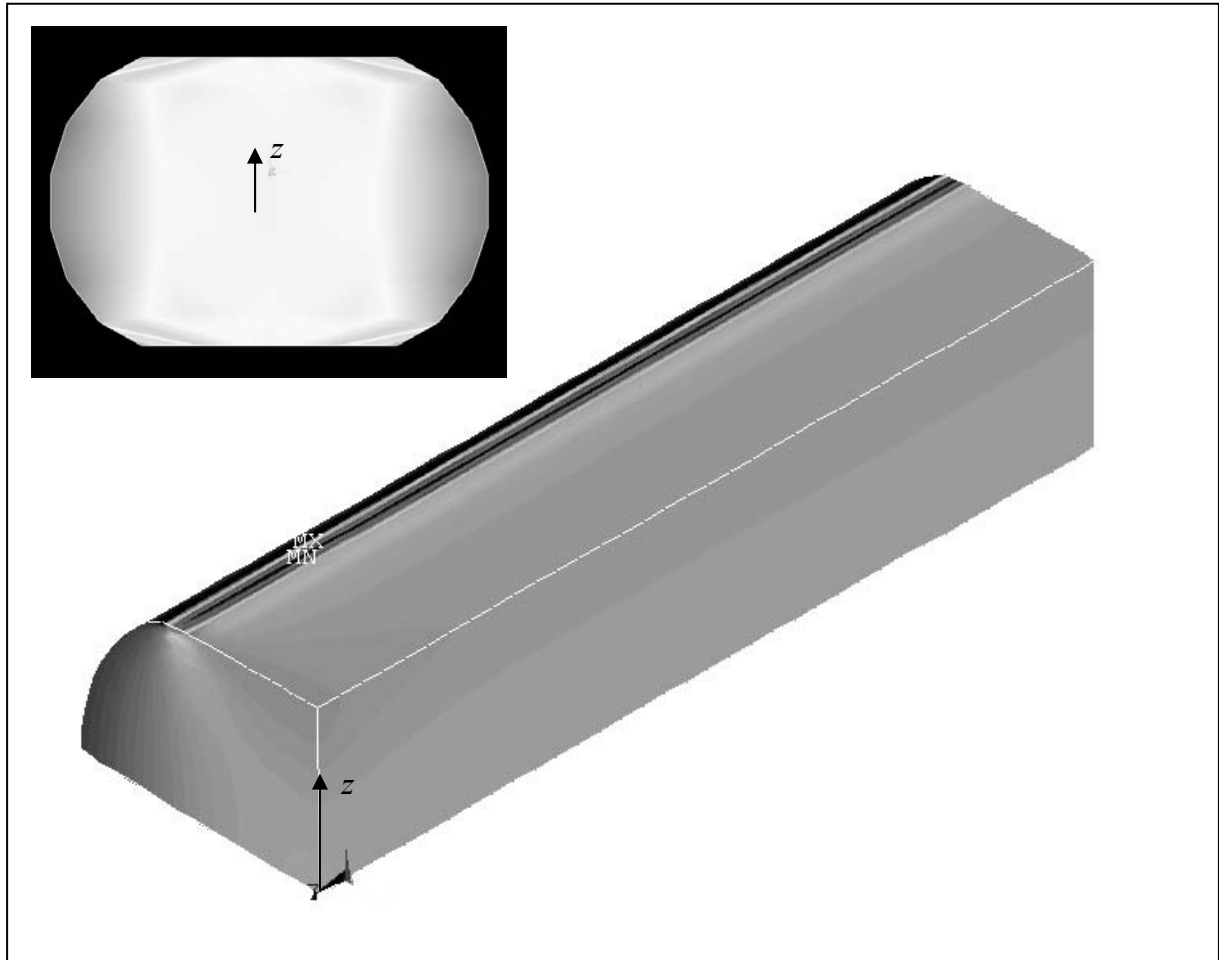


Figure 39 : homogénéité de la contrainte  $S_{zz}$  dans l'échantillon, dont la valeur est traduite en niveau de gris ; en médaillon une coupe en milieu d'échantillon, en couleurs inversées.

### 3.3 Equations de dispersion

A l'aide des mesures de la dispersion en longueur d'onde des indices de réfraction qui sont disponibles dans la littérature ([64], 1978), nous avons déterminé pour chacun des matériaux étudiés une équation de Sellmeier fiable, en suivant la même méthode que celle donnée dans le cas du verre AMTIR-1, et décrite au § 2.1 précédent. Les équations correspondantes sont choisies sous la même forme que (95), et les coefficients obtenus sont résumés dans le Tableau 6. N'ayant pas trouvé de mesures relatives au verre de composition  $\text{Ge}_{10}\text{As}_{10}\text{Se}_{80}$ , nous avons choisi de mener les calculs avec des données correspondant à un verre de composition voisine :  $\text{Ge}_{20}\text{As}_{20}\text{Se}_{60}$ .

	GeSe <sub>4</sub>	GeAsSe <sub>3</sub>	AsSe <sub>4</sub>
<i>a</i>	5.82102	6.61161	6.30148
<i>b</i>	$5.12686 \cdot 10^{-4}$	$6.99077 \cdot 10^{-4}$	$2.77383 \cdot 10^{-1}$
<i>c</i>	$3.25195 \cdot 10^{-1}$	$3.63352 \cdot 10^{-1}$	$4.73424 \cdot 10^{-1}$
<i>d</i>	$1.79964 \cdot 10^{-1}$	$1.95354 \cdot 10^{-1}$	$1.90546 \cdot 10^{-1}$

Tableau 6 : coefficients des équations de Sellmeier pour les verres GeSe<sub>4</sub>, GeAsSe<sub>3</sub> et AsSe<sub>4</sub>.

### 3.4 Mesures de coefficients élasto-optiques

Pour pouvoir calculer les contraintes nécessaires à l'obtention d'un accord de phase, il faut connaître non seulement la dispersion des indices de réfraction en fonction de la longueur d'onde, mais aussi les coefficients élasto-optiques.

Nous avons pour cela procédé à des mesures d'ellipsométrie en appliquant de très faibles compressions aux échantillons. Les calculs développés au § 3.2 précédent sont donc valides, et la contrainte sera considérée comme uniaxiale et constante dans la zone comprise entre les deux méplats, et dont les dimensions sont bien supérieures à celles des faisceaux utilisés lors des expériences. Le principe expérimental est décrit sur la Figure 40.

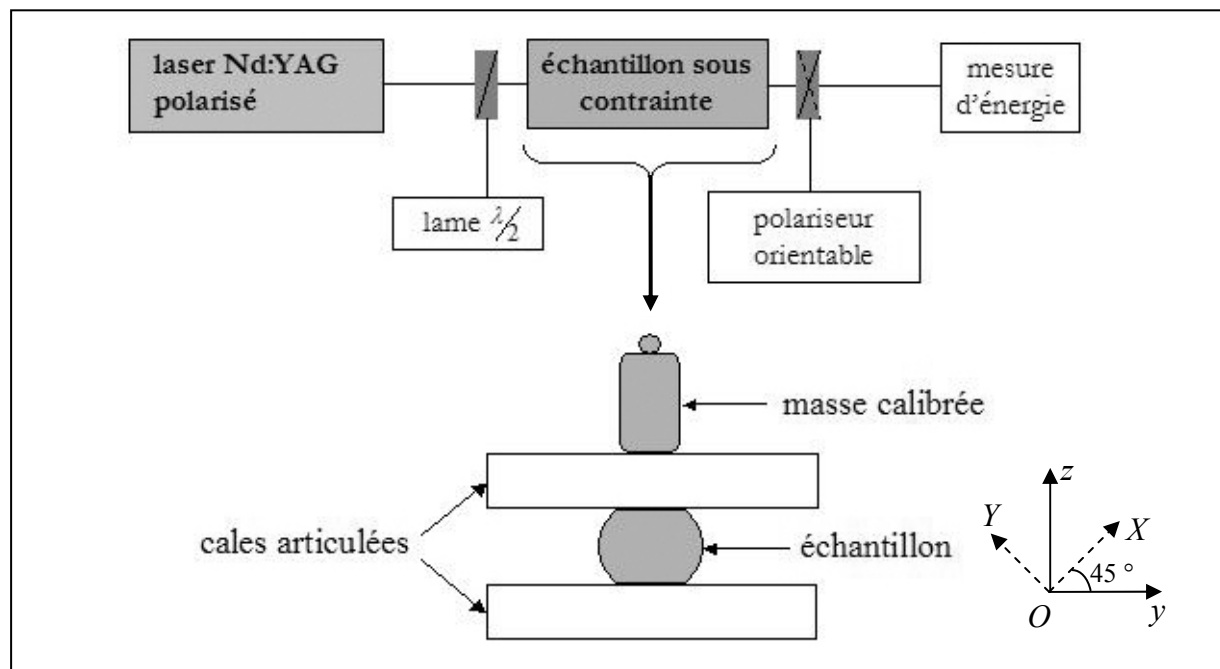


Figure 40 : principe des mesures ellipsométriques.

Un faisceau incident est polarisé linéairement selon  $(OX)$ , c'est-à-dire à exactement  $45^\circ$  des lignes neutres de l'uniaxe que constitue l'échantillon sous contrainte. Les composantes respectives des deux modes propres de polarisations à l'entrée du verre sont donc :

$$\begin{cases} E_y(0) = \frac{E_0}{\sqrt{2}} \\ E_z(0) = \frac{E_0}{\sqrt{2}} \end{cases} \quad (104),$$

où  $E_0$  est l'amplitude du champ incident. L'application d'une contrainte ayant introduit une biréfringence donnée par (90), les composantes des deux modes propres de polarisation après une longueur  $L$  de verre sont :

$$\begin{cases} E_y(L) = \frac{E_0}{\sqrt{2}} \cdot e^{j \frac{2\pi}{\lambda} n_y \cdot L} \\ E_z(L) = \frac{E_0}{\sqrt{2}} \cdot e^{j \frac{2\pi}{\lambda} n_z \cdot L} \end{cases} \quad (105),$$

où  $n_y$  et  $n_z$  sont donnés par (89). Les mesures s'effectuent en sortie du verre à l'aide d'un polariseur orientable qui projette les composantes données par (105) alternativement sur les axes  $(OX)$  et  $(OY)$ . Les champs ainsi projetés s'écrivent :

$$\begin{cases} E_X(L) = \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot (E_y(L) + E_z(L)) \\ E_Y(L) = \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot (-E_y(L) + E_z(L)) \end{cases} \quad (106).$$

Pour faire intervenir la biréfringence  $\Delta n$  donnée par (90), le système (106) peut être réécrit sous la forme :

$$\begin{cases} E_X(L) = \frac{E_0}{2} \cdot e^{j \frac{2\pi}{\lambda} n_z \cdot L} \cdot (1 + e^{j \frac{2\pi}{\lambda} \Delta n \cdot L}) \\ E_Y(L) = \frac{E_0}{2} \cdot e^{j \frac{2\pi}{\lambda} n_z \cdot L} \cdot (1 - e^{j \frac{2\pi}{\lambda} \Delta n \cdot L}) \end{cases} \quad (107),$$

ce qui donne encore :

$$\begin{cases} E_X(L) = E_0 \cdot e^{j\frac{2\pi}{\lambda} \cdot n_z \cdot L} \cdot e^{j\frac{\pi}{\lambda} \cdot \Delta n \cdot L} \cdot \cos\left(\frac{\pi}{\lambda} \cdot \Delta n \cdot L\right) \\ E_Y(L) = -j \cdot E_0 \cdot e^{j\frac{2\pi}{\lambda} \cdot n_z \cdot L} \cdot e^{j\frac{\pi}{\lambda} \cdot \Delta n \cdot L} \cdot \sin\left(\frac{\pi}{\lambda} \cdot \Delta n \cdot L\right) \end{cases} \quad (108).$$

À l'aide de l'expression (90), nous aboutissons finalement aux expressions des éclairissements mesurés sur  $(OX)$  et  $(OY)$  faisant intervenir le coefficient élasto-optique et la contrainte appliquée :

$$\begin{cases} I_X(L) = I_0 \cdot \cos^2\left(\frac{\pi}{\lambda} \cdot B \cdot S_{zz} \cdot L\right) \\ I_Y(L) = I_0 \cdot \sin^2\left(\frac{\pi}{\lambda} \cdot B \cdot S_{zz} \cdot L\right) \end{cases} \quad (109),$$

où  $I_0$  est l'éclairement incident.

Le système (109) montre que la mesure de la période des oscillations de l'éclairement en fonction de la contrainte  $S_{zz}$  permet de remonter au coefficient élasto-optique  $B$ , moyennant la seule connaissance de la longueur d'onde  $\lambda$  et de la longueur du matériau  $L$ . Ceci constitue le principe de base de nos mesures.

Pour réaliser les expériences, nous avons fabriqué une presse qui assure une bonne répartition de la contrainte sur l'ensemble du méplat par le biais d'une liaison articulée située entre les masses et l'échantillon ; de plus, les méplats sont enduits de graisse pour limiter les frottements et éviter ainsi l'apparition de contraintes locales importantes. Pour connaître la contrainte appliquée, il convient de mesurer précisément la surface du méplat  $L \cdot \ell$  ; la relation entre la masse  $m$  appliquée et la contrainte  $S_{zz}$  obtenue dans le matériau est alors :

$$S_{zz} = \frac{m \cdot g}{L \cdot \ell} \quad (110),$$

où  $g = 9.81 \text{ m/s}^2$  est l'accélération de la pesanteur sous nos latitudes.

La source utilisée pour nos mesures est un laser Nd:YAG émettant à  $\lambda = 1064 \text{ nm}$ , ce qui est encore dans la fenêtre de transparence pour les verres considérés. Les dimensions des méplats sont  $L = 32 \text{ mm}$  et  $\ell = 5.5 \text{ mm}$  ; les masses appliquées vont de 0 à 20 kg, par pas de 50 g. Les résultats obtenus sont présentés en terme de contrainte sur la Figure 41 pour l'échantillon



de  $\text{GeSe}_4$ , et sur la Figure 42 et la Figure 43 pour  $\text{GeAsSe}_8$  et  $\text{AsSe}_4$  respectivement. Le cas de la Figure 41 est intéressant car la courbe associée semble traduire une légère biréfringence de notre échantillon, même sans contrainte appliquée. La Figure 43 montre un autre exemple de comportement inattendu : pour de très faibles efforts appliqués, la dépendance de la biréfringence n'est vraisemblablement pas une fonction linéaire de la contrainte. Ces constatations nous amènent à penser que les échantillons étudiés sont de qualités mécaniques différentes. La biréfringence « à vide » de notre barreau de  $\text{GeSe}_4$  est en effet certainement liée à des contraintes internes au matériau, et le cas de  $\text{AsSe}_4$  montre qu'il faut atteindre une contrainte de l'ordre de 5 à 6  $\text{kg/cm}^2$  pour obtenir un comportement satisfaisant. Les résultats les plus probants sont ceux relatifs au verre de composition ternaire  $\text{GeAsSe}_8$  ; il s'agit vraisemblablement d'un échantillon de très bonne qualité.

Notons que ces comportements exotiques aux très faibles contraintes sont insignifiants vis-à-vis de notre problématique puisque les efforts appliqués sont alors bien supérieurs à quelques  $\text{kg/cm}^2$ , et ce même dans le cas d'une interaction hors accord de phase.

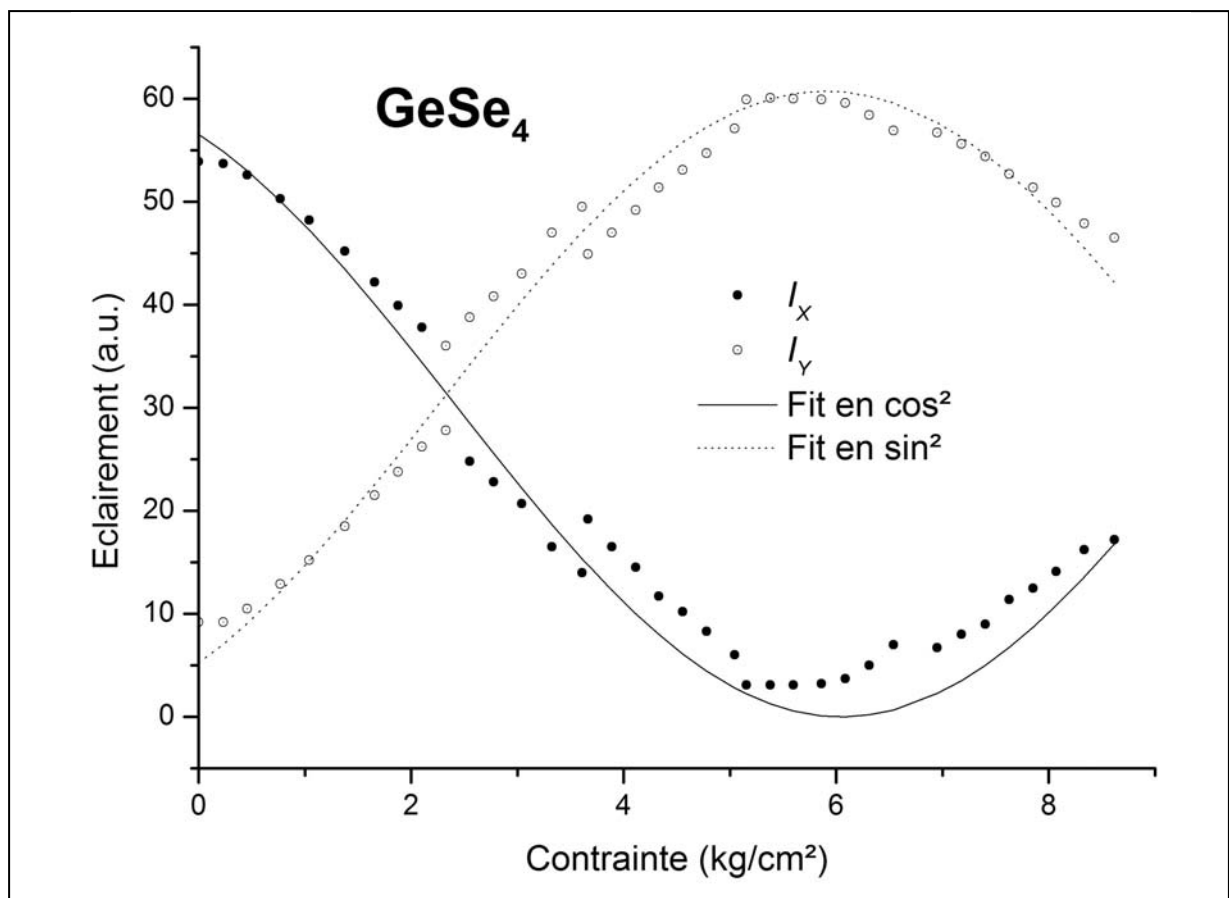


Figure 41 : mesures ellipsométriques pour le verre  $\text{GeSe}_4$ .

