HAL
open science

Conception et étude d'un générateur et d'un corrélateur de triplets de photons basés sur KTiOPO4 et TiO2

Fabien Gravier

To cite this version:

Fabien Gravier. Conception et étude d'un générateur et d'un corrélateur de triplets de photons basés sur KTiOPO4 et TiO2. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2007. Français. NNT : . tel-00285333

HAL Id: tel-00285333

https://theses.hal.science/tel-00285333

Submitted on 5 Jun 2008

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.

Université Grenoble I-Joseph Fourier UFR de Physique

THESE

présentée par

FABIEN GRAVIER

pour obtenir le grade de :
Docteur de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I

Conception et étude d'un générateur et d'un corrélateur de triplets de photons basés sur $KTiOPO_4$ et TiO_2

Soutenue publiquement le 12 Juillet 2007 devant la commission d'examen :

Emmanuel Rosencher	Professeur à l'école Polytechnique	Rapporteur
Jean-Jacques Zondy	Ingénieur de recherche au LNE	Rapporteur
Lionel Duvillaret	Professeur à l'INPG	Examinateur
Ariel Levenson	Directeur de recherche au CNRS	Examinateur
Jean-Philippe Poizat	Directeur de recherche au CNRS	Examinateur
Benoît Boulanger	Professeur à l'UJF	Directeur de thèse

Avant-propos

Mon travail de thèse a été réalisé successivement au laboratoire de Spectrométrie Physique et à l'Institut Néel à Grenoble, sous la direction de Benoît Boulanger. Je tiens à lui adresser mon immense reconnaissance pour m'avoir encadré pendant ces trois années. Sa grande rigueur scientifique et sa disponibilité ont été des atouts considérables dans la réussite de ce travail.

Je tiens également à remercier les autres membres de l'équipe d'optique non linéaire du laboratoire pour les fructueuses discussions scientifiques que nous avons eues, mais aussi pour les instants de convivialité que nous avons partagés. Un grand merci à Patricia Segonds et à Georges Rakotonanahary pour les expériences d'accord de phase sur TiO_2, et à Corinne Felix-Mathon dont les contributions techniques ont été essentielles dans la réussite de ce travail. Mes remerciements vont également à Bertrand Ménaert et Jérôme Debray pour la réalisation du cylindre de rutile. Je souhaite également remercier Julien Douady pour m'avoir passé le flambeau sur ce projet et pour m'avoir transmis son précieux travail.

Les lumineuses explications en optique quantique de Kamel Bencheikh et d'Ariel Levenson, du Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, ainsi que celles de Christoph Simon, ont été d'un grand secours pour le non spécialiste que je suis. Qu'ils soient tous les trois assurés de mes plus sincères remerciements.

Je souhaite également remercier les deux rapporteurs, Emmanuel Rosencher et Jean-Jacques Zondy, ainsi que les autres membres du jury, Lionel Duvillaret, Ariel Levenson et Jean-Philippe Poizat, qui ont accepté d'évaluer ce travail. Que chacun d'entre eux soit assuré de ma profonde reconnaissance de m'avoir accordé un peu de temps.

D'un point de vue personnel, je tiens à remercier Arnaud, Vincent, Mariem et Yannick pour les repas et tous les moments de détente partagés. Une mention spéciale à Yannick, mon co-bureau, pour sa bonne humeur contagieuse et son soutien dans les moments difficiles. Je n'oublie pas non plus les secrétaires, les techniciens et tous les membres du laboratoire croisés à la cafétéria.

Enfin, je souhaite bonne chance à Michaël Carrié, qui, après Julien et moi-même, prend le relais sur cet enthousiasmant projet.

A mes parents,

A Mélanie.

Table des matières

Table des matières **4**

Introduction **8**

I Eléments de théorie **10**

I.1 Introduction 10

I.2 Optique linéaire cristalline 11

I.2.1 Polarisation linéaire 11

I.2.2 Equation de propagation 12

I.2.3 Equation de Fresnel - Surface des indices 13

I.2.4 Classe uniaxe 14

I.2.5 Classe biaxe 15

I.2.6 Modes de polarisation 17

I.2.7 Dispersion de l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde 19

I.2.8 Synthèse 19

I.3 Optique non linéaire paramétrique cristalline 20

I.3.1 Polarisation non linéaire 20

I.3.2 Equation de propagation 22

I.3.3 Couplage à 3 ondes 22

I.3.4 Couplage à 4 ondes 23

I.3.5 Equations couplées 25

I.3.6 Accord de phase 26

I.3.7 Synthèse 27

II Etat de l'art **29**

II.1 Photons jumeaux 29

II.1.1 Propriétés quantiques 29

II.1.2 Applications 31

II.2 Génération de triplets de photons 32

II.2.1 Introduction 32

II.2.2 Scission spontanée 32

II.2.3 Scission stimulée 33

II.2.3.1 Calcul des éclairements 33

II.2.3.2 Stratégie expérimentale 35
II.2.3.3 Résultats 38
II.2.4 Propriétés quantiques 39
II.3 Génération de troisième harmonique 41
II.3.1 Intérêt quantique 41
II.3.2 Etude théorique 42
II.3.3 Expériences 43

III Réalisation de la source d'injection 45
III.1 Eléments de théorie 45
III.1.1 Introduction 45
III.1.2 Modèle de Byer et Brosnan 48
III.1.3 Evolution de la durée de vie du photon 49
III.2 Méthodes de caractérisation de faisceau utilisées 50
III.2.1 Faisceaux gaussiens 50
III.2.2 Caractérisation temporelle 53
III.2.3 Caractérisation spatiale 57
III.3 Les différentes configurations étudiées pour la génération à 1665 nm 58
III.3.1 OPO avec un coefficient de couplage fort 58
III.3.1.1 Dispositif expérimental 58
III.3.1.2 Résultats expérimentaux 59
III.3.1.2.1 Caractérisation énergétique 59
III.3.1.2.2 Caractérisation temporelle 60
III.3.1.3 Conclusion 60
III.3.2 OPO avec un coefficient de couplage faible 60
III.3.2.1 Dispositif expérimental 60
III.3.2.2 Résultats expérimentaux 61
III.3.2.2.1 Caractérisation énergétique 61
III.3.2.2.2 Caractérisation temporelle 61
III.3.2.3 Stratégie d'amélioration du dispositif 63
III.3.3 OPO à recyclage de pompe partiel suivi d'un OPA 63
III.3.3.1 Dispositif expérimental 63
III.3.3.2 Résultats expérimentaux 64
III.3.3.2.1 Caractérisation énergétique 64
III.3.3.2.2 Caractérisation temporelle 64
III.3.3.3 Interprétation 65
III.3.4 3 cristaux seuls 65
III.3.4.1 Dispositif expérimental 65
III.3.4.2 Résultats expérimentaux 66
III.3.4.2.1 Caractérisation énergétique 66
III.3.4.2.2 Caractérisation temporelle 67

III.3.4.2.3 Caractérisation spatiale 69
III.3.4.2.4 Caractérisation spectrale 71
III.3.4.3 Conclusion 71
III.4 Synthèse 72

IV Génération de triplets de photons dans KTP 74
IV.1 Introduction 74
IV.2 Réalisation expérimentale 76
IV.2.1 Dispositif 76
IV.2.2 Conditions expérimentales 77
IV.2.3 Energies mesurées à 1478,2 nm 78
IV.3 Comparaison entre expérience et théorie 80
IV.3.1 Prise en compte du recouvrement temporel 80
IV.3.2 Modèle en pompe non dépeuplée 83
IV.3.3 Modèle en pompe dépeuplée 85
IV.3.4 Gain d'amplification paramétrique 87
IV.3.5 Exploitation de la première expérience de génération de triplets de photons de 2004 87
IV.4 Conclusion 88

V Conception de l'expérience pour la mesure des corrélations quantiques des photons du triplet 89
V.1 Introduction 89
V.2 Différentes configurations possibles 92
V.3 Dispositif expérimental 94
V.4 Premières expériences 96
V.5 Conclusion 98

VI Etude de TiO_2-rutile pour la réalisation d'interactions cubiques 99
VI.1 Données bibliographiques 99
VI.2 Expression du coefficient effectif 100
VI.3 Mesure des propriétés d'accord de phase par la méthode du cylindre 102
VI.3.1 Principe de la méthode 102
VI.3.2 Etude de l'accord de phase 104
VI.3.2.1 Calcul de l'angle d'accord de phase 104
VI.3.2.2 Dispositif expérimental 106
VI.3.2.3 Courbe d'accord de phase mesurée 107
VI.3.2.4 Etablissement des équations de dispersion des indices de réfraction à partir de la courbe d'accord de phase mesurée 108
VI.4 Détermination de la figure de mérite 110
VI.4.1 Introduction 110
VI.4.2 Dispositif expérimental 111

VI.4.3 Résultats expérimentaux 112
VI.4.3.1 Figure de mérite 112
VI.4.3.2 Acceptance spectrale 114
VI.4.3.3 Acceptance angulaire 115
VI.5 Etude prospective des possibilités offertes par le rutile 116
VI.5.1 THG à haut rendement de conversion 116
VI.5.1.1 Introduction 116
VI.5.1.2 Etude en pompe dépeuplée 116
VI.5.2 Génération de triplets de photons 120
VI.6 Conclusion 121

Conclusion **122**

Bibliographie **123**

Annexes **128**

A Eléments des tenseurs de susceptibilité **129**

B Principales propriétés de $Ti0_2$-Rutile **131**

C K. Bencheikh, F. Gravier, J. Douady, A. Levenson and B. Boulanger. Triple Photons : a challenge in nonlinear and quantum optics. *C.R. physique* (2007) **133**

D F. Gravier and B. Boulanger. Cubic parametric frequency generation in rutile single crystal. *Opt. Express Vol 14, N 24* (2006) **149**

E F. Gravier and B. Boulanger. Third order Difference Frequency Generation : modelization and its experimental validation in KTP. *Soumis à Opt. Express* (2007) **156**

Introduction

L'objet de cette thèse est l'étude et la réalisation d'interactions optiques non linéaires impliquant la susceptibilité électrique de troisième ordre. Ces processus de conversion de fréquences font intervenir quatre photons qui peuvent être consommés ou générés dans un milieu non linéaire. La production de trois photons à partir de la scission d'un photon "parent" est la problématique centrale de ce travail. Celui-ci a été réalisé dans le cadre d'une collaboration avec Ariel Levenson et Kamel Bencheikh du Laboratoire de Photonique et Nanostructures.

L'intérêt majeur de la production de ces trois photons, appelé triplet de photons, réside dans les propriétés quantiques des particules ainsi créées. Elles possèdent en effet des corrélations quantiques spécifiques, différentes de celles observées sur les photons jumeaux, cas correspondant à la production de deux photons lors de la scission d'un photon parent. Ces trois particules sont dans un nouvel état de la lumière, partiellement étudié théoriquement, mais qui n'a jamais pu être observé jusque-là, faute de production efficace de triplets de photons. Ce nouvel état de la lumière a un intérêt majeur dans le domaine des communications, où son utilisation est envisagée dans certains protocoles de cryptographie quantique.

Le chapitre I donne les bases théoriques nécessaires à la compréhension du travail réalisé. L'optique cristalline et l'optique non linéaire sont abordées de manière synthétique pour ne faire ressortir que les éléments utilisés par la suite. Le chapitre II fait le bilan de ce qui a déjà été fait sur le thème abordé, d'un point de vue classique et quantique, en s'appuyant essentiellement sur les résultats obtenus au cours de la thèse de Julien Douady, soutenue en Juillet 2004. Une modélisation aboutie des interactions non linéaires considérées avait été réalisée et une stratégie expérimentale judicieuse avait été proposée. Celle-ci avait débouché sur la première observation expérimentale de triplets de photons, par une différence de fréquences cubique entre une onde à 532 nm et deux ondes à 1665 nm. Nous avons résumé ces principaux résultats dans un article publié dans les Comptes-Rendus de Physique de l'Académie des Sciences, donné dans l'annexe C ; cet article comprend également les premiers calculs quantiques, menés par Kamel Bencheikh et Ariel Levenson, correspondant au scénario considéré expérimentalement.

La première expérience de génération de triplets de photons ne permettait pas de valider la modélisation non linéaire et d'étudier les corrélations quantiques des photons

générés. La mauvaise qualité de la source à 1665 nm utilisée en était la cause principale. Nous avons donc décidé de concevoir une nouvelle source, basée sur une interaction optique non linéaire quadratique, permettant de produire un faisceau dont la longueur d'onde est voisine de 1665 nm, à partir d'un laser Nd :YAG émettant à 1064 nm. Le chapitre III est consacré à l'étude et à la réalisation de cette source. Le régime temporel sub-nanoseconde du laser rend cette étude assez originale, et plusieurs configurations d'oscillateur paramétrique optique ont été étudiées afin de dégager la solution permettant d'obtenir les meilleures performances.

Le chapitre IV décrit le nouveau générateur de triplets de photons utilisant la source d'injection que nous avons conçue. Grâce à des conditions expérimentales satisfaisantes, l'interaction de différence de fréquences est plus efficace que lors de l'expérience de 2004, et l'énergie générée par ces processus a pu être mesurée en fonction des énergies incidentes et de la longueur du cristal utilisé. Cette étude a permis d'établir une comparaison avec le modèle précédemment développé, auquel a été intégré la prise en compte du recouvrement temporel entre les faisceaux incidents. Un bon accord a pu être constaté entre théorie et expérience ; ce travail a fait l'objet d'un article soumis à Optics Express, donné dans l'annexe E.

A partir de ce nouveau générateur de triplets, la conception du banc de mesure des corrélations est décrite dans le chapitre V. Une méthode d'optique classique, déjà utilisée lors de l'étude des photons jumeaux, a été développée : elle est basée sur la séparation des photons du triplet, puis sur leurs recombinaison dans un cristal non linéaire, après les avoir décalés temporellement. Plusieurs scenarii ont été envisagés, impliquant deux ou trois photons du triplet. Les premières mesures ont été réalisées.

Le choix du milieu non linéaire est crucial pour réaliser des processus de conversion de fréquences cubiques efficaces. Depuis le début du projet sur les triplets de photons, le groupe maintient une activité de veille sur l'identification de cristaux toujours plus performants. Le dioxyde de titane dans sa phase rutile semble posséder les caractéristiques adéquates à une interaction cubique efficace. Une caractérisation a donc été menée, visant à mesurer ses propriétés d'accord de phase et sa non-linéarité cubique. Une étude prospective est également proposée sur la base de ces mesures, où des situations intéressantes pour la génération de triplets de photons et la génération de troisième harmonique ont été identifiées. Cette étude est décrite dans le chapitre VI, et a débouché sur un article publié dans Optics Express en 2006 et donné dans l'annexe D.

Chapitre I

Eléments de théorie

I.1 Introduction

Ce premier chapitre a pour but de donner les principales bases théoriques nécessaires à la compréhension de cette thèse, en s'attachant à comprendre et à modéliser les interactions entre une onde électromagnétique et un milieu homogène. Les ondes considérées dans le cadre de ce travail de thèse se situent dans le domaine optique et principalement dans le visible et le proche infrarouge. L'approximation retenue est celle de l'onde monochromatique ; une telle onde est constituée d'un champ électrique $\vec{E}$ et d'un champ magnétique $\vec{H}$, oscillant tous les deux à une fréquence f associée à une pulsation $\omega = 2\pi f$. La longueur d'onde λ correspondante est donnée par $\lambda = c/f$ où c est la vitesse de la lumière dans le vide.

Lorsqu'un milieu est illuminé par une onde électromagnétique à la pulsation ω, une polarisation électronique induite $\vec{P}$ apparaît dans celui-ci, et peut être décomposée en série de Taylor du champ électrique appliqué [1] :

$$\vec{P}\left(\omega_0\right) = \vec{P}^{(1)}\left(\omega_0\right) + \vec{P}^{(2)}\left(\omega_0\right) + \vec{P}^{(3)}\left(\omega_0\right) + \ldots \tag{I.1}$$

avec :

$$\begin{cases} \vec{P}^{(1)}\left(\omega_0\right) = \epsilon_0 \chi^{(1)}\left(\omega_0\right) : \vec{E}\left(\omega_0\right) \\ \vec{P}^{(2)}\left(\omega_0\right) = \epsilon_0 \chi^{(2)}\left(\omega_0 = \omega_1 \pm \omega_2\right) \vdots \left\{\vec{E}\left(\omega_1\right) \otimes \vec{E}\left(\pm\omega_2\right)\right\} \\ \vec{P}^{(3)}\left(\omega_0\right) = \epsilon_0 \chi^{(3)}\left(\omega_0 = \omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3\right) :: \left\{\vec{E}\left(\omega_1\right) \otimes \vec{E}\left(\pm\omega_2\right) \otimes \vec{E}\left(\pm\omega_3\right)\right\} \\ \qquad \ldots \end{cases} \tag{I.2}$$

où ϵ_0 est la permittivité diélectrique du vide, $\chi^{(n)}$ est le tenseur de susceptibilité électrique de rang $n+1$, $\otimes$ représente le produit tensoriel et (:, $\vdots$, : :) sont des produits contractés.

Le premier terme correspond à la polarisation linéaire du milieu, étudiée dans la

première partie de ce chapitre. Les termes d'ordres supérieurs constituant la polarisation non linéaire, $\vec{P}^{NL} = \vec{P}^{(2)} + \vec{P}^{(3)} + \ldots$, font apparaître des champs électriques à des pulsations ω_1, ω_2, ω_3, ..., qui sont différentes de la pulsation ω_0 de l'onde incidente. Les deux premiers termes de la polarisation non linéaire sont explicités dans la deuxième partie de ce chapitre.

De façon à décrire la propagation des ondes électromagnétiques, il convient d'introduire le vecteur déplacement électrique $\vec{D}$, qui est relié aux vecteurs $\vec{E}$ et $\vec{P}$ par :

$$\vec{D}(\omega) = \epsilon_0 \vec{E}(\omega) + \vec{P}(\omega) \tag{I.3}$$

L'équivalent magnétique est le vecteur induction magnétique $\vec{B}$. Les matériaux utilisés seront considérés comme non magnétiques, et dans ce cas, le vecteur $\vec{B}$ est directement proportionnel au champ magnétique $\vec{H}$:

$$\vec{B}(\omega) = \mu_0 \vec{H}(\omega) \tag{I.4}$$

où μ_0 est la perméabilité magnétique du vide. Les équations de Maxwell permettent de décrire spatialement et temporellement les évolutions des vecteurs $\vec{E}$, $\vec{D}$, $\vec{H}$ et $\vec{B}$ de l'onde électromagnétique [2]. Dans le cas de milieux non magnétiques et non conducteurs, elles s'écrivent :

$$\begin{cases} \vec{rot}\left(\vec{E}(\omega)\right) + \dfrac{\partial \vec{B}(\omega)}{\partial t} = 0 \\ \vec{rot}\left(\vec{H}(\omega)\right) - \dfrac{\partial \vec{D}(\omega)}{\partial t} = 0 \\ div\left(\vec{D}(\omega)\right) = 0 \\ div\left(\vec{B}(\omega)\right) = 0 \end{cases} \tag{I.5}$$

A partir des équations de Maxwell (I.5) et des équations constitutives (I.3) et (I.4), l'équation de propagation de l'onde électromagnétique s'écrit [3] :

$$\vec{rot}\left(\vec{rot}\left(\vec{E}(\omega)\right)\right) + \mu_0\epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}(\omega)}{\partial t} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{P}(\omega)}{\partial t} \tag{I.6}$$

Cette équation est étudiée dans les parties suivantes pour chaque type de polarisation, linéaire et non linéaire.

I.2 Optique linéaire cristalline

I.2.1 Polarisation linéaire

Nous ne nous intéressons ici qu'au premier terme de la polarisation (I.1) faisant appel au tenseur de rang 2 de la susceptibilité électrique linéaire $\chi^{(1)}$. Il existe un repère

orthogonal (O, x, y, z), appelé repère optique ou repère diélectrique, dans lequel cette matrice est diagonalisable. Ce repère peut être différent du repère cristallographique [4], qui lui est lié à la maille cristalline. La polarisation linéaire s'écrit donc dans (O, x, y, z) :

$$\vec{P}^{(1)}(\omega) = \epsilon_0 \begin{pmatrix} \chi_{xx}^{(1)}(\omega) & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{yy}^{(1)}(\omega) & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{zz}^{(1)}(\omega) \end{pmatrix} \vec{E}(\omega) \tag{I.7}$$

En combinant les équations (I.7) et (I.3) il vient dans (O, x, y, z) :

$$\vec{D}(\omega) = \epsilon_0 \begin{pmatrix} 1 + \chi_{xx}^{(1)}(\omega) & 0 & 0 \\ 0 & 1 + \chi_{yy}^{(1)}(\omega) & 0 \\ 0 & 0 & 1 + \chi_{zz}^{(1)}(\omega) \end{pmatrix} \vec{E}(\omega) \tag{I.8}$$

Les indices principaux de réfraction n_x,n_y, n_z sont alors définis par :

$$\begin{cases} n_x(\omega) = \sqrt{1 + \chi_{xx}^{(1)}(\omega)} \\ n_y(\omega) = \sqrt{1 + \chi_{yy}^{(1)}(\omega)} \\ n_z(\omega) = \sqrt{1 + \chi_{zz}^{(1)}(\omega)} \end{cases} \tag{I.9}$$

Les propriétés du milieu considéré, d'un point de vue de l'optique linéaire cristalline, découlent directement des valeurs des trois indices principaux de réfraction ; elles permettent d'établir une classification des matériaux. De plus, dans le cas général, l'équation (I.8) montre que les vecteurs $\vec{E}$ et $\vec{D}$ ne sont pas colinéaires : l'angle entre ces deux vecteurs est appelé angle de double réfraction, noté ρ.

I.2.2 Equation de propagation

En ne considérant que le premier terme de la polarisation, l'équation de propagation (I.6) du champ électrique s'écrit :

$$\vec{rot}\left(\vec{rot}\left(\vec{E}(\omega)\right)\right) + \mu_0\epsilon_0\left(1 + \chi^{(1)}(\omega)\right)\frac{\partial \vec{E}(\omega)}{\partial t} = 0 \tag{I.10}$$

Une solution possible de l'équation (I.10) est une onde plane progressive. Nous choisissons un repère du laboratoire (O, X, Y, Z) tel que (OZ) soit colinéaire au vecteur

d'onde $\vec{k}$, qui représente la direction de propagation de l'onde. Le champ électrique associé à l'onde en fonction des coordonnées spatiales et du temps s'écrit alors :

$$\vec{E}\left(X,Y,Z,t\right) = E_0\left(X,Y,Z\right).e^{j(kZ-\omega t)}\vec{e} \tag{I.11}$$

où $E_0\left(X,Y,Z\right) = \left|E_0\left(X,Y,Z\right)\right|.e^{j\phi}$ est l'amplitude complexe de l'onde avec ϕ la phase initiale, k le module du vecteur d'onde $\vec{k}$, et $\vec{e}$ est le vecteur unitaire du champ électrique ; il indique la direction de polarisation électrique de l'onde. La relation de dispersion $k\left(\omega\right)$ s'obtient en remplaçant la solution (I.11) dans l'équation de propagation (I.10) :

$$k\left(\omega\right) = \frac{\omega}{c}\sqrt{1+\chi^{(1)}\left(\omega\right)} = n\frac{\omega}{c} \tag{I.12}$$

$n = \sqrt{1+\chi^{(1)}}$ est l'indice de réfraction de l'onde électromagnétique. n dépend de la pulsation, de la polarisation et de la direction de propagation de l'onde dans le milieu considéré.

I.2.3 Equation de Fresnel - Surface des indices

Dans le repère optique, la direction de propagation d'une onde électromagnétique est précisée par la direction de son vecteur d'onde $\vec{k}$; les coordonnées polaires (φ, θ) seront par la suite utilisées conformément à la figure I.1.

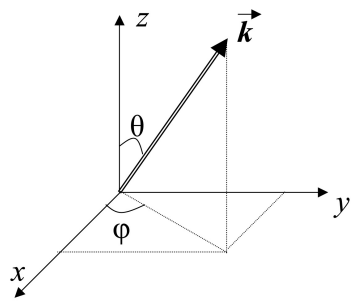


FIG. I.1 – *Convention d'orientation dans le repère optique ; $\vec{k}$ est le vecteur d'onde.*

A partir des équations de Maxwell et des équations constitutives, il est possible d'établir une relation entre l'indice de réfraction n et la direction de propagation [5] :

$$\frac{\sin^2\left(\theta\right)\cos^2\left(\varphi\right)}{n^{-2}-n_x^{-2}} + \frac{\sin^2\left(\theta\right)\sin^2\left(\varphi\right)}{n^{-2}-n_y^{-2}} + \frac{\cos^2\left(\theta\right)}{n^{-2}-n_z^{-2}} = 0 \tag{I.13}$$

Cette équation est appelée équation de Fresnel. Elle permet de calculer, pour chaque direction de propagation, la valeur de l'indice de réfraction. Elle admet deux solutions, $n^+\left(\theta,\varphi\right)$ et $n^-\left(\theta,\varphi\right)$, avec $n^+\left(\theta,\varphi\right) > n^-\left(\theta,\varphi\right)$, données par [6] :

$$n^{(\pm)}\left(\theta,\varphi\right) = \sqrt{\frac{2}{\alpha \mp \sqrt{\alpha^2-4\beta}}} \tag{I.14}$$

avec $\alpha = \sin^2(\theta)\cos^2(\varphi)\left(n_y^{-2} + n_z^{-2}\right) + \sin^2(\theta)\sin^2(\varphi)\left(n_x^{-2} + n_z^{-2}\right) + \cos^2(\theta)\left(n_x^{-2} + n_y^{-2}\right)$ et $\beta = \sin^2(\theta)\cos^2(\varphi)\, n_y^{-2} n_z^{-2} + \sin^2(\theta)\sin^2(\varphi)\, n_x^{-2} n_z^{-2} + \cos^2(\theta)\, n_x^{-2} n_y^{-2}$.

L'indice de réfraction peut donc prendre deux valeurs distinctes : ce phénomène s'appelle la biréfringence. L'équation (I.14) montre que si les indices principaux de réfraction sont tous égaux ($n_x = n_y = n_z = n$), alors $\alpha^2 = 4\beta$ et $n^+(\theta, \varphi) = n^-(\theta, \varphi) = n$. L'indice de réfraction ne dépend pas de la direction de propagation, le matériau est dit optiquement isotrope, ce qui ne rentre pas dans le cadre de notre étude.

Si les indices principaux sont différents, le milieu est dit anisotrope et la valeur de l'indice de réfraction dépend de la direction de propagation de l'onde. Si deux indices principaux sont égaux et différents du troisième, le matériau appartient à la classe optique des uniaxes. Si les trois indices sont différents, il s'agit alors de la classe optique des biaxes. Ces deux classes seront détaillées dans la suite de ce chapitre.

Les expressions $n^+(\theta, \varphi)$ et $n^-(\theta, \varphi)$ forment une surface tridimensionnelle dans le repère optique, appelée surface des indices. Il existe deux nappes correspondantes aux deux solutions de l'équation de Fresnel. Les distances, du centre du repère optique aux deux nappes d'indice dans la direction (θ, φ) considérée, correspondent aux deux racines de l'équation de Fresnel, $n^+(\theta, \varphi)$ et $n^-(\theta, \varphi)$.

La classe optique d'un matériau dépend de sa classe de symétrie d'orientation ; le tableau de l'annexe A permet de faire le lien entre classe optique et classe de symétrie d'orientation [4].

I.2.4 Classe uniaxe

Dans le cas d'un matériau uniaxe, deux des trois indices principaux sont égaux et, en permutant l'ordre des axes du repère optique, ils peuvent toujours être choisis comme $n_x = n_y$. Cette double valeur est appelée indice ordinaire, noté n_o. Le troisième indice n_z est appelé indice extraordinaire, il est noté n_e. La relation d'ordre entre n_o et n_e permet de distinguer deux cas possibles : les uniaxes positifs, pour lesquels $n_o < n_e$, et les uniaxes négatifs, où $n_o > n_e$.

Dans les deux cas, la résolution de l'équation de Fresnel fait apparaître deux nappes d'indices : une nappe de forme sphérique de rayon n_o et un ellipsoïde de révolution autour de l'axe (Oz). Les équations des deux nappes sont les suivantes :

$$\begin{cases} n^o(\theta, \varphi) = n_o & \forall(\theta, \varphi) \\ n^e(\theta, \varphi) = \dfrac{1}{\sqrt{\frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2}}} & \forall\varphi \end{cases} \tag{I.15}$$

$\{n^o(\theta, \varphi), n^e(\theta, \varphi)\}$ correspondant à $\{n^-(\theta, \varphi), n^+(\theta, \varphi)\}$ et à $\{n^+(\theta, \varphi), n^-(\theta, \varphi)\}$ pour un uniaxe positif ou négatif respectivement.

La trace de la surface des indices dans n'importe quel plan contenant l'axe de révolution (Oz) est composée d'un cercle et d'une ellipse. Dans le plan (xOy) la trace est constituée de deux cercles. La figure I.2 montre les traces de la surface des indices dans les plans principaux (xOz), (yOz) et (xOy) dans 1/8 d'espace. La biréfringence, quantité positive égale à $n^+(\theta,\varphi) - n^-(\theta,\varphi)$, est exagérée par rapport à la réalité afin de faciliter la lecture de la figure.

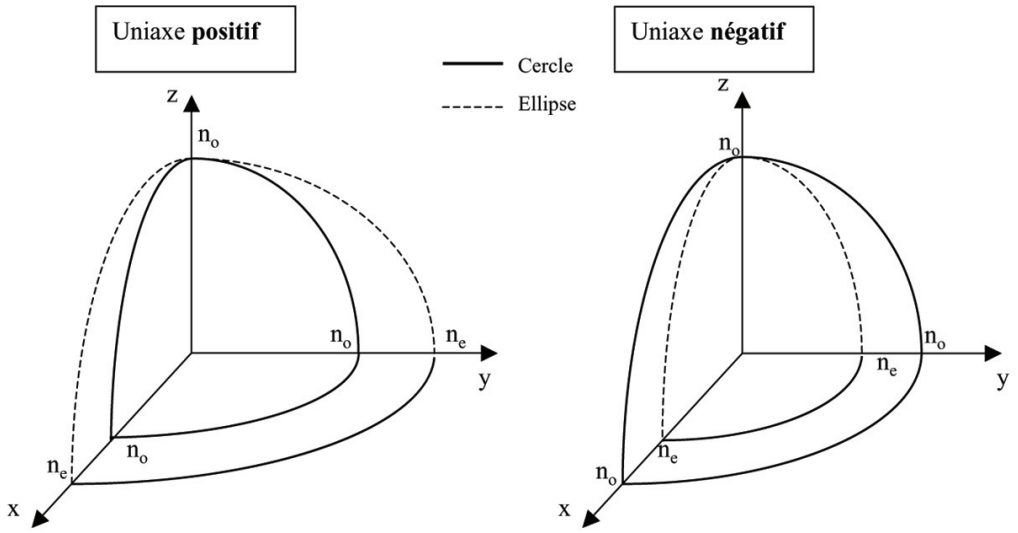


FIG. I.2 – *Traces des deux nappes de la surface des indices dans les plans principaux d'un milieu uniaxe positif (gauche) et négatif (droite).*

Par définition l'axe optique est la direction dans laquelle il existe une solution double à l'équation de Fresnel ; dans un uniaxe il existe un seul axe optique, l'axe (Oz), justifiant alors l'appellation d'uniaxe pour ce type de milieu.

I.2.5 Classe biaxe

Dans le cas d'un matériau biaxe les trois indices principaux sont différents et la surface des indices est plus complexe. En utilisant le degré de liberté donné par le choix des axes du repère optique, les indices principaux vérifient par convention la relation d'ordre $n_x < n_y < n_z$. Une vue en 3D dans 1/4 d'espace (figure I.3) permet de mieux appréhender la forme de la surface des indices, et de remarquer la présence de deux axes optiques dans tout l'espace, justifiant cette fois l'appellation de milieu biaxe. La présence d'axes optiques en dehors des axes principaux engendrent la création d'ombilics dans les directions correspondantes, responsables de la réfraction conique intérieure [7].

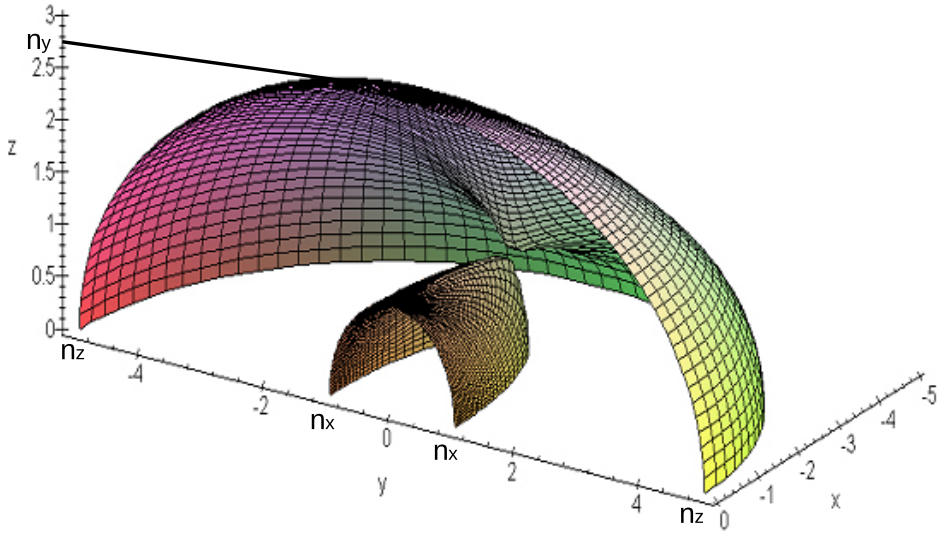


FIG. I.3 – *Vue 3D de la surface des indices d'un milieu biaxe dans 1/4 d'espace [8].*

La trace laissée par la surface des indices est cette fois, dans les trois plans principaux, toujours composée d'un cercle et d'une ellipse (figure I.4). Les deux axes optiques sont situés dans le plan (xOz), sont symétriques par rapport à (Oz), et font un angle V_z avec celui-ci tel que :

$$\sin^2(V_z) = \frac{n_y^{-2} - n_x^{-2}}{n_z^{-2} - n_x^{-2}} \tag{I.16}$$

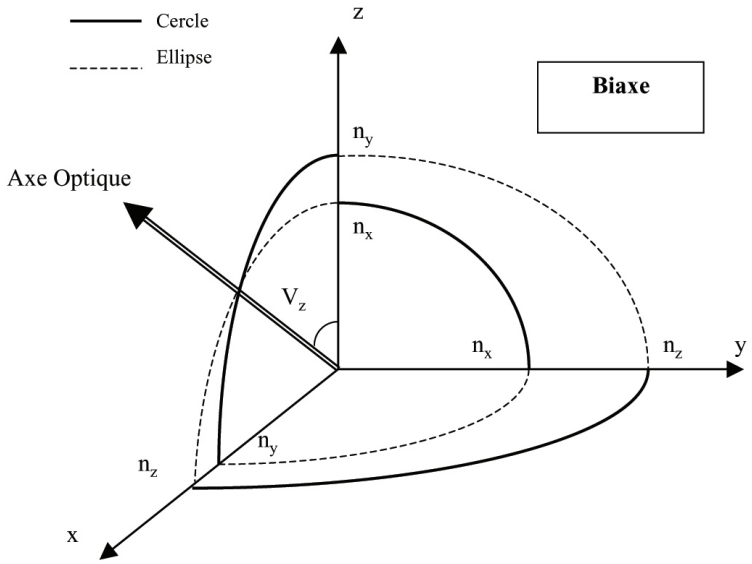


FIG. I.4 – *Trace de la surface des indices dans les plans principaux d'un milieu biaxe.*

I.2.6 Modes de polarisation

Dans les matériaux anisotropes, uniaxes ou biaxes, deux ondes $\vec{E}^+(\theta,\varphi)$ et $\vec{E}^-(\theta,\varphi)$ associées aux deux solutions de l'équation de Fresnel $n^+(\theta,\varphi)$ et $n^-(\theta,\varphi)$ se propagent. Elles sont toutes les deux polarisées rectilignement, mais avec des polarisations différentes. Il est facile de montrer que, dans les plans principaux, l'onde associée à la nappe circulaire est polarisée perpendiculairement au plan considéré alors que l'onde associée à la nappe elliptique est polarisée tangentiellement à cette ellipse, ce raisonnement peut être prolongé dans le plan (xOy) d'un uniaxe. Les deux modes de polarisation sont donc orthogonaux entre eux. Hors des plans principaux, les équations de Maxwell (I.5) permettent d'établir une expression des composantes du champ pour chacune des solutions de l'équation de Fresnel : les deux ondes restent polarisées linéairement, mais les deux états de polarisation ne sont pas forcément orthogonaux. Nous nous limiterons par la suite à l'étude des propriétés dans les plans principaux, ce qui correspond aux expériences que nous avons menées.

Le vecteur de Poynting $\vec{\pi}$ permettant de décrire les propriétés énergétiques d'une onde est défini par :

$$\vec{\pi} = \vec{E} \wedge \vec{H} \tag{I.17}$$

L'éclairement I, souvent appelé abusivement intensité, correspond à la puissance rayonnée par l'onde par unité de surface ; il est égal à la moyenne temporelle sur un cycle du module du vecteur de Poynting. A partir des équations de Maxwell, l'éclairement peut être calculé pour une onde plane [6] :

$$I = \langle \|\vec{\pi}\| \rangle_T = \frac{1}{2} n \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \, |E|^2 \tag{I.18}$$

Les vecteurs $\vec{D}^+$, $\vec{E}^+$, $\vec{H}^+$, $\vec{\pi}^+$ et $\vec{k}^+$ relatifs à la solution $n^+(\theta,\varphi)$ sont coplanaires et définissent le plan de vibration Π^+ [6, 9]. De la même manière, les vecteurs $\vec{D}^-$, $\vec{E}^-$, $\vec{H}^-$, $\vec{\pi}^-$ et $\vec{k}^-$ relatifs à la solution $n^-(\theta,\varphi)$ appartiennent au même plan Π^-, orthogonal à Π^+.

Dans chacun des plans de vibrations $\Pi^\pm$, les vecteurs $\vec{E}^\pm$ et $\vec{D}^\pm$ ne sont pas colinéaires et sont séparés des angles de double réfraction $\rho^\pm$. $\vec{k}^\pm$ et $\vec{\pi}^\pm$ sont séparés des mêmes angles de double réfraction $\rho^\pm$ [5] :

$$\rho^\pm = \left(\widehat{\vec{D}^\pm, \vec{E}^\pm}\right) = \left(\widehat{\vec{k}^\pm, \vec{\pi}^\pm}\right) = \arccos\left(\vec{D}^\pm . \vec{E}^\pm\right) \tag{I.19}$$

Les deux plans de vibrations ainsi que les différents vecteurs correspondants sont représentés sur la figure I.5. L'angle de double réfraction est nul pour toute onde sollicitant une nappe d'indice de forme sphérique. Dans les plans principaux, pour un biaxe ou un

uniaxe, au plus un angle de double réfraction, noté ρ, n'est donc pas nul. Cet angle se retrouve alors entre les vecteurs $\vec{\pi}^e$ et $\vec{\pi}^o$ pour un uniaxe et $\vec{\pi}^+$ et $\vec{\pi}^-$ pour un biaxe (figure I.5). Les vecteurs de Poynting, correspondant aux deux modes de polarisation, ne sont donc plus colinéaires dans les directions pour lesquelles l'angle de double réfraction est non nul, et les faisceaux se séparent spatialement lors de la traversée du cristal. Afin d'éviter ce phénomène de double réfraction, il est préférable de travailler dans des directions où celle-ci est nulle ou la plus faible possible, comme par exemple le long des axes principaux.

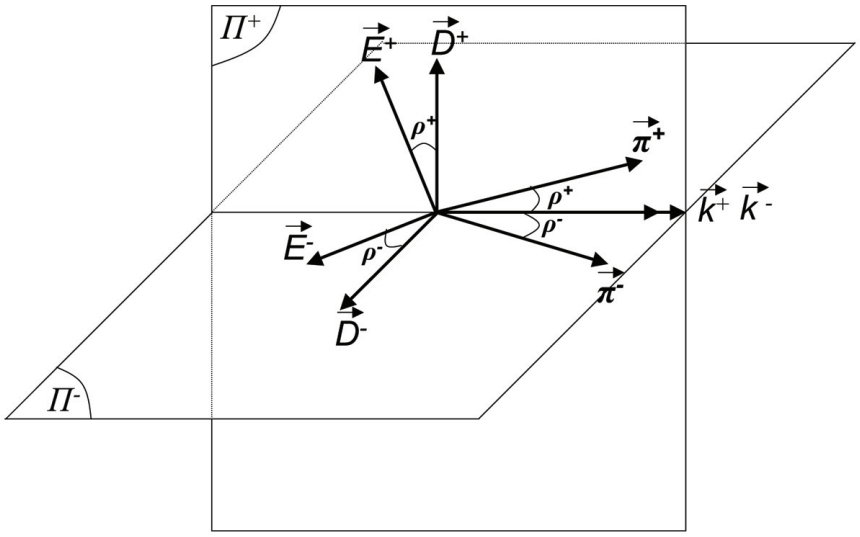


FIG. I.5 – *Configuration vectorielle relative aux deux ondes correspondant aux deux modes de polarisations* (+) *et* (-).

Pour un milieu uniaxe, les coordonnées des vecteurs unitaires des champs électriques $\vec{e}^o$ et $\vec{e}^e$, relatifs à l'onde ordinaire et extraordinaire respectivement, s'écrivent dans une direction de propagation (θ, φ) quelconque [6] :

$$\begin{cases} e_x^o = -\sin(\varphi) \\ e_y^o = +\cos(\varphi) \\ e_z^o = 0 \end{cases} \tag{I.20}$$

et

$$\begin{cases} e_x^e = -\cos(\theta + \rho(\theta)) . \cos(\varphi) \\ e_y^e = -\cos(\theta + \rho(\theta)) . \sin(\varphi) \\ e_z^e = \sin(\theta + \rho(\theta)) \end{cases} \tag{I.21}$$

avec

$$\rho(\theta) = \pm \arccos\left(\frac{n_o^{-2}\cos^2(\theta) + n_e^{-2}\sin^2(\theta)}{\sqrt{n_o^{-4}\cos^2(\theta) + n_e^{-4}\sin^2(\theta)}}\right) \tag{I.22}$$

Le signe (+) correspond à un uniaxe de signe négatif, et (-) à un signe positif. L'angle de double réfraction est nul pour une propagation le long de l'axe optique (Oz) ainsi que dans n'importe quelle direction contenue dans le plan (xOy).

Dans le cas d'un biaxe, les coordonnées des vecteurs $\vec{e}^-$ et $\vec{e}^+$ sont facilement calculables dans les trois plans principaux. Nous nous limiterons au plan (xOy) qui se révélera être intéressant dans la suite de l'étude des interactions de troisième ordre :

$$\begin{cases} e_x^- = -\sin(\varphi + \rho(\varphi)) \\ e_y^- = +\cos(\varphi + \rho(\varphi)) \\ e_x^- = 0 \end{cases} \tag{I.23}$$

et

$$\begin{cases} e_x^+ = 0 \\ e_y^+ = 0 \\ e_z^+ = 1 \end{cases} \tag{I.24}$$

avec

$$\rho(\varphi) = \arccos\left(\frac{n_y^{-2}\cos^2(\varphi) + n_x^{-2}\sin^2(\varphi)}{\sqrt{n_y^{-4}\cos^2(\varphi) + n_x^{-4}\sin^2(\varphi)}}\right) \tag{I.25}$$

I.2.7 Dispersion de l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde

La variation des indices principaux de réfraction avec la longueur d'onde est généralement bien modélisée par la théorie de Lorentz qui conduit à des équations de type Sellmeier pouvant prendre la forme suivante :

$$n_i^2(\lambda) = a + \frac{b}{1 - \left(\frac{c}{\lambda}\right)^p} + \frac{d}{1 - \left(\frac{e}{\lambda}\right)^q} \tag{I.26}$$

avec $i = \{o, e, x, y, z\}$. a, b, c, d, e, p et q dépendent du milieu considéré [10]. Pour la plupart des matériaux, l'indice décroît en fonction de la longueur d'onde : la loi de dispersion est alors dite normale ; dans le cas contraire, elle est qualifiée d'anormale.

I.2.8 Synthèse

Une partie des études réalisées dans le cadre de la thèse concerne les plans (xOy) et (xOz) de $KTiOPO_4$ (KTP), qui est un cristal biaxe de symétrie d'orientation $mm2$. La figure I.6 présente les différents vecteurs pertinents dans les deux plans considérés.

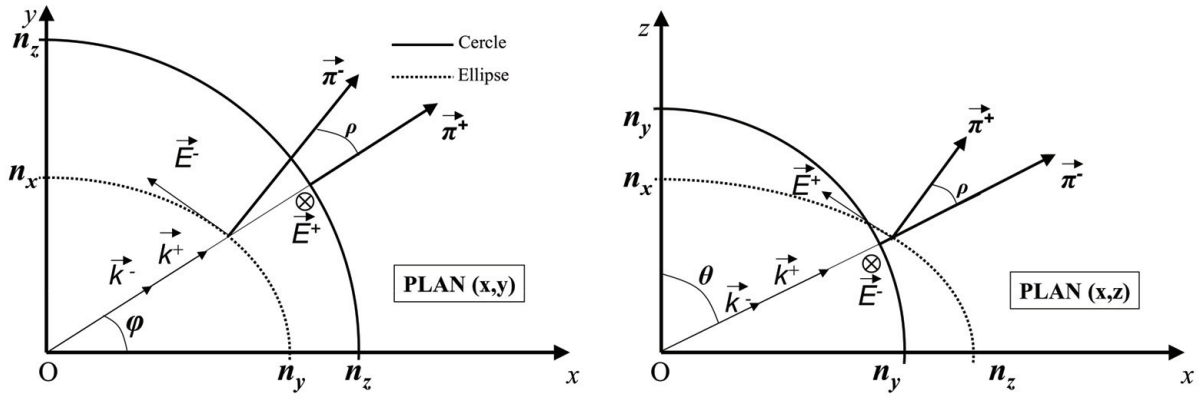


FIG. I.6 – *Traces de la surface des indices et configuration des vecteurs pour une propagation dans les plans (xOz) (gauche) et (xOy) (droite) d'un milieu biaxe.*

Nos travaux ont également porté sur TiO_2 dans sa phase rutile, de symétrie d'orientation $\frac{4}{m}mm$ et de classe optique uniaxe positif. Etant donné la symétrie de révolution autour de l'axe (Oz), une représentation du plan (xOz) permet d'appréhender les différents vecteurs dans toutes les directions de l'espace (figure I.7).

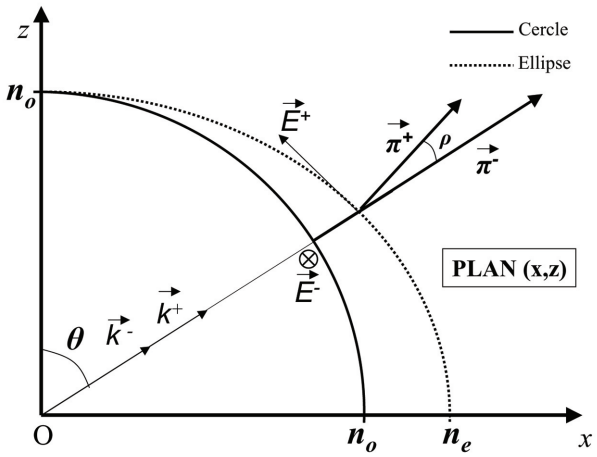


FIG. I.7 – *Traces de la surface des indices et configuration des vecteurs pour une propagation dans le plan (xOz) d'un milieu uniaxe positif.*

I.3 Optique non linéaire paramétrique cristalline

I.3.1 Polarisation non linéaire

Même si la polarisation non linéaire existe toujours lorsqu'une onde électromagnétique traverse un milieu, elle est souvent trop faible pour être détectée. Par contre, si l'éclairement est suffisamment grand, supérieur au MW/cm^2, et sous certaines conditions détaillées dans cette partie, les phénomènes non linéaires peuvent être observés et mesurés.

Il a donc fallu attendre l'apparition du laser, permettant la génération d'éclairements intenses, pour observer le premier effet non linéaire en 1961 [11]. Les explications théoriques viendront peu de temps après (1962) [12], ouvrant ainsi la voie à un nouveau champ disciplinaire, l'optique non linéaire, et à un grand nombre d'applications.

Nous nous intéresserons dans ce travail uniquement aux termes de second ordre, $P^{(2)}$, et de troisième ordre, $P^{(3)}$, de la polarisation non linéaire explicitées dans les équations (I.2). Le champ rayonné à une pulsation ω_i pouvant devenir à son tour un champ excitateur, il faut considérer les polarisations non linéaires à chaque pulsation ω_i, $i = \{0, 1, 2\}$ pour $P^{(2)}$, et $i = \{0, 1, 2, 3\}$ pour $P^{(3)}$. Pour une interaction quadratique impliquant 3 ondes aux pulsations ω_0, ω_1 et ω_2 les composantes de la polarisation non linéaire s'écrivent :

$$\begin{cases} \vec{P}^{(2)}(\omega_0) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_0 = \omega_1 + \omega_2) : \vec{E}(\omega_1) \otimes \vec{E}(\omega_2) \\ \vec{P}^{(2)}(\omega_1) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1 = \omega_0 - \omega_2) : \vec{E}(\omega_0) \otimes \vec{E}^*(\omega_2) \\ \vec{P}^{(2)}(\omega_2) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_2 = \omega_0 - \omega_1) : \vec{E}(\omega_0) \otimes \vec{E}^*(\omega_1) \end{cases} \tag{I.27}$$

avec $\vec{E}^*(\omega_i) = \vec{E}(-\omega_i)$.

De même, les composantes spectrales de la polarisation non linéaire relative à une interaction impliquant 4 ondes à ω_0, ω_1, ω_2 et ω_3 s'expriment de la façon suivante :

$$\begin{cases} \vec{P}^{(3)}(\omega_0) = \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3) \vdots \vec{E}(\omega_1) \otimes \vec{E}(\omega_2) \otimes \vec{E}(\omega_3) \\ \vec{P}^{(3)}(\omega_1) = \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_1 = \omega_0 - \omega_2 - \omega_3) \vdots \vec{E}(\omega_0) \otimes \vec{E}^*(\omega_2) \otimes \vec{E}^*(\omega_3) \\ \vec{P}^{(3)}(\omega_2) = \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_2 = \omega_0 - \omega_1 - \omega_3) \vdots \vec{E}(\omega_0) \otimes \vec{E}^*(\omega_1) \otimes \vec{E}^*(\omega_3) \\ \vec{P}^{(3)}(\omega_3) = \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_3 = \omega_0 - \omega_1 - \omega_2) \vdots \vec{E}(\omega_0) \otimes \vec{E}^*(\omega_1) \otimes \vec{E}^*(\omega_2) \end{cases} \tag{I.28}$$

Les tenseurs $\chi^{(2)}$ et $\chi^{(3)}$ sont respectivement de rang 3 et 4, ce qui implique qu'ils possèdent 27 et 81 termes indépendants notés respectivement $\chi^{(2)}_{ijk}$ et $\chi^{(2)}_{ijkl}$: i, j, k et l font référence aux indices cartésiens du repère optique. Il est possible de réduire ce nombre de termes lorsque les pulsations des ondes en interaction sont éloignées des bandes d'absorption du milieu considéré, ce qui implique que la dispersion des termes des tenseurs est négligeable. Dans ce cas, les relations de Kleinmann [13] stipulent que les tenseurs $\chi^{(2)}$ et $\chi^{(3)}$ à une pulsation donnée sont symétriques vis-à-vis des indices cartésiens, et les relations d'ABDP [12] permettent d'établir des relations entre les coefficients non linéaires de pulsations différentes, du fait de l'invariance de $\chi^{(2)}$ et $\chi^{(3)}$ par permutation concommittante de l'indice cartésien et de la pulsation correspondante. Ces relations permettent de réduire le nombre de termes indépendants. La classe de symétrie d'orientation du milieu conditionne également la symétrie des tenseurs $\chi^{(2)}$ et $\chi^{(3)}$ en vertu du principe de Neumann [4]. Par exemple, un milieu centrosymétrique ne permet pas de réaliser un couplage à trois ondes car tous les termes du tenseur $\chi^{(2)}$ sont nuls. Les tenseurs $\chi^{(2)}$ et $\chi^{(3)}$ correspondant aux 32 classes de symétrie d'orientation des cristaux

sont regroupés dans l'annexe A. Sous ces hypothèses, la notation contractée à deux indices, $\chi^{(2)}_{pq}$ ou $\chi^{(3)}_{pq}$, est couramment utilisée pour alléger l'écriture ; il suffit alors d'appliquer les règles du tableau I.1.

	$\chi^{(2)}_{pq}$	$\chi^{(3)}_{pq}$
p	$x \rightarrow 1$ $y \rightarrow 2$ $z \rightarrow 3$	
q	$xx \rightarrow 1$	$xxx \rightarrow 1$
	$yy \rightarrow 2$	$yyy \rightarrow 2$
	$zz \rightarrow 3$	$zzz \rightarrow 3$
	$yz = zy \rightarrow 4$	$yzz = zyz = zzy \rightarrow 4$
	$xz = zx \rightarrow 5$	$yyz = yzy = zyy \rightarrow 5$
	$xy = yx \rightarrow 6$	$xzz = zxz = zzx \rightarrow 6$
		$xxz = xzx = zxx \rightarrow 7$
		$xyy = yxy = yyx \rightarrow 8$
		$xxy = xyx = yxx \rightarrow 9$
		$xyz = xzy = yxz = yzx = zxy = zyx \rightarrow 0$

TAB. I.1 – *Convention de la notation contractée dans l'écriture des termes des tenseurs* $\chi^{(2)}$ *et* $\chi^{(3)}$.

I.3.2 Equation de propagation

Pour chaque composante spectrale intervenant dans une interaction d'ordre 2, et en tenant compte du terme de polarisation linéaire (I.7), les équations de propagation pour chaque pulsation ω_i sont les suivantes :

$$\vec{rot}\left(\vec{rot}\left(\vec{E}\left(\omega_i\right)\right)\right) + \mu_0\epsilon_0\left(1+\chi^{(1)}\left(\omega_i\right)\right)\frac{\partial\vec{E}\left(\omega_i\right)}{\partial t} = -\mu_0\frac{\partial\vec{P}^{(2)}\left(\omega_i\right)}{\partial t} \tag{I.29}$$

Pour une interaction d'ordre 3, les équations correspondantes sont :

$$\vec{rot}\left(\vec{rot}\left(\vec{E}\left(\omega_i\right)\right)\right) + \mu_0\epsilon_0\left(1+\chi^{(1)}\left(\omega_i\right)\right)\frac{\partial\vec{E}\left(\omega_i\right)}{\partial t} = -\mu_0\frac{\partial\vec{P}^{(3)}\left(\omega_i\right)}{\partial t} \tag{I.30}$$

Ces équations de propagation seront résolues dans la partie I.3.5.

I.3.3 Couplage à 3 ondes

Les composantes spectrales $\{\omega_0, \omega_1, \omega_2\}$ de la polarisation non linéaire de second ordre (I.27), appelée également polarisation quadratique, sont telles que :

$$\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 \tag{I.31}$$

D'un point de vue corpusculaire, cette équation correspond à la conservation de l'énergie entre trois photons d'énergies $\hbar\omega_0$, $\hbar\omega_1$ et $\hbar\omega_2$. Cette vision corpusculaire permet de dresser une liste des interactions quadratiques possibles :

- la fluorescence paramétrique, qui correspond à la scission spontanée d'un photon de haute énergie en deux photons d'énergies plus faibles ;
- la différence de fréquences qui est la scission stimulée d'un photon ;

- la somme de fréquences correspondant à la fusion de deux photons, donnant alors naissance à un photon d'énergie plus grande.

La figure I.8 schématise ces différentes interactions quadratiques.

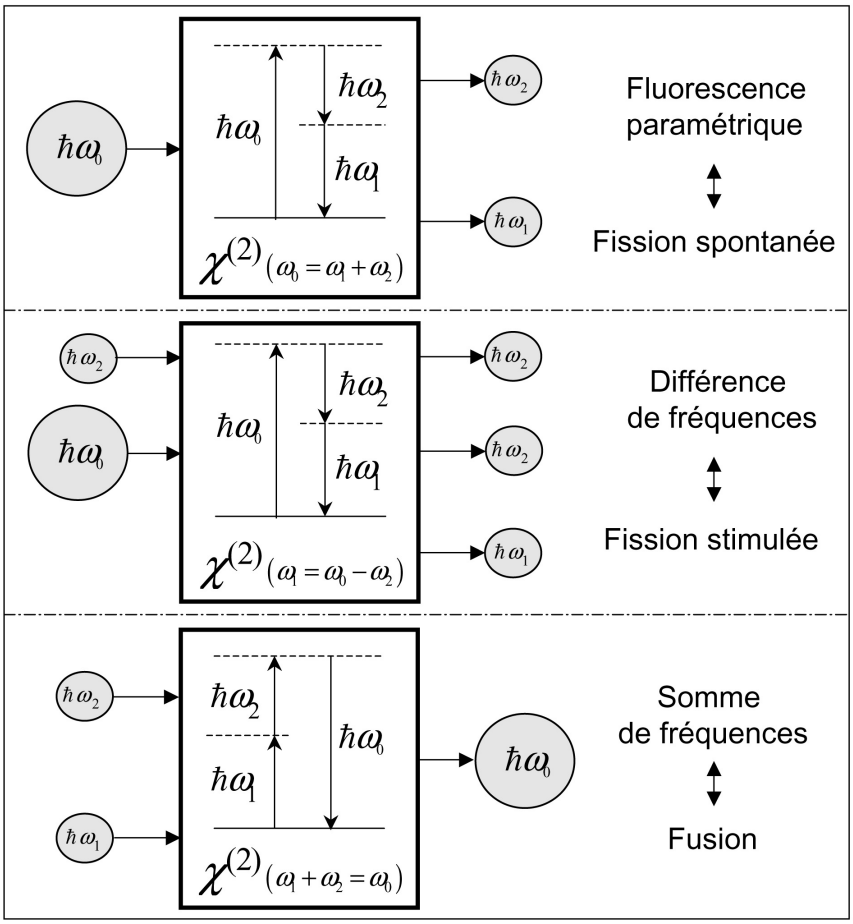


FIG. I.8 – *Diagrammes photoniques des différentes interactions quadratiques possibles ; les traits en pointillé correspondent à des niveaux d'énergie virtuels.*

I.3.4 Couplage à 4 ondes

De la même manière, il est possible d'identifier les différentes interactions de troisième ordre, appelées également interactions cubiques : il existe alors deux schémas possibles [14]. Le schéma A correspond à la loi de conservation de l'énergie suivante :

$$\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 \tag{I.32}$$

C'est l'analogue du cas quadratique (I.31). Il en résulte quatre processus possibles :

- la fluorescence paramétrique, qui correspond à la scission spontanée d'un photon en trois photons ;
- la différence de fréquences simplement injectée, qui peut également être interprétée comme la scission d'un photon pompe stimulée par un photon d'injection ;
- la différence de fréquences doublement injectée, où cette fois deux photons viennent

stimuler la scission du photon pompe ;

- la somme de fréquences correspondant à la fusion de trois photons.

Ces interactions sont celles qui nous intéresseront par la suite.

Le schéma B correspond à une loi de conservation du type :

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4 \tag{I.33}$$

Il peut être interprété comme une fusion des deux photons d'énergies $\hbar\omega_1$ et $\hbar\omega_2$ suivie d'une scission produisant les photons $\hbar\omega_3$ et $\hbar\omega_4$. Ce schéma est celui correspondant à l'effet Kerr optique, à l'absorption à 2 photons et aux diffusions Raman et Brillouin [15]. La figure I.9 rassemble les représentations schématiques des différentes interactions cubiques possibles.

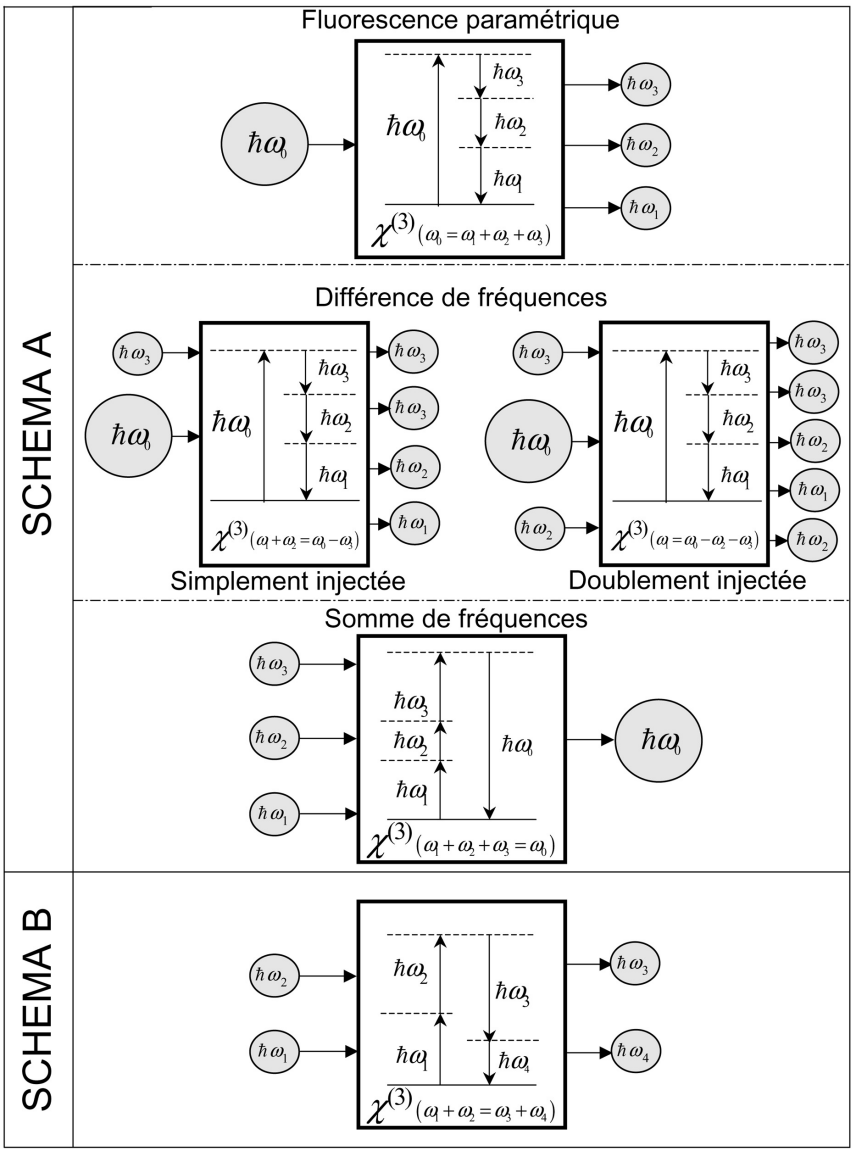


FIG. I.9 – *Diagrammes photoniques des différentes interactions cubiques possibles ; les traits en pointillé correspondent à des niveaux d'énergie virtuels.*

I.3.5 Equations couplées

A partir des expressions des polarisations non linéaires (I.27) et (I.28), il est possible de résoudre les équations de propagation (I.29) et (I.30) pour les interactions quadratiques et cubiques respectivement [1]. Nous considérons des interactions pour lesquelles les vecteurs d'onde des ondes en interaction sont colinéaires. Nous négligeons également l'absorption, la dispersion des vitesses de groupe ainsi que la dispersion en longueur d'onde des éléments des tenseurs $\chi^{(2)}$ et $\chi^{(3)}$.

Il vient alors, dans le cas quadratique :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial E(\omega_0)}{\partial Z} = j.\dfrac{\pi}{n(\omega_0)\,\lambda_0 \cos^2(\rho(\omega_0))}.\chi^{(2)}_{eff}.E(\omega_1).E(\omega_2).e^{-j\cdot\Delta k\cdot Z} \\ \dfrac{\partial E(\omega_1)}{\partial Z} = j.\dfrac{\pi}{n(\omega_1)\,\lambda_1 \cos^2(\rho(\omega_1))}.\chi^{(2)}_{eff}.E(\omega_0).E^*(\omega_2).e^{+j\cdot\Delta k\cdot Z} \\ \dfrac{\partial E(\omega_2)}{\partial Z} = j.\dfrac{\pi}{n(\omega_2)\,\lambda_2 \cos^2(\rho(\omega_2))}.\chi^{(2)}_{eff}.E(\omega_0).E^*(\omega_1).e^{+j\cdot\Delta k\cdot Z} \end{cases} \tag{I.34}$$

où $n(\omega_i)$ et $\rho(\omega_i)$ sont respectivement l'indice de réfraction et l'angle de double réfraction à la pulsation ω_i.

Dans le cas cubique, le système d'équations couplées s'écrit :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial E(\omega_0)}{\partial Z} = j.\dfrac{\pi}{n(\omega_0)\,\lambda_0 \cos^2(\rho(\omega_0))}.\chi^{(3)}_{eff}.E(\omega_1).E(\omega_2).E(\omega_3).e^{-j\cdot\Delta k\cdot Z} \\ \dfrac{\partial E(\omega_1)}{\partial Z} = j.\dfrac{\pi}{n(\omega_1)\,\lambda_1 \cos^2(\rho(\omega_1))}.\chi^{(3)}_{eff}.E(\omega_0).E^*(\omega_2).E^*(\omega_3).e^{+j\cdot\Delta k\cdot Z} \\ \dfrac{\partial E(\omega_2)}{\partial Z} = j.\dfrac{\pi}{n(\omega_2)\,\lambda_2 \cos^2(\rho(\omega_2))}.\chi^{(3)}_{eff}.E(\omega_0).E^*(\omega_1).E^*(\omega_3).e^{+j\cdot\Delta k\cdot Z} \\ \dfrac{\partial E(\omega_3)}{\partial Z} = j.\dfrac{\pi}{n(\omega_3)\,\lambda_3 \cos^2(\rho(\omega_3))}.\chi^{(3)}_{eff}.E(\omega_0).E^*(\omega_1).E^*(\omega_2).e^{+j\cdot\Delta k\cdot Z} \end{cases} \tag{I.35}$$

Les deux systèmes d'équations font intervenir deux paramètres très importants : d'une part le coefficient effectif $\chi^{(2-3)}_{eff}$, et d'autre part le désaccord de phase Δk.

Le coefficient effectif tient compte de la comptabilité de symétrie entre le milieu non linéaire et les polarisations des ondes impliquées dans le processus. Il fait intervenir les tenseurs de susceptibilité électrique d'une part, et les vecteurs champs électriques unitaires $\vec{e}_i$ des ondes à ω_i d'autre part. Les coefficients effectifs pour les interactions quadratiques et cubiques s'écrivent respectivement [6] :

$$\chi^{(2)}_{eff} = \chi^{(2)}(\omega_0 = \omega_1 + \omega_2) \vdots \vec{e}_0 \otimes \vec{e}_1 \otimes \vec{e}_2 \tag{I.36}$$

et

$$\chi_{eff}^{(3)} = \chi^{(3)}\left(\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3\right) :: \vec{e}_0 \otimes \vec{e}_1 \otimes \vec{e}_2 \otimes \vec{e}_3 \tag{I.37}$$

Compte tenu de (I.34) et (I.35), il est évident que le coefficient effectif ne doit pas être nul pour réaliser un processus de conversion ; en effet, dans le cas contraire, la variation des champs est nulle au cours de la propagation dans le cristal et les champs de sortie sont égaux à leurs valeurs initiales. D'autre part, la valeur du coefficient effectif doit être la plus grande possible pour maximiser le couplage non linéaire.

Le désaccord de phase s'écrit :

$$\Delta k = k_0 - k_1 - k_2 \tag{I.38}$$

et :

$$\Delta k = k_0 - k_1 - k_2 - k_3 \tag{I.39}$$

pour une interaction d'ordre 2 et 3 respectivement, où k_i sont les modules des vecteurs d'onde. Dans le cas général, la polarisation non linéaire et les ondes générées se propagent à des vitesses de phase différentes, égales à (c/n), à cause de la dispersion des indices de réfraction (cf. I.2.7). Il en résulte un déphasage entre la polarisation non linéaire et le champ qu'elle rayonne, engendrant des interférences successivement constructives et destructives tout au long de la propagation dans le cristal, correspondant à un transfert d'énergie périodique entre les ondes incidentes et les ondes générées. La périodicité spatiale correspondante est appelée longueur de cohérence de l'interaction et vaut :

$$L_c = \frac{\pi}{\Delta k} \tag{I.40}$$

Si le désaccord de phase est non nul, l'interaction n'est pas efficace car elle alterne entre phases constructives et destructives ; le processus est alors dit en "hors accord de phase". Pour réaliser une interaction efficace, il faut se placer à l'accord de phase, soit $\Delta k = 0$, ce qui permet de générer de manière continue les ondes désirées. Une autre alternative est le quasi-accord de phase [16, 17], mais qui n'est pas utilisé dans le cadre de ce travail.

I.3.6 Accord de phase

D'un point de vue quantique, la condition d'accord de phase correspond à la conservation des impulsions des photons en interaction et relie donc les pulsations impliquées et les indices de réfraction correspondants, soit lorsque les vecteurs d'onde sont colinéaires :

$$\hbar k_0 - \sum_{i=1}^{p} \hbar k_i = 0 \;\Rightarrow\; n\left(\omega_0\right)\omega_0 - \sum_{i=1}^{p} n\left(\omega_i\right)\omega_i = 0 \tag{I.41}$$

La conservation de l'énergie des photons est également respectée :

$$\hbar\omega_0 - \sum_{i=1}^{p} \hbar\omega_i = 0 \;\Rightarrow\; \omega_0 - \sum_{i=1}^{p} \omega_i = 0 \tag{I.42}$$

avec $p = 2$ dans le cas d'une interaction quadratique et $p = 3$ dans le cas cubique. Du fait de la dispersion des indices de réfraction, il est malheureusement impossible de respecter simultanément ces deux équations dans un matériau isotrope. La solution la plus courante est alors de faire appel à la biréfringence pour compenser la dispersion, et donc de travailler avec des matériaux anisotropes. En choisissant les polarisations des ondes, il est alors possible de solliciter la nappe externe $n^{(+)}$ ou interne $n^{(-)}$ de la surface des indices pour les différentes ondes impliquées. Il existe trois combinaisons possibles pour les interactions quadratiques, appelées types, vérifiant (I.41) et (I.42) :

$$\begin{cases} \text{I} & : \; n^-(\omega_0)\,\omega_0 - n^+(\omega_1)\,\omega_1 - n^+(\omega_2)\,\omega_2 = 0 \\ \text{II} & : \; n^-(\omega_0)\,\omega_0 - n^+(\omega_1)\,\omega_1 - n^-(\omega_2)\,\omega_2 = 0 \\ \text{III} & : \; n^-(\omega_0)\,\omega_0 - n^-(\omega_1)\,\omega_1 - n^+(\omega_2)\,\omega_2 = 0 \end{cases} \tag{I.43}$$

Le nombre de types possibles s'étend à sept dans le cas des interactions cubiques de schéma A [14] :

$$\begin{cases} \text{I} & : \; n^-(\omega_0)\,\omega_0 - n^+(\omega_1)\,\omega_1 - n^+(\omega_2)\,\omega_2 - n^+(\omega_3)\,\omega_3 = 0 \\ \text{II} & : \; n^-(\omega_0)\,\omega_0 - n^+(\omega_1)\,\omega_1 - n^+(\omega_2)\,\omega_2 - n^-(\omega_3)\,\omega_3 = 0 \\ \text{III} & : \; n^-(\omega_0)\,\omega_0 - n^+(\omega_1)\,\omega_1 - n^-(\omega_2)\,\omega_2 - n^+(\omega_3)\,\omega_3 = 0 \\ \text{IV} & : \; n^-(\omega_0)\,\omega_0 - n^-(\omega_1)\,\omega_1 - n^+(\omega_2)\,\omega_2 - n^+(\omega_3)\,\omega_3 = 0 \\ \text{V} & : \; n^-(\omega_0)\,\omega_0 - n^+(\omega_1)\,\omega_1 - n^-(\omega_2)\,\omega_2 - n^-(\omega_3)\,\omega_3 = 0 \\ \text{VI} & : \; n^-(\omega_0)\,\omega_0 - n^-(\omega_1)\,\omega_1 - n^+(\omega_2)\,\omega_2 - n^-(\omega_3)\,\omega_3 = 0 \\ \text{VII} & : \; n^-(\omega_0)\,\omega_0 - n^-(\omega_1)\,\omega_1 - n^-(\omega_2)\,\omega_2 - n^+(\omega_3)\,\omega_3 = 0 \end{cases} \tag{I.44}$$

La condition d'accord de phase ne peut donc être réalisée qu'avec certaines configurations de polarisation des ondes en interaction. Les indices de réfraction étant fonction de la direction de propagation dans le milieu, la condition d'accord de phase sera vérifiée dans des directions particulières, appelées direction d'accord de phase.