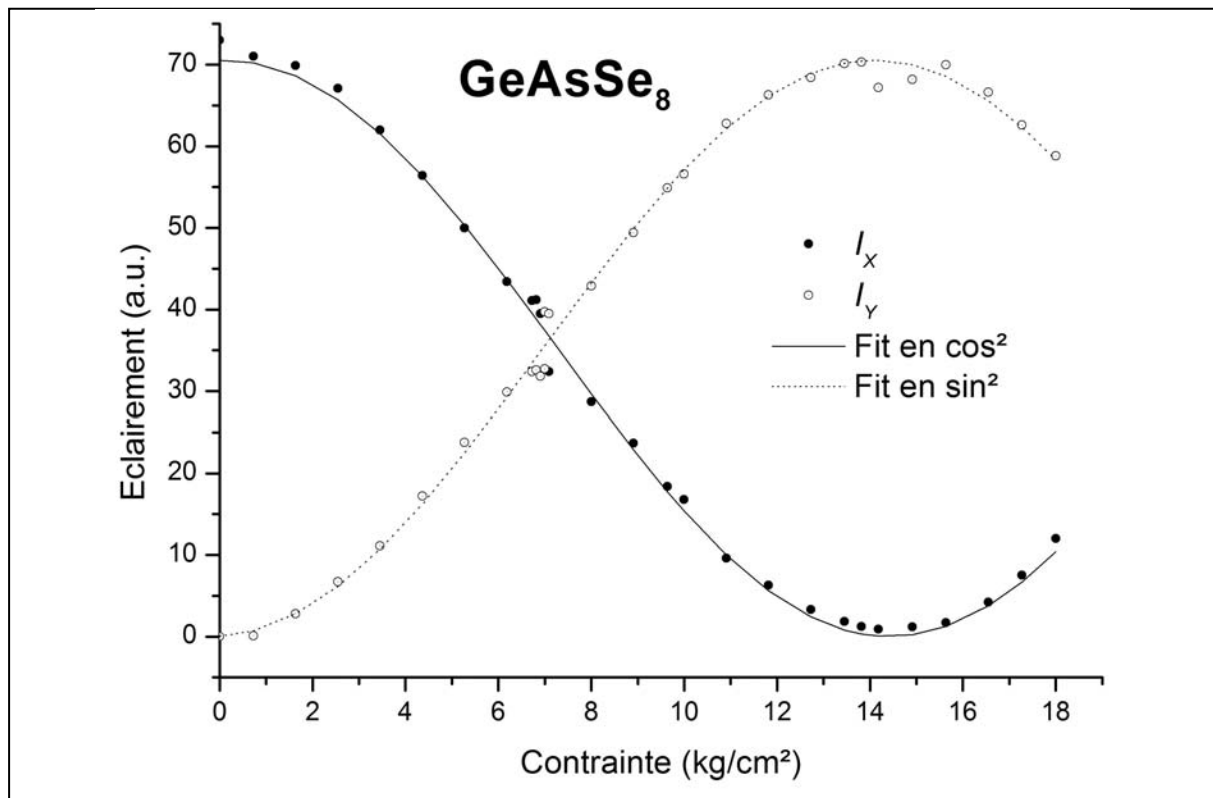


Figure 42 : mesures ellipsométriques pour le verre GeAsSe<sub>8</sub>.

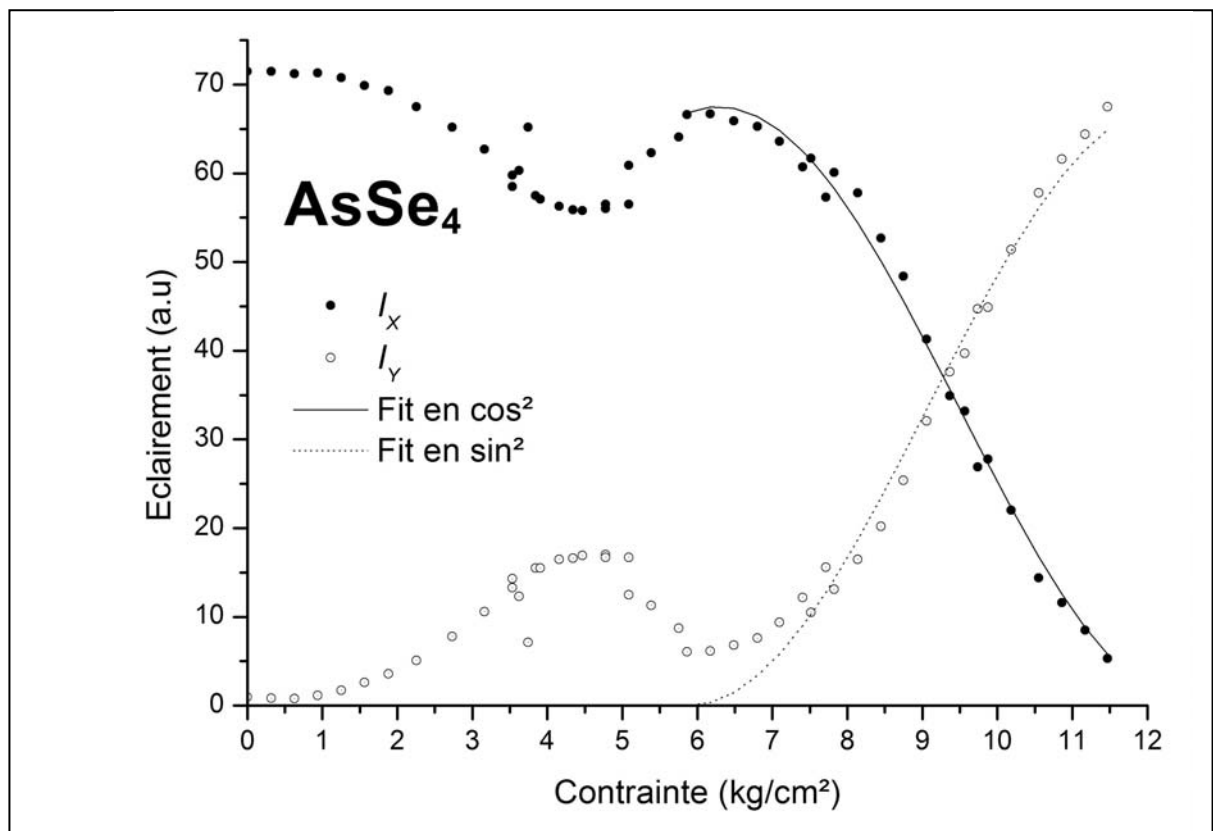


Figure 43 : mesures ellipsométriques pour le verre AsSe<sub>4</sub>.

Les coefficients élasto-optiques extraits de ces mesures sont résumés dans le Tableau 7, et comparés aux valeurs<sup>26</sup> données par la référence ([62], 1994).

	GeSe <sub>4</sub>	GeAsSe <sub>8</sub>	AsSe <sub>4</sub>
Nos mesures (1064 nm)	23.2	37.9	61.0
B (TPa <sup>-1</sup> ) Linke <i>et al.</i> (1500 nm)	18	non mesuré	40
Anderson <i>et al.</i> (1800 nm)	12.4	17.4	28.8

Tableau 7 : coefficients élasto-optiques en TPa<sup>-1</sup> pour les verres GeSe<sub>4</sub>, AsSe<sub>4</sub> et GeAsSe<sub>8</sub>.

Le facteur 2 qui semble intervenir entre nos mesures et celles d'Anderson et de ses collaborateurs peut s'expliquer en partie par le fait que les deux campagnes ont été menées à des longueurs d'onde différentes. En effet, d'après (91), le coefficient élasto-optique évolue comme le cube de l'indice de réfraction : il est donc particulièrement sujet à une dispersion en fonction de la longueur d'onde. Cependant, cet effet n'explique au plus qu'une différence de l'ordre de 10 %. L'écart restant est malgré tout en bon accord avec d'autres mesures réalisées à 1500 nm par Linke et Anorg, reprises dans la référence ([62], 1994) et rappelées dans le Tableau 7. Le résultat important reste que l'ordre général relatif aux différentes compositions est conservé, et que les valeurs de ces coefficients sont bien supérieures à celles données pour le verre AMTIR-1 étudié précédemment à titre d'exemple.

### 3.5 Calcul des contraintes à l'accord de phase

Les valeurs de coefficients élasto-optiques ainsi obtenues, associées aux équations de dispersion trouvées au § 3.3 précédent, nous permettent de calculer les valeurs de contraintes à appliquer pour réaliser un accord de phase de THG, à condition de supposer que  $P_{11} = -P_{12}$ , ce qui est une hypothèse classique dans le cas de milieux isotropes ([3], 2003). Les données résumées dans le Tableau 8 sont relatives au cas le plus favorable, c'est-à-dire un accord de phase pour la THG de type II et pour la longueur d'onde fondamentale optimale.

<sup>26</sup> Cette référence considère des coefficients B négatifs ; compte tenu de la définition proposée ici, il faut en considérer la valeur absolue pour faire la comparaison.

	AMTIR-1	GeSe <sub>4</sub>	GeAsSe <sub>8</sub>	AsSe <sub>4</sub>
$\lambda_{opt}$ (μm)	8.0	8.73	8.32	11.15
$S_{zz}$ (ton/cm <sup>2</sup> )	54.0	10.1	7.2	3.4

Tableau 8 : contraintes permettant l'accord de phase pour une THG de type I dans les verres GeSe<sub>4</sub>, AsSe<sub>4</sub> et GeAsSe<sub>8</sub>.

Ces résultats sont encourageants : les contraintes à appliquer, seulement 3.4 ton/cm<sup>2</sup> pour AsSe<sub>4</sub>, sont bien plus faibles que pour le cas de l'AMTIR-1 ; elles restent cependant très élevées, et certainement supérieures au seuil de résistance mécanique des échantillons. En effet, lors des premiers essais en compression, nous avons constaté des dégâts importants, allant jusqu'à la pulvérisation des échantillons, pour des contraintes appliquées de l'ordre de seulement 250 kg/cm<sup>2</sup>. Sauf à synthétiser des échantillons de bien meilleure résistance mécanique, l'obtention d'une THG en accord de phase dans de tels matériaux reste compromise.

#### 4 Essais expérimentaux de THG hors accord de phase

Nous avons entamé l'étude expérimentale de la THG hors accord de phase dans les échantillons caractérisés au § 3 précédent. L'objectif est d'obtenir un rendement de conversion de fréquences de l'ordre de quelques pourcents, en utilisant la contrainte pour maximiser la fonction oscillante présentée sur la Figure 36.

La source utilisée pour générer le faisceau de pompe est celle décrite au § 2.2 du Chapitre III, dont nous utilisons cette fois le faisceau issu de la DFG, qui couvre la plage de longueurs d'onde allant de 2.3 μm à 10 μm.

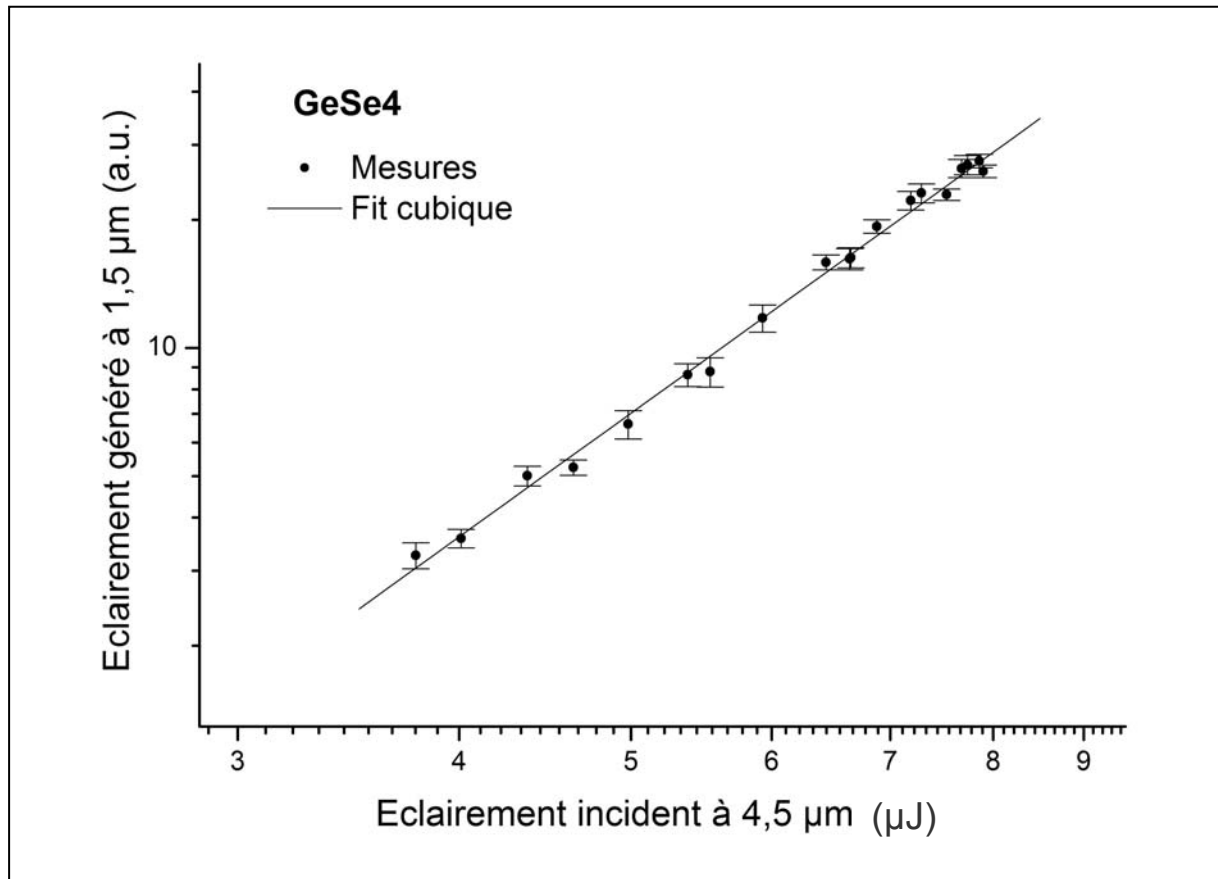


Figure 44 : éclairement de THG généré dans GeSe<sub>4</sub> hors accord de phase en fonction de l'éclairement incident.

Sans contrainte, nous avons déjà pu observer la dépendance cubique de l'éclairement généré en fonction de l'éclairement incident, pour une longueur d'onde de pompe choisie à 4.5 μm car la génération de troisième harmonique se fait alors à 1.5 μm, qui est une longueur d'onde compatible avec les systèmes de détection usuels. La courbe obtenue pour l'échantillon de GeSe<sub>4</sub> est présentée sur la Figure 44. Cependant, le seuil de dommage optique de nos échantillons ne nous a pas permis d'aller plus loin, puisque des impacts sont constatés pour des éclairements incidents de l'ordre du GW/cm<sup>2</sup>. Ce résultat est cohérent avec d'autres mesures réalisées par F. Smektala au LVC de Rennes, qui donnent un seuil de dommage optique voisin de 3 GW/cm<sup>2</sup>. Malheureusement, les trop nombreuses pannes de la source ne nous ont permis d'étudier ni la dépendance en fonction de la contrainte appliquée, ni les autres échantillons.