I.3.7 Synthèse

Dans le cadre de notre étude, nous travaillerons avec les trois équations fondamentales régissant les interactions en accord de phase, la conservation de l'énergie, la conservation de l'impulsion et la comptabilité de symétrie entre le milieu et les ondes en interaction :

$$\begin{cases} \omega_0 - \sum_{i=1}^{p} \omega_i = 0 \\ n^{\pm}(\omega_0)\,\omega_0 - \sum_{i=1}^{p} n^{\pm}(\omega_i)\,\omega_i = 0 \\ \chi^{(p)}(\omega_0) \bullet \bigotimes_{i=0}^{p} \vec{e}_i^{\pm} \neq 0 \end{cases} \tag{I.45}$$

$p = 2$ ou $p = 3$ pour une interaction quadratique ou cubique respectivement ; Pour un processus de conversion de fréquences à des longueurs d'ondes données, les deux premières équations permettent de déterminer les directions d'accord de phase pour les différentes configurations de polarisations possibles. Pour une configuration de polarisation donnée la troisième équation permet de calculer le coefficient effectif en fonction de la direction d'accord de phase. La réalisation de processus non linéaires efficaces passe donc par la détermination de la direction d'accord de phase pour laquelle le coefficient effectif est non nul et maximal. Enfin, les directions de propagation pour lesquelles l'angle de double réfraction est nul seront préférées.

Chapitre II

Etat de l'art

Ce chapitre fait le bilan de ce qui a été fait théoriquement et expérimentalement sur la génération de triplets de photons et sur la génération de troisième harmonique, aussi bien d'un point de vue classique que quantique. L'intérêt majeur de ces deux interactions est la génération de nouveaux états de la lumière, dont les propriétés quantiques n'ont jamais été observées jusque-là. Ce chapitre commence par une synthèse des travaux réalisés sur les photons jumeaux, l'équivalent "quadratique" des triplets de photons.

II.1 Photons jumeaux

II.1.1 Propriétés quantiques

Parmi les interactions quadratiques possibles (cf. I.3.3) la génération de photons jumeaux correspondant à la scission, spontanée ou stimulée, d'un photon pompe en deux photons, est certainement l'interaction la plus intéressante d'un point de vue quantique. Les deux photons générés peuvent être appréhendés comme deux systèmes S_A et S_B formant un système global intriqué. Il existe alors des corrélations entre les mesures effectuées sur les deux systèmes pris séparément. Contrairement à la physique classique, il est impossible de décrire ces corrélations par un modèle *réaliste local* où les systèmes sont décrits séparément avec un lien d'un système à l'autre. Une telle description aboutit en effet à la violation de la *causalité relativiste*, ce qui équivaut à supposer que l'information peut se propager à une vitesse supérieure à la vitesse de la lumière. La solution réside dans le fait que, pour rester en accord avec la *causalité relativiste*, il est impossible d'attribuer une *réalité physique locale* à l'état de chaque sous-système S_A et S_B. Cette *non-séparabilité quantique* et les difficultés conceptuelles qui en résultent ont conduit Einstein, Podolsky et Rosen à formuler en 1935 le paradoxe *EPR* montrant que la théorie quantique était incomplète et que des variables cachées devaient être rajoutées [18]. John Bell a enfin formulé en 1964 les *inégalités de Bell* [19] qui constituent un critère qualitatif permettant de conclure ou non à la *localité* de manière expérimentale.

Même si les particules incriminées peuvent être de n'importe quelle nature que se soit,

c'est l'optique non linéaire qui a permis de produire pour la première fois des particules corrélées, les photons jumeaux, permettant de lever l'incertitude. Après plusieurs tentatives contradictoires [20, 21], les premières expériences violant définitivement les inégalités de Bell et démontrant le principe de non-localité ont été réalisées par Alain Aspect en 1981 et 1982 [22, 23]. Les paires de photons ont été émises par fluorescence paramétrique dans le calcium, puis les particules ont été séparées pour être analysées, afin d'étudier les corrélations en polarisation. L'expérience a ensuite été reproduite sur des distances kilométriques [24, 25] sans perdre l'intrication, ouvrant alors la voie à la cryptographie quantique.

Une manière classique de mesurer les corrélations entre deux particules est de mesurer la fonction de corrélation temporelle entre les deux faisceaux correspondants aux deux photons générés [26]. Les deux faisceaux sont séparés sur deux bras puis recombinés dans un cristal non linéaire pour réaliser la fusion des photons issus des deux bras. Un retard variable α est appliqué sur un des deux bras du corrélateur. L'énergie générée par le processus de recombinaison, ξ_{auto}, est proportionnelle à la fonction de corrélation du second ordre :

$$G^{(2)}(\alpha) \propto \xi_{auto}(\alpha) = \int p_1(t)\, p_2(t-\alpha)\, dt \tag{II.1}$$

où p_1 et p_2 sont les puissances instantanées correspondantes aux deux faisceaux séparés. La courbe représentant l'énergie générée en fonction du retard α fait apparaître, pour un retard nul, un pic étroit dont la largeur est significative des corrélations entre les photons. La figure II.1 montre ce pic au dessus d'une courbe beaucoup plus large due au caractère impulsionnel de la source utilisée.

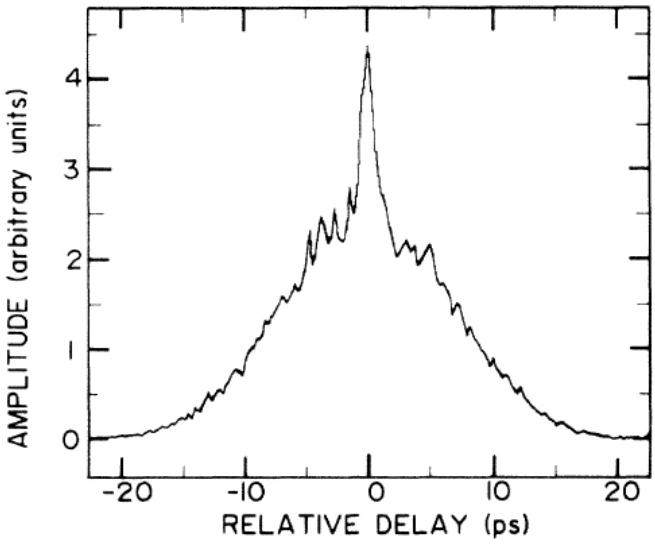


FIG. II.1 – *Courbe de corrélation obtenue dans le cas des photons jumeaux, tracée en effectuant la recombinaison des deux photons après les avoir décalés temporellement. Le pic obtenu pour un retard nul est dû aux corrélations des deux photons [26].*

II.1.2 Applications

L'information intricable peut être utilisée de différentes manières. Elle peut être manipulée par des portes logiques quantiques, afin de réaliser du calcul quantique, présentant l'avantage de diminuer radicalement les temps de calcul [27, 28]. L'intrication peut également servir à *téléporter* l'état quantique d'une particule [29]. Enfin, l'information peut se partager de façon sûre entre deux parties, réalisant alors un protocole de cryptographie quantique, qui apporte une sécurité accrue par rapport aux systèmes de cryptographie classiques. Les propriétés quantiques des photons jumeaux ont notamment permis de mettre en oeuvre ces protocoles. Le principe de *non clonage* de la mécanique quantique stipule en effet qu'il est impossible de mesurer un système quantique inconnu sans en modifier les propriétés. Si l'information est codée sur les propriétés quantiques des photons utilisés, un espion (appelé traditionnellement Eve) ne peut pas intercepter une communication entre deux interlocuteurs (Alice et Bob) sans être repéré par une des deux parties. Ce principe est alors utilisé pour échanger les clés de chiffrement aléatoires servant à décoder le message envoyé par voie classique, comme le montre la figure II.2. Une paire de photons intriqués peut être utilisée pour réaliser le protocole de cryptage [30] ; ce type de communication a été réalisé expérimentalement sur de courtes distances [31–33] avant d'être exploité sur des distances kilométriques, en transmission libre notamment [34].

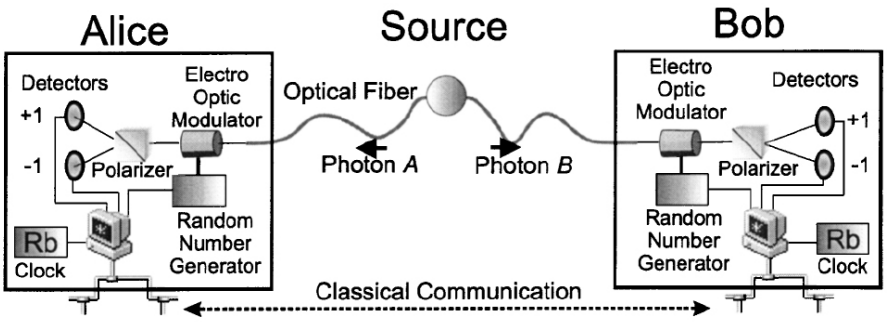


FIG. II.2 – *Schéma de cryptographie quantique utilisant des paires de photons intriqués. Alice et Bob établissent une clé de chiffrement à partir des mesures en polarisation des photons intriqués provenant de la source [31].*

Cette technique de transmission de l'information assure ainsi l'inviolabilité des données envoyées. D'autres protocoles basés sur la production de photons uniques permettent également de réaliser des systèmes de cryptographie quantique. Enfin, l'utilisation de trois photons corrélés, des triplets de photons, permettrait d'utiliser des protocoles plus sophistiqués impliquant par exemple trois parties.

II.2 Génération de triplets de photons

II.2.1 Introduction

Dans la continuité de ce qui a été fait sur les photons jumeaux, de nombreuses équipes se sont employées à produire et à analyser des états à plus de deux particules intriquées, et en particulier à trois entités. Malheureusement, la fluorescence paramétrique de troisième ordre étant très faible (cf II.2.2), il n'est pas possible de fissionner efficacement des photons de manière spontanée. Une voie alternative consiste à produire simultanément deux paires de photons jumeaux. L'un d'eux servant de photon de synchronisation, les trois autres permettent d'observer des corrélations sur les états ainsi formés [35]. Cette méthode souffre d'un inconvénient majeur : elle détruit lors de la mesure l'état ainsi créé, empêchant alors toute manipulation ultérieure sur les triplets. La première vraie génération de triplets de photons a été réalisée en 2004 dans le groupe de Benoît Boulanger ; elle est basée sur une expérience de différence de fréquences en accord de phase dans KTP [8, 36].

II.2.2 Scission spontanée

En se basant sur ce qui a été fait sur les photons jumeaux, la première idée pour générer des triplets de photons est de faire appel à la fluorescence de troisième ordre, correspondant à la scission spontanée d'un photon pompe d'énergie $\hbar\omega_0$, en trois photons d'énergies plus faibles $\hbar\omega_1$, $\hbar\omega_2$ et $\hbar\omega_3$. Les équations (I.41) et (I.42) montrent que, pour une pulsation pompe donnée, la conservation de l'énergie et la conservation de l'impulsion ne permettent pas de déterminer de manière unique les pulsations des photons générés ; il existe une infinité de combinaisons $\{\omega_1, \omega_2, \omega_3\}$ possibles, diluant ainsi l'énergie sur une large plage spectrale. Ce constat est une sévère limitation à la génération de triplets de photons par scission spontanée.

Le calcul de la fluorescence paramétrique passe par la détermination du taux de transition T de l'état $|0,0,0\rangle$, ne contenant aucun photon à $\hbar\omega_1$, $\hbar\omega_2$ et $\hbar\omega_3$, à l'état quantique $\left|\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3\right\rangle$, constitué d'un photon à chaque pulsation. D'après la règle d'or de Fermi, T s'écrit [37] :

$$T = \frac{2\pi}{\hbar}\left|\left\langle \vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3 \left|\widehat{H}_i\right| 0,0,0 \right\rangle\right|^2 \rho \tag{II.2}$$

où ρ est la densité d'états de sortie, et l'Hamiltonien $\widehat{H}_i$ décrit le processus non linéaire cubique. Nous considérons ici l'interaction totalement dégénérée, $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega = 2\pi/\lambda$ et donc $\omega_0 = 2\pi/\lambda_0 = 3\omega$. Pour un des photons du triplet, Kamel Bencheikh et Ariel Levenson ont calculé que la puissance générée P_c dans l'intervalle spectral $d\lambda$ et dans un angle solide $d\Omega$ autour de la direction du vecteur d'onde $\vec{k}$ vaut [38] :

$$P_c = \frac{36\hbar^2\pi^5c^2}{{\epsilon_0}^2}\left(\chi^{(3)}\right)^2\frac{1}{n\left(\omega_0\right)}P_0L\frac{d\Omega d\lambda}{\lambda^{10}} \tag{II.3}$$

où $n\left(\omega_0\right)$ est l'indice de réfraction à ω_0, P_o est la puissance incidente de l'onde pompe, L est la longueur du cristal utilisé. Cette expression est à comparer avec la fluorescence paramétrique quadratique P_q dans un cas dégénéré, $\omega_0 = \omega + \omega$ avec $\omega_0 = 2\pi/\lambda_0 = 2\omega$; P_q vaut, pour un des deux photons [37] :

$$P_q = \frac{128\hbar\pi^4c}{\epsilon_0}\left(\chi^{(2)}\right)^2\frac{1}{n\left(\omega_0\right)^2}P_0L\frac{\lambda_0 d\lambda}{\lambda^7} \tag{II.4}$$

Une application numérique permet d'appréhender la différence entre les deux fluorescences. Dans les expressions (II.3) et (II.4), $\chi^{(3)}$ et $\chi^{(2)}$ sont les susceptibilités électriques cubiques et quadratiques respectivement ; leurs valeurs typiques sont $\chi^{(3)} \approx 10^{-21}\ m^2/V^2$ et $\chi^{(2)} \approx 10^{-12}\ m/V$. Les deux interactions sont supposées être réalisées dans un même cristal de longueur effective $L = 25\ mm$ pompé par un laser pulsé à $\lambda_0 = 532\ nm$ de puissance égale à environ $P_0 = \ 40MW$. La longueur d'onde des photons triplets générés est donc égale à $3\lambda_0 = 1596\ nm$ alors qu'elle vaut $2\lambda_0 = 1064\ nm$ dans le cas des photons jumeaux. Le calcul montre que la puissance générée dans le cas cubique vaut $3.10^{-17}\ W$ alors qu'elle est égale à $10^{-9}\ W$ pour un processus quadratique. En considérant un taux de répétition du laser de $10\ Hz$ et une durée d'impulsion de $20\ ps$, la fluorescence cubique produit, dans ces conditions, moins de $0,01$ photons/jour contre 10^6 photons/jour dans le cas quadratique. Il est donc impossible d'espérer étudier des triplets de photons produits par une scission spontanée.

II.2.3 Scission stimulée

II.2.3.1 Calcul des éclairements

La fluorescence paramétrique cubique étant très faible, l'alternative consiste à considérer une scission du photon pompe qui soit stimulée par un ou deux photons aux fréquences identiques à celles des photons du triplet souhaité en sortie du cristal non linéaire. Les équations couplées (I.35) peuvent être résolues si au moins trois champs sont présents à l'entrée du milieu non linéaire [14]. Le cas intéressant est donc la scission d'un photon pompe $\hbar\omega_0$ doublement stimulée par les photons d'injection $\hbar\omega_2$ et $\hbar\omega_3$ par exemple ; la présence de photons d'énergie $\hbar\omega_1$ en sortie du cristal est alors symptomatique de la génération de triplets de photons. Le système d'équations couplées peut être résolu en considérant que le rendement est suffisamment faible pour ne pas modifier de manière significative les faisceaux incidents. En se plaçant à l'accord de phase et en négligeant la double réfraction, ce système s'écrit :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial E(\omega_0)}{\partial Z} = \dfrac{\partial E(\omega_2)}{\partial Z} = \dfrac{\partial E(\omega_3)}{\partial Z} = 0 \\ \dfrac{\partial E(\omega_1)}{\partial Z} = j.\dfrac{\pi}{n(\omega_1)\lambda_1}.\chi^{(3)}_{eff}.E(\omega_0).E^*(\omega_2).E^*(\omega_3) \end{cases} \tag{II.5}$$

La résolution de ce système, en considérant que $E(\omega_1, Z = 0) = 0$, donne :

$$E(\omega_1, Z) = j.\frac{\pi}{n(\omega_1)\lambda_1}.\chi^{(3)}_{eff}.E(\omega_0).E^*(\omega_2).E^*(\omega_3)\,Z \tag{II.6}$$

En élevant l'expression précédente au carré, et en reliant l'éclairement à l'amplitude du champ électrique par (I.18), l'éclairement $I_1(Z)$ généré à la longueur d'onde λ_1 s'écrit :

$$I_1(Z) = \frac{\mu_0}{\epsilon_0}.\frac{\left(\frac{2\pi\chi^{(3)}_{eff}Z}{\lambda_1}\right)^2}{n(\omega_0)\,n(\omega_1)\,n(\omega_2)\,n(\omega_3)}.I_0(0).I_2(0).I_3(0) \tag{II.7}$$

L'éclairement produit est proportionnel aux valeurs des trois éclairements d'entrée. Cette première approximation permet de vérifier la faisabilité d'une expérience de génération de triplets de photons. Elle n'est, par contre, plus valide si l'interaction est efficace, car la production de nouveaux photons aux longueurs d'onde d'injection va venir amplifier la scission des photons pompe au cours de la propagation dans le cristal. Il est possible d'affiner ce modèle en tenant compte de la variation des champs incidents. Pour cela il faut relier les différents éclairements impliqués par les équations de Manley-Rowe ; dans le cas cubique elles s'écrivent [6, 14] :

$$\begin{cases} \lambda_1(I_1(Z) - I_1(0)) = \lambda_2(I_2(Z) - I_2(0)) \\ \lambda_1(I_1(Z) - I_1(0)) = \lambda_3(I_3(Z) - I_3(0)) \\ \lambda_1(I_1(Z) - I_1(0)) = -\lambda_0(I_0(Z) - I_0(0)) \end{cases} \tag{II.8}$$

En considérant que $I_1(0) = 0$, la résolution du système global (I.35), avec $\Delta k = 0$ et en négligeant la double réfraction, aboutit à une expression de l'éclairement $I_1(L)$ généré dans un cristal de longueur L, faisant intervenir les fonctions elliptiques de Jacobi $sn(u|v)$ et $cn(u|v)$ [39] :

$$I_1(L) = \gamma_0\gamma_3\frac{sn^2(aL|1-m)}{\Gamma} \tag{II.9}$$

avec :

$$\begin{cases} \gamma_0 = \dfrac{\lambda_0}{\lambda_1} I_0(0) \\ \gamma_2 = \dfrac{\lambda_2}{\lambda_1} I_2(0) \\ \gamma_3 = \dfrac{\lambda_3}{\lambda_1} I_3(0) \\ \Lambda = \sqrt{\dfrac{\mu_0}{\epsilon_0}} . \dfrac{4\pi\chi^{(3)}_{eff}}{\sqrt{n(\omega_0)\, n(\omega_1)\, n(\omega_2)\, n(\omega_3)}} . \sqrt{\dfrac{\lambda_1}{\lambda_0\lambda_2\lambda_3}} \\ m = \dfrac{\gamma_2(\gamma_0+\gamma_3)}{\gamma_3(\gamma_0+\gamma_2)} \\ a = \dfrac{\Lambda}{2}\sqrt{\gamma_3(\gamma_0+\gamma_2)} \\ \Gamma = \gamma_3 m sn^2(aL|1-m) + (\gamma_3+\gamma_0)\, cn^2(aL|1-m) \end{cases} \tag{II.10}$$

Les évolutions des éclairements aux autres longueurs d'onde se déduisent à partir de (II.8), et le système est donc régi par les quatre équations suivantes :

$$\begin{cases} I_0(L) = I_0(0)\left(1 - \gamma_3 \dfrac{sn^2(aL|1-m)}{\Gamma}\right) \\ I_1(L) = \gamma_0\gamma_3 \dfrac{sn^2(aL|1-m)}{\Gamma} \\ I_2(L) = I_2(0)\left(1 + \dfrac{\gamma_0\gamma_3}{\gamma_2}\dfrac{sn^2(aL|1-m)}{\Gamma}\right) \\ I_3(L) = I_3(0)\left(1 + \gamma_0 \dfrac{sn^2(aL|1-m)}{\Gamma}\right) \end{cases} \tag{II.11}$$

II.2.3.2 Stratégie expérimentale

La première génération stimulée de triplets de photons a été réalisée dans un cristal de KTP en 2004 à Grenoble, par Benoît Boulanger et Julien Douady [8, 36]. Les propriétés optiques linéaires et non linéaires de ce matériau sont bien connues, ce qui a permis de calculer les propriétés d'accord de phase et les rendements de conversion attendus. Le choix de ce cristal a également été motivé par un large domaine de transparence, compris entre $0,35$ à $4,5\mu m$, et un seuil de dommage optique assez élevé [40]. Par contre, KTP est non centrosymétrique : l'interaction cubique à réaliser peut donc être polluée par des interactions quadratiques en cascade. Ces dernières ont été minimisées par un choix judicieux de la direction d'accord de phase [41]. La longueur d'onde du faisceau de pompe est fixée à 532 nm par la source utilisée, un laser pulsé Nd :YAG émettant à 1064 nm dont une partie du faisceau est doublée en fréquence. La source présente un durée d'impulsion de 22 ps nécessaire à l'obtention d'éclairements de plusieurs centaines de GW/cm^2. La situation choisie est partiellement dégénérée : les deux longueurs d'onde d'injection sont identiques, $\lambda_2 = \lambda_3$, afin d'utiliser un seul faisceau d'injection. Celui-ci est fourni par un générateur paramétrique optique accordable entre 420 nm et 2300 nm pompé par le troisième harmonique du laser Nd :YAG.

Le plan (xOy) de KTP a été préféré car il offre des propriétés d'accord de phase intéressantes, une faible valeur de l'angle de double réfraction, et un taux de cascades quadratiques très faible. En tenant compte de la dégénérescence et en connaissant la classe de symétrie d'orientation de KTP $(mm2)$, il est facile de montrer qu'il ne subsiste que deux types possibles, parmi les sept données par (I.44), qui présentent un coefficient effectif non nul [8] :

$$\begin{cases} \perp & : \; n^{-}(\omega_0)\,\omega_0 - n^{+}(\omega_1)\,\omega_1 - n^{+}(\omega_2)\,\omega_2 - n^{-}(\omega_3)\,\omega_3 = 0 \\ // & : \; n^{-}(\omega_0)\,\omega_0 - n^{-}(\omega_1)\,\omega_1 - n^{+}(\omega_2)\,\omega_2 - n^{+}(\omega_3)\,\omega_3 = 0 \end{cases} \tag{II.12}$$

Pour le type $(\perp)$ le coefficient effectif dans le plan (xOy) de KTP se calcule en fonction de l'angle φ que fait la direction de propagation avec l'axe (Oz) à partir de (I.37), soit :

$$\chi^{(3)}_{eff} = \chi^{(3)}(\omega_1) :: \left[\vec{e}_0^{\,-}(\varphi) \otimes \vec{e}_1^{\,+}(\varphi) \otimes \vec{e}_2^{\,+}(\varphi) \otimes \vec{e}_3^{\,-}(\varphi)\right] \tag{II.13}$$

$\chi^{(3)}$ est le tenseur de susceptibilité électrique de troisième ordre et $\vec{e}_0^{\,-}$, $\vec{e}_1^{\,+}$, $\vec{e}_2^{\,+}$ et $\vec{e}_3^{\,-}$ sont les vecteurs unitaires des champs électriques des quatre ondes en interaction. En négligeant la double réfraction, qui est faible dans le plan (xOy), ils sont donnés d'après (I.23) et (I.24) par :

$$\vec{e}_0^{\,-}(\varphi) = \begin{pmatrix} -sin(\varphi) \\ cos(\varphi) \\ 0 \end{pmatrix} ; \vec{e}_1^{\,+}(\varphi) = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} ; \vec{e}_2^{\,+}(\varphi) = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} ; \vec{e}_3^{\,-}(\varphi) = \begin{pmatrix} -sin(\varphi) \\ cos(\varphi) \\ 0 \end{pmatrix} \tag{II.14}$$

La classe de symétrie d'orientation de KTP étant $mm2$, les termes non nuls et indépendants du tenseur $\chi^{(2)}$ sont donnés dans l'annexe A. En utilisant la notation contractée I.1, le calcul aboutit à :

$$\chi^{(3)-\perp}_{eff} = \chi^{(3)}_{24}\cos^2(\varphi) + \chi^{(3)}_{16}\sin^2(\varphi) \tag{II.15}$$

Un calcul similaire pour le type $(//)$ donne le même résultat, $\chi^{(3)-//}_{eff} = \chi^{(3)-\perp}_{eff}$. Le terme $\chi^{(3)}_{24}$ étant plus élevé que $\chi^{(3)}_{16}$ [42], le coefficient effectif décroît avec l'angle φ, de l'axe (Ox) vers l'axe (Oy). Afin d'assurer la pureté du processus cubique, les interactions quadratiques en cascade doivent être étudiées pour en réduire la contribution. Ces cascades consomment les mêmes photons incidents et produisent les mêmes photons que l'interaction cubique par deux processus quadratiques. La contribution de celles-ci peut être quantifiée par le rapport entre les éclairements générés à λ_1 par les cascades quadratiques I_1^{quad} et par le processus cubique I_1^{cub} [41] :

$$\eta = \frac{I_1^{quad}}{I_1^{cub}} \tag{II.16}$$

Une étude complète des différentes cascades possibles a permis de montrer que η est plus petit pour le type ($\perp$) que pour le type (//) et qu'il atteint la valeur très faible de 0,5% sur l'axe (Ox) du plan équatorial. Cette direction présentant un angle de double réfraction strictement nul, c'est elle qui a été choisie pour l'expérience de génération de triplets. De plus, le type ($\perp$) présente l'avantage de pouvoir séparer complètement les trois photons du triplet, les deux photons d'injection à $\lambda_2 = \lambda_3$ ayant des polarisations orthogonales.

Les équations de dispersion [43] relatives à KTP permettent de montrer qu'une différence de fréquence pompée à $\lambda_0^- = 532\ nm$, doublement injectée à $\lambda_2^+ = \lambda_3^- = 1681\ nm$, et produisant un faisceau à $\lambda_1^+ = 1453\ nm$, est en accord de phase sur l'axe (Ox) [8,36]. Le coefficient effectif associé est réduit au terme $\chi_{24}^{(3)} = 14,6.10^{-22}\ m^2/V^2$ [42]. Les équations (II.7) et (II.11) permettent de calculer l'évolution des différents éclairements en fonction de la longueur d'interaction, pour les conditions expérimentales citées ci-dessus et pour les deux modèles explicités (figure II.3). Les éclairements initiaux sont $I_0(0) = 20\ GW/cm^2$ et $I_2(0) = I_3(0) = 1\ GW/cm^2$. L'onde à λ_1 est créée, les ondes à λ_2 et λ_3 sont amplifiées, alors que l'onde à λ_0 est dépeuplée. Lorsque celle-ci est entièrement dépeuplée, c'est l'interaction inverse de fusion de photons qui prend le relais, en vertu du caractère périodique des fonctions elliptiques de Jacobi.

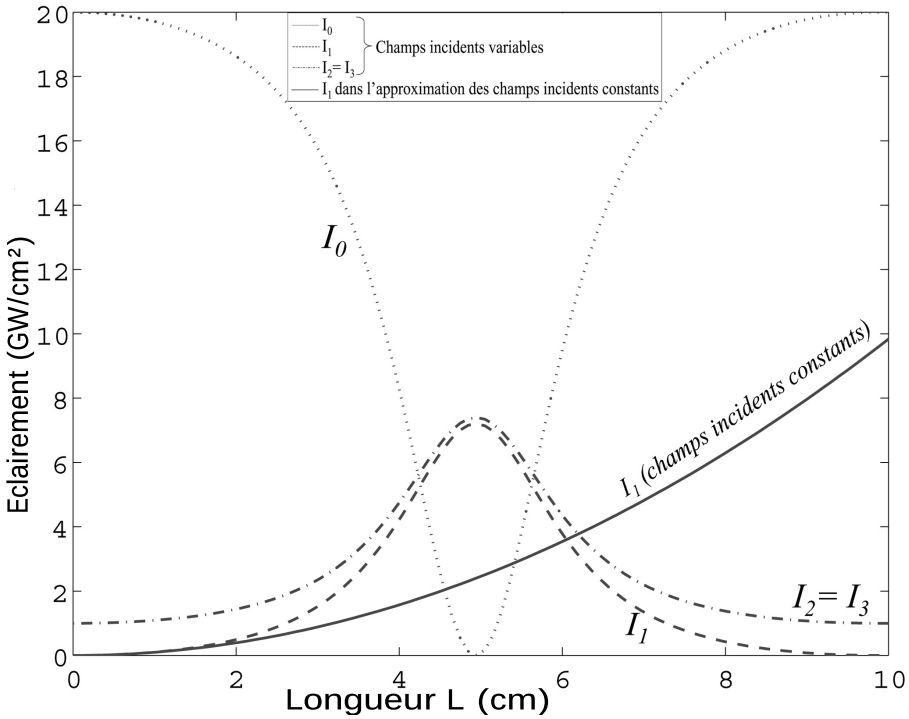


FIG. II.3 – *Evolution des différents éclairements impliqués dans le processus de différence de fréquences cubique $\lambda_0 - \lambda_2 - \lambda_3 \rightarrow \lambda_1$ en fonction de la longueur d'interaction pour le modèle en pompe dépeuplée (pointillés) et non dépeuplée (trait plein).*

II.2.3.3 Résultats

Le montage utilisé est représenté sur la figure II.4. Le recouvrement spatial et temporel des faisceaux pompe et injection se fait par une ligne à retard et des miroirs dichroïques. Le cristal de KTP de 25 mm orienté selon (Ox) est autocollimaté, et l'accord de phase est réalisé par ajustement de la longueur d'onde d'injection. Le résultat de premier plan est la détection de photons à la longueur d'onde λ_1, symptomatiques de la génération de triplets de photons. La pureté du processus cubique est vérifiée par l'absence de signaux détectables aux longueurs d'ondes intermédiaires intervenant dans les cascades quadratiques.

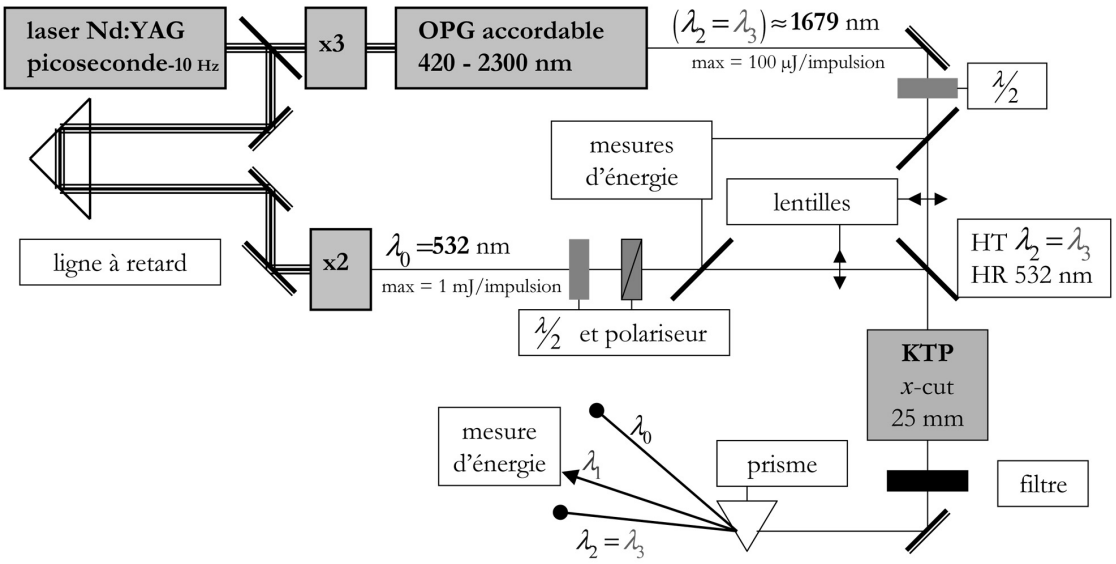


FIG. II.4 – *Montage utilisé pour la première génération de triplets de photons en 2004 [8].*

La longueur d'onde d'injection d'accord de phase a été mesurée à $\lambda_2 = \lambda_3 = 1665\ nm$; cette valeur est sensiblement différente de la valeur calculée, ce qui justifie l'utilisation d'une source d'injection accordable. D'un point de vue énergétique, les éclairements incidents sont égaux à $I_0(0) = 350\ GW/cm^2$ et $I_2(0) = I_3(0) = 50\ GW/cm^2$, l'éclairement généré valant dans ces conditions : $I_1(0) = 10\ GW/cm^2$. Seule la variation de l'éclairement généré en fonction de l'éclairement de pompe a pu être tracée (fig II.5) à cause de la trop grande instabilité de la source d'injection. Les barres d'erreurs témoignent de la difficulté de l'expérience réalisée et expliquent pourquoi celle-ci n'a malheureusement pas permis une comparaison de ces valeurs avec celles prédites par les modèles développés. Les mesures effectuées ont toutefois montré que l'éclairement généré est bien inférieur à la valeur prévue, l'écart provenant essentiellement d'un mauvais recouvrement spatial et temporel entre les deux faisceaux.

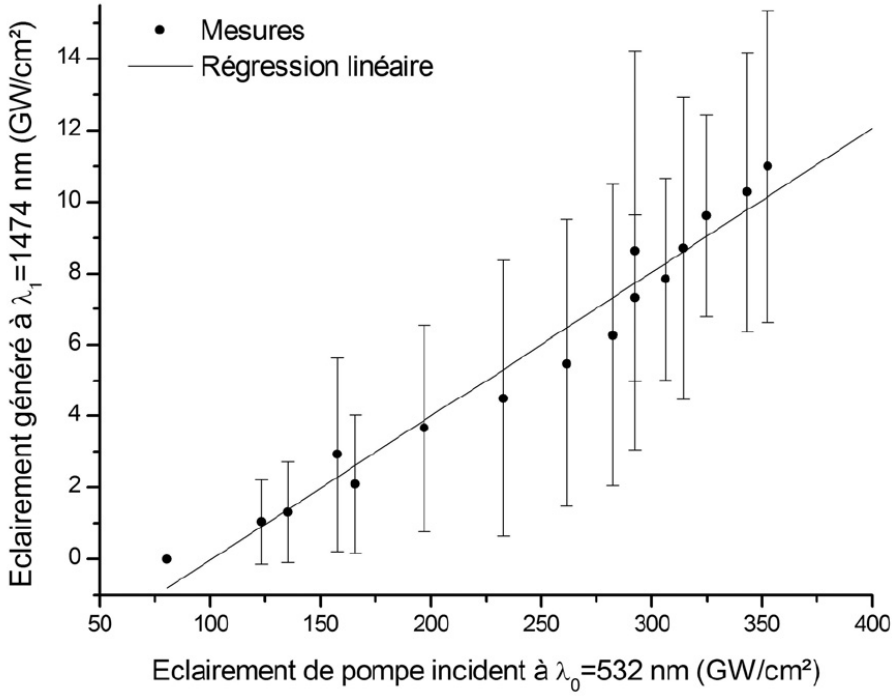


FIG. II.5 – *Eclairement généré à $\lambda_1 = 1474$ nm en fonction de l'éclairement de pompe à $\lambda_0 = 532$ nm avec un éclairement d'injection à $\lambda_2 = \lambda_3 = 1665$ nm maintenu à 50 GW/cm^2 ; cette courbe a été obtenue dans le cadre de la première génération de triplets en 2004 [8].*

Il est intéressant de comparer le nombre de photons par impulsion impliqués dans le processus de conversion. Pour environ 10^{15} photons pompe et 10^{14} photons d'injection, 10^{13} triplets de photons sont produits à chaque impulsion. Même si un photon sur dix à $\lambda_2 = \lambda_3$ appartient à un triplet de photons, la forte intrication attendue devrait permettre d'observer les corrélations entre les trois photons.