Cette étude exploratoire ayant été menée, il convient désormais de choisir pour les futures réalisations expérimentales des matériaux alliant un bon coefficient élasto-optique, de bonnes caractéristiques mécaniques et un seuil de dommage optique acceptable. À ces conditions

seulement, un rendement de conversion de fréquences de plusieurs pourcents peut être espéré, même dans une situation hors accord de phase.

# Chapitre VI – Etude de la génération de triplets

Ce dernier chapitre répond non seulement à l'objectif expérimental visant à générer des triplets de photons, mais également à l'ambition d'étudier dans le détail la théorie des interactions paramétriques optiques cubiques, afin de faire ressortir certaines caractéristiques spécifiques qui les différencient de leurs homologues quadratiques.

## 1 Théorie classique des interactions paramétriques optiques cubiques

Compte tenu des remarques faites au § 2.3 du Chapitre II, nous limitons cette étude au seul cas du schéma A<sup>27</sup>, c'est-à-dire aux interactions correspondant à une loi de conservation d'énergie du type :

$$\hbar\omega_0 - \hbar\omega_1 - \hbar\omega_2 - \hbar\omega_3 = 0 \quad (111).$$

Nous nous intéressons ici au cas d'une fission spontanée ou stimulée d'un photon en trois, le processus générique recherché pouvant alors être symbolisée par  $\omega_0 \rightarrow \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$  ; c'est en effet le seul processus qui permette la génération de triplets de photons.

### 1.1 Continuum d'accord de phase

Pour obtenir une interaction efficace, il est indispensable de vérifier la condition d'accord de phase donnée par (50) ; dans le cas d'une interaction correspondant au schéma A, cela s'écrit :

$$n(\omega_0) \cdot \omega_0 - n(\omega_1) \cdot \omega_1 - n(\omega_2) \cdot \omega_2 - n(\omega_3) \cdot \omega_3 = 0 \quad (112).$$

Comme expliqué au § 4 du Chapitre II, la dispersion en longueur d'onde des indices de réfraction limite le nombre des configurations, les 7 possibilités étant données par (52).

---

<sup>27</sup> L'étude exhaustive des 2 schémas possibles a été menée dans le cadre de cette thèse, et publiée dans la référence ([16], 2002).

Pour une onde incidente de pulsation  $\omega_0$  se propageant dans une direction quelconque, la détermination des pulsations  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  et  $\omega_3$  des trois ondes générées passe par la résolution d'un système de 2 équations : la conservation de l'énergie (111) et celle de l'impulsion (112). Par rapport au cas des interactions quadratiques, il y a donc une inconnue de plus, sans équation supplémentaire. Les solutions au problème ainsi posé ne sont donc plus discrètes : pour une direction donnée, un ensemble de triplets de pulsations  $\{\omega_1, \omega_2, \omega_3\}$  peuvent donc vérifier simultanément les conditions d'accord de phase. Un exemple est donné sur la Figure 45 pour une longueur d'onde incidente fixée à  $\lambda_0 = 532$  nm, et des interactions de type  $\lambda_0^{(-)} \rightarrow \lambda_1^{(+)} + \lambda_2^{(-)} + \lambda_3^{(+)}$  en accord de phase selon l'axe ( $Ox$ ) de KTP ; le coefficient non linéaire sollicité est alors  $\chi_{24}^{(3)}$ .

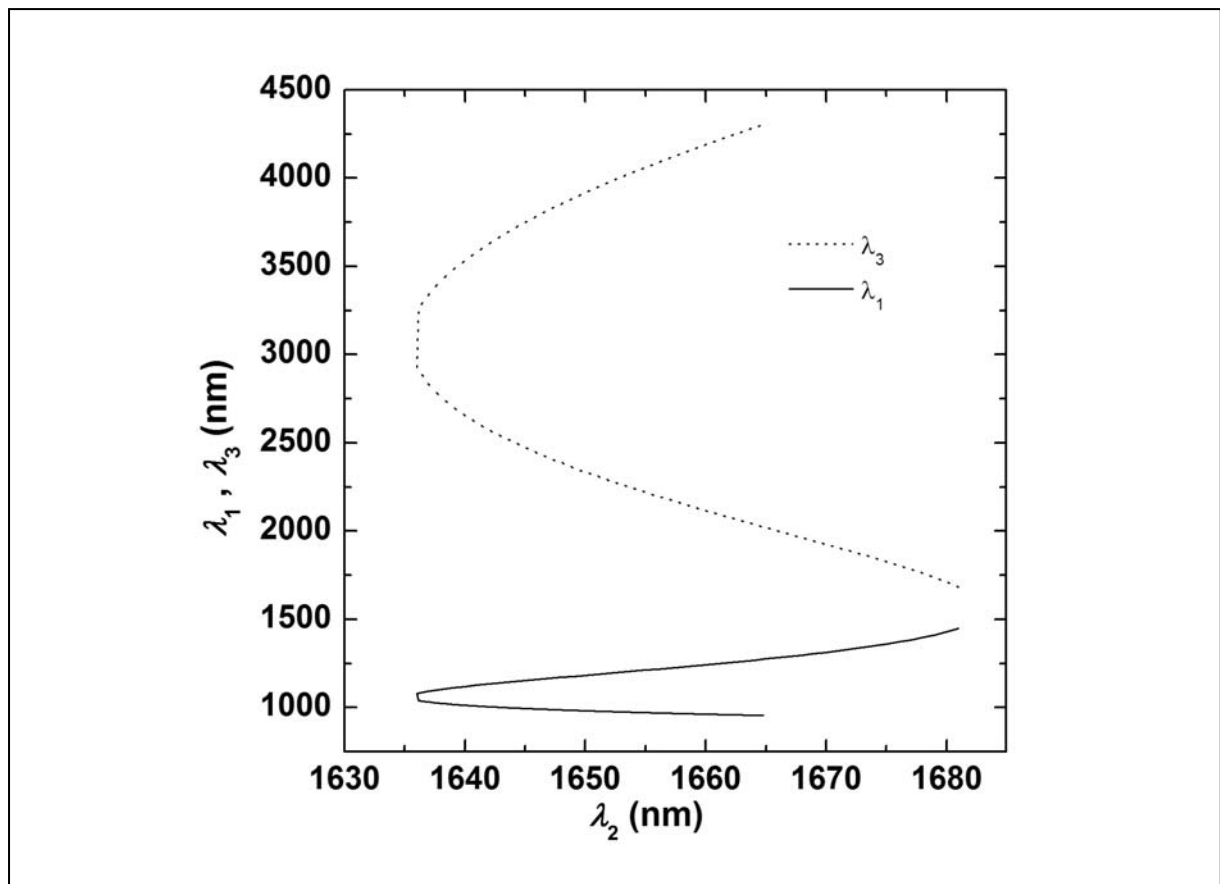


Figure 45 : calcul des courbes d'accord de phase pour l'interaction  $\lambda_0^{(-)} \rightarrow \lambda_1^{(+)} + \lambda_2^{(-)} + \lambda_3^{(+)}$  selon l'axe ( $Ox$ ) de KTP, dans le cas où  $\lambda_0 = 532$  nm.

Dans cet exemple, l'énergie des photons générés est « diluée » sur une plage spectrale allant de 950 nm à 4300 nm ; il n'est donc pas envisageable de pouvoir exploiter une telle situation



dans le cadre de notre problématique où il faut concentrer l'énergie sur un triplet donné. La seule alternative consiste alors à stimuler la fission, ce qui permet d'imposer la valeur d'une ou plusieurs des 3 inconnues.

## 1.2 Evolution des champs et des intensités

Le système qui régit l'évolution des amplitudes complexes des 4 champs en accord de phase est donné au Chapitre II par (41), en prenant  $\Delta k = 0$ .

### 1.2.1 Etude en pompe non dépeuplée

Dans un premier temps, intéressons-nous au cas simple pour lequel le rendement d'interaction est suffisamment faible pour ne pas modifier de manière significative les faisceaux incidents. Pour éviter une dilution énergétique, il est nécessaire de stimuler le processus de fission, comme cela est détaillé au § 1.1 précédent ; nous envisageons le cas où sont présents à l'entrée du cristal non seulement des photons de pompe à la pulsation  $\omega_0$  mais aussi des photons de pulsations  $\omega_2$  et  $\omega_3$ . Les champs associés sont tous supposés insensibles aux effets de l'interaction. En négligeant les effets de double réfraction, le système (41) se réduit à :

$$\begin{cases} \frac{\partial E(\omega_0)}{\partial Z} = \frac{\partial E(\omega_2)}{\partial Z} = \frac{\partial E(\omega_3)}{\partial Z} = 0 \\ \frac{\partial E(\omega_1)}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{n(\omega_1) \cdot \lambda_1} \cdot E(\omega_0, Z=0) \cdot E^*(\omega_2, Z=0) \cdot E^*(\omega_3, Z=0) \end{cases} \quad (113).$$

L'intégration du système (113) conduit à l'expression du champ généré à la pulsation  $\omega_1$ , soit :

$$E(\omega_1, Z) = E(\omega_1, Z=0) + j \cdot \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)} \cdot Z}{n(\omega_1) \cdot \lambda_1} \cdot E(\omega_0, Z=0) \cdot E^*(\omega_2, Z=0) \cdot E^*(\omega_3, Z=0) \quad (114).$$

En terme d'éclairements, et lorsque  $I(\omega_1, Z=0) = 0$ , il vient alors :

$$I(\omega_1, Z) = \frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \cdot \frac{\left( \frac{2\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)} \cdot Z}{\lambda_1} \right)^2}{n(\omega_0) \cdot n(\omega_1) \cdot n(\omega_2) \cdot n(\omega_3)} \cdot I(\omega_0, Z=0) \cdot I(\omega_2, Z=0) \cdot I(\omega_3, Z=0) \quad (115).$$

Remarquons que l'éclairement généré à la pulsation  $\omega_1$  est proportionnel aux valeurs initiales des trois autres éclairements à  $\omega_0$ ,  $\omega_2$  et  $\omega_3$  : outre la présence de la pompe, il apparaît ainsi nécessaire de réaliser une double injection pour obtenir une efficacité de conversion de fréquences non nulle, la fluorescence paramétrique cubique étant bien trop faible<sup>28</sup>.

L'interaction envisageable à ce stade est donc une génération par différence de fréquences (DFG) doublement injectée, dont le schéma de principe est rappelé sur la Figure 46 : le faisceau de pompe à la pulsation  $\omega_0$  est consommé, les faisceaux d'injection de pulsations  $\omega_2$  et  $\omega_3$  sont amplifiés, alors qu'un faisceau est généré à la pulsation  $\omega_1$ . Lors de l'interaction élémentaire, un triplet de photons  $\{\hbar\omega_1, \hbar\omega_2, \hbar\omega_3\}$  est donc créé par fission stimulée du seul photon incident  $\hbar\omega_0$  ; la génération d'un photon à la pulsation  $\omega_1$  peut alors être considérée comme symptomatique de la génération d'un triplet.

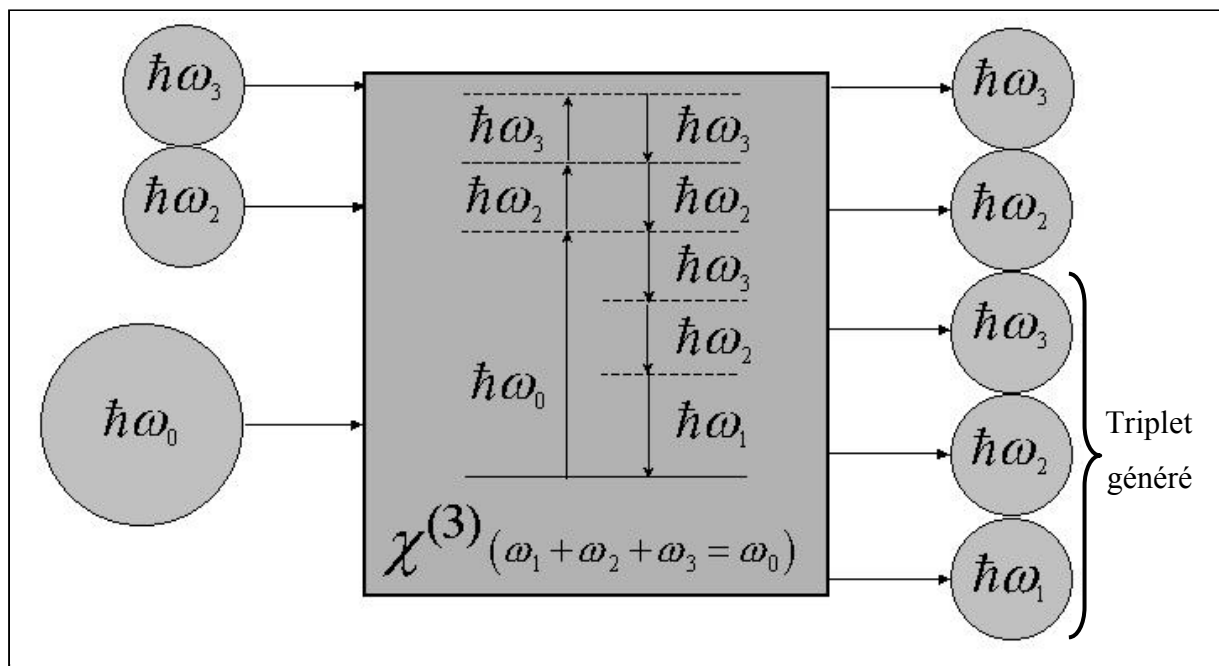


Figure 46 : schéma de principe d'une différence de fréquences cubique doublement injectée.

Pour donner un exemple numérique, considérons le cas dégénéré pour lequel  $\omega_2 = \omega_3 = \omega^{(+)}$ ,  $\omega_1 = \omega^{(-)}$  et  $\omega_0 = 3\omega^{(-)}$  ; l'interaction est alors schématisée par  $3\omega^{(-)} \rightarrow \omega^{(-)} + \omega^{(+)} + \omega^{(+)}$ . C'est le processus inverse de la THG en accord de phase de type II étudiée au Chapitre IV.

<sup>28</sup> Bien qu'aucun calcul précis n'ait été publié, les estimations les plus optimistes la situe autour de quelques événements par jour ([43], 2002).

Pour une propagation selon l'axe ( $Ox$ ) de KTP, les longueurs d'ondes correspondantes sont celles calculées pour la THG, soit  $\lambda_{\omega} = 1624$  nm et  $\lambda_{3\omega} = 541$  nm ; le coefficient effectif de troisième ordre est  $\chi_{24}^{(3)}$ . Prenons par exemple des valeurs d'éclairements incidents de  $I(3\omega^{(-)}, Z=0) = 21$  GW/cm<sup>2</sup> pour la pompe et de  $I_{tot}(\omega^{(+)}, Z=0) = 2$  GW/cm<sup>2</sup> pour l'injection, ces valeurs étant raisonnables car inférieures au seuil de dommage optique de KTP. L'équation (115) indique alors qu'après 1 cm de cristal, un éclairement de l'ordre de la centaine de MW/cm<sup>2</sup> devrait être généré à la pulsation  $\omega_1$  ; l'approximation de la pompe non dépeuplée utilisée pour le calcul est donc encore parfaitement valide.

### 1.2.2 Etude en pompe dépeuplée

La nécessité de la double injection étant établie, il convient désormais d'envisager le cas d'interactions efficaces au point de rendre caduque l'hypothèse des faisceaux incidents non dépeuplés.

Les amplitudes complexes des ondes planes en interaction peuvent être écrites sous la forme générique suivante :

$$E(\omega_i) = |E(\omega_i)| \cdot e^{j\phi_i} \quad (116).$$

Les angles  $\phi_i$  correspondent aux phases initiales des champs. En négligeant toujours la double réfraction et dans le cas où  $\Delta k = 0$ , le système (41) devient alors :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial |E(\omega_0)| \cdot e^{j\phi_0}}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{n(\omega_0) \cdot \lambda_0} \cdot |E(\omega_1)| \cdot |E(\omega_2)| \cdot |E(\omega_3)| \cdot e^{j(\phi_1 + \phi_2 + \phi_3)} \\ \frac{\partial |E(\omega_1)| \cdot e^{j\phi_1}}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{n(\omega_1) \cdot \lambda_1} \cdot |E(\omega_0)| \cdot |E(\omega_2)| \cdot |E(\omega_3)| \cdot e^{j(\phi_0 - \phi_2 - \phi_3)} \\ \frac{\partial |E(\omega_2)| \cdot e^{j\phi_2}}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{n(\omega_2) \cdot \lambda_2} \cdot |E(\omega_0)| \cdot |E(\omega_1)| \cdot |E(\omega_3)| \cdot e^{j(\phi_0 - \phi_1 - \phi_3)} \\ \frac{\partial |E(\omega_3)| \cdot e^{j\phi_3}}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{n(\omega_3) \cdot \lambda_3} \cdot |E(\omega_0)| \cdot |E(\omega_1)| \cdot |E(\omega_2)| \cdot e^{j(\phi_0 - \phi_1 - \phi_2)} \end{array} \right. \quad (117).$$

Les angles  $\phi_i$  étant naturellement indépendants de  $Z$ , le système (117) conduit à une unique relation entre les phases initiales des 4 champs en accord de phase :

$$\Delta\phi = \phi_0 - \phi_1 - \phi_2 - \phi_3 = \pm \frac{\pi}{2} \quad (118).$$

Le signe (-) implique  $\frac{\partial |E(\omega_0)|}{\partial Z} < 0$  et  $\frac{\partial |E(\omega_{i \neq 0})|}{\partial Z} > 0$  : il correspond donc à un transfert d'énergie de la pompe vers les trois signaux à  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  et  $\omega_3$ , c'est-à-dire à une fission. À l'inverse, le signe (+) est relatif à une fusion des trois photons à  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  et  $\omega_3$  pour donner un photon de pompe à  $\omega_0$ . Cette relation de phase est à l'origine de la difficulté de réaliser une interaction pour laquelle tous les champs seraient initialement non nuls. Lorsqu'en revanche un des champs est nul, par exemple celui à la pulsation  $\omega_i$ , où  $i=0, 1, 2$  ou  $3$ , sa phase initiale prend spontanément la valeur adéquate pour vérifier la relation (118), pour laquelle le signe est imposé par la condition  $\frac{\partial |E(\omega_i)|}{\partial Z} > 0$ .

En prenant le cas d'une fission, c'est-à-dire  $\Delta\phi = -\frac{\pi}{2}$ , le système (117) peut alors être réécrit sous une forme purement réelle ne faisant plus intervenir que les modules des amplitudes complexes :

$$\begin{cases} \frac{\partial |E(\omega_0)|}{\partial Z} = -\frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{n(\omega_0) \cdot \lambda_0} \cdot |E(\omega_1)| \cdot |E(\omega_2)| \cdot |E(\omega_3)| \\ \frac{\partial |E(\omega_1)|}{\partial Z} = +\frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{n(\omega_1) \cdot \lambda_1} \cdot |E(\omega_0)| \cdot |E(\omega_2)| \cdot |E(\omega_3)| \\ \frac{\partial |E(\omega_2)|}{\partial Z} = +\frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{n(\omega_2) \cdot \lambda_2} \cdot |E(\omega_0)| \cdot |E(\omega_1)| \cdot |E(\omega_3)| \\ \frac{\partial |E(\omega_3)|}{\partial Z} = +\frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{n(\omega_3) \cdot \lambda_3} \cdot |E(\omega_0)| \cdot |E(\omega_1)| \cdot |E(\omega_2)| \end{cases} \quad (119).$$

Il convient à ce stade de s'intéresser non plus à l'évolution des champs, mais à celle des éclaircissements obtenus à l'aide de (26) :

$$\frac{\partial I(\omega_i)}{\partial Z} = \frac{1}{2} n(\omega_i) \cdot \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \cdot \frac{\partial |E(\omega_i)|^2}{\partial Z} = n(\omega_i) \cdot \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \cdot |E(\omega_i)| \cdot \frac{\partial |E(\omega_i)|}{\partial Z} \quad (120),$$

où  $i = 0, 1, 2$ , ou  $3$ .

Les éclairements des ondes en interaction sont alors reliées par :

$$\lambda_1 \cdot \frac{\partial I(\omega_1)}{\partial Z} = \lambda_2 \cdot \frac{\partial I(\omega_2)}{\partial Z} = \lambda_3 \cdot \frac{\partial I(\omega_3)}{\partial Z} = -\lambda_0 \cdot \frac{\partial I(\omega_0)}{\partial Z} \quad (121).$$

Nous aboutissons ainsi à des équations qui sont équivalentes aux *relations de Manley-Rowe* de l'optique non linéaire quadratique, soit :

$$\begin{cases} \lambda_1 \cdot (I(\omega_1) - I(\omega_1, Z=0)) = \lambda_2 \cdot (I(\omega_2) - I(\omega_2, Z=0)) \\ \lambda_1 \cdot (I(\omega_1) - I(\omega_1, Z=0)) = \lambda_3 \cdot (I(\omega_3) - I(\omega_3, Z=0)) \\ \lambda_1 \cdot (I(\omega_1) - I(\omega_1, Z=0)) = -\lambda_0 \cdot (I(\omega_0) - I(\omega_0, Z=0)) \end{cases} \quad (122).$$

L'équation d'évolution de l'éclairement généré à la pulsation  $\omega_1$  est obtenue à partir de (119) et (120), et s'écrit :

$$\frac{\partial I(\omega_1)}{\partial Z} = +\sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{\lambda_1} \cdot |E(\omega_0)| \cdot |E(\omega_1)| \cdot |E(\omega_2)| \cdot |E(\omega_3)| \quad (123).$$

Elle peut être reformulée en fonction des seuls éclairements, soit :

$$\frac{\partial I(\omega_1)}{\partial Z} = +\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \frac{4\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{\lambda_1} \cdot \sqrt{\frac{I(\omega_0) \cdot I(\omega_1) \cdot I(\omega_2) \cdot I(\omega_3)}{n(\omega_0) \cdot n(\omega_1) \cdot n(\omega_2) \cdot n(\omega_3)}} \quad (124).$$

En utilisant les équations (122), nous aboutissons finalement à une expression qui ne fait plus intervenir que  $I(\omega_1)$  et les éclairements incidents :

$$\begin{aligned} \frac{\partial I(\omega_1)}{\partial Z} = & \frac{\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} 4\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{\lambda_1 \sqrt{n(\omega_0) \cdot n(\omega_1) \cdot n(\omega_2) \cdot n(\omega_3)}} \cdot \sqrt{I(\omega_1)} \cdot \sqrt{\left( I(\omega_0, Z=0) - \frac{\lambda_1}{\lambda_0} (I(\omega_1) - I(\omega_1, Z=0)) \right)} \\ & \cdot \sqrt{\left( I(\omega_2, Z=0) - \frac{\lambda_1}{\lambda_2} (I(\omega_1) - I(\omega_1, Z=0)) \right)} \cdot \sqrt{\left( I(\omega_3, Z=0) - \frac{\lambda_1}{\lambda_3} (I(\omega_1) - I(\omega_1, Z=0)) \right)} \end{aligned} \quad (125).$$

Pour alléger l'écriture, nous proposons d'introduire les coefficients suivants, qui sont définis par les éclairements incidents :

$$\left\{ \begin{array}{l}
 \Upsilon_{01} = \frac{\lambda_0}{\lambda_1} I(\omega_0, Z=0) + I(\omega_1, Z=0) \\
 \Upsilon_{21} = \frac{\lambda_2}{\lambda_1} I(\omega_2, Z=0) - I(\omega_1, Z=0) \\
 \Upsilon_{31} = \frac{\lambda_3}{\lambda_1} I(\omega_3, Z=0) - I(\omega_1, Z=0) \\
 \Lambda_1 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \cdot \frac{4\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{\sqrt{n(\omega_0) \cdot n(\omega_1) \cdot n(\omega_2) \cdot n(\omega_3)}} \cdot \sqrt{\frac{\lambda_1}{\lambda_0 \cdot \lambda_2 \cdot \lambda_3}}
 \end{array} \right. \quad (126).$$

L'équation (125) prend alors une forme plus exploitable :

$$\frac{\partial I(\omega_1)}{\partial Z} = \Lambda_1 \cdot \sqrt{I(\omega_1) \cdot (\Upsilon_{10} - I(\omega_1)) \cdot (\Upsilon_{12} + I(\omega_1)) \cdot (\Upsilon_{13} + I(\omega_1))} \quad (127).$$

L'éclairement généré à la pulsation  $\omega_1$ ,  $I(\omega_1, Z=L)$ , est finalement obtenu en intégrant cette dernière équation sur la longueur du cristal  $L$  :

$$\Lambda_1 \cdot L = \int_{I(\omega_1, Z=0)}^{I(\omega_1, Z=L)} \frac{dI(\omega_1)}{\sqrt{I(\omega_1) \cdot (\Upsilon_{10} - I(\omega_1)) \cdot (\Upsilon_{12} + I(\omega_1)) \cdot (\Upsilon_{13} + I(\omega_1))}} \quad (128).$$

L'intégrale précédente ne converge que si au moins 3 des 4 éclairissements initiaux sont non nuls, ce qui justifie à nouveau la nécessité de la double injection.

Dans le cas général où les 4 éclairissements incidents sont tous non nuls, l'intégrale (128) peut s'exprimer à l'aide de la fonction elliptique de Jacobi  $sc(u|m)$  ; nous obtenons alors :

$$I(\omega_1, Z=L) = \frac{\Upsilon_{31} \cdot \Upsilon_{01}}{\Upsilon_{31} + (\Upsilon_{31} + \Upsilon_{01}) \cdot sc^2(a_1 \cdot L + b_1 | 1 - m_1)} \quad (129),$$

$$\text{avec} \quad \left\{ \begin{array}{l}
 m_1 = \frac{\Upsilon_{21} \cdot (\Upsilon_{01} + \Upsilon_{31})}{\Upsilon_{31} \cdot (\Upsilon_{01} + \Upsilon_{21})} \\
 a_1 = \frac{\Lambda_1}{2} \cdot \sqrt{\Upsilon_{31} \cdot (\Upsilon_{01} + \Upsilon_{21})} \\
 b_1 = j \cdot F \left( \arcsin \left( \sqrt{\frac{\Upsilon_{31} \cdot (I(\omega_1, Z=0) - \Upsilon_{01})}{I(\omega_1, Z=0) \cdot (\Upsilon_{31} + \Upsilon_{01})}} \right) \middle| m_1 \right)
 \end{array} \right. \quad (130),$$

où  $F(u|m)$  est l'intégrale elliptique incomplète de première espèce.

Lorsque  $I(\omega_1, Z=0)=0$ , le coefficient  $b_1$  dans l'expression (130) diverge, et doit être remplacé par  $-K(1-m_1)$ , où  $K(m)$  est l'intégrale elliptique complète de première espèce. L'intégrale (128) peut alors s'exprimer en terme de fonctions elliptiques de Jacobi  $sn(u|m)$  et  $cn(u|m)$ ; nous obtenons ainsi l'expression de  $I(\omega_1, Z=L)$ , et grâce aux équations (122) nous pouvons aussi exprimer les 3 autres éclaircissements, ce qui donne au final ([16], 2002) :

$$\left\{ \begin{array}{l} I(\omega_0, Z=L) = \frac{I(\omega_0, Z=L) \cdot (\Upsilon_{31} + \Upsilon_{01}) \cdot cn^2(a_1 \cdot L | 1-m_1)}{\Upsilon_{31} \cdot m_1 \cdot sn^2(a_1 \cdot L | 1-m_1) + (\Upsilon_{31} + \Upsilon_{01}) \cdot cn^2(a_1 \cdot L | 1-m_1)} \\ I(\omega_1, Z=L) = \frac{\Upsilon_{31} \cdot \Upsilon_{01} \cdot sn^2(a_1 \cdot L | 1-m_1)}{\Upsilon_{31} \cdot m_1 \cdot sn^2(a_1 \cdot L | 1-m_1) + (\Upsilon_{31} + \Upsilon_{01}) \cdot cn^2(a_1 \cdot L | 1-m_1)} \\ I(\omega_2, Z=L) = \frac{I(\omega_2, Z=L) \cdot (\Upsilon_{31} + \Upsilon_{01}) \cdot (sn^2(a_1 \cdot L | 1-m_1) + cn^2(a_1 \cdot L | 1-m_1))}{\Upsilon_{31} \cdot m_1 \cdot sn^2(a_1 \cdot L | 1-m_1) + (\Upsilon_{31} + \Upsilon_{01}) \cdot cn^2(a_1 \cdot L | 1-m_1)} \\ I(\omega_3, Z=L) = \frac{I(\omega_3, Z=L) \cdot (\Upsilon_{31} + \Upsilon_{01}) \cdot (m_1 \cdot sn^2(a_1 \cdot L | 1-m_1) + cn^2(a_1 \cdot L | 1-m_1))}{\Upsilon_{31} \cdot m_1 \cdot sn^2(a_1 \cdot L | 1-m_1) + (\Upsilon_{31} + \Upsilon_{01}) \cdot cn^2(a_1 \cdot L | 1-m_1)} \end{array} \right. \quad (131),$$

L'évolution des éclaircissements est périodique du fait des fonctions elliptiques de Jacobi : l'interaction de fission dépeuple la pompe et, lorsque celle-ci est entièrement consommée, le processus s'inverse ; c'est alors l'interaction de fusion  $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 \rightarrow \omega_0$  qui prend le relais. Un exemple de cette évolution périodique est tracé sur la Figure 47 pour le cas particulier évoqué au paragraphe précédent, c'est-à-dire pour l'interaction  $3\omega^{(-)} \rightarrow \omega^{(-)} + \omega^{(+)} + \omega^{(+)}$ , en accord de phase selon l'axe ( $Ox$ ) de KTP pour  $\lambda_\omega = 1620$  nm, en prenant les mêmes valeurs d'éclaircissements incidents.

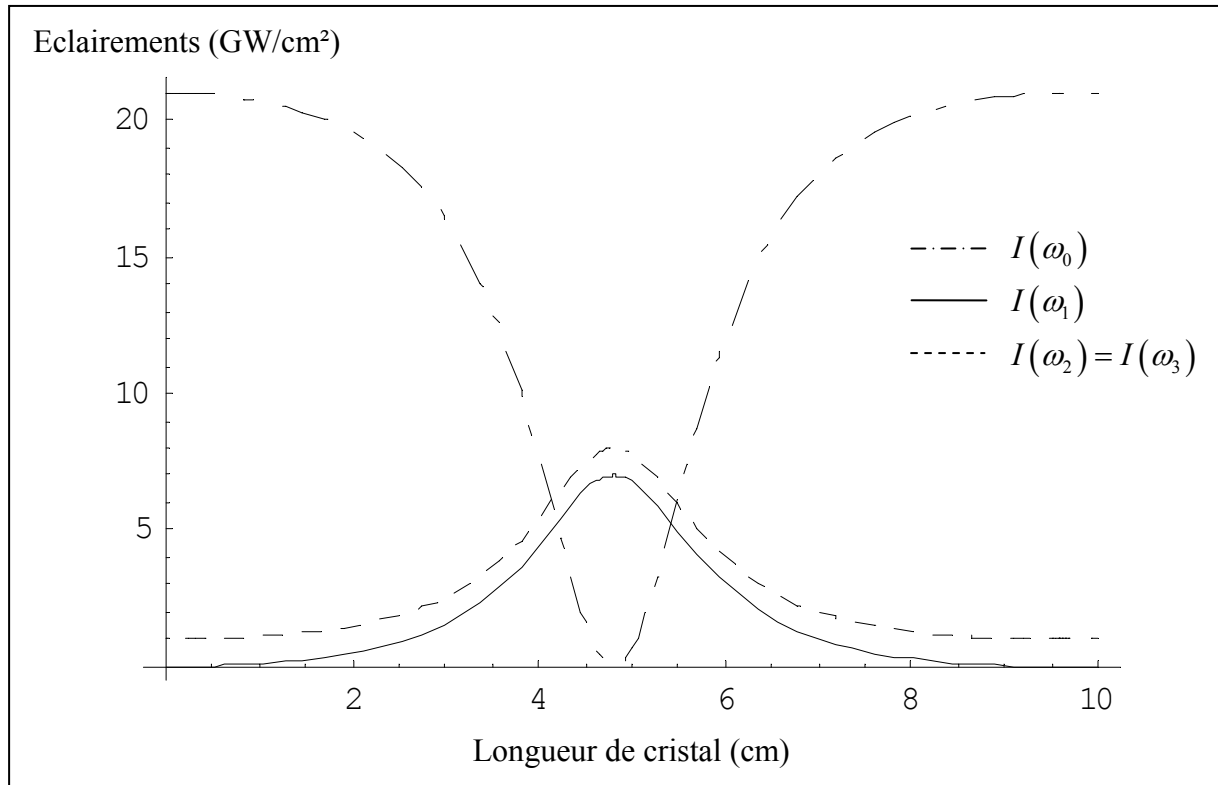


Figure 47 : évolution longitudinale des éclairements pour une interaction paramétrique cubique de schéma A.

Notons que nous retrouvons la valeur calculée dans l'approximation de la pompe non dépeuplée, soit 100 MW/cm<sup>2</sup> générés à la pulsation  $\omega_1$  après 1 cm de cristal. Nous vérifions ainsi que cette approximation est valide pour les intensités et la longueur d'interaction considérées.

### 1.3 Gain d'amplification paramétrique

Le gain d'amplification paramétrique des ondes à  $\omega_2$  et  $\omega_3$  est défini comme pour le cas des interactions quadratiques :

$$G_i(Z = L) = \frac{I(\omega_i, Z = L)}{I(\omega_i, Z = 0)} - 1 \quad (132),$$

avec  $i = 2$  ou  $3$ .