II.2.4 Propriétés quantiques

Les états intriqués à au moins trois particules sont plus riches, d'un point de vue quantique, que les états à deux particules [44], et se situent dans un état GHZ, en référence à Greenberger, Horne et Zeilinger. La grandeur pertinente pour décrire l'état quantique du système est la fonction de Wigner ; pour un système possédant une matrice densité $\hat{\rho} = |\psi\rangle\langle\psi|$ correspondante à la fonction d'onde ψ, la fonction de Wigner s'écrit [45] :

$$W(q,p) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} e^{jpx}\left\langle q - \frac{x}{2}|\hat{\rho}|q + \frac{x}{2}\right\rangle dx \tag{II.17}$$

où p et q sont les deux quadratures du champ électromagnétique. La fonction de Wigner est indirectement accessible expérimentalement, par des méthodes de tomographie quantique, qui permettent de mesurer la distribution marginale de probabilité [46]. Quelques calculs de la fonction de Wigner ont été effectués dans un cas totalement dégénéré $3\omega \rightarrow \omega+\omega+\omega$:

elle possède une forme étoilée appelée *Star Gate* pouvant prendre des valeurs négatives [47]. Le calcul a été fait depuis peu par Kamel Bencheikh et Ariel Levenson dans le cas d'une scission doublement stimulée, correspondant à la situation expérimentale développée dans le groupe [38]. Les fonctions de Wigner pour les photons à $\lambda_2 = \lambda_3 = 1665\ nm$ et pour le photon à $\lambda_1 = 1474\ nm$ sont représentées sur la figure II.6. Elles font apparaître des formes non gaussiennes et des interférences, mais, contrairement au cas dégénéré, elles restent positives.

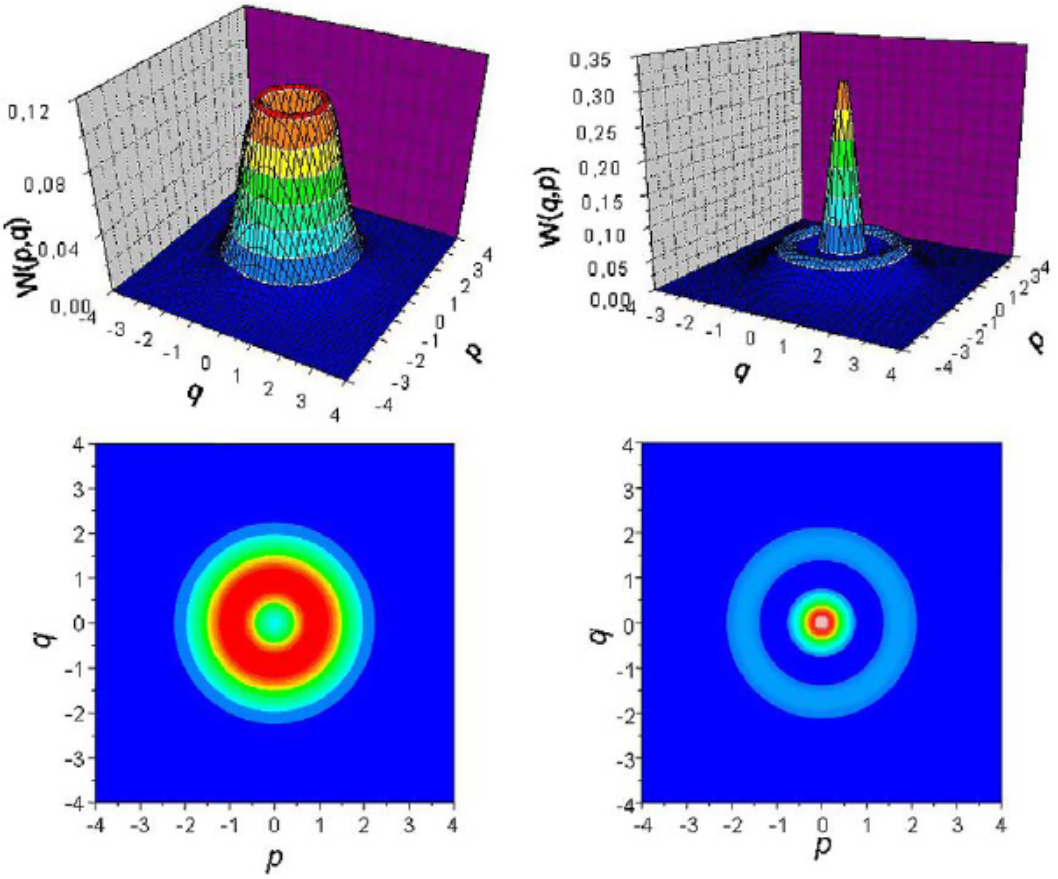


FIG. II.6 – *Fonctions de Wigner du photon à $\lambda_1 = 1474\ nm$ (gauche) et des photons à $\lambda_2 = \lambda_3 = 1665\ nm$ (droite) [38].*

Dans le cas expérimental qui nous intéresse, les trois photons du triplet sont séparables grâce à des polarisations et des longueurs d'onde différentes. Il est alors possible d'étudier les corrélations quantiques entre les photons dans les deux modes, ordinaire (o) et extraordinaire (e), correspondant au photon à 1474 nm et aux photons à 1665 nm, respectivement. Celles-ci peuvent être estimées théoriquement en utilisant la distribution jointe de probabilité :

$$P\left(X_o, X_e\right) = \int_{-\infty}^{+\infty} \left| \left\langle \hat{X}_p, \hat{X}_o, \hat{X}_e | \psi\left(t\right) \right\rangle \right|^2 dX_p \tag{II.18}$$

La fonction $P\left(X_o, X_e\right)$ est représentée sur la figure II.7 dans l'espace des quadratures

(X_o, X_e) pour différentes efficacités d'interaction. La figure montre une distribution de probabilité "cruciforme" symptomatique des corrélations quantiques entre les deux modes de polarisation. Celles-ci sont nettement plus marquées pour de fortes efficacités ce qui motive le travail réalisé pour générer des triplets de photons de manière efficace.

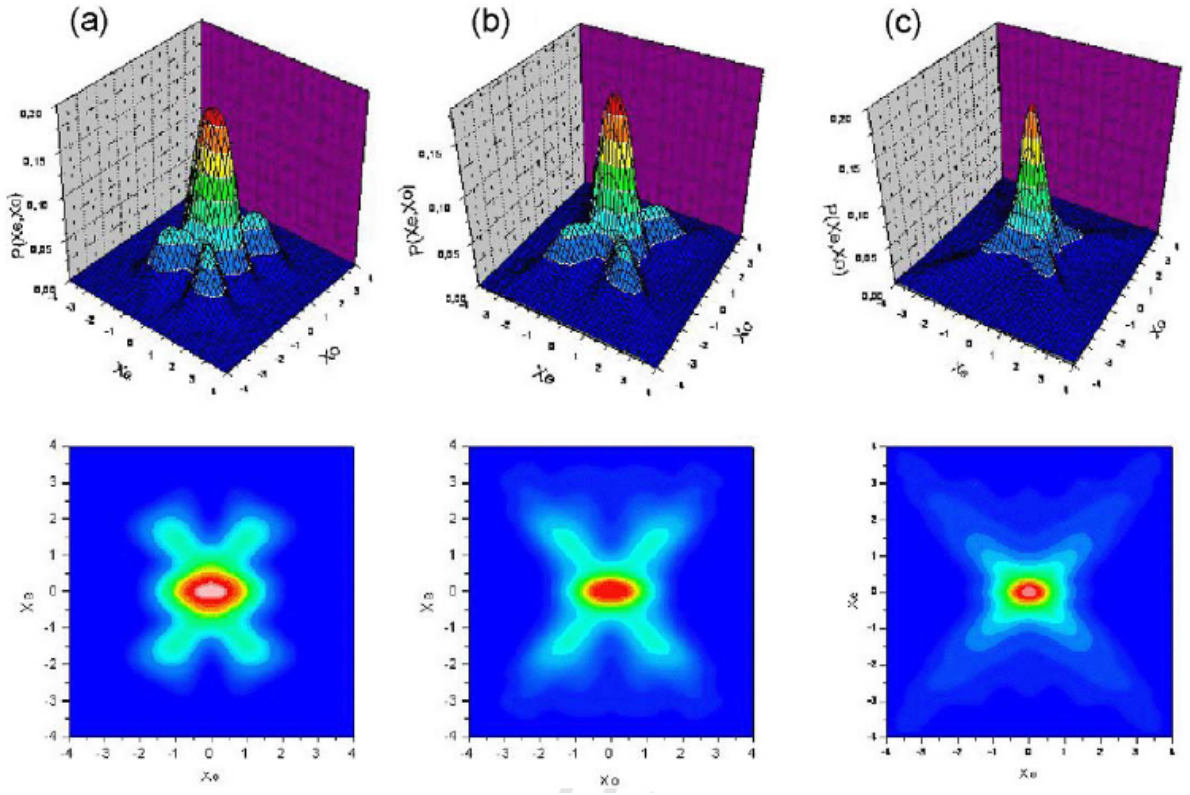


FIG. II.7 – *Distribution jointe de probabilité entre les deux modes de polarisation pour une efficacité forte (a), moyenne (b) et faible (c) [38].*

II.3 Génération de troisième harmonique

II.3.1 Intérêt quantique

La Génération de Troisième Harmonique, dont l'acronyme anglophone est THG, correspond à un processus cubique de somme de fréquences totalement dégénéré pouvant être noté $\omega + \omega + \omega \rightarrow 3\omega$. Cette interaction est beaucoup plus simple à réaliser car elle ne nécessite qu'une seule source et les rendements sont plus élevés que dans le cas de la génération de triplets de photons. Elle constitue donc un bon moyen pour évaluer la potentialité d'un matériau pour la réalisation d'interactions optiques non linéaires de troisième ordre. De plus, la THG présente également un intérêt quantique car elle possède une statistique non gaussienne.

L'équivalent quadratique de la THG, la Génération de Second Harmonique (SHG), a permis l'étude de ces statistiques spécifiques, et a abouti à la génération d'états comprimés.

Les études théoriques montrent que si le faisceau de pompe a une statistique Poissonienne, alors le faisceau généré et le faisceau pompe résiduel ont des statistiques sub-Poissonienne en sortie du cristal non linéaire [46]. Les avancées dans le domaine des matériaux à propriétés optiques non linéaires quadratiques ont permis d'atteindre un haut rendement de conversion, de l'ordre de plusieurs dizaines de pourcent, nécessaire à l'observation d'un tel effet [48, 49]. Aucune étude théorique n'a été menée sur les propriétés quantiques de la THG mais, si le rendement de conversion atteint des valeurs comparables à celles utilisées dans le cadre de la SHG, une étude des statistiques des faisceaux peut être envisageable.

II.3.2 Etude théorique

La THG correspond à la fusion de trois photons d'énergie $\hbar\omega$ en un photon d'énergie $\hbar 3\omega$, convertissant alors un faisceau pompe à la longueur λ en un rayonnement à $\lambda/3$. En tenant compte de la dégénérescence en longueur d'onde, il existe trois configurations de polarisation possibles parmi les sept données par (I.44) :

$$\begin{cases} \text{I} & : \; n^{-}(3\omega)\,3\omega - n^{+}(\omega)\,\omega - n^{+}(\omega)\,\omega - n^{+}(\omega)\,\omega = 0 \\ \text{II} & : \; n^{-}(3\omega)\,3\omega - n^{+}(\omega)\,\omega - n^{+}(\omega)\,\omega - n^{-}(\omega)\,\omega = 0 \\ \text{III} & : \; n^{-}(3\omega)\,3\omega - n^{+}(\omega)\,\omega - n^{-}(\omega)\,\omega - n^{-}(\omega)\,\omega = 0 \end{cases} \tag{II.19}$$

L'éclairement généré à la pulsation triple 3ω peut être calculé à partir des équations couplées (I.35), dans l'approximation de la pompe non dépeuplée où le rendement d'interaction est suffisamment faible pour considérer que la déplétion des photons de pompe à ω est négligeable. Pour une interaction en accord de phase et en négligeant la double réfraction, le système d'équations couplées (I.35) devient :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial E(\omega)}{\partial Z} = 0 \\ \dfrac{\partial E(3\omega)}{\partial Z} = j.\dfrac{3\pi}{n(3\omega)\,\lambda}.\chi^{(3)}_{eff}.E(\omega)^3 \end{cases} \tag{II.20}$$

En supposant que le champ initial à 3ω est nul, soit $E(3\omega, Z = 0) = 0$, l'intégration se fait aisément, pour donner :

$$E(3\omega, Z) = j.\frac{3\pi}{n(3\omega)\,\lambda}.\chi^{(3)}_{eff}.E(\omega)^3\,.Z \tag{II.21}$$

A partir de l'expression précédente et de (I.18), l'éclairement généré $I_{3\omega}(L)$ par un cristal de longueur L peut être exprimé en fonction de l'éclairement incident $I_{\omega}(0)$:

$$I_{3\omega}(L) = \frac{\mu_0}{\epsilon_0}.\frac{\left(\frac{2\pi\chi^{(3)}_{eff}.L}{\lambda}\right)^2}{3n(3\omega)\,n(\omega)\,n(\omega)\,n(\omega)}.I_{\omega}(0)^3 \tag{II.22}$$

L'expression précédente fait intervenir un coefficient effectif global $\chi^{(3)}_{eff}$ qui tient compte à

la fois du processus cubique et des interactions quadratiques en cascade. Celles-ci doivent être minimisées car seuls les photons impliqués dans le processus cubique possèdent la statistique spécifique recherchée. L'éclairement généré varie avec le cube de l'éclairement incident, de sorte que le rendement de conversion de fréquences en énergie, défini comme le rapport de l'énergie générée sur l'énergie incidente, varie avec le carré de celui-ci. L'utilisation d'une source intense est donc nécessaire pour obtenir un rendement intéressant.

II.3.3 Expériences

Les meilleurs résultats alliant pureté et efficacité du processus ont été obtenu dans KTP [8, 50] : La direction (Ox) permet un accord de phase de type II à la longueur d'onde fondamentale $\lambda = 1618\ nm$ avec un taux de cascade de 10%. L'expérience réalisée dans le groupe a abouti à un rendement maximal de conversion de fréquences de 2,4% pour un éclairement de pompe de 55 GW/cm^2, en accord avec la valeur théorique prévue par l'équation (II.22), comme le montre la figure II.8.

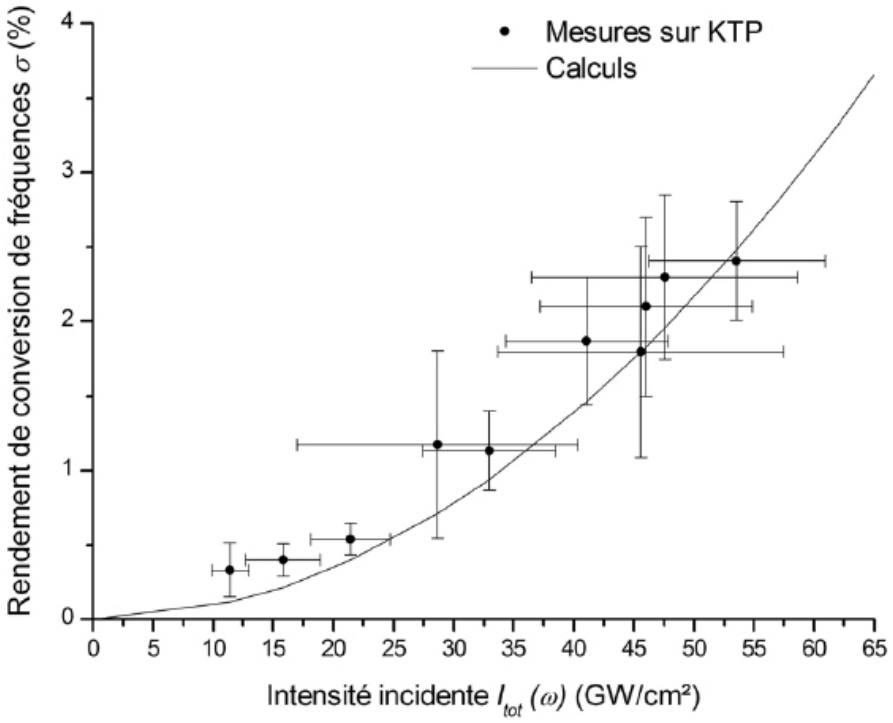


FIG. II.8 – *Rendement de conversion de fréquences en énergie pour une THG de type II dans KTP en fonction de l'éclairement incident [8].*

Deux autres tentatives originales n'ont malheureusement pas permis d'atteindre des rendements intéressants. La première consiste à utiliser un matériau périodiquement alterné ; un choix judicieux du pas du réseau permet de rendre inefficace les processus quadratiques en cascade sans pour autant modifier le rendement de conversion cubique [51]. L'expérience a été tentée dans ppKTP mais la faible tenue des cristaux n'a pas

permis d'atteindre un rendement supérieur à celui obtenu avec KTP. La deuxième vise à utiliser des verres de chalcogénure, dont la non-linéarité cubique est plusieurs ordres de grandeur supérieure à celle de KTP. Les verres sont par contre des milieux isotropes, ce qui interdit la réalisation de l'accord de phase par biréfringence. L'alternative proposée a été de créer une biréfringence artificielle par une contrainte mécanique anisotrope [52]. Malheureusement la tenue mécanique des échantillons n'a pas permis d'atteindre un rendement suffisant.

Chapitre III

Réalisation de la source d'injection

Il n'était pas envisageable de pouvoir étudier les corrélations des photons du triplet avec l'expérience de 2004, compte tenu des fortes instabilités et de la mauvaise qualité spatiale des faisceaux. Il a donc été décidé de concevoir une nouvelle expérience, basée sur une nouvelle source laser. Nous avons choisi un laser Nd :YAG (Ekspla SL312P) générant 500 mJ par impulsion de 150 ps, à la cadence de 5 Hz. Cette durée d'impulsion a été choisie dans l'objectif de pouvoir réaliser une génération de triplets par oscillation paramétrique optique, le régime sub-nanoseconde étant compatible avec l'obtention de forts éclairements et d'une résonance. Plusieurs configurations ont été étudiées afin d'obtenir un dispositif générant un faisceau possédant une énergie suffisante et un profil temporel satisfaisant.

III.1 Eléments de théorie

III.1.1 Introduction

L'interaction réalisée dans les cristaux de KTP est la scission d'un photon pompe d'énergie $\hbar\omega_p$ en deux photons, appelés classiquement signal et idler, d'énergies $\hbar\omega_s$ et $\hbar\omega_i$, telles que $\lambda_s < \lambda_i$. Les longueurs d'onde λ_p et λ_s étant imposées par l'expérience, à savoir $\lambda_p = 1064\,nm$ et $\lambda_s = 1665\,nm$, la longueur d'onde idler est fixée par la conservation de l'énergie, soit $\lambda_i = 2948\,nm$. La configuration de polarisation choisie est telle que l'onde pompe et l'onde signal sollicitent la nappe (-) de la nappe des indices, tandis que l'onde idler sollicite la nappe (+) ; une telle interaction peut être notée ${\lambda_p}^- \rightarrow {\lambda_s}^- + {\lambda_i}^+$. Les équations (I.45) écrites avec les notations $\{0,1,2\} = \{p,s,i\}$ permettent de calculer la direction d'accord de phase et le coefficient effectif associé à cette interaction. Compte tenu de (I.45) et (I.14), l'angle d'accord de phase θ_{AP} dans le plan (xOz) a pour expression :

$$sin^2\left(\theta_{AP}\right) = \frac{\lambda_i^2\left(\frac{n_y(\lambda_p)}{\lambda_p} - \frac{n_y(\lambda_s)}{\lambda_s}\right) - n_x^{-2}\left(\lambda_i\right)}{n_z^{-2}\left(\lambda_i\right) - n_x^{-2}\left(\lambda_i\right)} \tag{III.1}$$

Compte tenu de (I.36), le coefficient effectif du processus , $\chi_{eff}^{(2)}$, a pour expression :

$$\chi_{eff}^{(2)} = \chi^{(2)}(\omega_s) \vdots \left[\vec{e}_p^{-}(\theta) \otimes \vec{e}_s^{-}(\theta) \otimes \vec{e}_i^{+}(\theta)\right] \tag{III.2}$$

$\chi^{(2)}$ est le tenseur de susceptibilité électrique de second ordre et $\vec{e}_p^{-}$, $\vec{e}_s^{-}$ et $\vec{e}_i^{+}$ sont les vecteurs unitaires des champs électriques des trois ondes en interaction donnés par :

$$\vec{e}_p^{-}(\theta) = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix} ; \vec{e}_s^{-}(\theta) = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix} ; \vec{e}_i^{+}(\theta) = \begin{pmatrix} -cos(\theta - \rho_i(\theta)) \\ 0 \\ sin(\theta - \rho_i(\theta)) \end{pmatrix} \tag{III.3}$$

où $\rho_i(\theta)$ est l'angle de double réfraction :

$$\rho_i(\theta) = \arccos\left(\frac{n_x^{-2}(\lambda_i)\cos^2(\theta) + n_z^{-2}(\lambda_i)\sin^2(\theta)}{\sqrt{n_x^{-4}(\lambda_i)\cos^2(\theta) + n_z^{-4}(\lambda_i)\sin^2(\theta)}}\right) \tag{III.4}$$

Compte tenu de (III.2), de (III.3), et des éléments indépendants du tenseur $\chi^{(2)}$ de KTP (Annexe A), le coefficient effectif dans le plan (xOz) s'écrit en utilisant la notation contractée donnée par le tableau I.1 :

$$\chi_{eff}^{(2)} = \chi_{24}^{(2)}(\omega_s) .sin(\theta - \rho_i(\theta)) \tag{III.5}$$

Les valeurs de θ_{AP} et de ρ_i sont calculées à partir des équations de dispersion de KTP [43]. Le coefficient effectif $\chi_{eff}^{(2)}$ est enfin calculée dans la direction d'accord de phase à partir de la valeur de $\chi_{24}^{(2)}$ de KTP [53] :

$$\begin{cases} \theta_{AP} = 70,1^{\circ} \\ \rho = 1,6^{\circ} \\ \chi_{eff}^{(2)} = 4,9\ pm/V \end{cases} \tag{III.6}$$

L'interaction à réaliser présente donc un coefficient effectif important associé à un angle de double réfraction relativement faible. La fluorescence paramétrique quadratique étant peu efficace (cf II.2.2), la mise en cavité du cristal est souvent nécessaire pour réaliser une source intense : cette méthode consiste à faire effectuer aux différentes ondes plusieurs passages dans le milieu non linéaire, par l'ajout de miroirs de part et d'autre du cristal. L'ensemble constitue un Oscillateur Paramétrique Optique (OPO), représenté sur la figure III.1 ; R_q^e et R_q^s sont les coefficients de réflexion en énergie à la longueur d'onde λ_q des miroirs d'entrée et de sortie respectivement. De manière similaire à un laser, l'oscillation de l'OPO est possible lorsque le gain de l'interaction non linéaire sur un aller-retour dans la cavité est supérieur aux pertes. L'éclairement de pompe nécessaire à l'oscillation est

appelé éclairement seuil, noté I_p^{seuil}. Les pertes sont essentiellement dues à la transmission du miroir de sortie.

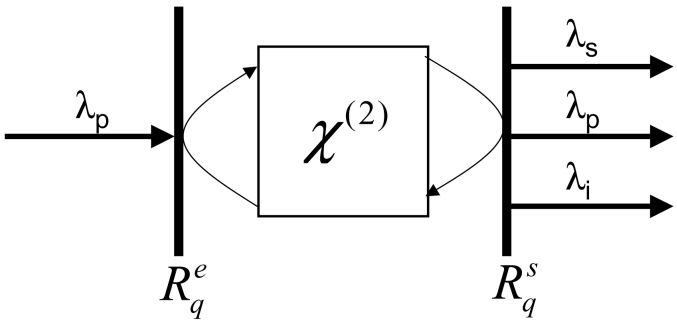


FIG. III.1 – *Schéma de principe d'un Oscillateur Paramétrique ; R_q^e et R_q^s sont les coefficients de réflexion des miroirs d'entrée et de sortie à la longueur d'onde signal.*

La condition $R_p^e = 0$ permet à la pompe de pénétrer complètement dans la cavité. Les valeurs des autres coefficients de réflexion autorisent plusieurs régimes de fonctionnement. Si $R_s^e = 1$ et $R_s^s < 1$, seule l'onde signal oscille dans la cavité, l'OPO est dit simplement résonnant. Si de plus, $R_i^e = 1$ et $R_i^s \leq 1$, l'onde idler oscille également, l'OPO étant qualifié de doublement résonnant, et présente un seuil d'oscillation plus bas qu'un OPO simplement résonnant. Enfin, si $R_p^s = 1$, l'onde pompe fait un aller-retour dans le cristal non-linéaire : l'OPO est en situation de recyclage de pompe ce qui permet encore d'abaisser le seuil.

Il existe également deux régimes temporels de fonctionnement. Le premier correspond à un OPO pompé en continu ou en régime nanoseconde, de sorte que le temps d'aller-retour des ondes dans la cavité est très inférieur à la durée des impulsions, la cavité devant être la plus courte possible dans le cas du régime impulsionnel. La seconde possibilité est de pomper l'OPO en régime picoseconde ou femtoseconde et de réaliser un pompage synchrone : l'impulsion pompe $N+1$ arrive sur le miroir d'entrée au moment où l'impulsion résonnante N a réalisé un aller-retour dans la cavité. La longueur de la cavité doit être adaptée à la cadence du laser, qui est typiquement de l'ordre de 80 MHz. La configuration temporelle de nos différentes réalisations ést imposée par la source utilisée, de durée d'impulsion 150 ps et dont la basse cadence exclut la possibilité de réaliser un pompage synchrone. La cavité réalisée sera donc la plus courte possible : le cristal de KTP utilisé ayant une longueur L de 1 cm, les miroirs seront placés le plus près possible de celui-ci, réalisant ainsi une cavité de longueur optique l environ égale à $2,1$ cm. Le temps d'aller-retour des ondes dans la cavité vaut alors 140 ps, valeur qui est très proche de la durée de l'impulsion de pompe, rendant alors assez atypique la réalisation d'un tel OPO.

L'onde idler ne nous intéressant pas, elle sera filtrée à la sortie du dispositif. Les différentes configurations étudiées sont simplement résonnantes mais avec différentes valeurs des coefficients de réflexion R_s^s et R_p^s.

III.1.2 Modèle de Byer et Brosnan

Alors que le seuil d'oscillation est facilement calculable pour un pompage continu à partir des équations couplées (I.34) [54], la prise en compte du caractère impulsionnel du laser de pompe est beaucoup plus difficile. En régime nanoseconde, le modèle développé par Byer et Brosnan est assez satisfaisant [55]. Il va nous donner un bon aperçu de la variation du seuil avec les différents paramètres de la cavité pour le régime sub-nanoseconde qui nous concerne. En négligeant l'absorption du cristal aux longueurs d'onde en interaction et en supposant un recouvrement spatial optimal des faisceaux, l'éclairement pompe seuil I_p^{seuil} donné par le modèle peut s'écrire :

$$I_p^{seuil} = \frac{1,8}{\gamma L^2 (1+\delta)^2 T_p} \left[\frac{25l}{c\tau_p} + \ln\left(\frac{1}{T_s^2 \sqrt{R_s^s}} \right) + \ln(2) \right]^2 \tag{III.7}$$

avec :

$$\gamma = \frac{2\left(\pi \chi_{eff}^{(2)}\right)^2}{n(\omega_s)\, n(\omega_i)\, n(\omega_p)\, \epsilon_0 c \lambda_s \lambda_i} \tag{III.8}$$

$T_\alpha = \frac{4n(\omega_\alpha)}{(n(\omega_\alpha)+1)^2}$ est le coefficient de transmission de Fresnel en énergie du cristal non linéaire où $n(\omega_\alpha)$ est l'indice de réfraction à la pulsation ω_α, $\alpha \equiv \{p, s\}$. L est la longueur du cristal, l la longueur optique de la cavité et τ_p la durée totale de l'impulsion de pompe. δ représente le taux de recyclage de pompe : il est égal au rapport de l'amplitude de la pompe incidente sur l'amplitude de la pompe recyclée. δ est donc égal au coefficient de réflexion R_p^s du miroir de sortie pour l'onde pompe. La figure III.2 montre l'évolution de l'éclairement seuil calculé en fonction du coefficient de réflexion R_s^s, paramétrée par le taux de recyclage de pompe δ, avec $L = 1\ cm$, $l = 2,1\ cm$ et $\tau_p = 150\ ps$. Les coefficients T_α sont calculés à partir des équations de dispersion de KTP [43] : T_p et T_s valent respectivement $0,926$ et $0,928$.

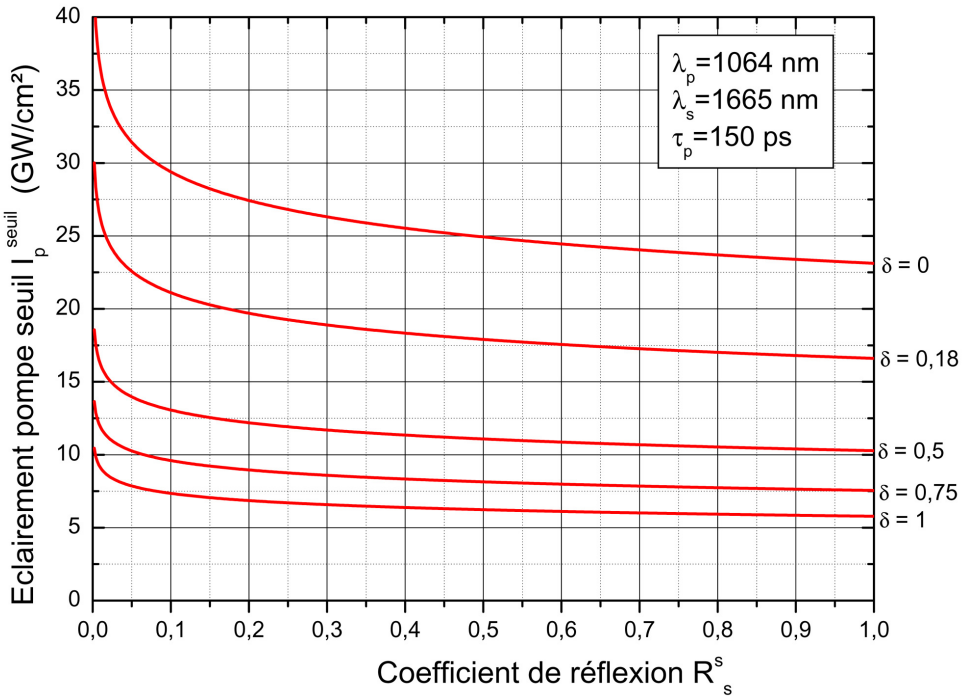


FIG. III.2 – *Evolution de l'éclairement seuil d'un OPO KTP simplement résonnant en fonction du coefficient de réflexion R_s^s du miroir à la longueur d'onde signal, pour différentes valeurs du recyclage de pompe δ. La longueur du cristal est $L = 1$ cm, la longueur de la cavité est $l = 2,1$ cm.*

La figure III.2 montre que pour une valeur de δ donnée, l'éclairement seuil dépend peu de R_s^s au delà de $R_s^s = 0,05$. Par contre, à R_s^s donné, l'éclairement varie fortement avec δ. Compte tenu de (III.7), avec $\delta = 1$ et $R_s^s = 95\%$, l'éclairement seuil calculé est égal à $5,8\ GW/cm^2$. Cette valeur peut être atteinte sans détériorer le cristal ou les miroirs et elle laisse un bon espoir d'atteindre le seuil d'oscillation.

III.1.3 Evolution de la durée de vie du photon

La durée de vie du photon signal dans la cavité, notée μ, peut se calculer de la même manière que dans un laser [56] ; en négligeant l'absorption, elle est donnée par :

$$\mu = \frac{2l}{c \ln\left(\frac{1}{R_s^s T_s^4}\right)} \tag{III.9}$$

l est la longueur de la cavité, c est la célérité de la lumière dans le vide, R_s^s est le coefficient de réflexion du miroir de sortie à λ_s, et T_s le coefficient de transmission de Fresnel à λ_s. La durée de vie μ est tracée en fonction du coefficient R_s^s sur la figure III.3. Elle croît et peut atteindre des valeurs de l'ordre de la nanoseconde pour les coefficients de réflexion R_s^s supérieurs à 80%. La durée de vie du photon est dans ce cas très supérieure à la durée d'impulsion pompe : nous verrons plus loin que ce point a des conséquences importantes sur la durée d'impulsion de l'onde générée.

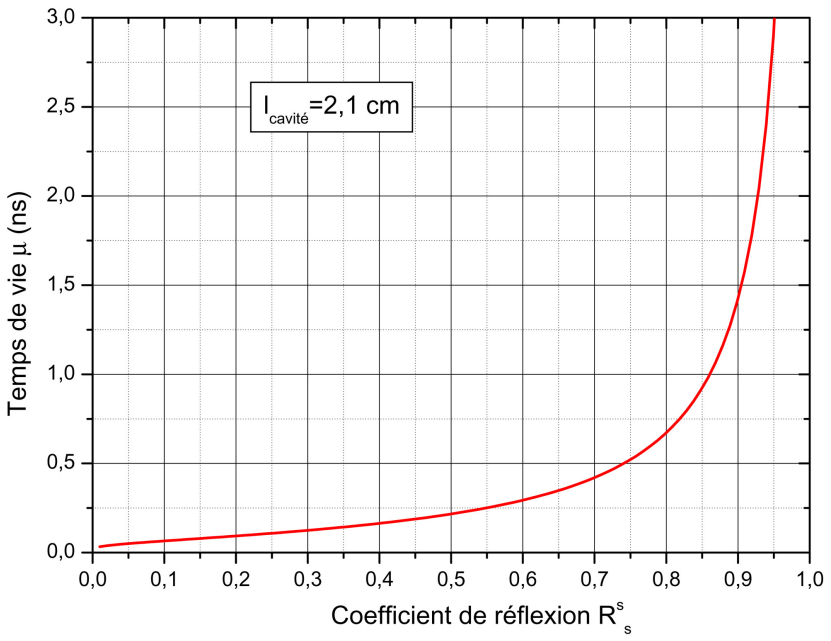


FIG. III.3 – *Evolution de la durée de vie du photon signal dans un OPO KTP simplement résonnant sur le signal en fonction du coefficient de réflexion R_s^s du miroir de sortie à la longueur d'onde signal.*

III.2 Méthodes de caractérisation de faisceau utilisées

III.2.1 Faisceaux gaussiens

La connaissance des propriétés spatiales et temporelles du faisceau généré par l'OPO à $\lambda_s = 1665\ nm$ est primordiale, d'une part pour optimiser le recouvrement entre le faisceau d'injection et le faisceau à $\lambda_0 = 532\ nm$ lors de la génération de triplets de photons, et d'autre part pour calculer l'éclairement à partir de l'énergie mesurée. L'onde électromagnétique est exprimée dans un repère du laboratoire (O, X, Y, Z) dont l'axe (OZ) est pris colinéairement à la direction de propagation, (XOY) définissant alors le plan transverse. Dans ce travail, nous considérons des faisceaux gaussiens, à la fois spatialement et temporellement. L'amplitude complexe de l'onde s'écrit alors :

$$E(X,Y,Z,t) = E_o(t) \cdot \frac{W_{oX} W_{oY}}{W_X(Z)\, W_Y(Z)} . e^{-\frac{X^2}{W_X^2(Z)}} . e^{-\frac{Y^2}{W_Y^2(Z)}} . e^{j(kZ-\omega t+\phi)} \qquad \text{(III.10)}$$

k est le module du vecteur d'onde, ω la pulsation et ϕ la phase initiale. Les axes (OX) et (OY) peuvent être choisis dans les directions présentant les rayons extrêmes, $W_X(Z)$ et $W_Y(Z)$ étant définis comme les demi-largeurs à $1/e$ du maximum vis-à-vis du champ électrique dans ces deux directions ; cette écriture permet de décrire des faisceaux astigmates : W_{oX} et W_{oY} sont les rayons à $Z = 0$. $E_o(t)$ est l'amplitude instantanée du champ au point $X = Y = Z = 0$. Le modèle gaussien impose, dans un milieu d'indice n, la loi de variation longitudinale suivante pour chacun des rayons $W_X(Z)$ et $W_Y(Z)$ [57] :

$$W_K(Z) = W_{oK}\sqrt{\left(1+\left(\frac{M_K^2\lambda Z}{\pi n W_{oK}^2}\right)^2\right)},\ K = X \text{ ou } Y \tag{III.11}$$

W_{oX} ou W_{oY} sont les valeurs minimales à la position $Z = 0$, appelée col du faisceau. M^2 est le facteur de qualité du faisceau : $M^2 = 1$ dans le cas d'un faisceau idéal, dit une fois limitée par la diffraction ; $M^2 > 1$ dans la plupart des situations réelles. La figure III.4 montre l'évolution longitudinale du rayon en fonction de la cote Z pour deux valeurs différentes de M^2.