Ce gain est optimal lorsque la pompe est complètement dépeuplée, ce qui intervient lorsque la longueur du cristal vaut :



$$L_{opt} = \frac{1}{a_1} \cdot K (1 - m_1) \quad (133).$$

Les valeurs maximales de gain sont alors :

$$\begin{cases} G_2(Z = L_{opt}) = \frac{\Upsilon_{01}}{\Upsilon_{21}} = \frac{\lambda_0 \cdot I(\omega_0, Z = 0)}{\lambda_2 \cdot I(\omega_2, Z = 0)} \\ G_3(Z = L_{opt}) = \frac{\Upsilon_{01}}{\Upsilon_{31}} = \frac{\lambda_0 \cdot I(\omega_0, Z = 0)}{\lambda_3 \cdot I(\omega_3, Z = 0)} \end{cases} \quad (134),$$

et l'éclairement correspondant généré à la pulsation  $\omega_1$  s'écrit :

$$I(\omega_1, Z = L_{opt}) = \Upsilon_{01} = \frac{\lambda_0}{\lambda_1} \cdot I(\omega_0, Z = 0) \quad (135).$$

Pour reprendre l'exemple numérique tracé sur la Figure 47, la longueur de cristal nécessaire au dépeuplement de la pompe que donne le calcul est d'environ 4.8 cm ; l'éclairement maximal généré à la pulsation  $\omega_1$  est alors de l'ordre de 7 GW/cm<sup>2</sup>, et la valeur maximale des gains est  $G_2(Z = L_{opt}) = G_3(Z = L_{opt}) = 7$ . Ces résultats sont extrêmement encourageants pour une réalisation expérimentale.

#### 1.4 Seuil d'oscillation paramétrique

Comme pour le cas des oscillateurs paramétriques optiques (OPO) quadratiques, la mise en cavité de l'interaction cubique permet l'obtention d'une génération paramétrique plus efficace en augmentant la longueur d'interaction. La fluorescence paramétrique étant très faible, nous ne considérons ici que le cas d'un OPO injecté. Dans le cas d'une simple injection, les calculs sont similaires au cas d'un OPO quadratique non injecté. Nous pouvons utiliser les équations relatives au cas de la pompe non dépeuplée, car le rendement d'interaction au voisinage du seuil est toujours très faible.

En prenant le cas d'une simple injection à la pulsation  $\omega_3$ , le système d'équations couplées s'écrit :

$$\begin{cases} \frac{\partial E(\omega_0)}{\partial Z} = \frac{\partial E(\omega_3)}{\partial Z} = 0 \\ \frac{\partial E(\omega_1)}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{n(\omega_1) \cdot \lambda_1} \cdot E(\omega_0, Z=0) \cdot E^*(\omega_2) \cdot E^*(\omega_3, Z=0) \\ \frac{\partial E(\omega_2)}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{n(\omega_2) \cdot \lambda_2} \cdot E(\omega_0, Z=0) \cdot E^*(\omega_1) \cdot E^*(\omega_3, Z=0) \end{cases} \quad (136).$$

En dérivant une nouvelle fois par rapport à  $Z$ , nous obtenons alors :

$$\begin{cases} \frac{\partial^2 E(\omega_1)}{\partial Z^2} = j \cdot \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{n(\omega_1) \cdot \lambda_1} \cdot E(\omega_0, Z=0) \cdot \frac{\partial E^*(\omega_2)}{\partial Z} \cdot E^*(\omega_3, Z=0) \\ \frac{\partial^2 E^*(\omega_2)}{\partial Z^2} = -j \cdot \frac{\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{n(\omega_2) \cdot \lambda_2} \cdot E^*(\omega_0, Z=0) \cdot \frac{\partial E(\omega_1)}{\partial Z} \cdot E(\omega_3, Z=0) \end{cases} \quad (137),$$

$$\text{soit : } \begin{cases} \frac{\partial^2 E(\omega_1)}{\partial Z^2} = \frac{(\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)})^2}{n(\omega_1) \cdot n(\omega_2) \cdot \lambda_1 \cdot \lambda_2} \cdot |E(\omega_0, Z=0)|^2 \cdot |E(\omega_3, Z=0)|^2 \cdot E(\omega_1) \\ \frac{\partial^2 E^*(\omega_2)}{\partial Z^2} = \frac{(\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)})^2}{n(\omega_1) \cdot n(\omega_2) \cdot \lambda_1 \cdot \lambda_2} \cdot |E(\omega_0, Z=0)|^2 \cdot |E(\omega_3, Z=0)|^2 \cdot E^*(\omega_2) \end{cases} \quad (138).$$

Cette équation s'intègre facilement pour donner :

$$\begin{cases} E(\omega_1, Z) = E(\omega_1, Z=0) \cdot ch(\Gamma \cdot Z) + E^*(\omega_2, Z=0) \cdot \frac{\delta}{n(\omega_1) \cdot \lambda_1} \cdot sh(\Gamma \cdot Z) \\ E^*(\omega_2, Z) = E^*(\omega_2, Z=0) \cdot ch(\Gamma \cdot Z) - E(\omega_1, Z=0) \cdot \frac{\delta}{n(\omega_2) \cdot \lambda_2} \cdot sh(\Gamma \cdot Z) \end{cases} \quad (139),$$

$$\text{avec } \begin{cases} \Gamma = \sqrt{\frac{(\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)})^2}{n(\omega_1) \cdot n(\omega_2) \cdot \lambda_1 \cdot \lambda_2} \cdot |E(\omega_0, Z=0)|^2 \cdot |E(\omega_3, Z=0)|^2} \\ \delta = j \cdot \pi \cdot \chi_{eff}^{(3)} \cdot \frac{E(\omega_0, Z=0) \cdot E^*(\omega_3, Z=0)}{\Gamma} \end{cases} \quad (140).$$

Les fonctions  $ch$  et  $sh$  utilisées dans (139) correspondent au cosinus hyperbolique et au sinus hyperbolique respectivement.

L'OPO peut être schématisé par un cristal entouré de deux miroirs, et les seules pertes prises en compte dans ce calcul sont celles occasionnées par la réflexion de Fresnel associée à l'onde de pulsation  $\omega_i$ ,  $R(\omega_i)$ , et celles dues aux coefficients de transmission des miroirs d'entrée et de sortie pour cette même onde, notés  $T^{in}(\omega_i)$  et  $T^{out}(\omega_i)$  respectivement ; ces coefficients sont relatifs aux éclairissements. Par définition, au seuil d'oscillation, le milieu amplificateur doit compenser exactement les pertes ; pour une cavité qui recycle la pompe et le signal, c'est-à-dire pour laquelle  $T^{out}(\omega_0) = T^{out}(\omega_3) = 0$ , cette égalité s'écrit :

$$p(\omega_i) \cdot E(\omega_i, Z = 2L) = E(\omega_i, Z = 0) \quad (141).$$

$p(\omega_i) = \sqrt{(1-R(\omega_i))^4 \cdot (1-T^{in}(\omega_i)) \cdot (1-T^{out}(\omega_i))}$  représente les pertes complètes en amplitude de l'onde à  $\omega_i$  sur un aller-retour,  $i = 1$  ou  $2$ , et  $L$  est la longueur du cristal.

En utilisant l'équations (139), nous aboutissons alors au système suivant :

$$\begin{bmatrix} p(\omega_1) \cdot ch(\Gamma \cdot 2L) - 1 & \frac{p(\omega_1) \cdot \delta}{n(\omega_1) \cdot \lambda_1} \cdot sh(\Gamma \cdot 2L) \\ -\frac{p(\omega_2) \cdot \delta}{n(\omega_2) \cdot \lambda_2} \cdot sh(\Gamma \cdot 2L) & p(\omega_2) \cdot ch(\Gamma \cdot 2L) - 1 \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} E(\omega_1, Z = 0) \\ E^*(\omega_2, Z = 0) \end{bmatrix} = 0 \quad (142).$$

Le seuil d'oscillation s'obtient en recherchant des solutions non nulles pour les champs  $E(\omega_1, Z = 0)$  et  $E^*(\omega_2, Z = 0)$ , c'est-à-dire en annulant le déterminant de la matrice. En remarquant que :

$$\frac{\delta^2}{n(\omega_1) \cdot n(\omega_2) \cdot \lambda_1 \cdot \lambda_2} = -1 \quad (143),$$

et en utilisant l'égalité  $ch^2(\Gamma \cdot Z) - sh^2(\Gamma \cdot Z) = 1$ , nous aboutissons finalement à :

$$ch(\Gamma \cdot 2L) = \frac{1 + p(\omega_1) \cdot p(\omega_2)}{p(\omega_1) + p(\omega_2)} \quad (144).$$

En reprenant l'expression de  $\Gamma$  donnée par (140), la condition donnant le seuil d'oscillation s'exprime finalement en fonction des éclairissements incidents par :

$$\begin{aligned} (I(\omega_0, Z=0) \cdot I(\omega_3, Z=0))_{\text{seuil}} &= \frac{n(\omega_0) \cdot n(\omega_1) \cdot n(\omega_2) \cdot n(\omega_3) \cdot \lambda_2 \cdot \lambda_3}{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \cdot (2\pi \cdot \chi_{\text{eff}}^{(3)} \cdot 2L)^2} \\ &\cdot \text{arcch}^2 \left( \frac{1 + p(\omega_1) \cdot p(\omega_2)}{p(\omega_1) + p(\omega_2)} \right) \end{aligned} \quad (145).$$

Cette expression traduit le fait qu'un faisceau d'injection est nécessaire à l'obtention d'un seuil d'oscillation réaliste : si la pompe est seule, la valeur du seuil de l'OPO dépend de celle de la fluorescence paramétrique ; autant dire alors que les chances d'oscillation sont nulles !

Pour illustrer ces calculs, prenons un cristal de 1 cm de long et l'interaction qui nous sert d'exemple dans cette partie, c'est-à-dire  $3\omega^{(-)} \rightarrow \omega^{(+)} + \omega^{(+)} + \omega^{(-)}$ , en accord de phase selon l'axe ( $Ox$ ) de KTP pour  $\lambda_\omega = 1620$  nm, mais en prenant cette fois  $\omega_1 = \omega_2 = \omega^{(+)}$  et  $\omega_3 = \omega^{(-)}$ . Avec des coefficients de transmission  $T^{in}(\omega_1) = T^{in}(\omega_2) = 0$  et  $T^{out}(\omega_1) = T^{out}(\omega_2) = 5\%$ , le seuil d'oscillation est atteint avec des valeurs d'éclairements incidents réalistes de :

$$\begin{cases} I(\omega_0, Z=0) = 10 \text{ GW/cm}^2 \\ I(\omega_3, Z=0) = 300 \text{ MW/cm}^2 \end{cases} \quad (146).$$

La réalisation expérimentale d'un OPO cubique simplement injecté peut donc être envisagée avec de bonnes chances de succès, mais il convient d'être prudent car les calculs sont menés sans prendre en compte l'effet de la durée d'impulsion ; en régime picoseconde, qui est incontournable compte tenu des éclairements requis, le seuil d'oscillation sera alors plus élevé.

## 2 Stratégie pour le choix de l'interaction

### 2.1 Accord de phase

Comme le montre le § 1.2 précédent, l'interaction réaliste de fission de photon qui mène à la génération de triplets requiert trois faisceaux incidents non nuls. Dans l'optique d'établir une stratégie expérimentale adaptée, notre choix s'est porté sur une situation partiellement dégénérée afin de n'utiliser que deux faisceaux laser incidents ; les deux signaux d'injection seront donc à la même pulsation :  $\omega_2 = \omega_3$ . Cependant, il reste deux possibilités quant au choix de leurs directions de polarisation respectives dans le cristal : celles-ci pourront être

choisies parallèles ou orthogonales. Enfin, le faisceau de pompe doit être issu d’une source très intense, et nous avons choisi pour cela la longueur d’onde  $\lambda_0 = 532$  nm, qui correspond au second harmonique du laser Nd:YAG.

En partant des 7 possibilités données par (52) et en prenant en compte la dégénérescence en pulsation des deux faisceaux d’injection, il ne reste que 5 configurations de polarisation possibles pour vérifier l’accord de phase ; elles sont résumées dans le Tableau 9.

Relations d’accord de phase	Dénomination
$n^{(-)}(\omega_0) \cdot \omega_0 - n^{(+)}(\omega_1) \cdot \omega_1 - n^{(+)}(\omega_2) \cdot \omega_2 - n^{(+)}(\omega_3) \cdot \omega_3 = 0$	Type I
$n^{(-)}(\omega_0) \cdot \omega_0 - n^{(+)}(\omega_1) \cdot \omega_1 - n^{(+)}(\omega_2) \cdot \omega_2 - n^{(-)}(\omega_3) \cdot \omega_3 = 0$	Type II
$n^{(-)}(\omega_0) \cdot \omega_0 - n^{(+)}(\omega_1) \cdot \omega_1 - n^{(-)}(\omega_2) \cdot \omega_2 - n^{(-)}(\omega_3) \cdot \omega_3 = 0$	Type III
$n^{(-)}(\omega_0) \cdot \omega_0 - n^{(-)}(\omega_1) \cdot \omega_1 - n^{(+)}(\omega_2) \cdot \omega_2 - n^{(+)}(\omega_3) \cdot \omega_3 = 0$	Type IV
$n^{(-)}(\omega_0) \cdot \omega_0 - n^{(-)}(\omega_1) \cdot \omega_1 - n^{(+)}(\omega_2) \cdot \omega_2 - n^{(-)}(\omega_3) \cdot \omega_3 = 0$	Type V

Tableau 9 : configurations possibles d’accord de phase pour la fission doublement injectée à  $\omega_2 = \omega_3$ .

Comme pour l’étude de la THG décrite au Chapitre IV, nous nous limitons au seul plan ( $xOy$ ) de KTP, car il offre une valeur toujours faible de l’angle de double réfraction. En reprenant la méthode de calcul du coefficient effectif d’ordre 3 utilisée au § 1.1.2 du Chapitre IV, il est facile de montrer que seules les configurations de type II et IV offrent un coefficient effectif d’ordre 3 non nul, qui vaut :

$$\chi_{eff}^{(3)-Type II} = \chi_{eff}^{(3)-Type IV} = \chi_{16}^{(3)} \cdot \sin^2(\varphi) + \chi_{24}^{(3)} \cdot \cos^2(\varphi) \quad (147),$$

où  $\varphi$  est l’angle définissant la direction de propagation dans le plan ( $xOy$ ) de KTP.

La recherche de situations d’accord de phase a été menée dans les deux situations possibles : le type II, correspondant au cas de signaux d’injection ayant des directions de polarisation orthogonales, et le type IV, pour lequel elles sont parallèles. Les résultats sont synthétisés par les courbes d’accord de phase de la Figure 48.

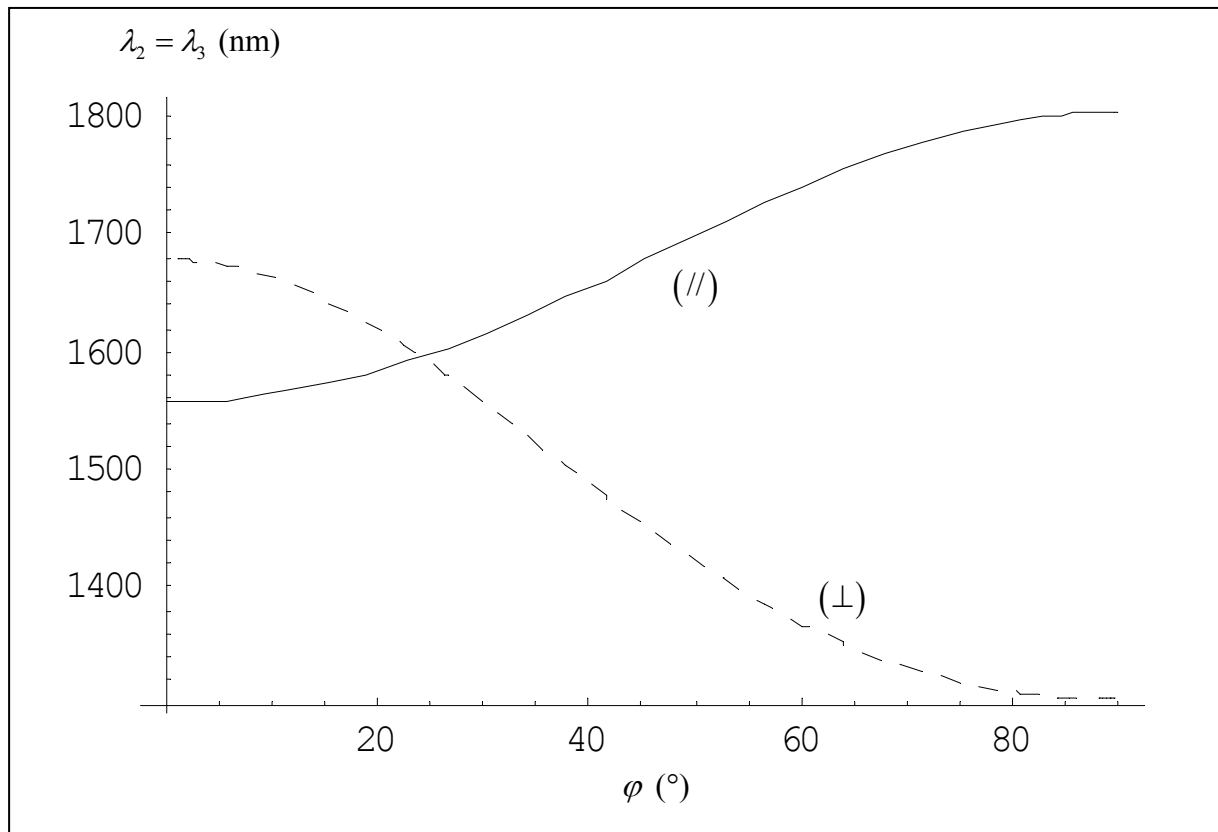


Figure 48 : courbes d'accord de phase pour une DFG cubique pompée à  $\lambda_0 = 532$  nm et injectée à  $\lambda_2 = \lambda_3$  dans le plan  $(xOy)$  de KTP ; (//) correspond à des polarisations d'injection parallèles, ( $\perp$ ) à des polarisations orthogonales.