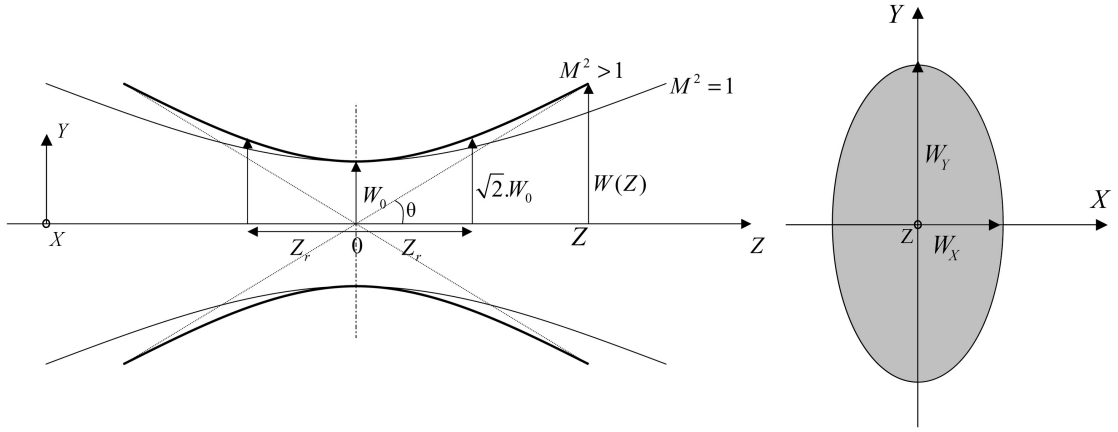


FIG. III.4 – *Evolution du rayon du faisceau gaussien au cours de sa propagation (gauche). Section transverse(droite).*

De part et d'autre de la côte $Z = 0$, les ondes peuvent être considérées comme planes sur une distance Z_r telle que $W_K(Z_r) = W_{oK}\sqrt{2}$; cette distance, appelée longueur de Rayleigh, s'exprime en fonction du rayon minimum par :

$$Z_{rK} = \frac{\pi n W_{oK}^2}{M_K^2\lambda},\ K = X \text{ ou } Y \tag{III.12}$$

En champ lointain, le faisceau peut être approximé par l'asymptote de l'équation (III.11), qui fait un angle θ avec l'axe de propagation. Cet angle est appelé angle de divergence en champ lointain et vaut :

$$\theta_K = \frac{M_K^2\lambda}{\pi n W_{oK}}\ K = X \text{ ou } Y \tag{III.13}$$

L'éclairement $I(X,Y,Z,t)$ correspondant à une telle onde se calcule à partir des équations (I.18) et (III.10) :

$$I(X,Y,Z,t) = \frac{1}{2}n\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}\left|E(X,Y,Z,t)\right|^2 = I(0,0,Z,t).e^{-2\frac{X^2}{W_X^2(Z)}}.e^{-2\frac{Y^2}{W_Y^2(Z)}} \tag{III.14}$$

avec :

$$I\left(0,0,Z,t\right)=\frac{1}{2}n\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}\left|E_o\left(t\right)\right|^2.\frac{W_{oX}W_{oY}}{W_X\left(Z\right)W_Y\left(Z\right)} \tag{III.15}$$

Les rayons $W_X\left(Z\right)$ et $W_Y\left(Z\right)$, ainsi que leurs valeurs minimales en $Z=0$, W_{oX} et W_{oY}, sont donc définis comme les demi-largeurs à $1/e^2$ du maximum vis-à-vis de l'éclairement. $I\left(0,0,Z,t\right)$ est l'éclairement au centre du faisceau, où $X=Y=0$. La puissance instantanée est l'intégrale de l'éclairement $I\left(X,Y,Z,t\right)$ sur la section transverse du faisceau :

$$p\left(t,Z\right)=\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}I\left(X,Y,Z,t\right)dXdY \tag{III.16}$$

L'intégration de l'expression (III.14) donne :

$$p\left(t,Z\right)=\frac{\pi}{2}W_X\left(Z\right)W_Y\left(Z\right)I\left(0,0,Z,t\right) \tag{III.17}$$

A partir de l'expression précédente et de (III.15), la puissance instantanée s'écrit indépendamment de la cote Z :

$$p\left(t\right)=\frac{\pi}{2}W_{oX}W_{oY}I_o\left(t\right) \tag{III.18}$$

avec :

$$I_o\left(t\right)=\frac{1}{2}n\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}\left|E_o\left(t\right)\right|^2 \tag{III.19}$$

L'évolution temporelle du faisceau est décrite par l'éclairement $I_o\left(t\right)$ en $X=Y=Z=0$; pour un faisceau gaussien, celui-ci s'écrit :

$$I_o\left(t\right)=I_o.e^{-2\frac{t^2}{(\tau/2)^2}} \tag{III.20}$$

τ est la durée totale de l'impulsion, prise à $1/e^2$ vis-à-vis de l'éclairement ; I_o est l'éclairement au centre de l'impulsion, à $t=0$. L'énergie par impulsion s'obtient en intégrant temporellement la puissance instantanée, soit d'après (III.18) et (III.20) :

$$\xi=\int_{-\infty}^{+\infty}p\left(t\right)dt=\left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2}\frac{\tau}{2}W_{oX}W_{oY}I_o \tag{III.21}$$

La puissance crête, définie comme la puissance au centre de l'impulsion, est couramment utilisée. En imposant $t=0$ dans (III.18) et (III.20), la puissance crête, notée P_c s'écrit :

$$P_c=p\left(0\right)=\frac{\pi}{2}W_{oX}W_{oY}I_o \tag{III.22}$$

A partir de (III.21), la puissance crête s'exprime en fonction de l'énergie par impulsion de la manière suivante :

$$P_c = \frac{\xi}{\frac{\tau}{2}\sqrt{\frac{\pi}{2}}} \tag{III.23}$$

L'expression (III.21) montre que la connaissance des propriétés spatiales et temporelles d'un faisceau est donc nécessaire pour calculer l'éclairement correspondant à une énergie mesurée. Une méthode de caractérisation temporelle, adaptée au régime sub-nanoseconde, est détaillé dans la partie III.2.2. Les caractéristiques spatiales sont facilement mesurables pour des faisceaux dont la longueur d'onde est comprise dans la bande spectrale d'utilisation des caméras à matrice Silicium ($400-1100\ nm$) ; cette technique sera utilisée pour caractériser le faisceau de pompe à $\lambda_p = 1064\ nm$, alors qu'une méthode alternative a été mise en oeuvre pour le faisceau généré à $\lambda_s = 1665\ nm$.

III.2.2 Caractérisation temporelle

La méthode "tout-optique" de corrélation du second ordre est particulièrement bien adaptée à la caractérisation temporelle en régime sub-nanoseconde [58]. Dans le cas d'un autocorrélateur, le faisceau généré est séparé spatialement sur deux bras par une lame séparatrice ; les deux faisceaux sont ensuite recombinés dans un cristal non linéaire pour effectuer une génération de second harmonique. Un retard variable est appliqué sur un des deux bras et l'énergie générée par l'interaction quadratique est tracée en fonction du retard. Le schéma du dispositif est donné sur la figure III.5.

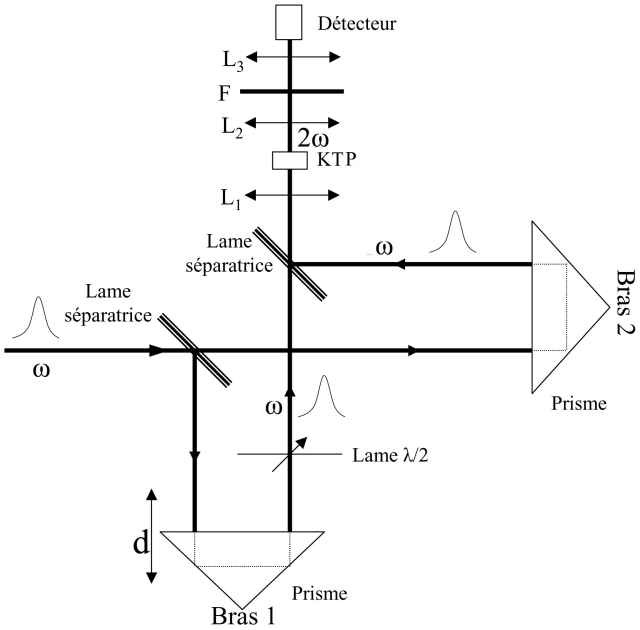


FIG. III.5 – *Schéma de principe d'un autocorrélateur de second ordre. Le faisceau incident, à la pulsation ω, est séparé spatialement puis recombiné dans un cristal non linéaire pour réaliser la SHG de type II dans KTP. d est le déplacement du prisme.*

La lame $\lambda/2$ placée sur le bras 2 permet d'obtenir deux faisceaux, issus des deux bras, dont les polarisations sont orthogonales. Dans notre cas, l'interaction réalisée est la SHG de type II, $1665\ nm^{+} + 1665\ nm^{-} \rightarrow 832,5\ nm^{-}$. KTP admet pour ce processus une direction d'accord de phase à $\theta = 52^{o}$ dans le plan (xOz), couplé à un coefficient effectif non nul. Les deux faisceaux recombinés sont focalisés par la lentille L_1 dans le cristal de KTP de 2 mm de long. Après la lentille de reprise L_2, l'onde à 1665 nm est absorbée par le filtre F, puis le faisceau généré à $832,5\ nm$ est focalisé par la lentille L_3 dans le détecteur. Un déplacement d du prisme du bras 2 permet d'appliquer un retard α égal à $2d/c$, où d est le déplacement du prisme et c la vitesse de la lumière.

Ecrivons les amplitudes complexes des champs électromagnétiques issus des deux bras de la manière suivante :

$$\begin{cases} E_1^{\omega}(t) = E^{\omega}(t).e^{j(\omega t+\phi)} \\ E_2^{\omega}(t) = E^{\omega}(t-\alpha).e^{j(\omega(t-\alpha)+\phi(t-\alpha))} \end{cases} \tag{III.24}$$

E_1^{ω} et E_2^{ω} sont les amplitudes complexes des champs électromagnétiques des bras fixe et mobile respectivement. ω est la pulsation de l'onde, ϕ est la phase initiale du champ. Dans l'approximation de la pompe non dépeuplée, l'intégration du système d'équations couplées (I.34) correspondant à la SHG de type II, $\omega^{+} + \omega^{-} \rightarrow 2\omega^{-}$, en accord de phase et en négligeant la dispersion des vitesses de groupe, montre que le champ électromagnétique à 2ω, $E^{2\omega}$, créé dans un cristal de longueur L, est proportionnel aux deux champs incidents :

$$E^{2\omega}(t) = j.\frac{2\pi}{n(2\omega)\lambda}.\chi_{eff}^{(2)}.E_1^{\omega}(t).E_2^{\omega}(t)\,L \tag{III.25}$$

$\chi_{eff}^{(2)}$ est le coefficient effectif du processus de SHG, $n(2\omega)$ est l'indice de réfraction à la longueur d'onde générée. En prenant le module au carré de l'expression précédente, et d'après (III.24), le champ $E^{2\omega}$ s'écrit :

$$\left|E^{2\omega}(t)\right|^2 = \left(\frac{2\pi\chi_{eff}^{(2)}L}{n(2\omega)\lambda}\right)^2.\left|E^{\omega}(t)\right|^2.\left|E^{\omega}(t-\alpha)\right|^2 \tag{III.26}$$

D'après (III.18) et (III.19), la relation (III.26) peut être réécrite vis-à-vis des puissances instantanées. En considérant des ondes planes, il vient :

$$p_{2\omega}(t) = \beta_{auto}.p_{\omega}(t).p_{\omega}(t-\alpha) \tag{III.27}$$

avec :

$$\beta_{auto} = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}.h(\rho).\left(\frac{\chi_{eff}^{(2)}L}{\lambda/2}\right)^2.\left(\frac{W_{2\omega}}{W_{\omega}^2}\right)^2.\frac{4\pi}{n^2(\omega)\,n(2\omega)} \tag{III.28}$$

W_{ω} et $W_{2\omega}$ sont les rayons à $1/e^2$ des faisceaux à ω et 2ω respectivement, tels que

$W_{2\omega} = W_\omega\sqrt{2}$; $h(\rho)$ est la fonction d'atténuation due aux angles de réfraction ρ des ondes en interaction, l'angle ρ étant donné par (III.4) [59]. D'après (III.21), l'énergie de second harmonique générée par autocorrélation, ξ_{auto}, est l'intégrale temporelle de la puissance instantanée :

$$\xi_{auto}(\alpha) = \beta_{auto}\int_{-\infty}^{+\infty} p_\omega(t)\, p_\omega(t-\alpha)\, dt \tag{III.29}$$

L'énergie générée est donc proportionnelle à la fonction d'autocorrélation du second ordre, elle est maximale pour un retard nul, $\alpha = 0$, correspondant à un parfait recouvrement des impulsions issues des deux bras. La mesure de l'énergie de second harmonique en fonction du retard α permet de déterminer la largeur d'impulsion, à condition bien sûr d'émettre une hypothèse au préalable sur le type de profil temporel. Dans le cas d'un profil temporel gaussien, la puissance instantanée s'écrit :

$$p_\omega(t) = P_c^\omega . e^{-\frac{t^2}{(\tau_\omega/2)^2}} \tag{III.30}$$

où τ_ω est la durée totale de l'impulsion prise à $1/e^2$. La fonction d'autocorrélation présente alors une forme gaussienne, représentée sur la figure III.6, de largeur τ_a prise à $1/e^2$. A partir de (III.29) et (III.30), τ_ω et τ_a sont liés par :

$$\tau_\omega = \frac{\tau_a}{\sqrt{2}} \tag{III.31}$$

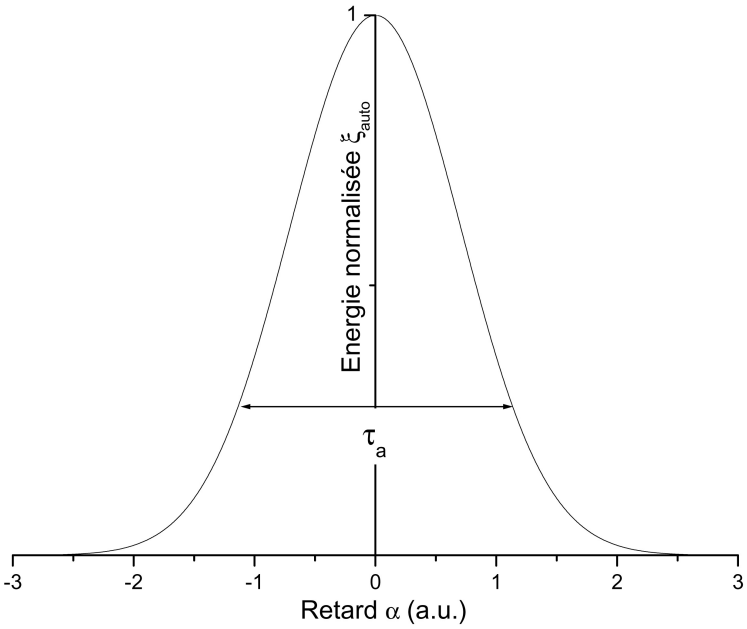


FIG. III.6 – *Fonction d'autocorrélation obtenue dans le cas d'une impulsion gaussienne de largeur τ_ω ; la courbe obtenue est gaussienne de largeur $\tau_a = \tau_\omega\sqrt{2}$.*

Une variante de la mesure de la durée d'impulsion par autocorrélation consiste à étudier la fonction de corrélation entre l'impulsion dont les caractéristiques temporelles

sont à déterminer et une impulsion connue. Cette méthode a été utilisée pour confirmer les mesures effectuées par autocorrélation. Le faisceau à $\lambda_s = 1665\ nm$ issu de l'OPO est mis en coïncidence spatiale avec le faisceau de pompe à $\lambda_{ref} = 532\ nm$ dans un cristal de $KTiOAsO_4$ (KTA) réalisant la différence de fréquence $\lambda_{ref}^- - \lambda_s^- \rightarrow \lambda_g^+$, avec $\lambda_g = 782\ nm$, dans la direction d'accord de phase ($\theta = 58,9^o$, $\varphi = 0^o$). La figure III.7 montre le dispositif expérimental permettant de faire varier le retard entre les deux faisceaux par le déplacement du prisme. Les lames $\lambda/2$ permettent de régler la polarisation des ondes à 532 nm et 1665 nm selon l'axe (Oy) de KTA.

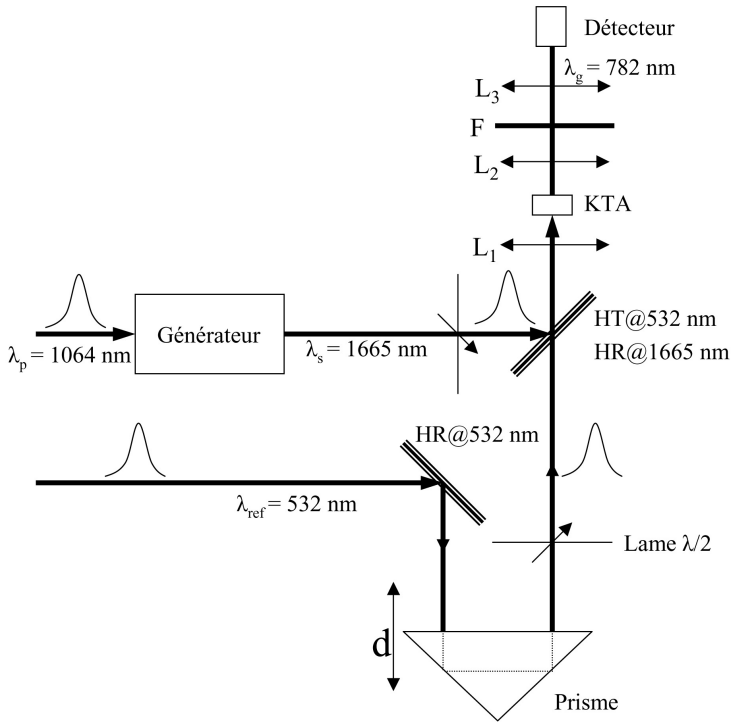


FIG. III.7 – *Schéma de principe d'un corrélateur de second ordre. L'impulsion à la longueur d'onde λ_s est mise en coïncidence avec une impulsion de référence à λ_{ref}.*

En suivant la même démarche de calcul que pour l'autocorrélation, l'énergie générée ξ_{co} par le processus de différence de fréquence $\omega_{ref} - \omega_s \rightarrow \omega_g$ est proportionnel à la fonction de corrélation du second ordre :

$$\xi_{co}(\alpha) = \beta_{co} \int_{-\infty}^{+\infty} p_{ref}(t)\, p_s(t-\alpha)\, dt \tag{III.32}$$

avec :

$$\beta_{co} = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}.h(\rho).\left(\frac{\chi_{eff}^{(2)} L}{\lambda_g}\right)^2.\left(\frac{W_g}{W_{ref} W_s}\right)^2.\frac{4\pi}{n(\omega_{ref})\, n(\omega_s)\, n(\omega_g)} \tag{III.33}$$

L est la longueur du cristal utilisé, $n(\omega_i)$ est l'indice de réfraction à λ_i et W_i est le rayon à $1/e^2$ du faisceau à λ_i, avec $W_g^{-2} = W_{ref}^{-2} + W_s^{-2}$. En connaissant le profil temporel de l'impulsion à λ_{ref} , $p_{ref}(t)$, et en émettant une hypothèse sur celui à λ_s, $p_s(t)$, cette

technique permet de déterminer la largeur de l'impulsion à λ_s, soit, dans le cas d'un faisceau gaussien :

$$\tau_s = \sqrt{\tau_c^2 - \tau_{ref}^2} \tag{III.34}$$

où τ_c est la largeur totale de la fonction de corrélation prise à $1/e^2$. Dans notre cas, $\lambda_{ref} = 532\ nm$, $\lambda_s = 1665\ nm$, et $\lambda_g = 782\ nm$.

III.2.3 Caractérisation spatiale

Le faisceau à $\lambda_s = 1665\ nm$ ne peut être caractérisé directement par une caméra silicium car celle-ci ne fonctionne pas au-delà de 1100 nm. L'alternative proposée ici consiste à imager le second harmonique du faisceau, à $\lambda_s/2$, à l'aide d'une caméra silicium [60]. Le schéma d'un tel dispositif est donné sur la figure III.8. Le faisceau fondamental est focalisé par L_1 dans un cristal non linéaire placé au col du faisceau. Le filtre F permet de transmettre uniquement le second harmonique qui, après une lentille de reprise L_2, est focalisé sur la caméra. Les profils transverses obtenus à différentes cotes Z sont alors modélisés par une gaussienne pour déterminer les rayons $W(Z)$ à chaque cote. Ceux-ci sont reportés sur une courbe en fonction de la cote Z, qui est ensuite interpolée par l'équation (III.11), afin de déterminer le rayon au col $W_{2\omega}$, ainsi que le facteur de qualité $M_{2\omega}^2$ du second harmonique. L'interpolation doit être réalisée dans les deux directions présentant des rayons extrêmes si le faisceau est astigmate.

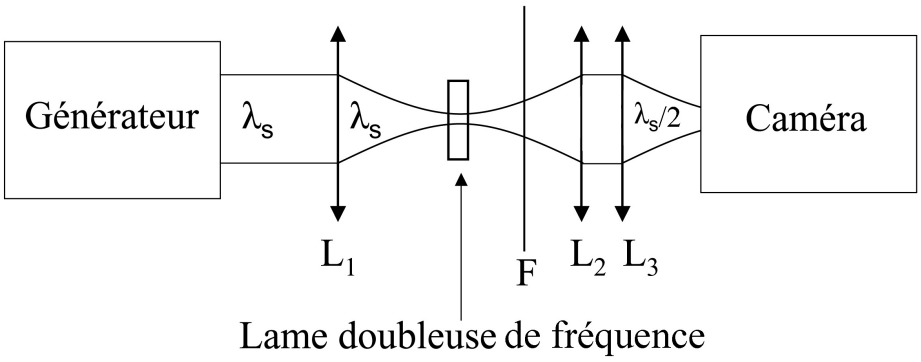


FIG. III.8 – *Principe de la caractérisation spatiale par imagerie du second harmonique.*

Il est alors possible d'en déduire les propriétés spatiales du faisceau fondamental. Dans l'hypothèse d'une génération de second harmonique purement colinéaire, les divergences en champ lointain du faisceau fondamental et de son second harmonique sont identiques, c'est à dire d'après (III.13) :

$$\frac{M_{2\omega}^2 \lambda/2}{\pi n W_{2\omega}} = \frac{M_\omega^2 \lambda}{\pi n W_\omega} \tag{III.35}$$

D'autre part, l'éclairement de second harmonique dépendant du carré de l'éclairement du fondamental, les rayons au col W_ω et$W_{2\omega}$ des ondes fondamentale et harmonique sont liés par :

$$W_{2\omega} = \frac{W_\omega}{\sqrt{2}} \tag{III.36}$$

Enfin, d'après (III.35) et (III.36), les facteurs de qualité sont reliés par :

$$M^2_{2\omega} = M^2_\omega \sqrt{2} \tag{III.37}$$

Plusieurs précautions doivent être prises pour que cette méthode soit fiable. Tout d'abord, il est préférable que l'onde de second harmonique ne présente pas de double réfraction afin de ne pas subir de déformations dans le plan transverse. Ensuite, la longueur du cristal doit être inférieure au double de la longueur de Rayleigh du faisceau fondamental à l'étude, afin que le modèle d'onde plane s'applique et que l'hypothèse d'un doublage de fréquence colinéaire soit valide. Enfin, le rendement de SHG doit être faible, typiquement inférieur à 5 %, pour que la dépletion de la pompe soit faible et n'engendre pas de déformation du profil transverse. Nous avons alors utilisé un cristal de KTP de 2 mm, réalisant une SHG de type II à 1665 nm.

III.3 Les différentes configurations étudiées pour la génération à 1665 nm

III.3.1 OPO avec un coefficient de couplage fort

III.3.1.1 Dispositif expérimental

Le premier dispositif utilisé est un OPO conventionnel avec un couplage fort, $R^s_s = 88\%$, et un recyclage de pompe total, $R^s_p = 100\%$. La figure III.9 montre le dispositif expérimental utilisé.

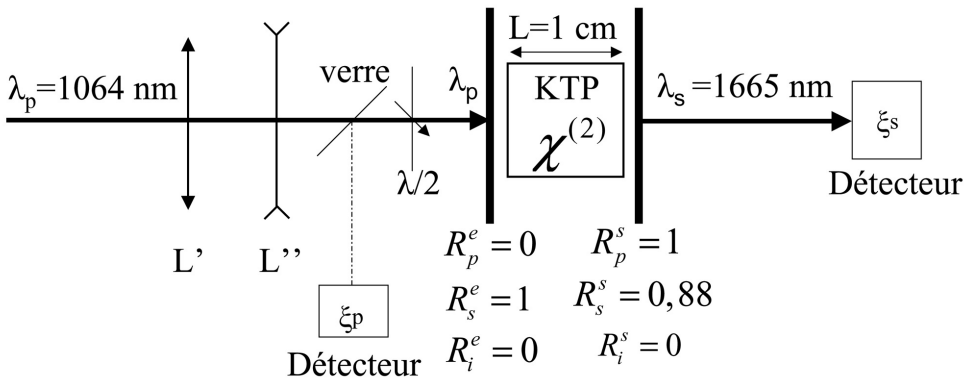


FIG. III.9 – *Dispositif expérimental de l'OPO à couplage fort avec recyclage de pompe.*

Les lentilles L' et L'' sont respectivement convergente et divergente : elles constituent un télescope afin d'obtenir un faisceau de pompe, à $\lambda_p = 1064\ nm$, parallèle, de rayon $W_p = 1,4\ mm$, mesuré directement à l'aide d'une caméra silicium. La lame $\lambda/2$ permet de régler la polarisation de l'onde pompe selon l'axe (Oy) du cristal de KTP. L'énergie du faisceau de pompe, notée ξ_p, est controlée par une référence calibrée réalisée par l'intermédiaire d'une fine lame de verre. L'énergie générée ξ_p est mesurée par un détecteur pyroélectrique en sortie du dispositif. Enfin, le cristal utilisé est un KTP de 1 cm de long, produit par la société Cristal Laser SA. La longueur optique de la cavité est de $2,1\ cm$.

III.3.1.2 Résultats expérimentaux

III.3.1.2.1 Caractérisation énergétique

La courbe III.10 représente l'énergie générée à $\lambda_s = 1665\ nm$ en fonction de l'énergie incidente à $\lambda_p = 1064\ nm$. Elle montre bien l'existence d'un seuil, symptomatique d'un comportement oscillatoire du dispositif. Le seuil, ainsi que le rendement différentiel sont déduits par régression linéaire des points expérimentaux de la partie linéaire. Le seuil d'oscillation est estimé à $\xi_p^{seuil} = 23\ mJ$ et le rendement différentiel à 1%.

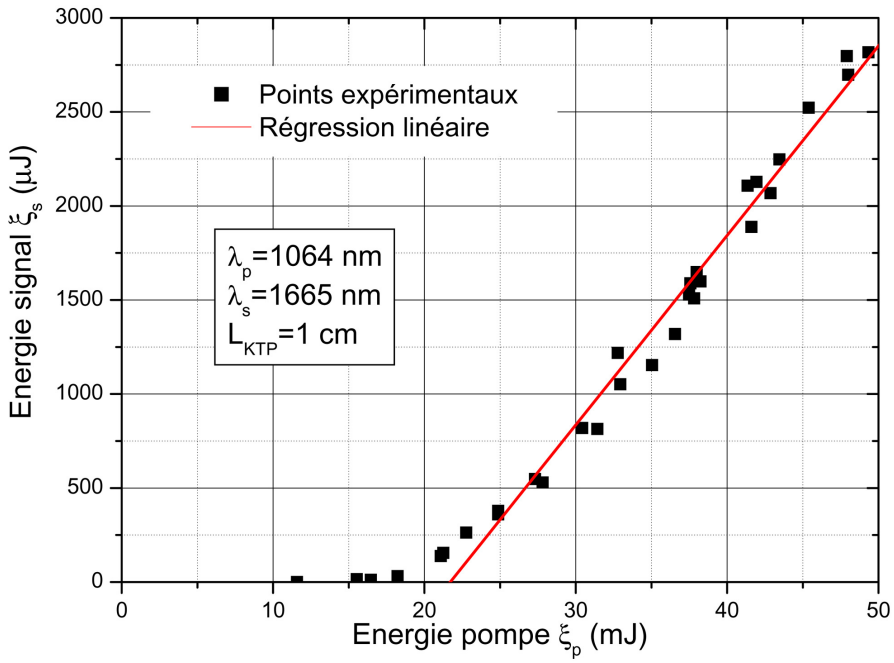


FIG. III.10 – *Courbe de gain de l'OPO à couplage fort avec recyclage de pompe total.*

A partir des données spatiales et temporelles du faisceau de pompe, il est intéressant de calculer l'éclairement de pompe seuil. Pour une durée de l'impulsion de pompe égale à 150 ps et un rayon de $1,4\ mm$, l'éclairement seuil I_p^{seuil} correspondant à l'énergie ξ_p^{seuil} vaut $7,9\ GW/cm^2$. Cette valeur est à comparer à la valeur calculée à partir de l'équation (III.7), qui est égale à $5,9\ GW/cm^2$. Les valeurs expérimentales et théoriques sont très proches, ce qui valide le modèle de Byer et Brosnan dans un régime temporel où la longueur

de l'impulsion pompe, $\tau_p = 150\ ps$, est très proche de la durée de vie du photon dans la cavité, $\tau_c = 1,2\ ns$, calculée à partir de (III.9). Cette validation va permettre de prévoir à priori la possibilité de faire osciller l'OPO avec des paramètres différents.

III.3.1.2.2 Caractérisation temporelle

La mesure de la durée d'impulsion par la méthode décrite dans la partie (III.2.2) a été tentée. Elle n'a malheureusement pas permis de conclure avec certitude, car la courbe d'autocorrélation obtenue ne présente pas un maximum prononcé, et possède une largeur caractéristique de l'ordre de plusieurs nanosecondes. La validité de l'expérience réalisée est d'autant plus compromise que l'alignement de la ligne à retard ne peut pas être assuré correctement sur une distance équivalente à une telle durée d'impulsion, de l'ordre de la dizaine de centimètres. L'impulsion obtenue serait donc la résultante d'un grand nombre de rebonds de l'impulsion générée, l'amplitude des rebonds successifs allant en décroissant et s'étalant sur la durée de vie du photon, ce qui sera vérifié par la suite. Cette situation n'est donc pas optimale vis-à-vis de l'expérience de génération de triplets de photons, pour laquelle l'impulsion de pompe, à $\lambda_0 = 532\ nm$, à une durée $\tau_0 = \tau_p/\sqrt{2}$, soit 106 ps. Dans ce cas, seule une faible proportion de l'énergie d'injection, à $\lambda_s = 1665\ nm$, contribuerait à l'interaction non linéaire. L'objectif est donc de pouvoir disposer d'une impulsion à 1665 nm avec une durée d'impulsion la plus proche possible de 106 ps.

III.3.1.3 Conclusion

Cette première expérience a permis de montrer la faisabilité d'un OPO en régime sub-nanoseconde. Par contre, la durée d'impulsion est loin d'être satisfaisante vis-à-vis de notre objectif qui est la génération de triplets de photons. Notre stratégie d'amélioration a alors consisté à diminuer la durée de vie du photon dans la cavité, de façon à diminuer le nombre de rebonds de l'impulsion à λ_s.

III.3.2 OPO avec un coefficient de couplage faible

III.3.2.1 Dispositif expérimental

Les figures III.2 et III.3 montrent que si le coefficient de couplage R_s^s est divisé par deux, le seuil passe à $6,3\ GW/cm^2$, soit une augmentation de 7,8%, alors que la durée de vie du photon est divisée par un facteur 6, et est alors égale à 180 ps. C'est cette configuration qui est considérée dans un premier temps. Le dispositif expérimental utilisé est le même que celui utilisé dans l'expérience précédente (figure III.9), à l'exception de la valeur du coefficient de couplage qui est maintenant $R_s^s = 44\%$, le recyclage de pompe restant total.

III.3.2.2 Résultats expérimentaux

III.3.2.2.1 Caractérisation énergétique

La courbe de gain correspondant à l'OPO à couplage faible est donnée sur la figure III.11. Les points expérimentaux ainsi que la régression linéaire dans le cas du couplage fort sont également représentés pour faciliter la comparaison. Le seuil est atteint dans le cas du couplage faible pour une énergie de pompe égale à $35,7\ mJ$, correspondant à un éclairement $I_p^{seuil} = 12,3\ GW/cm^2$; cette valeur est à comparer avec celle donnée par l'équation (III.7), soit $6,3\ GW/cm^2$. L'augmentation du seuil entre les deux configurations est plus importante qu'elle n'est prévue par le modèle de Byer et Brosnan. Le rendement différentiel vaut $0,5\ \%$: il est divisé par deux par rapport à la configuration précédente. La conséquence directe est une perte d'énergie générée pour une même énergie de pompe : $\xi_s = 2,9\ mJ$ pour $\xi_p = 50\ mJ$ dans le cas d'un OPO à couplage fort, alors que $\xi_s = 0,85\ mJ$ pour un OPO à couplage faible.

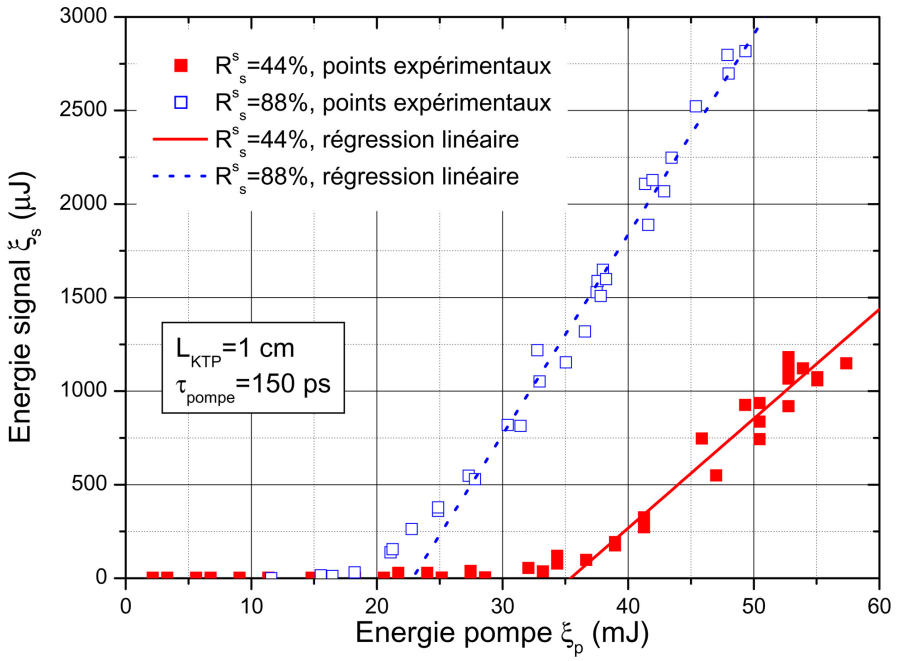


FIG. III.11 – *Courbe de gain de l'OPO à couplage faible avec recyclage de pompe et comparaison avec l'OPO à couplage fort.*

III.3.2.2.2 Caractérisation temporelle

Contrairement au cas de l'OPO à couplage fort, les courbes d'autocorrélation et de corrélation sont exploitables, indiquant ainsi que la durée d'impulsion est plus courte que dans le cas d'un OPO à couplage fort. Elles sont représentées sur la figure III.12.