Ces courbes ne donnent que la longueur d'onde d'injection en fonction de la direction de propagation, mais la longueur d'onde générée s'obtient aisément à l'aide de la conservation de l'énergie des photons en interaction, qui peut s'écrire :

$$\frac{1}{\lambda_1} = \frac{1}{\lambda_0} - \frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_3} \quad (148).$$

Le plan  $(xOy)$  de KTP présente donc des situations intéressantes, quelle que soit la direction de propagation, et quelle que soit la configuration de polarisation choisie. La direction  $(Ox)$  maximise le coefficient effectif d'ordre 3, comme le montre la Figure 20, et sera donc préférée pour les expériences. Les longueurs d'onde vérifiant l'accord de phase sont alors :

$$\begin{cases} \lambda_0^{(-)} = 532 \text{ nm} \\ \lambda_1^{(+)} = 1453 \text{ nm} \\ \lambda_2^{(+)} = \lambda_3^{(-)} = 1679 \text{ nm} \end{cases} \quad \text{pour le type II} \quad (149),$$

$$\text{et} \quad \begin{cases} \lambda_0^{(-)} = 532 \text{ nm} \\ \lambda_1^{(-)} = 1680 \text{ nm} \\ \lambda_2^{(+)} = \lambda_3^{(+)} = 1557 \text{ nm} \end{cases} \quad \text{pour le type IV} \quad (150).$$

Ces longueurs d'onde sont compatibles avec notre problématique de détection, bien que voisines de la limite haute de 1500 nm.

## 2.2 Prise en compte des cascades quadratiques

En reprenant la méthode développée au § 6 du Chapitre II et déjà appliquée au cas de la THG dans le Chapitre IV, nous pouvons quantifier l'effet des cascades d'interactions quadratiques susceptibles de venir concurrencer le processus cubique. L'interaction de type II peut être parasitée par 3 cascades différentes, alors que seules deux possibilités sont recensées pour l'interaction cubique de type IV : ces cascades sont détaillées dans le Tableau 10 et le Tableau 11, pour les interactions cubiques de types II et IV respectivement.

Cascade n°i	Détail des interactions	Coefficient non linéaire effectif d'ordre 2 associé au plan (xOy)
n°1	I - $\omega_2^{(+)} + \omega_3^{(-)} \rightarrow \Omega_a^{(-)}$	$\chi_{\text{eff},1}^{(2)-I} = \chi_{15}^{(2)} \cdot \sin^2(\varphi) + \chi_{24}^{(2)} \cdot \cos^2(\varphi)$
	II - $\omega_0^{(-)} \rightarrow \Omega_a^{(-)} + \omega_1^{(+)}$	$\chi_{\text{eff},1}^{(2)-II} = \chi_{15}^{(2)} \cdot \sin^2(\varphi) + \chi_{24}^{(2)} \cdot \cos^2(\varphi)$
n°2	I - $\omega_0^{(-)} \rightarrow \omega_2^{(+)} + \Omega_b^{(-)}$	$\chi_{\text{eff},2}^{(2)-I} = \chi_{15}^{(2)} \cdot \sin^2(\varphi) + \chi_{24}^{(2)} \cdot \cos^2(\varphi)$
	II - $\Omega_b^{(-)} \rightarrow \omega_3^{(-)} + \omega_1^{(+)}$	$\chi_{\text{eff},2}^{(2)-II} = \chi_{15}^{(2)} \cdot \sin^2(\varphi) + \chi_{24}^{(2)} \cdot \cos^2(\varphi)$
n°3	I - $\omega_0^{(-)} \rightarrow \omega_3^{(-)} + \Omega_b^{(+)}$	$\chi_{\text{eff},3}^{(2)-I} = \chi_{15}^{(2)} \cdot \sin^2(\varphi) + \chi_{24}^{(2)} \cdot \cos^2(\varphi)$
	II - $\Omega_b^{(+)} \rightarrow \omega_2^{(+)} + \omega_1^{(+)}$	$\chi_{\text{eff},3}^{(2)-II} = \chi_{33}^{(2)}$

Tableau 10 : cascades d'interactions quadratiques susceptibles de polluer le processus de DFG cubique de type II  $\omega_0^{(-)} \rightarrow \omega_1^{(+)} + \omega_2^{(+)} + \omega_3^{(-)}$ , injectée à  $\omega_2 = \omega_3$  dans le plan (xOy) de KTP.  $\varphi$  est l'angle d'accord de phase.

Cascade n°i	Détail des interactions	Coefficient non linéaire effectif d'ordre 2 associé au plan (xOy)
n°1	I - $\omega_2^{(+)} + \omega_3^{(+)} \rightarrow \Omega_a^{(+)}$	$\chi_{eff,1}^{(2)-I} = \chi_{33}^{(2)}$
	II - $\omega_0^{(-)} \rightarrow \Omega_a^{(+)} + \omega_1^{(-)}$	$\chi_{eff,1}^{(2)-II} = \chi_{15}^{(2)} \cdot \sin^2(\varphi) + \chi_{24}^{(2)} \cdot \cos^2(\varphi)$
n°2	I - $\omega_0^{(-)} \rightarrow \omega_{2,3}^{(+)} + \Omega_b^{(-)}$	$\chi_{eff,2}^{(2)-I} = \chi_{15}^{(2)} \cdot \sin^2(\varphi) + \chi_{24}^{(2)} \cdot \cos^2(\varphi)$
	II - $\Omega_b^{(-)} \rightarrow \omega_{3,2}^{(+)} + \omega_1^{(-)}$	$\chi_{eff,2}^{(2)-II} = \chi_{15}^{(2)} \cdot \sin^2(\varphi) + \chi_{24}^{(2)} \cdot \cos^2(\varphi)$

Tableau 11 : cascades d'interactions quadratiques susceptibles de polluer le processus de DFG cubique de type IV  $\omega_0^{(-)} \rightarrow \omega_1^{(-)} + \omega_2^{(+)} + \omega_3^{(+)}$ , injectée à  $\omega_2 = \omega_3$  dans le plan (xOy) de KTP.  $\varphi$  est l'angle d'accord de phase.

Les pulsations intermédiaires concernées sont :

$$\begin{cases} \Omega_a = \omega_2 + \omega_3 \\ \Omega_b = \omega_0 - \omega_2 = \omega_0 - \omega_3 \end{cases} \quad (151).$$

En appliquant la même méthode que celle développée au § 1.1.3 du Chapitre IV, nous pouvons calculer le taux de cascades relatif à chaque type d'interaction à partir de la relation (61) ; le résultat est tracé sur la Figure 49, où il apparaît clairement que l'interaction de type II offre la meilleure pureté, avec un taux de cascades inférieur d'un ordre de grandeur à celui de l'interaction de type IV.



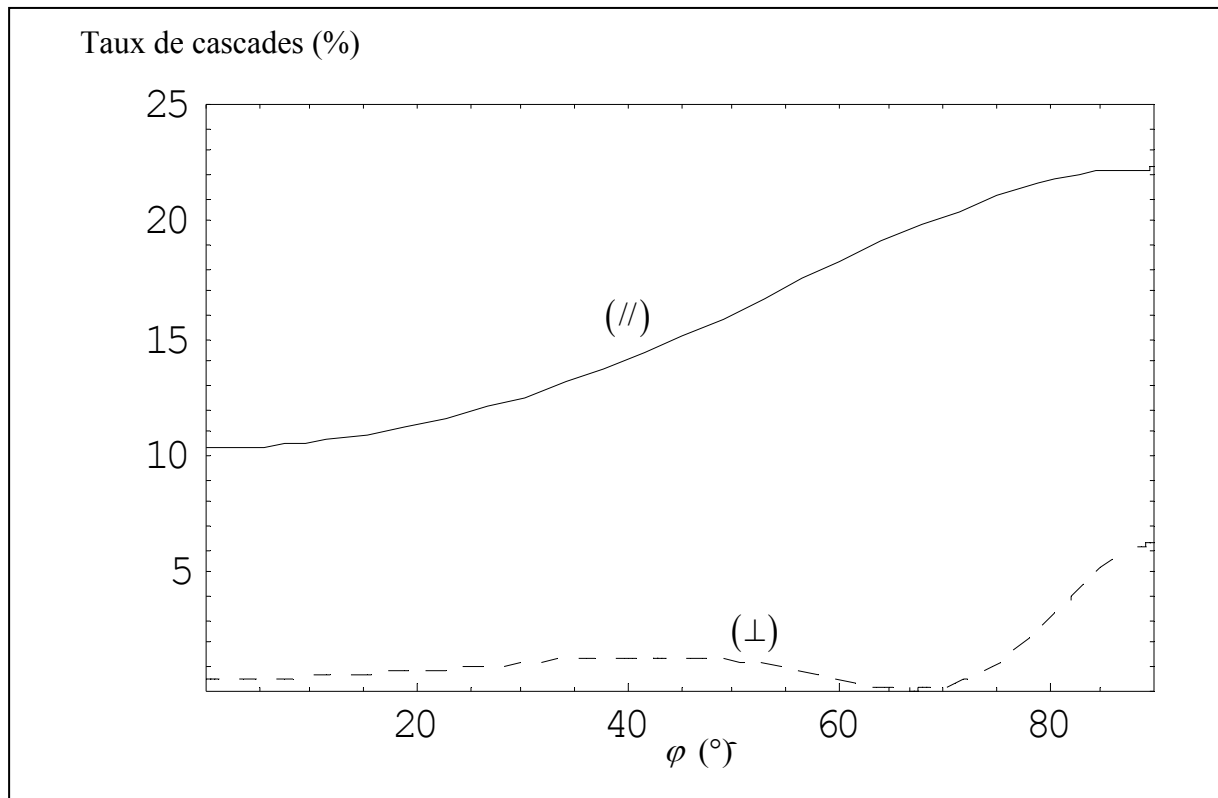


Figure 49 : taux de cascades pour une DFG cubique pompée à  $\lambda_0 = 532$  nm et injectée à  $\lambda_2 = \lambda_3$  dans le plan  $(xOy)$  de KTP ; (//) correspond à des polarisations d'injection parallèles, ( $\perp$ ) à des polarisations orthogonales.

De plus, la direction  $(Ox)$ , qui est intéressante car elle maximise le coefficient effectif d'ordre 3, est donc également attractive du point de vue des cascades, puisque le taux de cascades associé à l'interaction de type II y est seulement de 0.5 %.

### 3 Réalisations expérimentales

Sur la base des études prospectives décrites précédemment, l'interaction finalement choisie pour les expériences est une différence de fréquences cubique de type II, injectée par deux faisceaux de même pulsation et de directions de polarisations orthogonales, en accord de phase selon l'axe  $(Ox)$  de KTP ; les longueurs d'ondes correspondantes sont données par (149). Le taux de cascade n'étant que de 0.5 %, le coefficient effectif global sollicité est assimilable au seul coefficient effectif d'ordre 3, soit  $\chi_{24}^{(3)}$ . Le calcul de la tolérance spectrale relative à la longueur d'onde injectée donne une valeur de 17.5 cm·nm.

### 3.1 Dispositif

La source utilisée pour l'injection est celle décrite au § 2.2 du Chapitre III ; comme dans le Chapitre IV, nous utilisons le faisceau directement issu du générateur paramétrique. La durée d'impulsion est donc toujours estimée à 14 ps, et l'énergie d'injection maximale disponible est de l'ordre de 100  $\mu$ J par impulsion autour de 1679 nm. Même si les équations de dispersion de KTP qui sont utilisées pour calculer les courbes d'accord de phase données sur la Figure 48 sont les meilleures disponibles à ce jour, leur précision ne permet pourtant pas de calculer une longueur d'onde d'accord de phase à mieux que quelques nanomètres. Etant données les tolérances spectrales calculées, l'accordabilité au voisinage de la longueur d'onde d'injection est une nécessité absolue pour réaliser un accord de phase parfait. Une lame demi-onde achromatique permet d'ajuster la polarisation du faisceau d'injection à 45 ° des axes ( $Oy$ ) et ( $Oz$ ) du cristal de KTP, ce qui correspond à la configuration de type II.

Le faisceau de pompe à 532 nm est également issu du laser Nd:YAG qui pompe le générateur paramétrique accordable délivrant le faisceau d'injection ; une partie du faisceau à 1064 nm est prélevée pour être doublée en fréquence, la durée d'impulsion correspondante est donc du même ordre que celle du signal d'injection. L'énergie de pompe maximale délivrée est d'environ 1 mJ par impulsion ; une lame demi-onde et un polariseur à 532 nm assurent d'une part le bon alignement de la direction de polarisation sur l'axe ( $Oy$ ) de KTP et d'autre part le réglage de la puissance de pompe incidente.

Les deux faisceaux ayant des caractéristiques spatiales très différentes, ils disposent chacun de leur propre dispositif de focalisation. Les deux cols obtenus sont de tailles proches : les dimensions mesurées à l'aide d'une caméra appropriée sont de 125  $\mu$ m et 87  $\mu$ m pour la pompe et pour l'injection respectivement, les facteurs de qualité associés étant de  $M^2 \approx 1$  pour la pompe et  $M^2 \approx 1.8$  pour l'injection. Compte tenu de la relation (79) et en prenant une durée d'impulsion de 14 ps pour chacun des deux faisceaux, les éclairissements maximaux que nous pouvons obtenir sont :

$$\begin{cases} I(\omega_0, Z = 0) = 465 \text{ GW/cm}^2 \\ I(\omega_2, Z = 0) + I(\omega_3, Z = 0) = 96 \text{ GW/cm}^2 \end{cases} \quad (152).$$

Ces valeurs sont de l'ordre de grandeur du seuil de dommage optique de KTP en régime picoseconde, et les risques d'endommagement du cristal sont donc sérieux. Cette estimation

correspond cependant à un endommagement surfacique, localisé sur les faces avant ou arrière du cristal ; le seuil d'endommagement en volume semble être plus élevé, tout comme les seuils correspondant à la longueur d'onde de pompe.

La superposition spatiale des deux faisceaux s'effectue à l'aide de miroirs placés sur le trajet propre à chacun des signaux, puis d'un miroir de recombinaison réfléchissant pour la pompe et transparent pour le signal. La superposition temporelle est assurée par une ligne à retard placée sur le trajet du faisceau de pompe ; compte tenu de la durée d'impulsion, ce réglage doit être obtenu avec une précision de l'ordre de la picoseconde, ce qui correspond à un positionnement défini à 100  $\mu\text{m}$  près. La superposition spatio-temporelle de ces deux faisceaux est sans nul doute une des difficultés majeures du protocole expérimental. De façon à réaliser un pré-réglage, nous avons optimisé une différence de fréquences quadratique impliquant des longueurs d'onde similaires, en accord de phase dans le plan ( $xOz$ ) de KTP. Nous avons pour cela utilisé un cristal de 19 mm de long, taillé dans la direction  $\theta = 52^\circ$ , et sollicité l'interaction  $\omega_0 \rightarrow \omega_I + \omega_{II}$ , pompée à  $\lambda_0 = 532 \text{ nm}$ , injectée à  $\lambda_{II} = 1975 \text{ nm}$ , et générant un signal à  $\lambda_I = 728 \text{ nm}$  que nous avons cherché à maximiser.

Le cristal de KTP utilisé pour réaliser l'interaction de DFG cubique est taillé selon l'axe ( $Ox$ ) ; sa longueur selon cet axe est de 25 mm. D'autre part, les faisceaux sont focalisés au centre du cristal et les longueurs de Rayleigh associées sont de 4 cm pour la pompe et de 8 mm pour l'injection. L'approximation de l'onde plane n'est donc plus tout-à-fait correcte, puisque le cristal de 25 mm est plus long que le double de la longueur de Rayleigh de l'injection, soit 16 mm.

Après une lentille de reprise de focale +100 mm, un jeu de filtres interférentiels et un prisme permettent de séparer les composantes spectrales issues du cristal, et de ne mesurer que l'énergie générée à la pulsation  $\omega_I$ , symptomatique de la génération de triplets.

Le schéma complet du dispositif est donné sur la Figure 50.