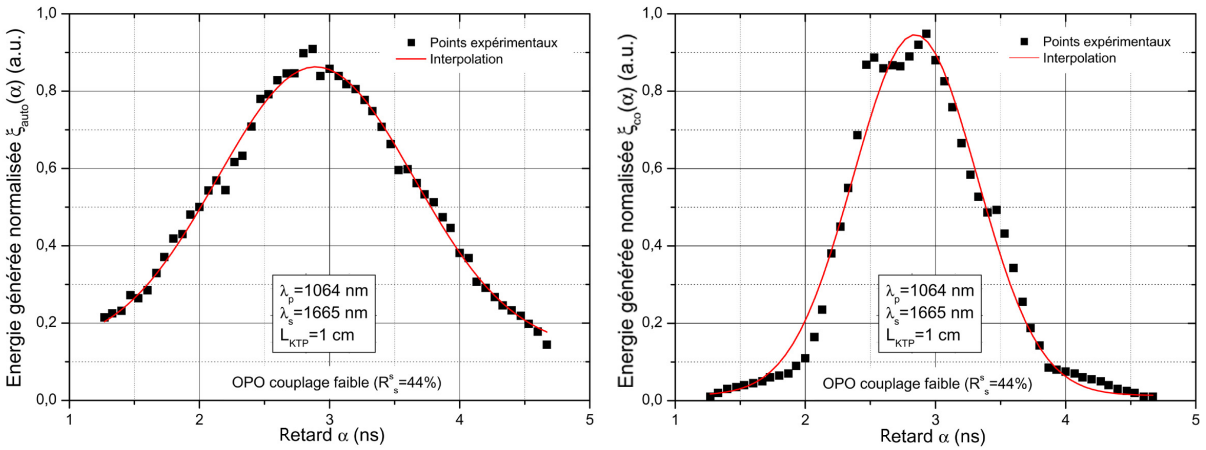


FIG. III.12 – *Courbes d'autocorrélation (gauche) et de corrélation (droite) dans le cas de l'OPO à couplage faible.*

En considérant des impulsions gaussiennes, les largeurs totales des fonction d'autocorrélation et de corrélation, $\tau_a = 1,5\ ns$ et $\tau_c = 950\ ps$, conduisent à $\tau_s = 1060\ ps$ et $\tau_s = 944\ ps$, d'après (III.31), (III.34) et en prenant $\tau_{ref} = 106\ ps$. Les deux valeurs obtenues sont proches et permettent de conclure que la largeur totale de l'impulsion générée est d'environ 1 ns dans l'hypothèse d'une impulsion gaussienne. La figure III.13 montre la comparaison d'une telle impulsion avec l'impulsion à 532 nm, celle-là même qui sera utilisée pour la génération de triplets de photons : le recouvrement temporel n'est évidemment pas satisfaisant et une majeure partie de l'énergie d'injection ne participera donc pas au processus de génération de triplets de photons.

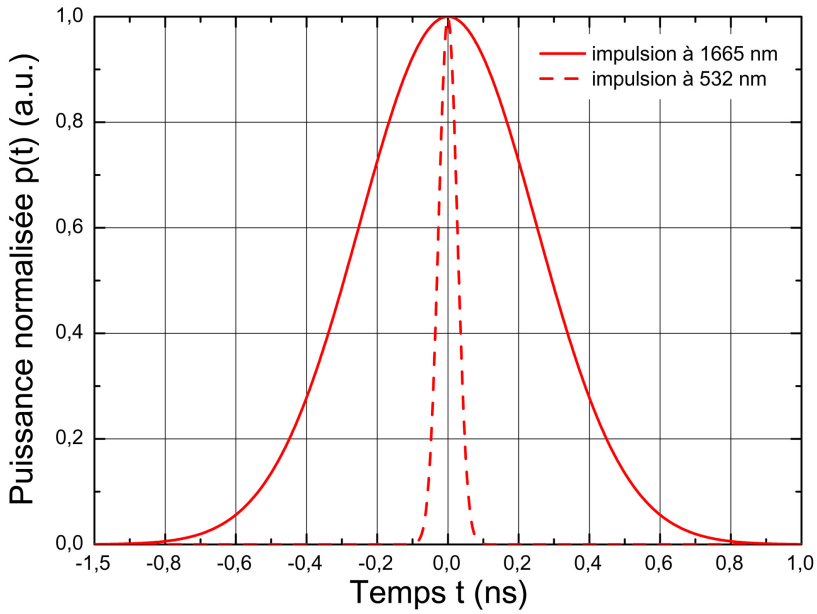


FIG. III.13 – *Tracé théorique de l'impulsion générée par l'OPO à couplage faible ; comparaison avec l'impulsion à 532 nm. Les puissances crêtes des deux impulsions sont normées à l'unité.*

III.3.2.3 Stratégie d'amélioration du dispositif

Le dispositif étudié n'a pas permis de résoudre le problème de la durée de l'impulsion générée : celle-ci est encore beaucoup trop grande par rapport à la durée de l'impulsion du faisceau à λ_0 utilisé dans le cadre de la génération de triplets de photons. De plus, l'énergie maximale générée est plus faible que dans le cas d'un OPO à couplage fort.

La solution proposée alors est de concevoir un dispositif à deux étages. Le premier étage est constitué d'un OPO à couplage fort, avec un recyclage de pompe partiel permettant de disposer en sortie de l'OPO d'une partie de l'énergie de pompe. Le second étage est un Amplificateur Paramétrique Optique (OPA) qui amplifie l'impulsion signal générée par l'OPO grâce à l'énergie de pompe sortant de l'OPO : l'OPA est constitué de deux cristaux de KTP orientés dans la même direction que le cristal inséré dans la cavité.

III.3.3 OPO à recyclage de pompe partiel suivi d'un OPA

III.3.3.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est représenté sur la figure III.14. Les trois cristaux de KTP nous ont été fournis gracieusement par la société Cristal Laser SA. Le filtre F' permet d'absorber l'énergie de pompe en sortie du dispositif tout en transmettant la longueur d'onde signal. Le miroir de sortie de l'OPO possède les caractéristiques suivantes : $R_s^s = 88\%$, ce qui assure un couplage fort, et $R_p^s = \delta = 18\%$, permettant de réaliser un recyclage de pompe partiel et de disposer d'une énergie de pompe suffisante pour réaliser l'OPA. L'éclairement seuil théorique, calculé à partir de l'expression (III.7), vaut dans ces conditions $I_p^{seuil} = 16,8\ GW/cm^2$. Conformément aux deux expériences précédentes, l'éclairement seuil expérimental devrait être plus élevé que celui prédit par le modèle.

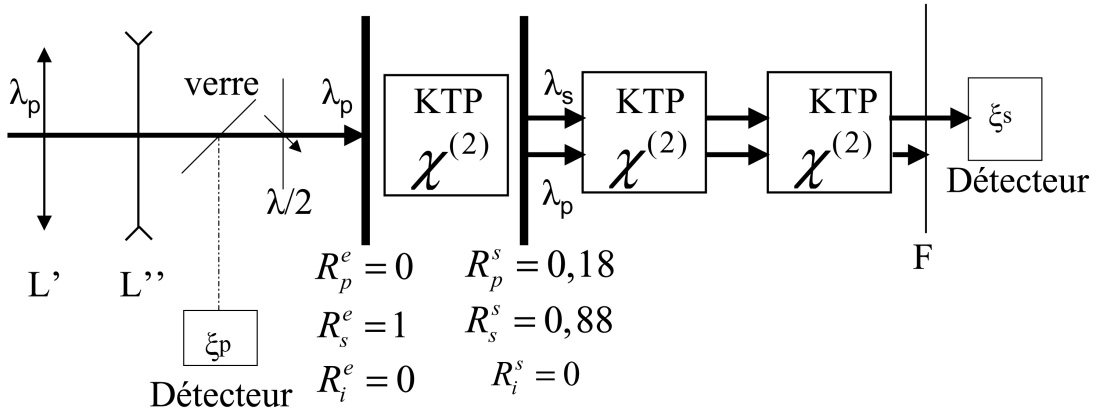


FIG. III.14 – *Dispositif expérimental de l'OPO à couplage fort et à recyclage de pompe partiel suivi d'un OPA.*

III.3.3.2 Résultats expérimentaux

III.3.3.2.1 Caractérisation énergétique

Le seuil d'oscillation de l'OPO seul est atteint pour une énergie de pompe égale à $74,6\ mJ$ correspondant à un éclairement $I_p^{seuil} = 25,7\ GW/cm^2$: cette valeur est sensiblement plus élevée que la valeur prévue par le modèle de Byer et Brosnan. La courbe de gain de l'OPO, tracée sur la figure III.15, montre que le seuil est franchi, mais la limite que nous avons fixée pour ne pas détériorer le cristal ne permet pas d'avoir une énergie importante : un maximum de 300 μJ est généré dans ces conditions. L'ajout des deux cristaux de KTP constituant l'OPA permet d'obtenir 2 mJ en sortie du dispositif.

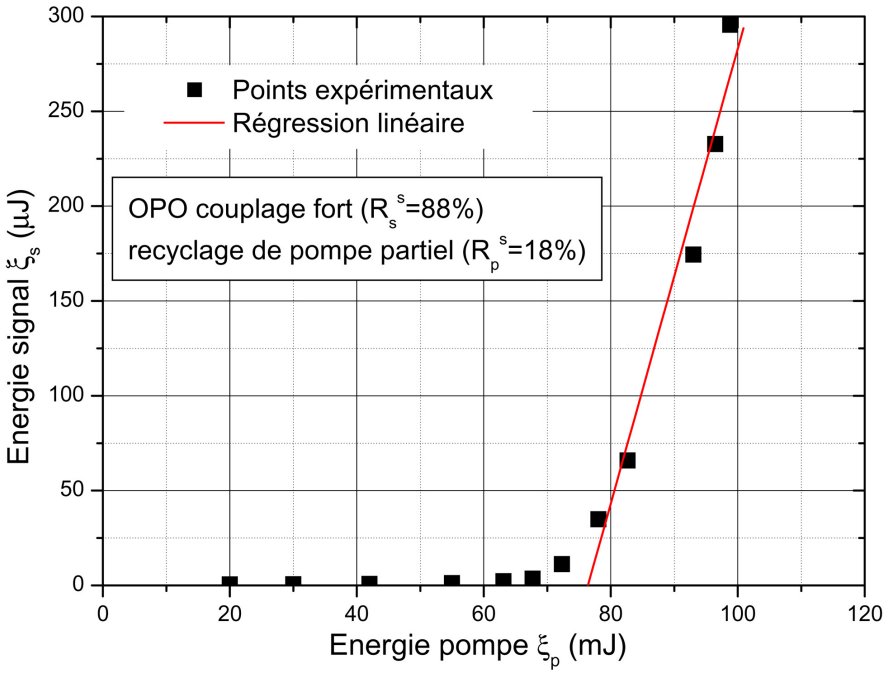


FIG. III.15 – *Courbe de gain de l'OPO seul à couplage fort et à recyclage de pompe partiel.*

III.3.3.2.2 Caractérisation temporelle

La caractérisation temporelle du faisceau généré en sortie du dispositif global, OPO+OPA, a été réalisée en traçant la courbe de corrélation du faisceau signal avec le faisceau à $\lambda_0 = 532\ nm$; la courbe obtenue est représentée sur la figure III.16. Le tracé de la courbe d'autocorrélation n'a pas été jugé nécessaire car l'expérience précédente à validé la méthode utilisée, et une seule courbe suffit à déterminer la durée de l'impulsion générée.

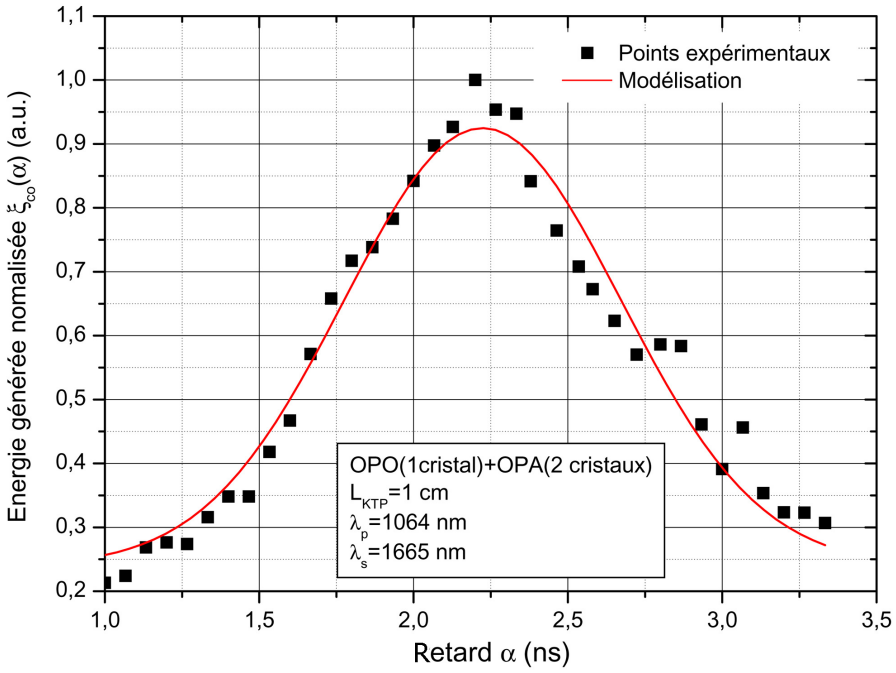


FIG. III.16 – *Courbe de corrélation dans le cas de l'OPO suivi de l'OPA.*

La modélisation de la courbe de corrélation est effectuée, l'ajustement aboutissant à une largeur $\tau_c = 897\ ps$; la courbe théorique correspondante est tracée sur la figure III.16. Cette valeur permet de déterminer la durée totale de l'impulsion générée, soit d'après (III.34), $\tau_s = 890\ ps$. L'impulsion générée est donc plus courte que dans la configuration précédente, où $\tau_s = 1\ ns$

III.3.3.3 Interprétation

Même si le dispositif constitué de 2 étages permet d'obtenir une impulsion de durée plus petite que pour les tentatives précédentes, celle-ci reste beaucoup trop grande par rapport à la durée de l'impulsion à 532 nm. Il est donc nécessaire de diminuer encore la durée de vie du photon dans la cavité.

III.3.4 3 cristaux seuls

III.3.4.1 Dispositif expérimental

Nous avons alors décidé dans une ultime étape de nous affranchir des miroirs de la cavité afin de diminuer encore le temps de vie du photon. Le stockage dans la cavité n'étant alors assuré que par le pouvoir réflecteur de Fresnel de KTP, soit 8 % sur chaque face du cristal. Les trois cristaux sont alignés à la suite, avec le minimum d'espace entre eux, comme l'indique la figure III.17.

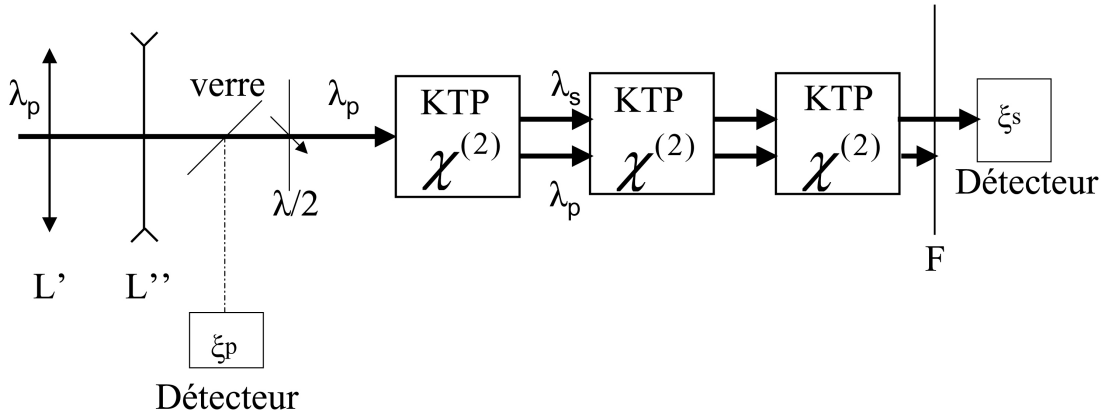


FIG. III.17 – *Dispositif expérimental constitué de trois cristaux de KTP identiques.*

III.3.4.2 Résultats expérimentaux

III.3.4.2.1 Caractérisation énergétique

La figure III.18 représente l'énergie générée à la sortie de deux, puis de trois cristaux, en fonction de l'énergie de pompe. Aucune énergie n'a pu être détectée lorsqu'un seul cristal est en place. Dans les deux cas, les points expérimentaux font clairement apparaître un seuil, symptomatique d'un comportement oscillatoire du système. L'énergie seuil dans le cas de deux cristaux est de 162 mJ, correspondant à un éclairement égal à 56 GW/cm^2. Pour trois cristaux, le seuil vaut 125 mJ, ce qui correspond à un éclairement $I_p^{seuil} = 43\ GW/cm^2$.

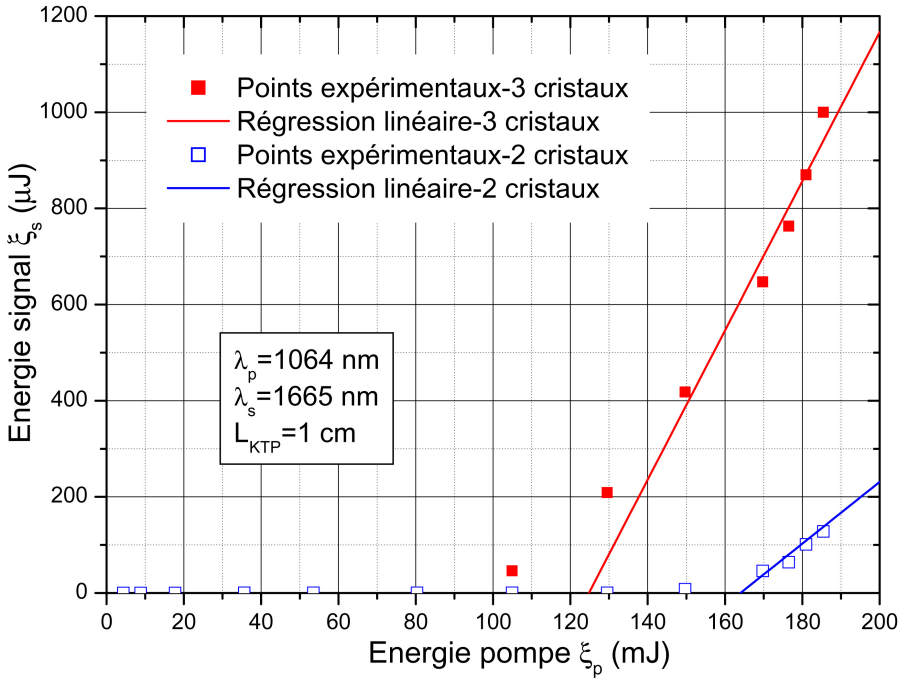


FIG. III.18 – *Energie générée en fonction de l'énergie de pompe pour le dispositif constitué de deux, puis de trois cristaux de KTP.*

Le fonctionnement du dispositif peut alors être expliqué de la manière suivante :

- le premier cristal constitue un Générateur Paramétrique Optique (OPG), avec une énergie générée trop faible pour que notre chaîne de mesure détecte un signal ;
- le second cristal constitue un OPO injecté par l'OPG, présentant un seuil d'oscillation de 56 GW/cm^2 ;
- le troisième cristal constitue également un OPO, présentant un seuil d'oscillation de 43 GW/cm^2, plus faible que pour le deuxième cristal car l'énergie d'injection est plus importante.

Le dispositif permet de générer 1 mJ à 1665 nm pour une énergie de pompe à 1064 nm de 185 mJ. La comparaison avec le modèle des valeurs de seuil obtenues est par contre impossible car le modèle de Byer et Brosnan ne tient pas compte de l'injection.

III.3.4.2.2 Caractérisation temporelle

La courbe d'autocorrélation correspondante à cette configuration est représentée sur la figure III.19. Elle montre un pic central et deux satellites : ce type de courbe est symptomatique de la fonction de corrélation d'un faisceau dont le profil temporel contient plusieurs impulsions. L'hypothèse physique du stockage d'énergie dans la cavité puis de la génération d'impulsions successives est donc validée.

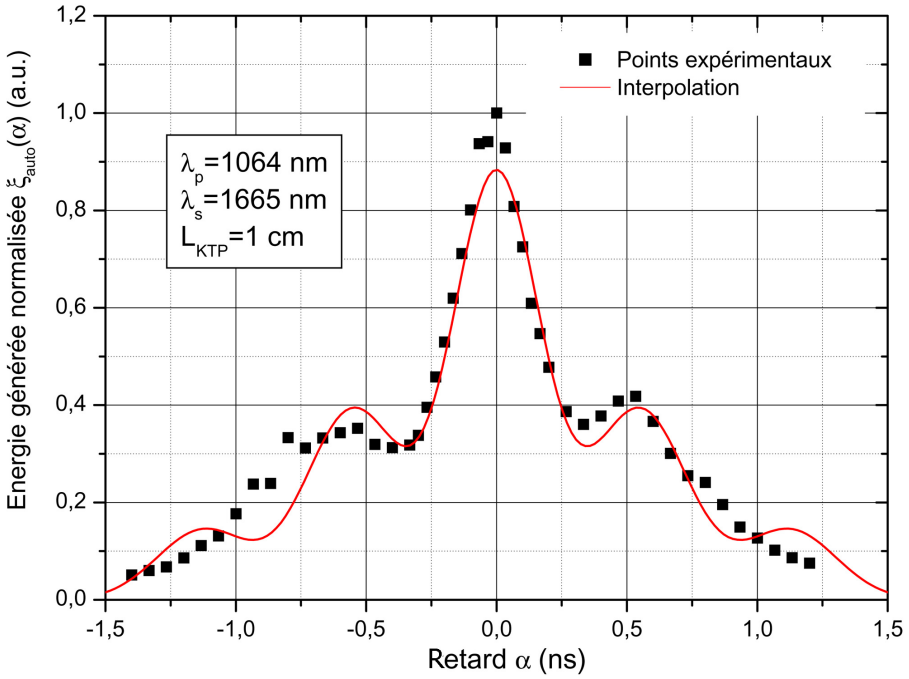


FIG. III.19 – *Courbe d'autocorrélation obtenue dans le cas du dispositif à trois cristaux de KTP.*

L'exploitation de la courbe d'autocorrélation obtenue nécessite l'établissement d'une expression de la puissance instantanée du faisceau généré, décrit comme N impulsions gaussiennes successives, de mêmes durées totales τ_s et séparées d'un temps δ. La puissance instantanée s'écrit alors :

$$p_s(t) = \sum_{k=1}^{N} P_c^k . e^{-2\frac{(t-\delta)^2}{(\tau_s/2)^2}} \tag{III.38}$$

où P_c^k est l'amplitude de la k^{ieme} impulsion. A partir de cette expression et de l'équation (III.29), il est possible d'interpoler la courbe d'autocorrélation, le nombre N d'impulsions considérées étant limité à 3 dans un premier temps. L'interpolation correspondante est tracée sur la figure III.19 : elle correspond bien aux points expérimentaux, ce qui valide le modèle adopté. Elle permet de déterminer les paramètres décrivant l'impulsion générée, τ_s et δ, ainsi que les rapports des amplitudes des trois impulsions considérées :

$$\begin{cases} \tau_s = 230\ ps \\ \delta = 550\ ps \\ P_c^2/P_c^1 = 0,48 \\ P_c^3/P_c^1 = 0,17 \end{cases} \tag{III.39}$$

Les rapports des amplitudes montrent que la prise en considération des impulsions au delà de $N = 3$ n'est pas nécessaire. La puissance instantanée correspondante aux paramètres donnés ci-dessus est tracée sur la figure III.20 ainsi que le profil temporel de l'impulsion à λ_0.

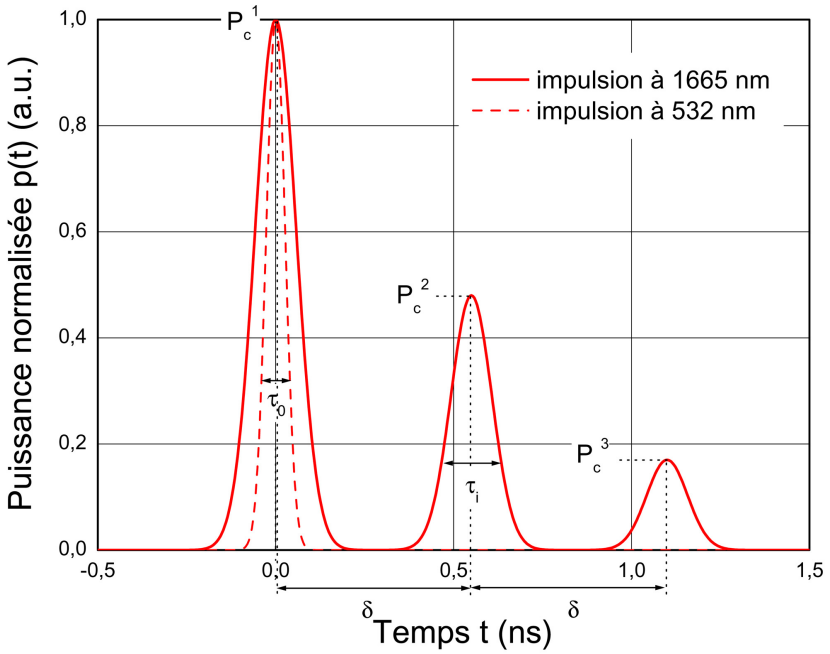


FIG. III.20 – *Profils temporels des faisceaux à 1665 nm et 532 nm ; les puissances crêtes de l'impulsion à 532 nm et de l'impulsion principale à 1665 nm sont normées à l'unité.*

Ce résultat est le meilleur que nous ayons obtenu. C'est donc cette configuration que nous utiliserons pour les expériences de génération de triplets de photons, sachant que seule l'impulsion principale sera mise en coïncidence avec l'impulsion à 532 nm. Les deux

parties suivantes sont consacrées aux caractéristiques spatiales et spectrales du faisceau généré à 1665 nm dans ces conditions.

III.3.4.2.3 Caractérisation spatiale

Avant même de réaliser des mesures de sections transverses du faisceau, la simple visualisation du faisceau par une carte phosphorescente a permis de déceler un fort astigmatisme, avec une divergence en champ lointain beaucoup plus prononcée dans la direction verticale, correspondant à l'axe (Oy) des cristaux de KTP utilisés. L'angle de double réfraction étant faible, cet astigmatisme est majoritairement dû à l'anisotropie de la tolérance angulaire de l'interaction non linéaire : la divergence est plus grande dans la direction verticale car la tolérance angulaire est très grande dans cette direction, de sorte qu'il y a une large distribution angulaire de rayons permettant l'accord de phase. Un télescope (figure III.21) a donc été monté derrière les trois cristaux de KTP : celui-ci a pour but de réduire la divergence dans la direction verticale sans modifier le comportement dans la direction horizontale : il est constitué de deux lentilles cylindriques convergentes, de focales f_{c1} et f_{c2}, agissant dans la direction verticale, et distantes de $f_{c1} + f_{c2}$. La divergence est réduite dans ces conditions d'un facteur f_{c2}/f_{c1}.

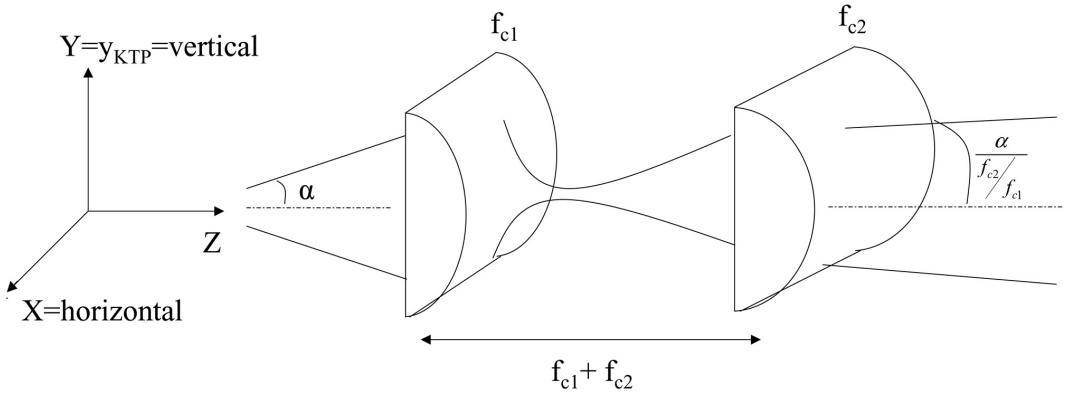


FIG. III.21 – *Télescope utilisé pour réduire la divergence dans une direction sans modifier l'autre direction ; f_{c1} et f_{c2} sont les focales des deux lentilles cylindriques, telles que $f_{c1} < f_{c2}$. (O, X, Y, Z) est le repère du laboratoire, et y_{KTP} est l'axe (Oy) du repère optique de KTP.*

Les deux focales utilisées, $f_{c1} = 50\ mm$ et $f_{c2} = 150\ mm$, sont telles que la divergence est réduite d'un facteur 3 dans la direction verticale. Le faisceau est ensuite caractérisé par la méthode décrite dans la partie III.2.3, en utilisant le dispositif de la figure III.8 d'imagerie par le second harmonique. La figure III.22 montre une section du faisceau transverse à une cote longitudinale donnée ainsi que les profils correspondants dans les deux directions orthogonales. Les rayons dans les deux directions du faisceau de second harmonique en fonction de la cote longitudinale sont représentés sur la figure III.23. Le rayon W_Y correspond à la direction verticale présentant la plus grande divergence, alors que le rayon W_X correspond à la direction horizontale.

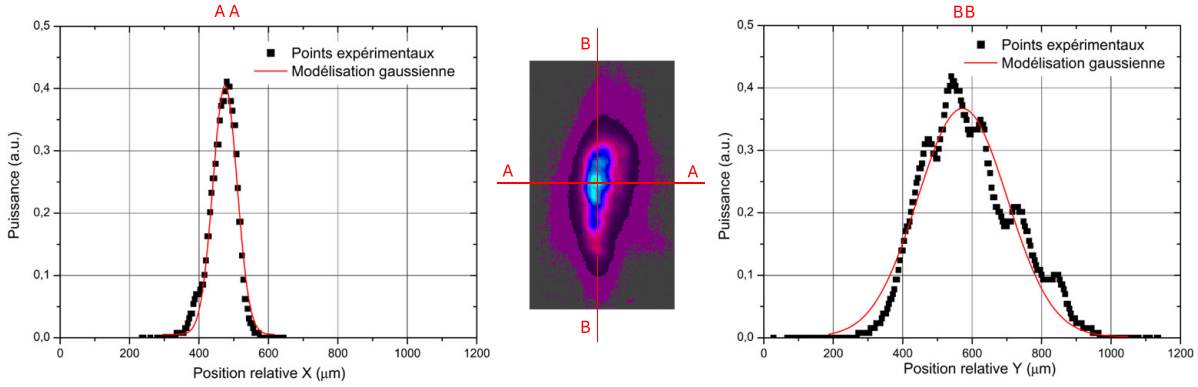


FIG. III.22 – *Section transverse de puissance de second harmonique, à $\lambda_s/2$ (centre) ; Profils dans la direction verticale (OY)(gauche) et horizontale (OX)(droite).*

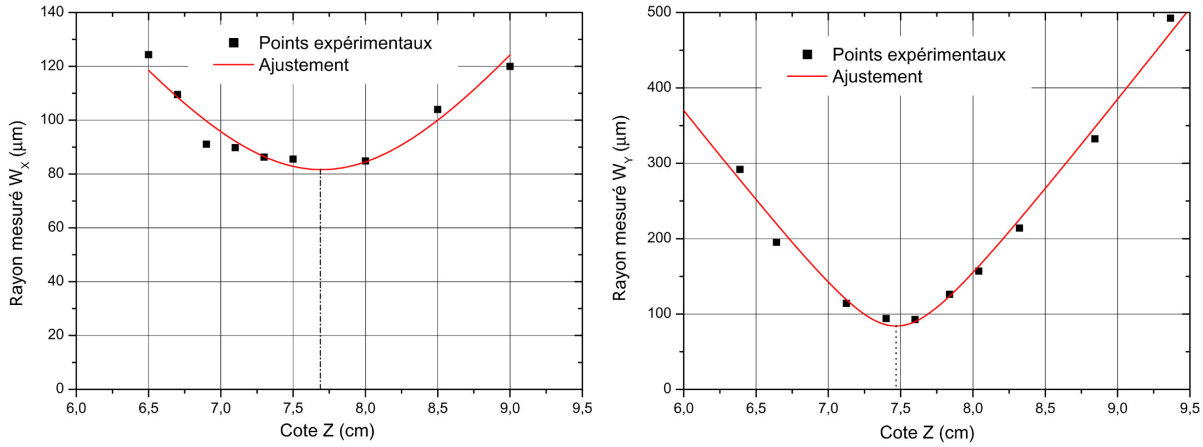


FIG. III.23 – *Evolution du rayon du faisceau doublé pour la direction horizontale (droite) et verticale (gauche).*

Les deux courbes sont ensuite ajustées par la loi de propagation d'un faisceau gaussien (III.11) afin d'en déduire, pour les deux directions, le facteur de qualité du faisceau de second harmonique ; ceux-ci valent 2,19 et 7,78 dans les directions horizontale et verticale respectivement. L'équation (III.37) permet enfin d'obtenir les facteurs de qualité M_X^2 et M_Y^2 dans les directions horizontale et verticale pour le faisceau à $\lambda_s = 1665\ nm$, soit :

$$\begin{cases} M_X^2 = 1,54 \\ M_Y^2 = 5,51 \end{cases} \tag{III.40}$$

Ces valeurs restent assez faibles et typiques d'un OPO. La figure III.23 permet également de constater que les deux cols, selon les directions (OY) et (OZ) sont espacés de $\Delta Z = 2\ mm$ environ. Cet écart est une conséquence de l'astigmatisme du faisceau, mais il reste tolérable pour nos expériences à venir, la génération de triplets allant être réalisée dans des cristaux de grandes longueurs.

III.3.4.2.4 Caractérisation spectrale

Le spectre d'émission du dispositif a été tracé à l'aide d'un monochromateur Chromex 250SM. Celui-ci est visible sur la figure III.24.

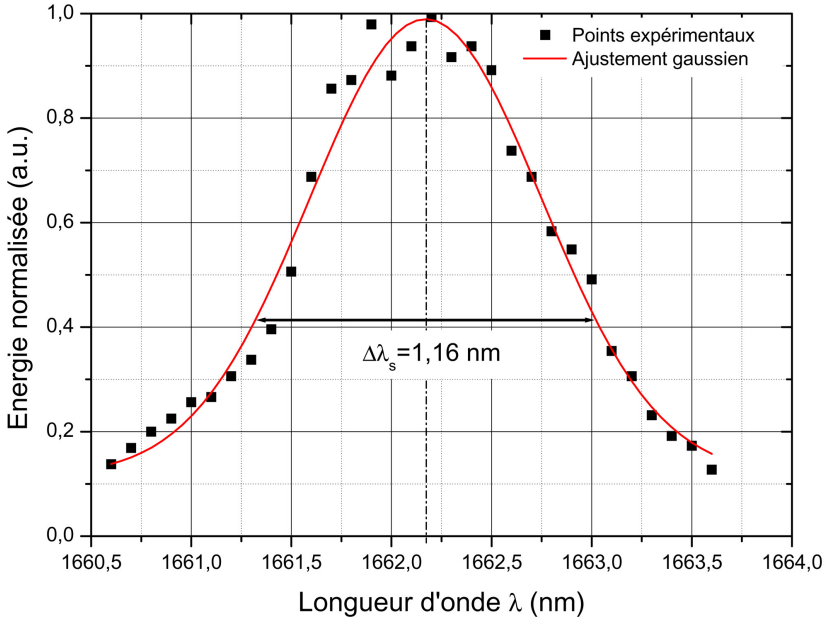


FIG. III.24 – *Spectre d'émission du dispositif constitué de trois cristaux de KTP.*

Les points expérimentaux sont ajustés par une courbe gaussienne qui permet de déterminer la longueur d'onde centrale d'émission λ_s^{exp} et la largeur spectrale $\Delta\lambda_s^{exp}$. Les valeurs obtenues sont les suivantes :

$$\begin{cases} \lambda_s^{exp} = 1662,2\ nm \\ \Delta\lambda_s^{exp} = 1,16\ nm \end{cases} \tag{III.41}$$

La longueur d'onde centrale d'émission est légèrement différente de la longueur d'onde attendue, $\lambda_s = 1665\ nm$. Cet écart provient du fait que les équations de dispersion en longueur d'onde des indices de réfraction utilisées pour le calcul, ne correspondent pas exactement à celles des cristaux utilisés. La largeur spectrale obtenue est à comparer avec la tolérance spectrale vis-à-vis de l'injection de l'interaction cubique que nous souhaitons réaliser ; celle-ci avait été mesurée dans le cadre de la première génération de triplets de photons en 2004 [8] : elle vaut 2,2 nm, ce qui est plus grand que la largeur spectrale $\Delta\lambda_s^{exp}$ de notre dispositif. Ainsi, si la nouvelle expérience de génération de triplets de photons est réalisée dans les mêmes conditions que la première, l'ensemble des composantes spectrales de l'injection participeront au processus cubique.

III.3.4.3 Conclusion

Cette dernière configuration est celle qui a été retenue pour générer le faisceau d'injection à $\lambda_2 = \lambda_3$, nécessaire à la réalisation du processus cubique de génération

de triplets de photons. Elle permet de disposer d'une énergie égale à 1 mJ concentrée sur un intervalle spectral de $1,16$ nm. Le profil temporel est composé de trois impulsions de largeurs totales égales à 230 ps, espacées de 550 ps, et d'amplitudes décroissantes. Le recouvrement temporel optimal est donc réalisé par superposition de l'impulsion du faisceau de pompe à 532 nm et de la première impulsion du faisceau d'injection. La prise en considération de ce profil atypique dans le calcul des éclairements et dans la modélisation de l'expérience de triplets de photons sera évoquée par la suite.