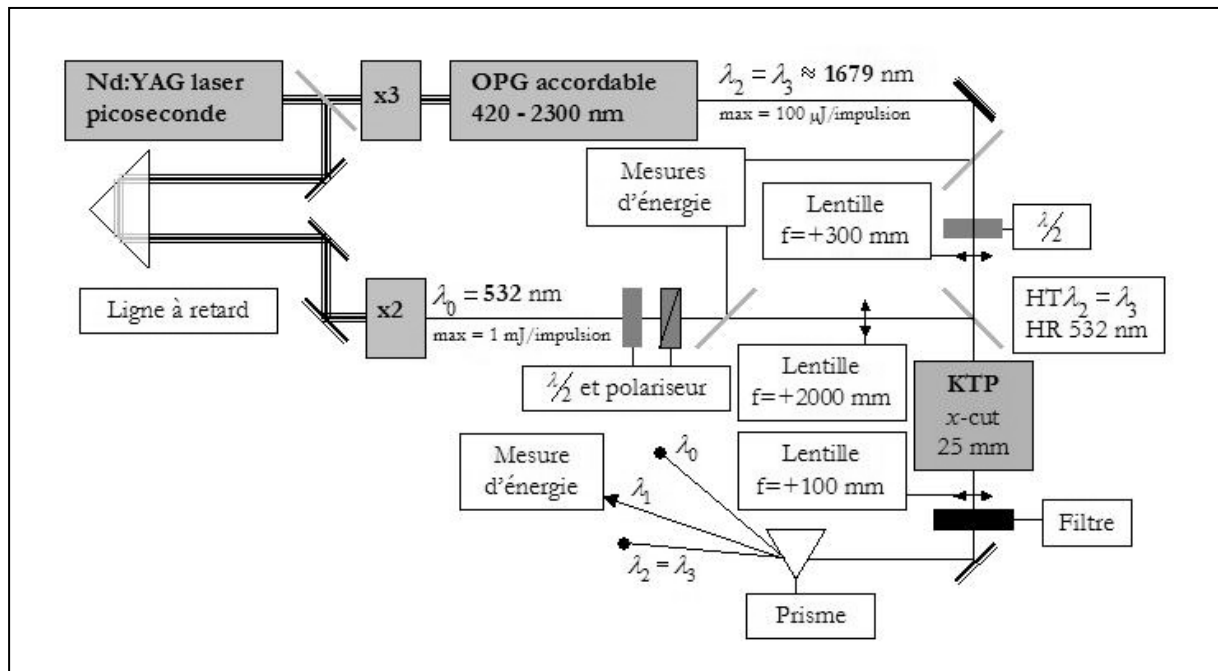


Figure 50 : dispositif expérimental utilisé pour la réalisation de la DFG cubique doublement injectée, pompée à  $\lambda_0 = 532 \text{ nm}$  selon l'axe ( $Ox$ ) de KTP.

Des lames de verre permettent de prélever une portion de l'énergie des faisceaux incidents afin de corriger nos mesures des fluctuations temporelles des sources. Un monochromateur (CVI DK480) nous permet de mesurer précisément les longueurs d'onde incidente et générée, et les mesures d'énergie sont réalisées par des sondes pyroélectriques Moletron et corrigées des différentes pertes optiques aux longueurs d'onde correspondantes.

Outre la superposition spatio-temporelle des faisceaux de pompe et d'injection, les autres difficultés expérimentales majeures sont l'incertitude sur les valeurs calculées des longueurs d'onde d'accord de phase et la faible tolérance spectrale associée. Une dernière difficulté, plutôt d'ordre psychologique, tenait au fait que nous ne savions pas si une telle interaction était observable.

### 3.2 Résultats obtenus

Le résultat de tout premier plan est l'observation de l'interaction visée, ce qui constitue à notre connaissance la première réalisation du genre.

## 3.2.1 Accord de phase

Pour réaliser un accord de phase parfait afin d'obtenir l'efficacité maximale, nous avons ajusté la longueur d'onde d'injection : alors que les calculs prévoyaient 1679 nm, la valeur optimale obtenue est  $\lambda_2 = \lambda_3 = 1665$  m, ce qui correspond à une génération à  $\lambda_1 = 1473$  nm. Ce léger écart n'est pas surprenant et justifie la nécessité de travailler avec une source d'injection accordable. La mesure de la largeur spectrale relative à la longueur d'onde d'injection donne une valeur de 12 nm ; au regard de la valeur de tolérance spectrale calculée, soit 17.5 cm·nm, cela correspond à une longueur d'interaction de l'ordre de 14 à 15 mm ; cette valeur n'est pas sans rappeler le double de la longueur de Rayleigh du faisceau d'injection. Les 25 mm de cristal ne sont donc pas complètement exploités, ce qui traduit sans doute un recouvrement imparfait des faisceaux de pompe et d'injection.

En situation d'accord de phase, le profil spectral généré est très satisfaisant, avec une largeur spectrale de seulement 2.2 nm, comme le montre la Figure 51.

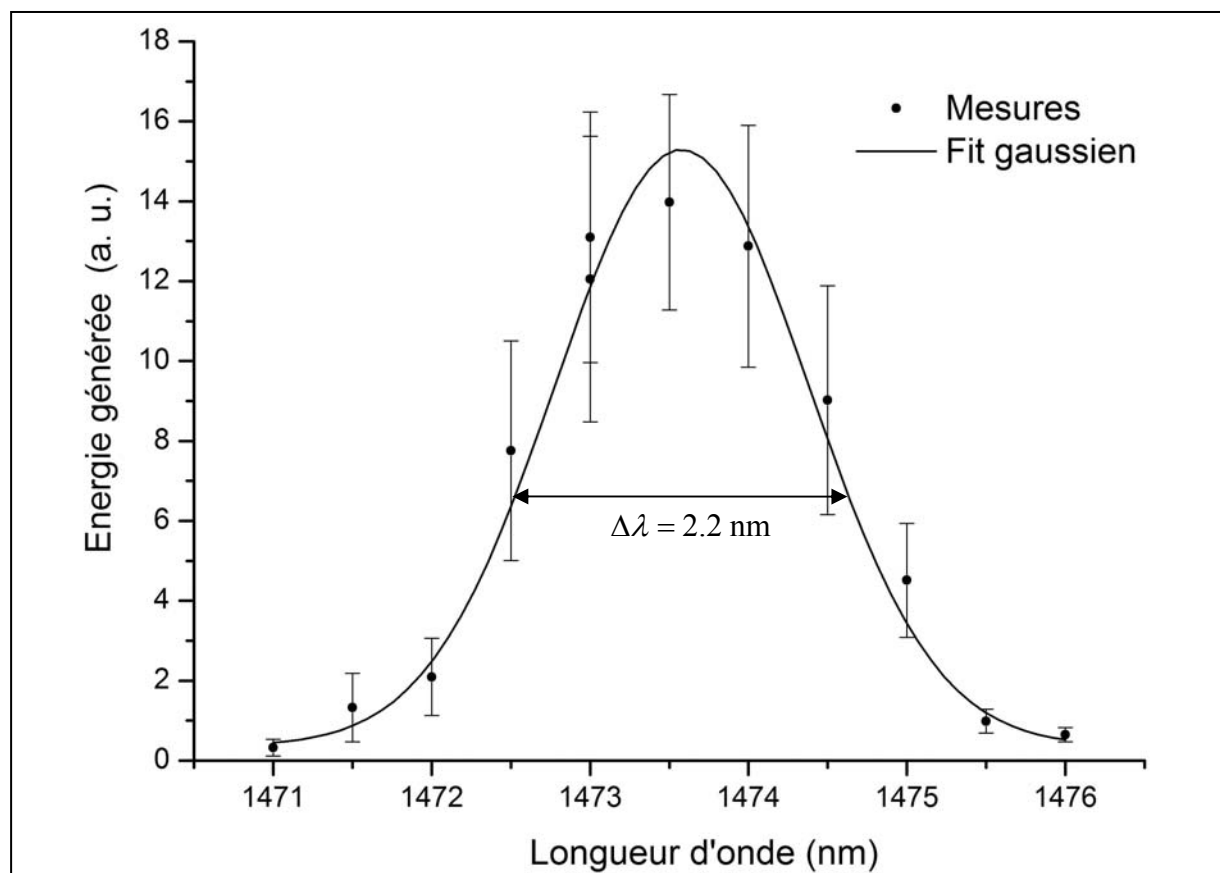


Figure 51 : profil spectral généré en situation d'accord de phase pour la DFG cubique pompée à  $\lambda_0 = 532$  nm selon l'axe ( $Ox$ ) de KTP, les deux injections à  $\lambda_2 = \lambda_3 = 1665$  nm étant polarisées orthogonalement.

Une autre courbe est importante à considérer car elle nous assure de la nature paramétrique de l'effet mis en jeu. La longueur d'onde générée en situation d'accord de phase est mesurée en fonction de la valeur de la longueur d'onde d'injection ; le résultat est ainsi à comparer à la courbe calculée à partir de la conservation de l'énergie des photons en interaction :

$$\lambda_1 = \left( \lambda_0^{-1} - \lambda_2^{-1} - \lambda_3^{-1} \right)^{-1} \quad (153).$$

Comme nous pouvons le voir sur la Figure 52, l'accord est excellent entre les mesures et les attentes théoriques.

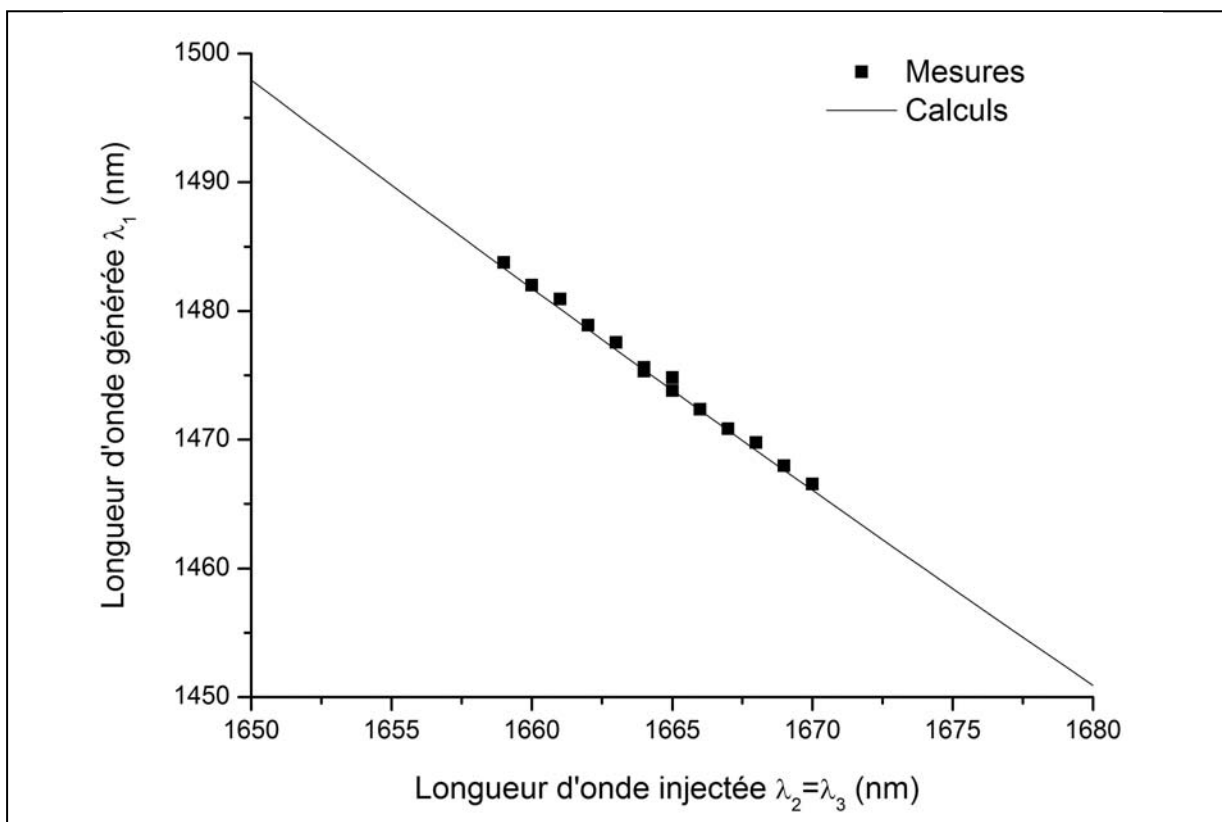


Figure 52 : longueur d'onde générée en situation d'accord de phase en fonction de la longueur d'onde injectée pour une DFG cubique pompée à  $\lambda_0 = 532$  nm selon l'axe ( $Ox$ ) de KTP, les deux injections étant polarisées orthogonalement ; les calculs sont relatifs à l'expression (153).

Une dernière donnée a son importance : nos détecteurs ne mesurent aucune énergie aux longueurs d'onde intermédiaires intervenant dans les cascades quadratiques, soit :  $\Omega_a = 839.5$  nm et  $\Omega_b = 779$  nm, alors que le faisceau à  $\omega_1$  est détectable. C'est donc la preuve que les phénomènes de pollution dus à ces cascades sont négligeables au regard de la génération à la pulsation  $\omega_1$ , comme le stipule le calcul du taux de cascades.

### 3.2.2 Rendement d'interaction

En maintenant l'énergie totale d'injection à 100  $\mu\text{J}/\text{impulsion}$ , soit environ 100  $\text{GW}/\text{cm}^2$ , nous avons fait varier l'énergie du faisceau de pompe. En supposant que les signaux incidents sont non dépeuplés, et en se référant alors à l'expression (115), l'évolution de  $I(\omega_1, Z=L)$  doit être proportionnelle à l'éclairement incident  $I(\omega_0, Z=0)$ . Les mesures effectuées en énergie sont traduites en terme d'éclaircements sur la Figure 53 et montrent bien cette évolution linéaire, hormis une valeur non nulle à l'origine que nous ne pouvons expliquer, mais qui reste faible. La valeur du rayon au col du faisceau générée est estimée à 55  $\mu\text{m}$  à l'aide de l'expression suivante, déduite de la nature gaussienne des faisceaux :

$$W_0^{-2}(\omega_1) = W_0^{-2}(\omega_0) + W_0^{-2}(\omega_2) + W_0^{-2}(\omega_3) \quad (154).$$

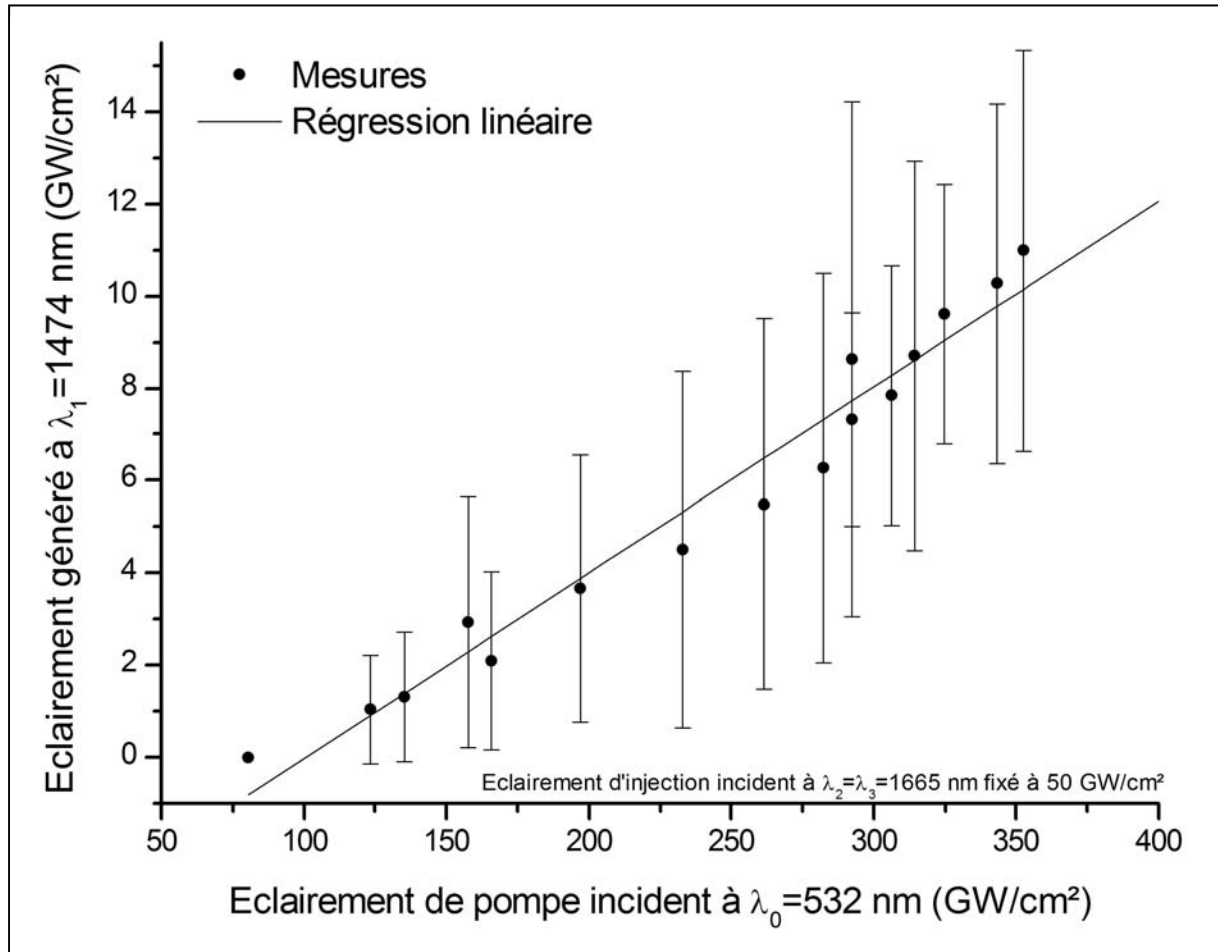


Figure 53 : éclairement généré à  $\lambda_1 = 1473 \text{ nm}$  en fonction de l'éclairement incident à  $\lambda_0 = 532 \text{ nm}$ , l'éclairement d'injection à  $\lambda_2 = \lambda_3 = 1665 \text{ nm}$  étant fixé à 50  $\text{GW}/\text{cm}^2$  par mode, soit 100  $\text{GW}/\text{cm}^2$  au total.

Cependant, la pente obtenue par régression linéaire sur nos mesures est presque 500 fois plus faible que la valeur donnée par l'équation (115) ; cette différence peut être attribuée à un mauvais recouvrement spatio-temporel de la pompe et de l'injection, à la très mauvaise qualité transverse du faisceau d'injection, ainsi qu'aux instabilités de pointé et aux fortes variations énergétiques de ce même faisceau. De plus, les durées d'impulsion des faisceaux de pompe et d'injection n'ont pas été mesurées, de sorte qu'une incertitude demeure quant à leur valeur réelle. Une autre cause pouvant expliquer ce faible rendement d'interaction est la détérioration du cristal ; ce dernier présente une forte coloration due au « Gray Track », induit par les fortes intensités présentes à 532 nm, ainsi que quelques éclats surfaciques occasionnés par le faisceau d'injection, dont l'éclairement correspondant est voisin du seuil de dommage observé lors des essais en THG, soit 55 GW/cm<sup>2</sup>. Enfin, le gain d'amplification du signal d'injection est estimé à environ 8 % à partir des valeurs mesurées de l'énergie générée, mais nous n'avons pas réussi à le mesurer du fait des très fortes instabilités de la source d'injection.

En dépit de ces réserves, ces mesures constituent les premières observations d'une différence de fréquences cubique. L'énergie maximale générée à 1473 nm est de 4.5 μJ par impulsion, soit  $3.34 \cdot 10^{13}$  photons. En comparaison, le nombre de photons d'injection est un ordre de grandeur supérieur, aux alentours de  $10^{14}$  photons par impulsion. La pureté de l'interaction cubique réalisée nous permet d'affirmer que nous avons ainsi généré plus de  $10^{13}$  triplets dans chaque impulsion picoseconde. Cette valeur est très satisfaisante, et doit être largement suffisante pour procéder désormais à des mesures de corrélations quantiques.



## Conclusion

En référence aux objectifs de départ, de nombreuses avancées résultent de ce travail. La modélisation poussée des interactions paramétriques optiques cubiques est désormais réalisée dans le cadre de l'optique classique. Il en découle un certain nombre de stratégies expérimentales pertinentes, dont la plupart ont été explorées lors de ces trois années de travail.

L'observation expérimentale du dégroupement à trois photons n'a pas encore pu être réalisée, mais des échantillons de ppKTP plus homogènes et une source de meilleure qualité doivent permettre d'aboutir dans un avenir proche. L'étude prospective menée sur la génération de tierce harmonique dans des verres de chalcogénure a permis de débroussailler ce champ de réalisations potentielles, sans toutefois fournir de solution immédiate.

La production expérimentale de triplets de photons a vu sa première réalisation, par le biais d'une différence de fréquences cubique doublement injectée dans KTP. Le nombre d'états triplets générés, de l'ordre de  $10^{13}$  par impulsion picoseconde, semble amplement suffisant pour entamer les premières études expérimentales de corrélations quantiques.

La démonstration ainsi apportée doit permettre de lever un verrou important et d'ouvrir les portes de l'optique quantique aux états intriqués à trois photons. L'avenir proche se construira vraisemblablement autour d'un OPO cubique injecté, dont nous avons montré la faisabilité théorique. Cette situation doit permettre d'obtenir un nombre de triplets bien supérieur au nombre de photons d'injection ; le temps des études quantiques sera alors venu.

---

## Bibliographie

1. Perez J. P., Carles R., Fleckinger R., *Electromagnétisme*. 2 ed. 1996, Paris : Masson.
2. Born M., Wolf E., *Principles of optics*. 5 ed. 1975, Oxford : Pergamon Press.
3. Yariv A., Yeh P., *Optical waves in crystals*. 2003, New York : Wiley.
4. Boulanger B., Zyss J., *Chapter 1.7 : Nonlinear optical properties*, in *International tables for crystallography*, A. A., Editor. 2003, International Union of Crystallography, Kluwer Academic : Dordrecht.
5. Nye J. F., *Physical properties of crystals*. 1957, London : Clarendon Press.
6. Hadni A., *Essentials of modern physics applied to the study of the infrared*. 1967, Oxford : Pergamon Press.
7. Huard S., *Polarisation de la lumière*. 1993, Paris : Masson.
8. Fève J. P., Boulanger B., Marnier G., *Experimental study of internal and external conical refractions in KTP*. Opt. Comm. **105**, 243-252 (1994).
9. Franken P., Hill A. E., Peters C. W., Weinreich G., *Generation of optical harmonics*. Phys. Rev. Lett. **7**, 118 (1961).
10. Armstrong J. A., Bloembergen N., Ducuing J., Pershan P. S., *Interactions between light-waves in a nonlinear dielectric*. Phys. Rev. **117**(6), 1918-1939 (1962).
11. Shen Y. R., *The principles of nonlinear optics*. 1984, New York : Wiley.
12. Butcher P. N., Cotter D., *The elements of nonlinear optics*. 1990, London : Cambridge University Press.
13. Grynberg G., Berman P. R., *Quantized-field approach to parametric mixing and pressure-induced resonances : Schrödinger picture*. Phys. Rev. A **43**(7), 3994-4007 (1991).
14. Kleinmann D. A., *Nonlinear dielectric polarization in optical media*. Phys. Rev. **126**(6), 1977-79 (1962).
15. Bloembergen N., *Nonlinear optics*. 1965, New York : Benjamin.
16. Fève J. P., Boulanger B., Douady J., *Specific properties of cubic parametric interactions compared to quadratic interactions*. Phys. Rev. A **66**, 063817 (2002).

17. Fejer M. M., Magel G. A., Jundt D. H., Byer R. L., *Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances*. IEEE J. Quantum Electron. **28**(11), 2631-2653 (1992).
18. Myers L. E., Eckardt R. C., Fejer M. M., Byer R. L., Bosenberg W. R., Pierce J. W., *Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO<sub>3</sub>*. J. Opt. Soc. Am. B **12**(11), 2102 (1995).
19. Karlsson H., Laurell F., *Electric field poling of flux grown KTiOPO<sub>4</sub>*. Appl. Phys. Lett. **71**(24), 3474-3476 (1997).
20. Rosenman G., Skliar A., Arie A., *Ferroelectric domain engineering for quasi-phase-matched nonlinear optical devices*. Ferroelectrics Rev. **1**, 263-326 (1999).
21. Hum D. S., Route R. K., Miller G. D., Fejer M. M., *Generation of 5W of 532 nm by QPM SHG for 1000 hrs in near-stoichiometric lithium tantalate*. CLEO/IQEC and PhAST Technical Digest on CD-ROM (OSA, Washington, DC, 2004), CMM4 (2004).
22. Levine B. F., *Bond-charge calculation of nonlinear optical susceptibilities for various crystal structures*. Phys. Rev. B **7**(6), 2600-2626 (1973).
23. Dmitriev V. G., Gurzadyan G. G., Nikogosyan D. N., *Handbook of nonlinear optical crystals*. Vol. 64. 1991, Berlin : Springer.
24. Boulanger B., Fève J. P., Delarue P., Rousseau I., Marnier G., *Cubic optical nonlinearity of KTiOPO<sub>4</sub>*. J. Phys. B **32**, 475-488 (1999).
25. Fève J. P., Boulanger B., *Suppression of quadratic cascading in four-photon interactions using periodically poled media*. Phys. Rev. A **65**(6), 063814 (2002).
26. Einstein A., Podolsky B., Rosen N., *Can quantum-mechanical description of physical reality be considered complete ?* Phys. Rev. **47**, 777-780 (1935).
27. Greenberger D. M., Horne M. A., Shimony A., Zeilinger A., *Bell's theorem without inequalities*. Am. J. Phys. **58**(12), 1131-1143 (1990).
28. Bell J. S., Physics **1**, 195 (1965).
29. Clauser J. F., Horne M. A., Shimony A., Holt R. A., *Proposed experiment to test local hidden-variable theories*. Phys. Rev. Lett. **23**(15), 880-884 (1969).
30. Aspect A., Grangier P., Roger G., *Experimental test of realistic local theories via Bell's theorem*. Phys. Rev. Lett. **47**(7), 460-463 (1981).

31. Aspect A., Grangier P., Roger G., *Experimental realization of Einstein-Podolsky-Rosen-Bohm gedankenexperiment - A new violation of Bell's inequalities*. Phys. Rev. Lett. **49**(2), 91-94 (1982).
32. Abram I., Raj R. K., Oudar J. L., Dolique G., *Direct observation of the second-order coherence of parametric generated light*. Phys. Rev. Lett. **57**(20), 2516-2519 (1986).
33. Breitenbach G., Schiller S., Mlynek J., *Measurements of the quantum states of squeezed light*. Nature **387**, 471-475 (1997).
34. Heidmann A., Horowicz R. J., Reynaud S., Giacobino E., Fabre C., *Observation of quantum noise reduction on twin laser beams*. Phys. Rev. Lett. **59**(22), 2555-2557 (1987).
35. Giacobino E., Fabre C., *Réduction du bruit quantique dans l'oscillateur paramétrique et dans les lasers*. Ann. Phys. Fr. **20**, 509-516 (1995).
36. Tittle W., Brendel J., Zbinden H., Gisin N., *Violation of Bell inequalities by photons more than 10 km apart*. Phys. Rev. Lett. **81**(17), 3563-3566 (1998).
37. Banaszek K., Knight P. L., *Quantum interference in three-photon down-conversion*. Phys. Rev. A **55**(3), 2368-2375 (1997).
38. Braunstein S. L., McLachlan R. I., *Generalized squeezing*. Phys. Rev. A **35**(4), 1659-1667 (1987).
39. Bajer J., *Photon statistics of the Nth subharmonics*. J. Mod. Opt. **38**(6), 1085-1091 (1991).
40. Gevorkyan S. T., Kryuchkyan G. Y., Kheruntsyan K. V., *Noise, instability and squeezing in third harmonic generation*. Opt. Comm. **134**, 440-446 (1997).
41. Felbinger T., Schiller S., Mlynek J., *Oscillation and generation of nonclassical states in three-photon down-conversion*. Phys. Rev. Lett. **80**(3), 492-495 (1998).
42. Bencheikh K., *Traitement non destructif des signaux optiques, Thèse*. 1996, Université Paris-13 : Paris.
43. Wawrezynieck L, Bencheikh K., Levenson J. A., *Generation d'états intriqués à trois photons*, rapport de DEA. 2002, Marcoussis : Laboratoire de Photonique et Nanostructures.
44. Reid M. D., *Quantum theory of optical bistability without adiabatic elimination*. Phys. Rev. A **37**(12), 4792-4818 (1988).
45. Okamoto H., Tasumi M., *Generation of ultrashort light pulses in the mid-infrared (3000-8000 $cm^{-1}$ ) by four-wave mixing*. Opt. Commun. **121**, 63-68 (1995).

46. Nienhuys H. K., Planken P. C., VanSanten R. A., Bakker H. J., *Generation of mid-infrared pulses by  $\chi^{(3)}$  difference frequency generation in  $\text{CaF}_2$  and  $\text{BaF}_2$* . Opt. Lett. **26**(17), 1350-1352 (2001).
47. Zeilinger A., Horne M. A., Weinfurter H., Zukowski M., *Three-particle entanglements from two entangled pairs*. Phys. Rev. Lett. **78**(16), 3031-3034 (1997).
48. Pan J. W., Bouwmeester D., Daniell M., Weinfurter H., Zeilinger A., *Experimental test of quantum nonlocality in three-photon Greenberger-Horne-Zeilinger entanglement*. Nature **403**, 515-519 (2000).
49. Pan J. W., Daniell M., Gasparoni S., Weihs G., Zeilinger A., *Experimental demonstration of four-photon entanglement and high-fidelity teleportation*. Phys. Rev. Lett. **86**(20), 4435-4438 (2001).
50. Li R. D., Kumar P., *Squeezing in travelling-wave second-harmonic generation*. Opt. Lett. **18**(22), 1961-1963 (1993).
51. Serkland D. K., Kumar P., Arbore M. A., Fejer M. M., *Amplitude squeezing by means of quasi-phase-matched second-harmonic generation in a lithium niobate waveguide*. Opt. Lett. **22**(19), 1497-1499 (1997).
52. Banks P. S., Feit M. D., Perry M. D., *High-intensity third-harmonic generation in beta barium borate through second-order and third-order susceptibilities*. Opt. Lett. **24**(1), 4-6 (1999).
53. Fève J. P., Boulanger B., Guillien Y., *Efficient energy conversion for cubic third-harmonic generation that is phase-matched in  $\text{KTiOPO}_4$* . Opt. Lett. **25**(18), 1373-1375 (2000).
54. Penzkofer A., Ossig F., Qiu P., *Picosecond third-harmonic light generation in Calcite*. Appl. Phys. B **47**, 71-81 (1988).
55. Kato K., *Parametric oscillation at  $3.2\mu\text{m}$  in KTP pumped at  $1.064\mu\text{m}$* . IEEE J. Quantum Electron. **27**, 1137 (1991).
56. Boulanger B., Fève J. P., Marnier G., Bonnin C., Villeval P., Zondy J. J., *Absolute measurement of quadratic nonlinearities from phase-matched SHG in a single KTP crystal cut in a sphere*. J. Opt. Soc. Am. B **14**(6), 1380-1386 (1997).
57. Stuart B. C., Feit M. D., Rubenchik A. M., Shore B. W., Perry M. D., *Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses*. Phys. Rev. Lett. **74**(12), 2248-2251 (1995).

- 
58. Rousseau I., *Non-linéarité cubique et dommage photochromique de KTP. Métrologie des propriétés paramétriques quadratiques appliquée aux isotopes arsénates KTA, RTA, CTA, Thèse.* 1999, Université de Bourgogne : Dijon.
  59. Boulanger B., Fève J. P., Marnier G., *Field factor formalism for the study of the tensorial symmetry of the 4-waves nonlinear optical parametric interactions in uniaxial and biaxial crystal classes.* Phys. Rev. E **48**(6), 4730-4751 (1993).
  60. Siegman A. E., *Lasers.* 1986, Mill Valley, CA : University Science Books.
  61. Fève J. P., Boulanger B., *Calculated suppressing of cascading quadratic processes in third harmonic generation using periodically poled media.* CLEO'2001, Baltimore May 06-11, 2001, CThL21 (2001).
  62. Anderson P. C., Varshneya A. K., *Stress-optic coefficient of Ge-As-Se chalcogenide glasses.* J. of Non-Cryst. Solids **168**, 125-131 (1994).
  63. Smektala F., Quemard C., Couderc V., Barthélémy A., *Non-linear optical properties of chalcogenide glasses measured by Z-scan.* J. of Non-Cryst. Solids **274**, 232-237 (2000).
  64. Aio L. G., Efimov A. M., Kokorina V. F., *Refractive index of chalcogenide glasses over a wide range of compositions.* J. of Non-Cryst. Solids **27**, 299-307 (1978).

## Résumé

Cette thèse porte sur l'étude d'interactions optiques non linéaires de conversion de fréquences d'ordre 3 faisant intervenir un ensemble de trois photons, qu'ils soient générés ou consommés. Outre les enjeux théoriques, les applications potentielles couvrent le domaine de la communication quantique : le phénomène de dégroupement associé à la consommation de trois photons doit mener à des états de bruit quantique comprimé, alors que la production de triplets de photons permettrait de réels progrès en cryptographie quantique. Faute de réalisation expérimentale adéquate, ces situations n'avaient jusqu'à présent pas pu être observées. Cette thèse présente une modélisation aboutie des interactions sollicitées, dans le cadre de la théorie classique. Des stratégies expérimentales réalistes sont alors définies et mises en œuvre. La première génération de triplets de photons est obtenue, ouvrant ainsi la voie aux futures études d'optique quantique.

## Mots-clés

Triplets de photons – génération de tierce harmonique – optique non linéaire – états intriqués – optique quantique.

## Summary

This work deals with third-order nonlinear frequency conversion interactions generating or consuming three-photon groups. The motivations are theoretical but also practical, with some applications concerning quantum communication : squeezed states leads to quantum noise reduction, and photon triples generation could be used in quantum cryptography protocols. Nevertheless, no experimental realization have been achieved up to now, and such situations have never been observed. This thesis proposes a complete modelisation of concerned interactions, in the classical theory. Some experimental strategies are then defined and realized. The first generation of photon triples is observed, opening the door to the future quantum optical studies.