III.4 Synthèse

Ce travail n'avait pas pour objectif d'étudier complètement le fonctionnement d'un Oscillateur Paramétrique Optique en régime sub-nanoseconde. Néanmoins, l'hypothèse de stockage d'énergie dans la cavité, puis d'émission d'impulsions successives d'amplitudes décroissantes, a été validée par la dernière configuration. Nous pouvons alors exploiter les courbes de corrélation ou d'autocorrélation des figures III.12 et III.16, obtenues dans les configurations précédentes, en considérant le profil temporel donné par (III.38) et rappelé ci-dessous :

$$p_s(t) = \sum_{k=1}^{N} P_c^k . e^{-2\frac{(t-\delta)^2}{(\tau_s/2)^2}} \tag{III.42}$$

A partir de cette expression et des équations (III.29) et (III.32), les courbes de corrélation et d'autocorrélation sont interpolées. Les résultats sont synthétisés dans le tableau suivant.

CONFIGURATION	SCHEMA	R_s^s	R_p^s	Nombres d'impulsions significatives	τ_s	δ
OPO couplage fort		88%	100%	>6	>650 ps	140 ps
OPO couplage faible		44%	100%	6	650 ps	140 ps
OPO+OPA		88%	18%	5	450 ps	140 ps
3 cristaux seuls		8%	8%	3	230 ps	550 ps

TAB. III.1 – *Résultats de l'interpolation des courbes de corrélation et d'autocorrélation obtenues dans les différentes configurations étudiées, par un modèle à plusieurs impulsions de durées τ_s et séparées d'un temps δ. R_s^s et R_p^s sont les coefficients de réflexion du miroir de sortie, à λ_s et λ_p respectivement.*

Dans la configuration à trois cristaux seuls, les coefficients R_s^s et R_p^s sont égaux au

pouvoir réflecteur de Fresnel, soit environ 8 % pour KTP. La courbe d'autocorrélation n'avait pas pu être exploitée dans le cas de l'OPO à couplage fort ; Néanmoins, nous pouvons considérer que le nombre d'impulsions significatives et la durée des impulsions sont plus grands que dans le cas de l'OPO à couplage faible. Dans les configurations où la cavité est formée par deux miroirs, le temps séparant deux impulsions consécutives est constant et égal au temps d'aller-retour dans la cavité, fixé par la géométrie de celle-ci.

Chapitre IV

Génération de triplets de photons dans KTP

IV.1 Introduction

Ce chapitre présente l'expérience de génération de triplets de photons réalisée en utilisant la source d'injection décrite dans le chapitre précédent. Les résultats expérimentaux ont pu être comparés avec les modèles établis, en tenant compte du profil temporel atypique de la source d'injection et un bon accord a été constaté entre expérience et théorie.

L'expérience réalisée adopte la même stratégie expérimentale que celle choisie lors de la première génération de triplets de photons, effectuée dans le groupe de Benoît Boulanger en 2004 [36], donnée par la figure IV.1. Le processus paramétrique est pompé à $\lambda_0^- = 532\ nm$, doublement injecté à $\lambda_2^+ = \lambda_3^- = 1662,2\ nm$, la génération de photons à $\lambda_1^+ = 1478,2\ nm$ étant symptomatique de la génération de triplets de photons.

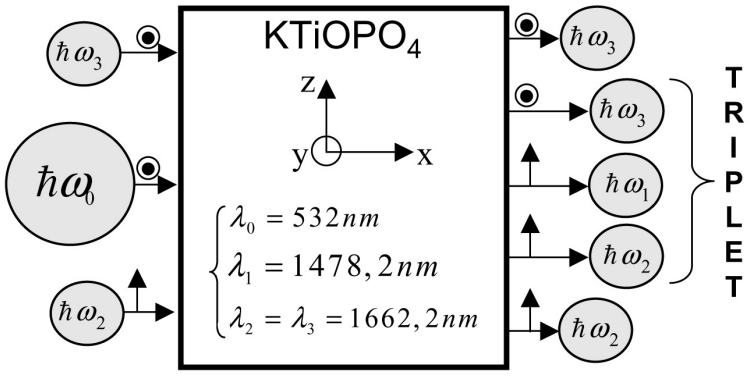


FIG. IV.1 – *Schéma de principe de la génération de triplets de photons dans KTP. (O, x, y, z) est le repère optique de KTP. Les états de polarisations des ondes sont désignés par $(\odot)$ pour le mode (-), colinéaire à (Oy), et $(\uparrow)$ pour le mode (+), orthogonal à (Oy).*

La longueur d'onde d'injection étant légèrement différente de celle utilisée lors de la première génération de triplets, $\lambda_2 = \lambda_3 = 1665\ nm$, le processus n'est plus en accord de

phase selon l'axe (Ox) de KTP. La conservation de l'énergie et l'accord de phase impose les deux relations suivantes :

$$\begin{cases} \dfrac{1}{\lambda_0} = \dfrac{1}{\lambda_1} + \dfrac{1}{\lambda_2} + \dfrac{1}{\lambda_3} \\ \dfrac{n^-(\lambda_0, \theta, \varphi)}{\lambda_0} = \dfrac{n^+(\lambda_1, \theta, \varphi)}{\lambda_1} + \dfrac{n^+(\lambda_2, \theta, \varphi)}{\lambda_2} + \dfrac{n^-(\lambda_3, \theta, \varphi)}{\lambda_3} \end{cases} \tag{IV.1}$$

A partir de ces deux relations, et des équations de dispersion de KTP [43], la directions d'accord de phase dans le plan (xOy) où $\theta = \pi/2$, est calculée numériquement en fonction de $\lambda_2 = \lambda_3$, pour $\lambda_0 = 532\ nm$. La courbe obtenue en fonction de φ est donnée sur la figure IV.2.

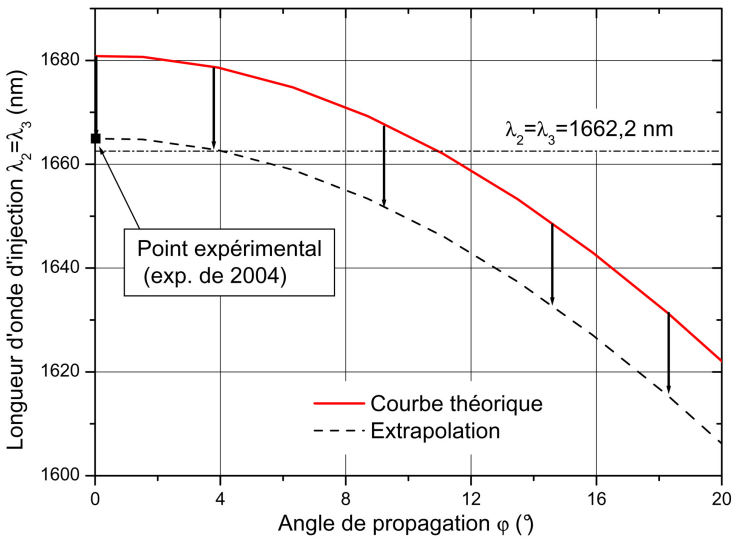


FIG. IV.2 – *Courbe d'accord de phase théorique pour une génération de triplets de photons $\lambda_0^- \rightarrow \lambda_1^+ + \lambda_2^+ + \lambda_3^-$ pompée à $\lambda_0 = 532\ nm$ et doublement injectée à $\lambda_2 = \lambda_3$, dans le plan (xOy) de KTP. Le point correspond à la situation expérimentale de la première génération de triplets réalisée en 2004. La courbe théorique est alors translatée selon l'axe des ordonnées jusqu'au point expérimental.*

La longueur d'onde d'injection théorique d'accord de phase est égale à 1681 nm. La longueur d'onde d'injection expérimentale mesurée lors de la première expérience vaut 1665 nm. La courbe théorique est translatée selon l'axe des ordonnées jusqu'au point expérimental ; cette approximation permet de constater que l'accord de phase à la longueur d'onde d'injection que nous utilisons, $\lambda_2 = \lambda_3 = 1662,2\ nm$, est atteint pour $\varphi = 4^o$. Nous utiliserons donc le cristal de KTP taillé selon (Ox), qui sera tourné autour de l'axe (Oz) pour atteindre l'accord de phase. La même démarche dans le plan (xOz) montre que l'accord de phase n'est pas possible dans ce plan car la longueur d'onde d'injection d'accord de phase croît lorsque l'angle θ s'écarte de l'axe (Ox).

Le coefficient effectif de l'interaction est donné dans le plan (xOy) par l'équation (II.15). Pour un angle de propagation $\varphi = 4^o$, le coefficient effectif vaut environ $\chi^{(3)}_{eff} \approx \chi^{(3)}_{24} = 14,6.10^{-22}\ m^2/V^2$ [42].

IV.2 Réalisation expérimentale

IV.2.1 Dispositif

Le dispositif expérimental utilisé est donné sur la figure IV.3. La source est un laser Nd :YAG Ekspla SL312P émettant à $\lambda_p = 1064\ nm$. Une partie de ce faisceau est doublée afin de fournir le faisceau à $\lambda_0 = 532\ nm$. L'autre partie du faisceau à $\lambda_p = 1064\ nm$ pompe le dispositif décrit dans le chapitre précédent pour la génération du faisceau d'injection à $\lambda_2 = \lambda_3 = 1662,2\ nm$, avec la dernière configuration de générateur, représentée sur la figure III.17. L'astigmatisme du faisceau d'injection est en partie corrigé par le télescope décrit figure III.21. La mise en coïncidence temporelle est effectuée par une ligne à retard constituée d'un prisme P monté sur une translation T ; l'alignement spatial est réalisé par deux miroirs dichroïques M' et M''. Les faisceaux d'injection et de pompe ayant des géométries différentes, leurs dispositifs de focalisation dans le cristal de KTP sont pris indépendants. Le faisceau d'injection est focalisé par la lentille L_i, alors que celui de pompe est focalisé par la lentille convergente L_0. La polarisation du faisceau à λ_0 est alignée sur l'axe (Oy) du cristal par une lame demi-onde. La polarisation du faisceau d'injection est ajustée à 45° de l'axe (Oy) pour assurer la quadrature entre les deux ondes d'injection, à λ_2 et λ_3 ; les énergies incidentes relatives à ces deux longueurs d'ondes, $\xi_2(0)$ et $\xi_3(0)$, sont donc égales. Les énergies incidentes de pompe et d'injection, $\xi_0(0)$ et $\xi_i(0) = \xi_2(0) + \xi_3(0)$, sont réglables par l'ajout de densités optiques DO de différentes valeurs, et sont contrôlées en temps réel à l'aide de références calibrées. Les détecteurs utilisés sont des photodiodes Thorlabs en Si et en $InGaAs$, pour le faisceau de pompe et d'injection respectivement.

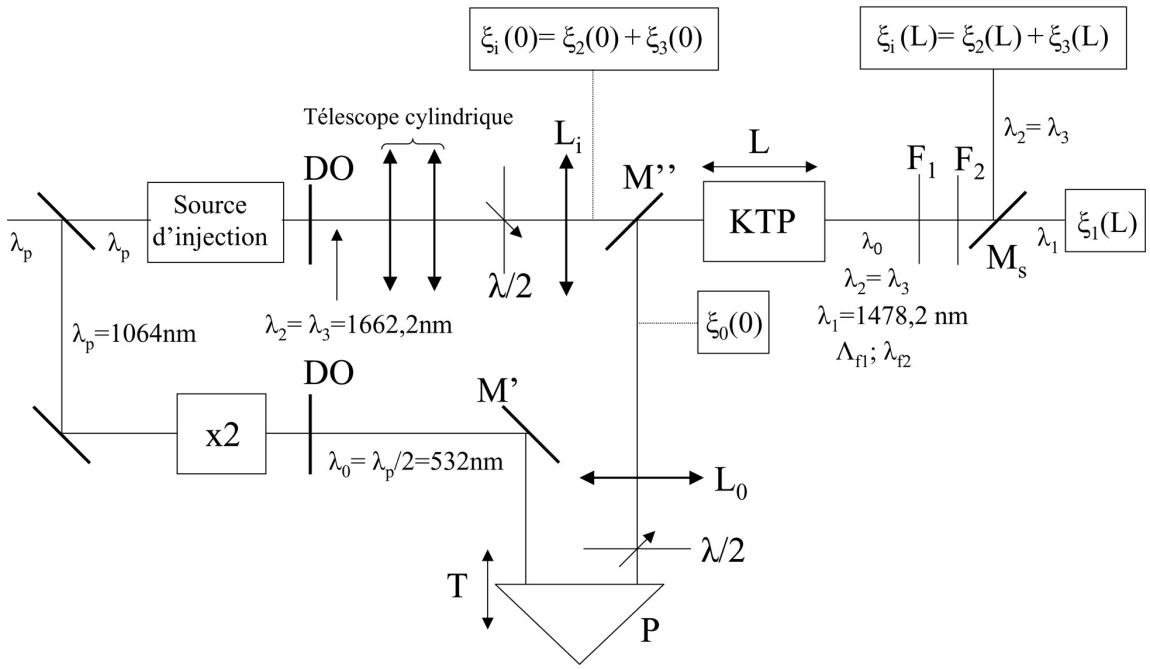


FIG. IV.3 – *Dispositif expérimental utilisé pour la génération de triplets de photons.*

A la sortie du cristal de KTP, l'onde pompe est coupée par le filtre F_1. Les longueurs d'onde λ_1 et $\lambda_2 = \lambda_3$ sont séparées par le miroir dichroïque M_s afin de mesurer sélectivement les énergies $\xi_1(L)$ et $\xi_i(L)$. L'énergie générée à λ_1 est mesurée à l'aide d'une photodiode calibrée Thorlabs $InGaAs$, et celle à $\lambda_2 = \lambda_3$ par un détecteur pyroélectrique Molectron. Toutes les mesures d'énergie sont corrigées des pertes dues aux différentes optiques et aux réflexions sur les faces d'entrée et de sortie du cristal de KTP.

Le cristal de KTP étant non centrosymétrique, la fluorescence paramétrique quadratique de type II, pompée à $\lambda_0 = 532\ nm$, est présente en sortie du milieu non linéaire. Les longueurs d'onde de fluorescence quadratique, λ_{f1} et λ_{f2}, calculées à partir des équations (I.45) et des équations de dispersion de KTP [43], sont égales à :

$$\begin{cases} \lambda_{f1} = 1032\ nm \\ \lambda_{f2} = 1098\ nm \end{cases} \tag{IV.2}$$

Ces longueurs d'onde sont assez éloignées des longueurs d'onde λ_1, λ_2 et λ_3 du triplet ; elles sont alors facilement coupées par le filtre F_2.

IV.2.2 Conditions expérimentales

Afin de maximiser l'efficacité du processus cubique, les deux faisceaux sont focalisés à la même cote, correspondant au milieu du cristal de KTP. Le faisceau de pompe, à $\lambda_0 = 532\ nm$, ne présente pas d'astigmatisme ; il est focalisé avec une lentille de distance focale 500 mm ; son rayon minimum W_0 est mesuré à l'aide d'une caméra. Le faisceau d'injection est focalisé par une lentille de distance focale égale à 63 mm. La mesure des rayons extrêmes du faisceau d'injection dans la plan focal, W_{iX} et W_{iY}, a été réalisée à l'aide d'une caméra $SP - 1550M$; ce dispositif, prêté occasionnellement par la société Spiricon, est constitué d'une matrice silicium recouverte d'une fine couche de phosphore, permettant de convertir le faisceau infrarouge en faisceau visible, détectable par la matrice silicium. Les caractéristiques spatiales mesurées des deux faisceaux sont les suivantes :

$$\begin{cases} W_0 = 125\ \mu m \\ W_{iX} = 97\ \mu m \\ W_{iY} = 122\ \mu m \end{cases} \tag{IV.3}$$

A partir des valeurs des facteurs de qualité M^2 du faisceau d'injection mesurées dans la partie (III.3.4.2.3), et en considérant $M^2 = 1$ pour le faisceau de pompe, les longueurs de Rayleigh Z_{ro} de la pompe,Z_{rX} et Z_{rY} de l'injection, calculées à partir de (IV.3) et de l'équation (III.12) sont :

$$\begin{cases} Z_{ro} = 166\ mm \\ Z_{rX} = 20,7\ mm \\ Z_{rY} = 9,2\ mm \end{cases} \tag{IV.4}$$

Ces valeurs seront à comparer aux longueurs des cristaux de KTP, lors de la confrontation entre l'expérience et la théorie, l'approximation de l'onde plane étant valide lorsque la longueur du cristal est supérieure à deux fois la longueur de Rayleigh des faisceaux en interaction.

Les profils temporels des faisceaux d'injection et de pompe sont tracés sur la figure III.20. L'impulsion de pompe est gaussienne, de durée totale τ_0 ; le profil temporel du faisceau d'injection est constitué de 3 impulsions de durée τ_i, espacées d'un temps δ et d'amplitudes P_c^k, $k = \{1, 2, 3\}$. Les caractéristiques temporelles des deux faisceaux sont rappelées ci-dessous :

$$\begin{cases} \tau_0 = 106\ ps \\ \tau_i = 230\ ps \\ \delta = 550\ ps \\ P_c^2/P_c^1 = 0,48 \\ P_c^3/P_c^1 = 0,17 \end{cases} \tag{IV.5}$$

L'impulsion de pompe est mise en coïncidence avec l'impulsion principale d'injection avec une précision de l'ordre de la picoseconde. Après propagation à travers les différentes optiques, l'énergie d'injection à $1662,2\ nm$ disponible est de $308\ \mu J$ et celle de pompe à $532\ nm$ est de $4,4\ mJ$. Nous disposons de plusieurs cristaux de KTP taillés dans la direction (Ox), avec différentes longueurs L :$0,8\ mm$; $3,2\ mm$; $4,9\ mm$; $13\ mm$; $19,5\ mm$; $20\ mm$; $21\ mm$ et $25\ mm$.

IV.2.3 Energies mesurées à 1478,2 nm

Après optimisation des coïncidences, temporelle et spatiale, nous avons réalisé l'accord de phase en tournant le cristal de KTP d'un angle interne de 3° autour de l'axe (Oz) ; cette valeur est très proche de celle calculée précédemment. L'énergie générée ξ_1 a été mesurée pour différentes valeurs de la longueur d'interaction L (expérience A), de l'énergie de pompe ξ_0 (expérience B) et de l'énergie d'injection incidente ξ_i (expérience C) [61](Annexe E).

L'énergie ξ_1 est tracée figure IV.4 en fonction de la longueur L pour les valeurs maximales de l'énergie de pompe et d'injection : $\xi_0 = 4,4\ mJ$ et $\xi_i = 308\ \mu J$ (expérience A). Avec le cristal le plus long, $L = 25\ mm$, et avec les énergies incidentes maximales, il a été possible de générer $3,7\ \mu J$ à $1478,2\ nm$.

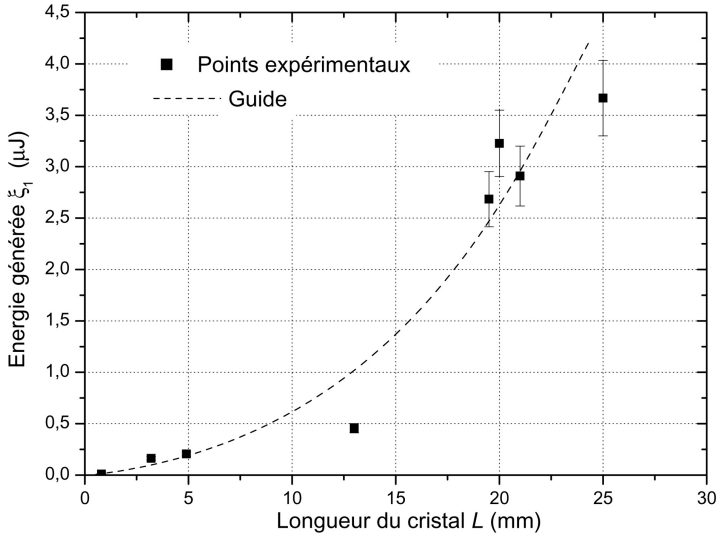


FIG. IV.4 – *Expérience A : énergie générée à $\lambda_1 = 1478,2$ nm en fonction de la longueur L de KTP, pour une énergie de pompe à $\lambda_0 = 532$ nm, $\xi_0(0) = 4,4$ mJ et une énergie d'injection à $\lambda_i = 1662,2$ nm, $\xi_i(0) = 308$ µJ. La courbe en pointillé est un guide pour l'oeil.*

La variation de l'énergie générée en fonction des énergies incidentes a également été étudiée (expérience B). Pour rester dans l'approximation de l'onde plane, la longueur de cristal L a été choisie au centre de la gamme des longueurs disponibles, soit $L = 13$ mm. La figure IV.5 montre la variation de l'énergie générée en fonction de l'énergie de pompe pour $L = 13$ mm et $\xi_i(0) = 308$ µJ.

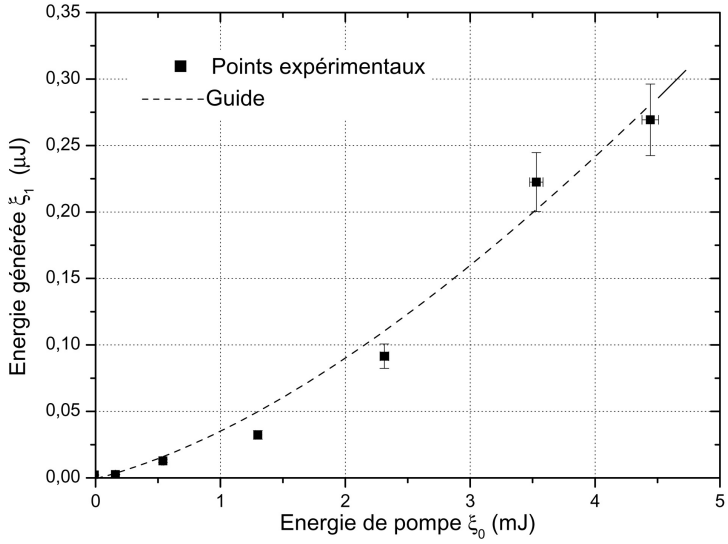


FIG. IV.5 – *Expérience B : énergie générée à $\lambda_1 = 1478,2$ nm en fonction de l'énergie de pompe ξ_0 à $\lambda_0 = 532$ nm, pour une longueur $L = 13$ mm de KTP et une énergie d'injection $\xi_i = 308$ µJ à $\lambda_i = 1662,2$ nm. La courbe en pointillé est un guide pour l'oeil.*

L'énergie ξ_1 en fonction de l'énergie d'injection ξ_i pour $L = 13$ mm et $\xi_0 = 4,4$ mJ est tracée sur la figure IV.6 (expérience C).

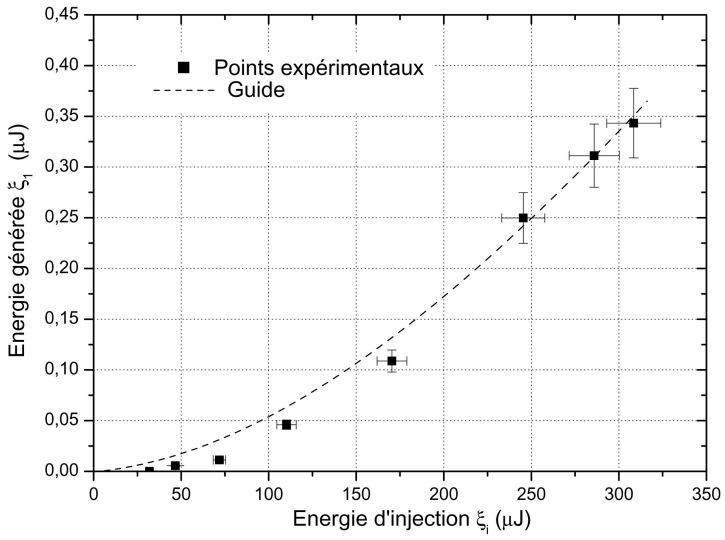


FIG. IV.6 – *Expérience C : énergie générée à $\lambda_1 = 1478,2$ nm en fonction de l'énergie d'injection ξ_i à $\lambda_i = 1662,2$ nm, pour $L = 13$ mm de KTP et une énergie de pompe $\xi_0 = 4,4$ mJ à $\lambda_0 = 532$ nm(exp C).*

IV.3 Comparaison entre expérience et théorie

IV.3.1 Prise en compte du recouvrement temporel

Seuls les photons d'injection en coïncidence temporelle avec les photons de la pompe peuvent stimuler la génération de triplets. Il est alors nécessaire de prendre en compte les différents profils temporels des impulsions d'injection et de pompe, afin de pouvoir calculer l'efficacité du couplage paramétrique. Le recouvrement temporel entre l'impulsion de pompe et les deux impulsions secondaires de l'injection peut être totalement négligé (cf fig III.20). Ainsi, seule l'énergie comprise dans l'impulsion principale sera prise en compte pour le calcul. Par la suite, nous considérerons donc pour l'injection, la seule impulsion principale, son énergie étant donnée par l'énergie totale mesurée, corrigée du rapport R de l'aire de la première impulsion sur l'aire totale, soit compte tenu de (III.38) :

$$R = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} P_c^1 e^{-2\frac{t^2}{(\tau_i/2)^2}} dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} P_c^1 e^{-2\frac{t^2}{(\tau_i/2)^2}} dt + \int_{-\infty}^{+\infty} P_c^2 e^{-2\frac{(t-\delta)^2}{(\tau_i/2)^2}} dt + \int_{-\infty}^{+\infty} P_c^3 e^{-2\frac{(t-2\delta)^2}{(\tau_i/2)^2}} dt} \tag{IV.6}$$

soit :

$$R = \frac{P_c^1}{P_c^1 + P_c^2 + P_c^3} \tag{IV.7}$$

où P_c^1, P_c^2 et P_c^3 sont les puissances crêtes des 3 impulsions, dont les rapports sont donnés par (III.39). L'énergie d'injection incidente doit donc être multipliée par un facteur d'atténuation égal à $0,606$.

Comme établi au chapitre III, les impulsions de pompe et d'injection ont des durées différentes : $\tau_0 = 106\ ps$ à $532\ nm$ et $\tau_i = 230\ ps$ à $1662,2\ nm$. Une partie de l'énergie contenue dans l'impulsion principale d'injection ne participe donc pas au processus de génération de triplets de photons. La figure IV.7 montre les deux profils temporels correspondants, pour des puissances crêtes de pompe et d'injection différentes, notées respectivement P_{c0} et P_{ci} avec $P_{ci} = P_{c2} + P_{c3}$

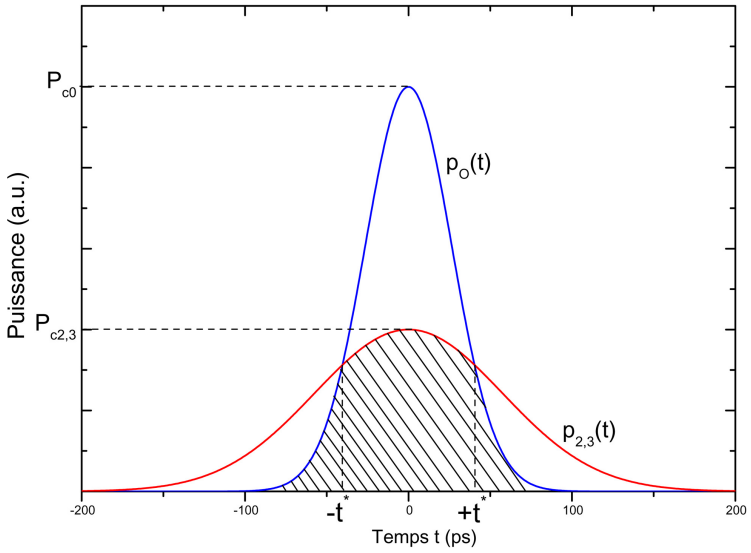


FIG. IV.7 – *Profils temporels des faisceaux de pompe et d'injection ; P_{c0} et $P_{c2,3}$ sont les puissances crêtes des ondes à λ_0 et $\lambda_{2,3}$ respectivement. la zone hachurée correspond à l'intersection des deux impulsions ; $-t^*$ et $+t^*$ sont les temps correspondants aux intersections des deux impulsions.*

Les puissances instantanées $p_0(t)$ et $p_{2,3}(t)$ des ondes à λ_0 et $\lambda_{2,3}$ respectivement s'écrivent :

$$\begin{cases} p_0(t) = P_{c0}.e^{-2\frac{t^2}{(\tau_0/2)^2}} \\ p_{2,3}(t) = P_{c2,3}.e^{-2\frac{t^2}{(\tau_i/2)^2}} \end{cases} \tag{IV.8}$$

Seule l'énergie d'injection contenue dans la zone hachurée participe au processus de génération de triplets de photons. Nous introduisons alors le facteur $F_{t2,3}$, défini comme le rapport de l'aire hachurée sur l'aire totale de l'impulsion d'injection. Ce rapport s'écrit :

$$F_{t2,3} = \frac{\int_{-\infty}^{-t^*} p_0(t)\,dt + \int_{-t^*}^{+t^*} p_{2,3}(t)\,dt + \int_{+t^*}^{+\infty} p_0(t)\,dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} p_{2,3}(t)\,dt} \tag{IV.9}$$

avec $p_2(t) = p_3(t)$. $+t^*$ et $-t^*$ représentent les temps correspondants à l'intersection entre les puissances instantanées p_0 et $p_{2,3}$, soit :

$$P_{c0}.e^{-2\frac{(t^*)^2}{(\tau_0/2)^2}} = P_{c2,3}.e^{-2\frac{(t^*)^2}{(\tau_i/2)^2}} \tag{IV.10}$$

Les puissances crêtes P_{c0} et $P_{c2,3}$ sont reliées aux énergies ξ_0 et $\xi_{2,3}$ par la relation (III.23). Le paramètre t^* s'écrit alors en fonction des énergies incidentes :

$$t^*\left(\xi_0, \xi_{2,3}\right) = \sqrt{\frac{\ln\left(\frac{\xi_0}{\xi_{2,3}}\frac{\tau_0}{\tau_i}\right)}{\frac{2}{\tau_0^2} - \frac{2}{\tau_i^2}}} \tag{IV.11}$$

Le calcul du rapport $F_{t2,3}$ s'effectue à partir de (IV.9) et des expressions des puissances instantanées (IV.8), en reliant les puissances crêtes aux énergies par (III.23), ce qui donne :

$$F_{t2,3} = 1 - erf\left(\frac{2\sqrt{2}t^*}{\tau_i}\right) + \frac{\xi_0}{\xi_{2,3}} erf\left(\frac{2\sqrt{2}t^*}{\tau_0}\right) \tag{IV.12}$$

Les équations (IV.12) et (IV.11) permettent de calculer, pour différentes valeurs d'énergie de pompe et d'injection, la valeur du coefficient F_t à appliquer pour tenir compte des profils temporels différents. L'abaque IV.8 montre une représentation sous forme de *courbes de niveaux* du facteur F_t ; les valeurs particulières, correspondantes aux expériences A, B et C décrites précédemment, sont également indiquées.

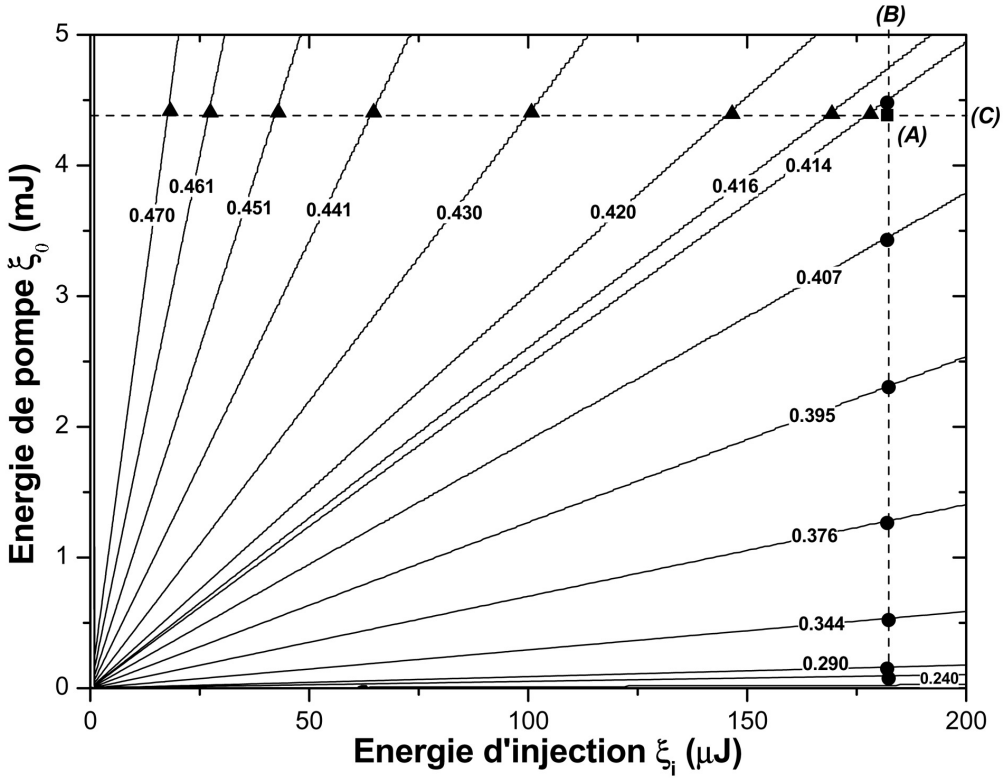


FIG. IV.8 – *Abaque donnant la valeur du coefficient F_t prenant en compte le recouvrement temporel dans le processus de différence de fréquences cubique, pour différentes valeurs des énergies de pompe et d'injection ; le carré correspond à l'expérience A (L variable), les cercles à l'expérience B (ξ_0 variable) et les triangles à l'expérience C (ξ_i variable) [61].*

IV.3.2 Modèle en pompe non dépeuplée

Nous supposons ici que le rendement de l'interaction est suffisamment faible pour ne pas modifier de manière significative les amplitudes des champs incidents. Le système d'équations couplées se réduit donc à celui donné par (II.5). En considérant que $E_1(t, Z = 0) = 0$, la résolution aboutit à l'expression de l'amplitude complexe du champ instantané généré à λ_1 dans un cristal de longueur L, en fonction des amplitudes des champs incidents à λ_0, λ_2 et λ_3, notées respectivement E_0, E_2 et E_3 :

$$E_1(t, L) = j.\frac{\pi.\chi_{eff}^{(3)}}{n(\omega_1)\lambda_1}.E_0(t).E_2^*(t).E_3^*(t).L \tag{IV.13}$$

En prenant le module au carré de l'expression précédente, et en utilisant les expressions (III.18) et (III.19), la puissance instantanée générée à λ_1, p_1, s'écrit en fonction des puissances instantanées incidentes p_0, p_1, p_2 et p_3, respectivement à λ_0, λ_1, λ_2 et λ_3 :

$$p_1(t, L) = \frac{\mu_0}{\epsilon_0}.\frac{\left(\frac{W_1}{W_0W_2W_3}\right)^2}{n(\omega_0)n(\omega_1)n(\omega_2)n(\omega_3)}.\left(\frac{4\chi_{eff}^{(3)}L}{\lambda_1}\right)^2.p_0(t).p_2(t).p_3(t) \tag{IV.14}$$

où $n(\omega_i)$ est l'indice de réfraction à la longueur d'onde λ_i, et W_i le rayon du faisceau à λ_i. Les expressions des puissances instantanées de l'onde pompe à $\lambda_0 = 532\ nm$, $p_0(t)$, et des deux ondes d'injection à $\lambda_i = 1662,2\ nm$, $p_i(t) = p_2(t) + p_3(t)$ avec $p_2(t) = p_3(t)$, sont données par (IV.8). L'équation (IV.14) peut être alors intégrée par rapport au temps, en considérant ces profils temporels, pour en déduire l'énergie ξ_1 générée à λ_1 :

$$\xi_1(L) = \frac{\mu_0}{\epsilon_0}.\frac{F_{t2}F_{t3}\left(\frac{W_1}{W_0W_2W_3}\right)^2}{n(\omega_1).n(\omega_2).n(\omega_3)}.\left(\frac{4\chi_{eff}^{(3)}L}{\lambda_1}\right)^2.\sqrt{\frac{\pi}{2}}.\frac{\tau_1}{2}.P_{c0}.P_{c2}.P_{c3} \tag{IV.15}$$

avec τ_1, durée totale de l'impulsion générée à λ_1, défini par :

$$\frac{1}{\tau_1^2} = \frac{1}{\tau_0^2} + \frac{2}{\tau_i^2} \tag{IV.16}$$

La prise en compte du recouvrement temporel est pris en compte par le facteur $F_{t2}.F_{t3}$, pouvant être déterminé à partir de l'abaque (IV.8). L'équation (III.22) permet d'exprimer les puissances crêtes P_{c0}, P_{c2} et P_{c3} des ondes à λ_0, λ_2 et λ_3 respectivement, en fonction des durées d'impulsions des faisceaux incidents τ_0 et τ_i, et des énergies incidentes de pompe, ξ_0 et d'injection, $\xi_{2,3}$. L'énergie générée $\xi_1(L)$ s'écrit alors :

$$\xi_1(L) = \frac{\mu_0}{\epsilon_0}.\frac{F_{t2}F_{t3}\left(\frac{W_1}{W_0W_2W_3}\right)^2}{n(\omega_0).n(\omega_1).n(\omega_2).n(\omega_3)}.\left(\frac{4\chi_{eff}^{(3)}L}{\lambda_1}\right)^2.\frac{8}{\pi}.\frac{\tau_1}{\tau_0\tau_i^2}.\xi_0(0).\xi_2(0).\xi_3(0) \tag{IV.17}$$

Le faisceau d'injection astigmate peut être considéré comme circulaire, avec un rayon équivalent W_i tel que $W_i = \sqrt{W_{iX}W_{iY}}$, W_{iX} et W_{iY} étant donnés par (IV.3). Les deux ondes d'injection à λ_2 et λ_3 étant issues du même faisceau, il vient : $W_2 = W_3 = W_i$ et $\xi_2 = \xi_3 = \xi_i/2$. Le rayon du faisceau généré est calculé à partir de :

$$\frac{1}{W_1^2} = \frac{1}{W_0^2} + \frac{2}{W_i^2} \tag{IV.18}$$

A partir de (IV.16), de (IV.18), et des caractéristiques des faisceaux incidents données par (IV.3) et (IV.5), les grandeurs spatiales et temporelles à considérer sont les suivantes :

$$\begin{cases} W_0 = 125\ \mu m \\ W_i = 110\ \mu m \\ W_1 = 66\ \mu m \\ \tau_0 = 106\ ps \\ \tau_i = 230\ ps \\ \tau_1 = 88\ ps \end{cases} \tag{IV.19}$$

En utilisant les équations de dispersion de KTP [43] et la valeur de $\chi_{24}^{(3)}$ [42], il est possible de calculer l'énergie ξ_1 générée pour $L = 13\ mm$, $\xi_0(0) = 4,4\ mJ$ et pour l'énergie maximale d'injection contenue dans la première impulsion, $\xi_0(0) = 182\ \mu J$. L'énergie générée vaut :

$$\xi_1 = 17,6\ \mu J \tag{IV.20}$$

Cette valeur est deux ordres de grandeur plus grande que la valeur expérimentale, qui est $\xi_1 = 0,34\ \mu J$. Le modèle en pompe non dépeuplée n'est donc pas valable même avec un rendement de conversion faible. Celui-ci est défini par :

$$\eta = \frac{\xi_1(L)}{\xi_0(0) + \xi_2(0) + \xi_3(0)} \tag{IV.21}$$

Pour la longueur de cristal maximale, $L = 25\ mm$, et pour $\xi_0(0) = 4,4\ mJ$ et $\xi_i(0) = 182\ \mu J$, l'énergie générée vaut $3,6\ \mu J$, ce qui correspond à un rendement de :

$$\eta = 7,6.10^{-4} \tag{IV.22}$$

La partie suivante est donc consacrée à une modélisation sans approximations vis-à-vis des variations des champs incidents.

IV.3.3 Modèle en pompe dépeuplée

Les énergies sortantes $\xi_0(L)$, $\xi_1(L)$, $\xi_2(L)$ et $\xi_3(L)$ peuvent être calculées à partir des équations (II.11) donnant les éclairements aux longueurs d'onde en interaction. La relation entre l'énergie et l'éclairement est donnée par (III.21), en considérant des faisceaux gaussiens spatialement et temporellement. Aucune modification des propriétés spatiales et temporelles n'est supposée intervenir sur les faisceaux de pompe et d'injection. Le rayon du faisceau généré à λ_1 et la durée totale de l'impulsion générée sont supposés être régis par les équations (IV.16) et (IV.18). Les facteurs γ_2 et γ_3 comportent les termes F_{t2} et F_{t3} qui tiennent compte du recouvrement temporel entre les faisceau de pompe et d'injection. Le système régissant les énergies des ondes en interaction est alors le suivant :

$$\begin{cases} \xi_0(L) = \xi_0(0)\left(1 - \gamma_3 \dfrac{sn^2(aL|1-m)}{\Gamma}\right) \\ \xi_1(L) = \left(\dfrac{\pi}{2}\right)^{3/2}\left(\dfrac{W_1^2\tau_1}{2}\right)\gamma_0\gamma_3\dfrac{sn^2(aL|1-m)}{\Gamma} \\ \xi_2(L) = \xi_2(0)\left(1 + \dfrac{\gamma_0\gamma_3}{\gamma_2}\dfrac{sn^2(aL|1-m)}{\Gamma}\right) \\ \xi_3(L) = \xi_3(0)\left(1 + \gamma_0\dfrac{sn^2(aL|1-m)}{\Gamma}\right) \end{cases} \tag{IV.23}$$

avec :

$$\begin{cases} \gamma_0 = \dfrac{\lambda_0}{\lambda_1}\left(\dfrac{2}{\pi}\right)^{3/2}\dfrac{2}{W_0^2\tau_0}\xi_0(0) \\ \gamma_2 = \dfrac{\lambda_2}{\lambda_1}\left(\dfrac{2}{\pi}\right)^{3/2}\dfrac{2}{W_2^2\tau_2}.F_t.\xi_2(0) \\ \gamma_3 = \dfrac{\lambda_3}{\lambda_1}\left(\dfrac{2}{\pi}\right)^{3/2}\dfrac{2}{W_3^2\tau_3}.F_t.\xi_3(0) \\ \Lambda = \sqrt{\dfrac{\mu_0}{\epsilon_0}}\dfrac{4\pi\chi_{eff}^{(3)}}{\sqrt{n(\omega_0)\,n(\omega_1)\,n(\omega_2)\,n(\omega_3)}}\sqrt{\dfrac{\lambda_1}{\lambda_0\lambda_2\lambda_3}} \\ m = \dfrac{\gamma_2(\gamma_0+\gamma_3)}{\gamma_3(\gamma_0+\gamma_2)} \\ a = \dfrac{\Lambda}{2}\sqrt{\gamma_3(\gamma_0+\gamma_2)} \\ \Gamma = \gamma_3 m sn^2(aL|1-m) + (\gamma_3+\gamma_0)\,cn^2(aL|1-m) \end{cases} \tag{IV.24}$$

Les données expérimentales obtenues dans les expériences A, B et C sont interpolées par les équations (IV.23) couplées aux équations (IV.12) et (IV.11) pour le calcul de F_t. Le point de l'expérience A correspondant à $L = 25\ mm$ a été exclu car l'approximation de l'onde plane n'est plus valide pour ce point, compte tenu de la longueur de Rayleigh minimale du faisceau d'injection, $Z_{rY} = 9,2\ mm$. Les trois séries de mesures correspondant aux expériences A, B et C, ont été interpolées ; pour chaque courbe, les deux paramètres fixes sont ajustés par la méthode des moindres carrés :

- les énergies de pompe et d'injection incidentes $\xi_0(0)$ et $\xi_i(0)$ dans l'expérience A, pour laquelle la longueur du cristal L varie ;
- l'énergie d'injection $\xi_i(0)$ et la longueur L dans l'expérience B, pour laquelle l'énergie de pompe $\xi_0(0)$ varie ;
- l'énergie de pompe $\xi_0(0)$ et la longueur L dans l'expérience C, pour laquelle l'énergie d'injection $\xi_i(0)$ varie.

Un unique jeu de valeurs d'interpolation $\left\{\xi_0^{th}(0), \xi_i^{th}(0), L^{th}\right\}$ modélise correctement les trois courbes, soit :

$$\begin{cases} \xi_0^{th}(0) = 3,5\ mJ \\ \xi_i^{th}(0) = 138\ \mu J \\ L^{th} = 7,9\ mm \end{cases} \tag{IV.25}$$

L'unicité de ces paramètres constitue une première validation du modèle utilisé, ainsi que de la prise en compte du recouvrement temporel. La figure IV.9 montre que les points expérimentaux sont correctement décrits par le modèle pour les trois expériences,.

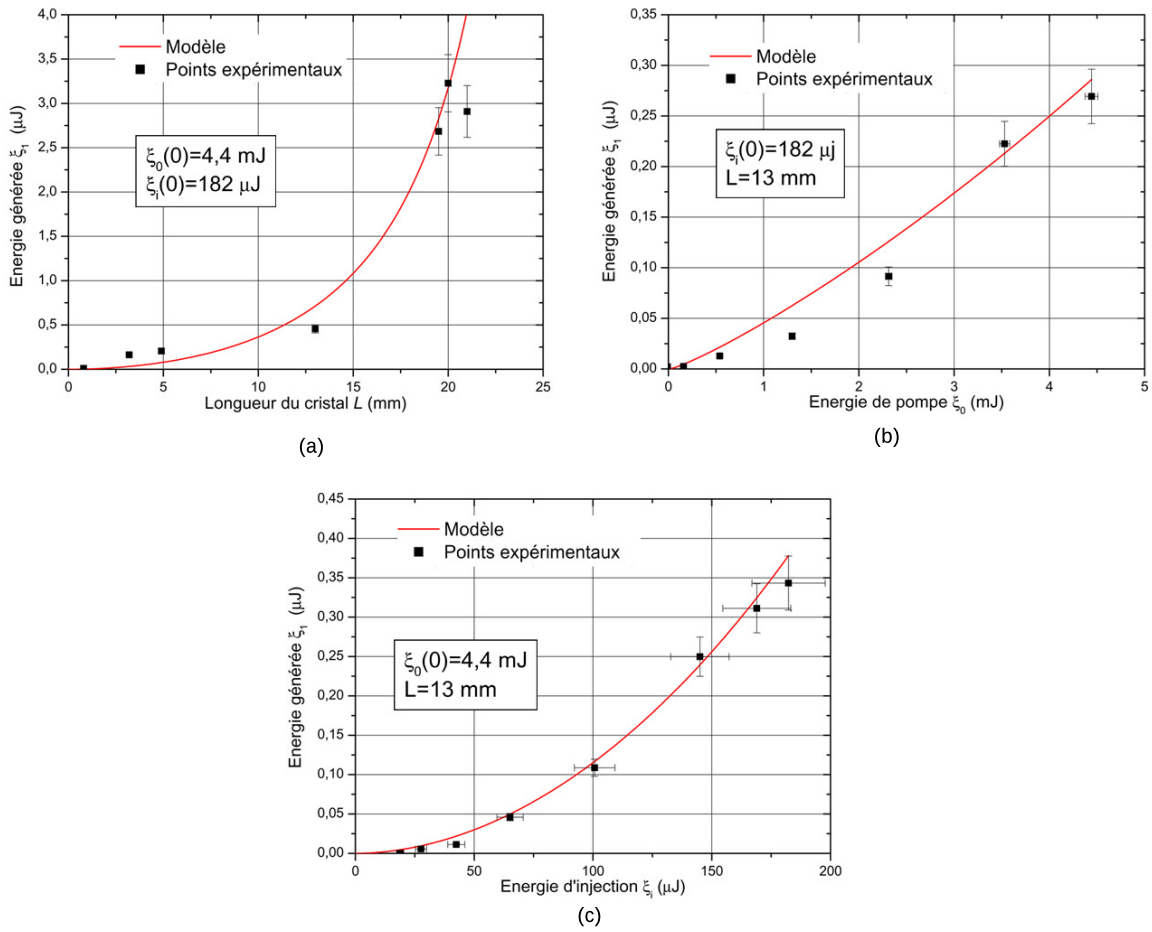


FIG. IV.9 – *Comparaison entre les résultats expérimentaux et le modèle pour les expériences A (fig. a), B (fig. b), et C (fig. c). Les traits pleins correspondent au calcul.*

Toutefois, les valeurs des énergies de pompe et d'injection et de la longueur du cristal ajustant le modèle, sont toutes légèrement inférieures aux valeurs utilisées expérimentalement rappelées ci-dessous :

$$\begin{cases} \xi_0^{exp}(0) = 4,4\ mJ \\ \xi_i^{exp}(0) = 182\ \mu J \\ L^{exp} = 13\ mm \end{cases} \tag{IV.26}$$

Les faibles écarts trouvés sont très probablement dus au fait que l'approximation de l'onde plane n'est pas tout à fait vérifiée dans le cas des cristaux de KTP de grandes longueurs, compte tenu des longueurs de Rayleigh données par (IV.4).

IV.3.4 Gain d'amplification paramétrique

La modélisation précédente étant validée, il est intéressant de calculer le gain d'amplification paramétrique $G(L)$ des ondes à λ_2 ou λ_3. Il est défini par [14] :

$$G(L) = \frac{I_{2,3}(L)}{I_{2,3}(0)} - 1 \tag{IV.27}$$

En supposant que le faisceau sortant aux longueurs d'onde d'injection a les mêmes propriétés spatiales et temporelles que le faisceau d'injection incident, le gain d'amplification paramétrique s'écrit :

$$G(L) = \frac{\xi_{2,3}(L)}{\xi_{2,3}(0)} - 1 \tag{IV.28}$$

D'après les équations (IV.23), le gain d'amplification s'écrit alors :

$$G(L) = \gamma_0 \frac{sn^2(aL|1-m)}{\Gamma} \tag{IV.29}$$

Pour $\xi_0^{th}(0) = 3,5\ mJ$, $\xi_i^{th}(0) = 138\ \mu J$ et $L^{th} = 7,9\ mm$, le gain d'amplification paramétrique vaut :

$$G(L) = 7\ \% \tag{IV.30}$$

Cette valeur est faible, et contenue dans l'incertitude de mesure de l'énergie d'injection ; il n'est donc pas surprenant qu'aucune amplification aux longueurs d'onde d'injection n'ait pu être détectée expérimentalement.

IV.3.5 Exploitation de la première expérience de génération de triplets de photons de 2004

Même si l'exploitation avait été moins exhaustive, la première expérience de génération de triplets de photons de 2004 a permis de mesurer l'énergie générée en fonction de l'énergie de pompe(II.5). Les énergies maximales mises en jeu étaient :

$$\begin{cases} \xi_0(0) = 1\ mJ \\ \xi_i(0) = 100\ \mu J \\ \xi_1(L) = 4,5\ \mu J \end{cases} \tag{IV.31}$$

Les conditions expérimentales étaient les suivantes :

$$\begin{cases} L = 25\ mm \\ W_0 = 125\ \mu m \\ W_{iX} = W_{iY} = 87\ \mu m \\ \tau_i = \tau_p = 14\ ps \end{cases} \tag{IV.32}$$

Le calcul avec le modèle validé, en imposant $F_{t2,3} = 1$ car les impulsions de pompe et d'injection sont identiques, donne :

$$\xi_1^{th}(L = 25\ mm) = 14\ \mu J \tag{IV.33}$$

Cette valeur théorique est trois fois supérieure à la valeur expérimentale. L'accord est donc moins bon que pour nos nouvelles expériences. La forte instabilité de la source qui avait été alors utilisée ainsi que la mauvaise qualité spatiale des faisceaux peuvent expliquer cet écart.

IV.4 Conclusion

Nous avons réalisé un générateur de triplets de photons avec une source d'injection de meilleure qualité ; la conséquence directe est une génération de triplets plus efficace que la première expérience réalisée en 2004, et qui a pu être confrontée avec succès au modèle théorique. Notre dispositif permet de générer 3.10^{13} triplets de photons par impulsion, à partir de 7.10^{14} photons d'injection et de 10^{16} photons de pompe. La stabilité du dispositif devrait permettre d'entamer les études quantiques.

Chapitre V

Conception de l'expérience pour la mesure des corrélations quantiques des photons du triplet

V.1 Introduction

En se basant sur ce qui a été fait sur les photons jumeaux, deux études peuvent être envisagées. La première consiste à réaliser une expérience en régime quantique, comme du comptage de photon par exemple, nécessitant un fort taux de répétition et de faibles éclairements [46]. La seconde est une expérience en régime classique comme celle effectuée par Izo Abram et ses collaborateurs sur les photons jumeaux [26]. Etant donné la faible cadence de la source que nous utilisons, 5 Hz, la première possibilité n'est pas envisageable. Dans le cadre de notre collaboration avec le Laboratoire de Photonique et Nanostructures, Ariel Levenson et Kamel Bencheikh ont suggéré de considérer la seconde alternative. Le principe de la méthode est donné sur la figure V.1. Les trois photons du triplet, de longueurs d'onde λ_1, λ_2 et λ_3, sont issus de la scission d'un photon de longueur d'onde λ_0 réalisée dans le cristal non linéaire. Ils sont séparés spatialement, puis décalés temporellement les uns par rapport aux autres par l'ajout de deux retards variables, α_1 et α_2, et enfin recombinés dans un cristal non linéaire au sein duquel est réalisé le processus inverse de la génération de triplets de photons : la fusion des trois photons du triplet, générant ainsi un photon à la longueur d'onde λ_0.

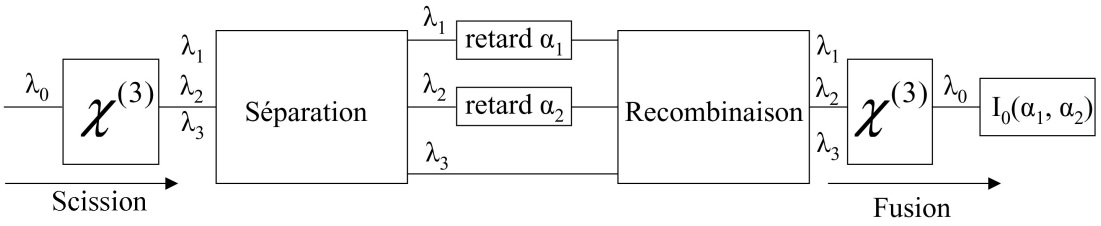


FIG. V.1 – *Principe de l'expérience de corrélation. Les trois photons du triplet sont séparés spatialement, décalés temporellement, puis recombinés dans un cristal non linéaire où s'effectue la fusion des trois photons.*

L'énergie générée lors de la scission est alors mesurée en fonctions du retard α_1 ou α_2. Les trois impulsions, à λ_1, λ_2 et λ_3, étant décalées temporellement, l'efficacité du processus de fusion varie selon les retards appliqués : elle est proportionnelle au recouvrement entre les impulsions tracées sur la figure V.2. L'énergie ξ_0 est maximale quand les impulsions sont parfaitement superposées, soit $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$, et décroît lorsque celles-ci sont décalées. En l'absence de corrélations quantiques entre les trois photons, la courbe attendue présente donc une forme en "cloche", atteignant son maximum pour les retards nuls : c'est une fonction de corrélation du troisième ordre, qui sera modélisée ultérieurement, mais dont on peut dire dès maintenant que son allure est similaire à celle d'une corrélation du second ordre (cf III.2.2).

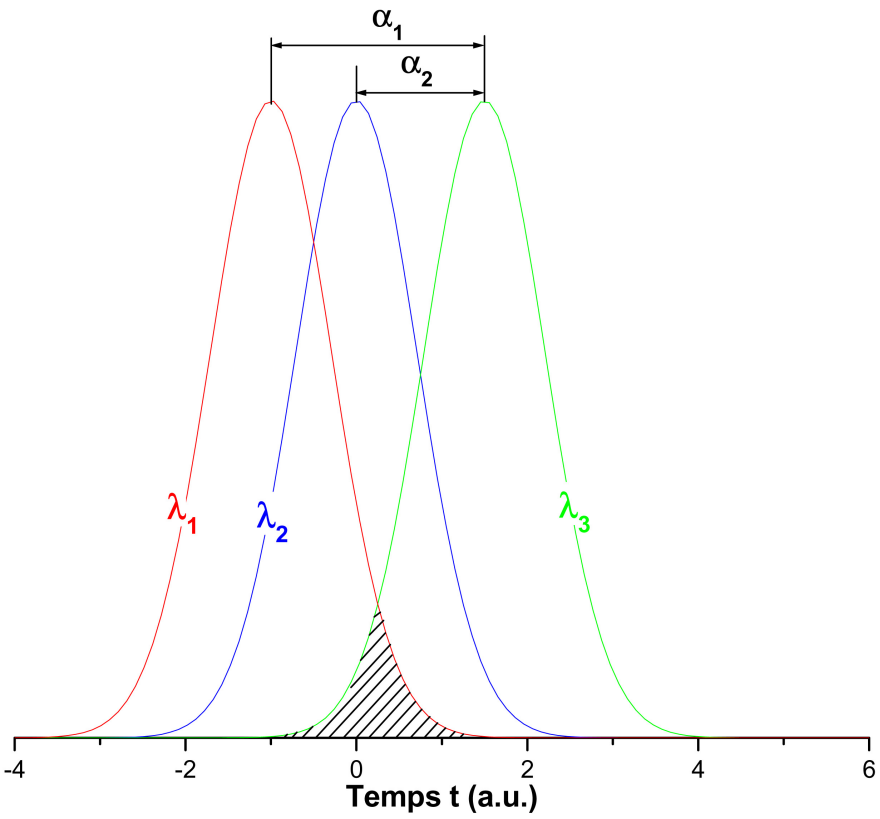


FIG. V.2 – *Profils temporels normalisés des trois impulsions décalées des retards α_1 et α_2 ; la zone hachurée correspond au recouvrement temporel des 3 impulsions.*

Par analogie avec les photons jumeaux [26], les corrélations entre les photons du triplet devraient se manifester par l'apparition d'un pic supplémentaire, très fin par rapport au fond continu, et centré sur $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$. Celui-ci est schématisé sur la figure V.3. Une explication simple consiste à dire que les photons participant à la fusion sont corrélés lorsque les retards sont nuls, car ils ont été produits à partir de la scission d'un même photon "parent" : une sur-intensité est alors générée. Pour des retards non nuls, la fusion implique des photons non corrélés entre eux, car issus de photons "parents" différents. L'éclairement généré est alors régi par l'optique classique.

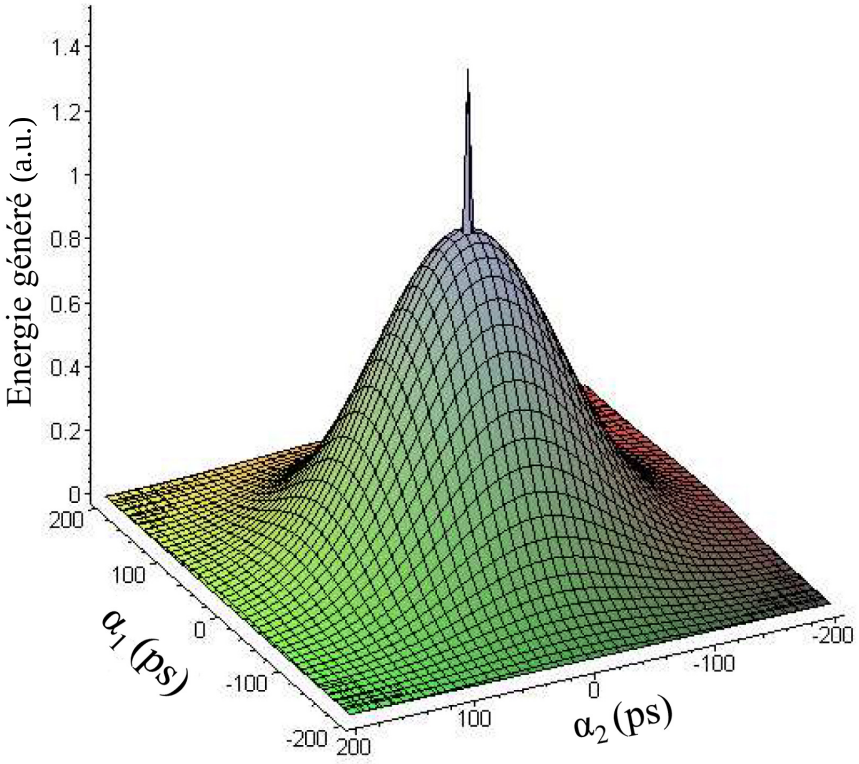


FIG. V.3 – *Fonction de corrélation schématique en trois dimensions attendue dans le cas des photons triplets ; l'énergie générée par le processus de recombinaison des trois photons est tracée en fonction des retards α_1 et α_2 entre les trois photons. Un pic supplémentaire, symptomatique des corrélations quantiques, doit apparaître sur le fond continu dû au caractère impulsionnel du laser.*

La largeur du fond continu est directement liée aux durées d'impulsion, elle sera donc de l'ordre de la centaine de picosecondes dans notre cas. Les photons étant émis par train d'onde, le pic de corrélation quantique possède une largeur non nulle, directement liée au temps de corrélation τ_c des triplets de photons. Le temps de corrélation quantique des photons jumeaux valant environ 200 fs [26], nous attendons un temps de corrélation des photons triplets du même ordre de grandeur, même si aucun calcul n'a encore été mené à ce jour. Pour observer ce phénomène, le temps de corrélation doit être plus petit que le temps de cohérence du laser de pompe : celui-ci est estimé à 2 ps pour le laser Nd :YAG que nous utilisons, il est donc un ordre de grandeur supérieur au temps de corrélation

attendu.

V.2 Différentes configurations possibles

Le triplet de photon généré par l'expérience décrite dans le chapitre IV est constitué d'un photon à $\lambda_1^+ = 1478,2\ nm$ et de deux photons à $\lambda_2^+ = \lambda_3^- = 1662,2\ nm$, polarisés orthogonalement, issus de la scission d'un photon à $\lambda_0^- = 532\ nm$. Ce choix stratégique n'avait pas été anodin ; les trois photons sont en effet séparables, en longueur d'onde ou en polarisation, rendant alors possible l'expérience de corrélation. L'équivalent de l'expérience d'Izo Abram sur les photons jumeaux consiste à recombiner les trois photons pour réaliser la somme de fréquence (SFG) cubique suivante :

$$\lambda_1^+ + \lambda_2^+ + \lambda_3^- \rightarrow \lambda_0^- \tag{V.1}$$

Ce processus est l'interaction inverse de la génération de triplets de photons car elle correspond à la fusion des trois photons du triplet, avec la même configuration de polarisation, donnant naissance à un photon à la longueur d'onde λ_0. Cette interaction est donc en accord de phase dans le même cristal que celui utilisé pour la génération de triplets de photons : la somme de fréquences sera donc réalisée selon l'axe (Ox) d'un cristal de KTP dont l'orientation sera ajustée pour réaliser l'accord de phase.

A partir des équations couplées (I.35), et en suivant la même démarche que celle explicitée dans la section III.2.2, l'énergie générée à λ_0 par le processus non linéaire, notée ξ_0, peut être exprimée dans le cadre de l'approximation de la pompe non dépeuplée par :

$$\xi_0\left(\alpha_1, \alpha_2\right) = \beta_0 \int_{-\infty}^{+\infty} p_1\left(t-\alpha_1\right) p_2\left(t-\alpha_2\right) p_3\left(t\right) dt \tag{V.2}$$

avec :

$$\beta_0 = \frac{\mu_0}{\epsilon_0} . \left(\frac{\chi_{eff}^{(3)} L}{\lambda_0}\right)^2 . \left(\frac{W_0}{W_1 W_2 W_3}\right)^2 . \frac{16}{n\left(\omega_0\right) n\left(\omega_1\right) n\left(\omega_2\right) n\left(\omega_3\right)} \tag{V.3}$$

où p_i est la puissance instantanée du faisceau à λ_i, α_1 et α_2 sont les retards appliqués, et L est la longueur du cristal. Le coefficient effectif $\chi_{eff}^{(3)}$ est identique à celui sollicité lors de la génération de triplets, soit $\chi_{24}^{(3)} = 14,6.10^{-22}\ m^2/V^2$ [42]. W_i et $n\left(\omega_i\right)$ sont respectivement le rayon à $1/e^2$ et l'indice de réfraction de l'onde à λ_i. La double réfraction étant nulle sur l'axe principal (Ox), il n'y a pas lieu d'introduire ici une fonction d'atténuation.

D'autres expériences de recombinaison peuvent être également envisagées en ne considérant que deux des trois photons du triplet. Elles devraient également permettre d'observer un pic de corrélation, même si celui-ci est certainement moins intense que lors de la recombinaison à trois photons. Elles correspondent aux trois sommes de fréquences quadratiques suivantes, générant les longueurs d'onde λ_A, λ_B et λ_C :

$$\begin{cases} \text{A} & : \lambda_1^+ + \lambda_2^- \rightarrow \lambda_A^- \\ \text{B} & : \lambda_1^+ + \lambda_3^- \rightarrow \lambda_B^- \\ \text{C} & : \lambda_2^+ + \lambda_3^- \rightarrow \lambda_C^- \end{cases} \tag{V.4}$$

avec :

$$\begin{cases} \text{A} & : \dfrac{1}{\lambda_A} = \dfrac{1}{\lambda_1} + \dfrac{1}{\lambda_2} \\ \text{B} & : \dfrac{1}{\lambda_B} = \dfrac{1}{\lambda_1} + \dfrac{1}{\lambda_3} \\ \text{C} & : \dfrac{1}{\lambda_C} = \dfrac{1}{\lambda_2} + \dfrac{1}{\lambda_3} \end{cases} \tag{V.5}$$

La configuration de polarisation choisie, pour laquelle les deux photons incidents ont des polarisations orthogonales, permet de réaliser les processus de somme de fréquences dans KTP, car le coefficient effectif associé est non nul : pour $\lambda_1 = 1478,2\ nm$ et $\lambda_2 = \lambda_3 = 1662,2\ nm$, les longueurs d'onde générées valent d'après (V.5), $\lambda_A = \lambda_B = 782\ nm$ et $\lambda_C = 831\ nm$. Les directions d'accord de phase dans le plan (xOz) de KTP correspondant aux interactions (A), (B) et (C), notées respectivement θ_A, θ_B et θ_C, sont calculées à partir de (I.45) et des équations de dispersion de KTP [43] :

$$\begin{cases} \theta_A = \theta_B = 51,60^{\text{o}} \\ \theta_C = 52,27^{\text{o}} \end{cases} \tag{V.6}$$

Les directions d'accord de phase étant très proches, nous utiliserons un seul cristal de KTP, taillé à $\varphi = 0^{\text{o}}$ et $\theta = 52^{\text{o}}$, pour réaliser les trois processus de recombinaison à deux photons. L'orientation de celui-ci sera alors ajustée pour réaliser l'accord de phase propre à chaque configuration. Ce cristal a une longueur de 18 mm.

Les énergies générées, ξ_A, ξ_B et ξ_C, par les expériences A, B et C respectivement, peuvent être exprimées en fonction des puissances instantanées p_1, p_2 et p_3 des faisceaux à λ_1, λ_2 et λ_3. En suivant la démarche détaillée dans la section III.2.2, il vient :

$$\begin{cases} \xi_A(\alpha_1) = \beta_A \displaystyle\int_{-\infty}^{+\infty} p_1(t-\alpha_1)\, p_2(t)\, dt \\ \xi_B(\alpha_1) = \beta_B \displaystyle\int_{-\infty}^{+\infty} p_1(t-\alpha_1)\, p_3(t)\, dt \\ \xi_C(\alpha_2) = \beta_C \displaystyle\int_{-\infty}^{+\infty} p_2(t-\alpha_1)\, p_3(t)\, dt \end{cases} \tag{V.7}$$

avec :

$$\begin{cases} \beta_A = \sqrt{\dfrac{\mu_0}{\epsilon_0}}.h\left(\rho_A\right).\left(\dfrac{\chi_{eff}^{(A)}L}{\lambda_A}\right)^2.\left(\dfrac{W_A}{W_1W_2}\right)^2.\dfrac{4\pi}{n\left(\omega_A\right)n\left(\omega_1\right)n\left(\omega_2\right)} \\ \beta_B = \sqrt{\dfrac{\mu_0}{\epsilon_0}}.h\left(\rho_B\right).\left(\dfrac{\chi_{eff}^{(B)}L}{\lambda_B}\right)^2.\left(\dfrac{W_B}{W_1W_3}\right)^2.\dfrac{4\pi}{n\left(\omega_B\right)n\left(\omega_2\right)n\left(\omega_3\right)} \\ \beta_C = \sqrt{\dfrac{\mu_0}{\epsilon_0}}.h\left(\rho_C\right).\left(\dfrac{\chi_{eff}^{(C)}L}{\lambda_C}\right)^2.\left(\dfrac{W_C}{W_2W_3}\right)^2.\dfrac{4\pi}{n\left(\omega_C\right)n\left(\omega_2\right)n\left(\omega_3\right)} \end{cases} \tag{V.8}$$

où $n\left(\omega_i\right)$ et W_i sont respectivement l'indice de réfraction et le rayon pris à $1/e^2$ du faisceau à λ_i, avec $i \equiv \{A, B, C, 1, 2, 3\}$. L est la longueur du cristal de KTP utilisé, $\chi_{eff}^{(j)}$ est le coefficient effectif de l'expérience j, avec $j \equiv \{A, B, C\}$. $h\left(\rho_j\right)$ est la fonction d'atténuation due à la double réfraction, où ρ_j est l'angle de double réfraction donné par (III.4) [59].

Chaque expérience de recombinaison à deux photons devrait correspondre à une "coupe" de la courbe en trois dimension V.3, selon un plan à α_1 ou α_2 constant. La courbe en deux dimensions obtenue pour chaque expérience devrait donc présenter une forme en "cloche", surmontée d'un pic symptomatique des corrélations ; une représentation en est donnée sur la figure V.4.

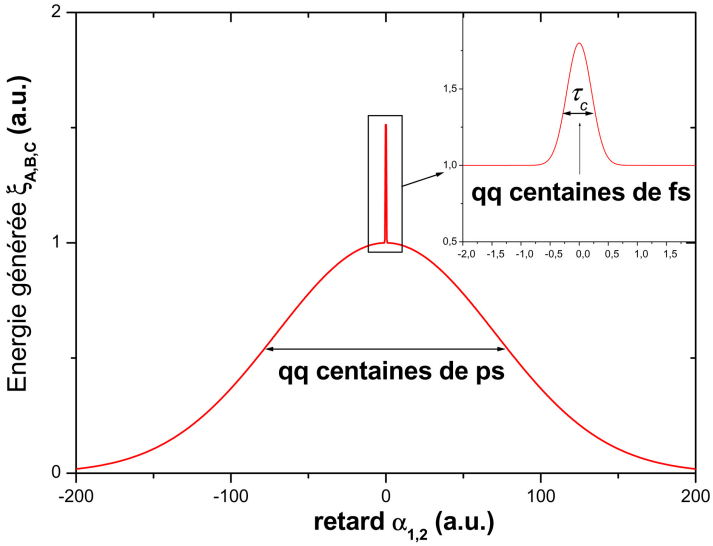


FIG. V.4 – *Fonction de corrélation en deux dimensions attendue dans le cas des photons triplets ; l'énergie générée par le processus de recombinaison à deux photons est tracée en fonction des retards α_1 ou α_2 entre les photons. Un pic supplémentaire doit apparaître sur le fond continu dû au caractère impulsionnel du laser.*

V.3 Dispositif expérimental

Le schéma de l'expérience est donné sur la figure V.5. La séparation des trois photons du triplet est effectuée en deux étapes : le miroir dichroïque M_s sépare les faisceaux

à $\lambda_1^+ = 1478,2\ nm$ et à $\lambda_2^+ = \lambda_3^- = 1662,2\ nm$, le cube polariseur CP séparant les faisceaux à λ_2^+ et λ_3^- polarisés orthogonalement. Par l'intermédiaire des trois prismes, P_1, P_2 et P_3, les trois faisceaux sont décalés temporellement avant d'être recombinés par le cube polariseur CP' et le miroir M_s'. La lentille L_1 focalise le faisceau dans le cristal non linéaire C_{NL}. Le filtre F coupe les composantes infrarouges à λ_1, λ_2 et λ_3 et transmet toutes les composantes visibles, à λ_0, λ_A, λ_B et λ_C susceptibles d'être générées dans les quatre configurations de corrélation choisies. Le monochromateur permet enfin d'accroître le filtrage spectral. L'énergie ξ_g générée par la somme de fréquences, à la longueur d'onde λ_g, $g = \{0, A, B, C\}$, est mesurée par une photodiode silicium. Deux fines lames de verre permettent de prélever une partie des faisceaux à λ_1 et $\lambda_2 = \lambda_3$ pour s'affranchir des fluctuations des énergies ξ_1, ξ_2 et ξ_3, à λ_1, λ_2 et λ_3 respectivement.

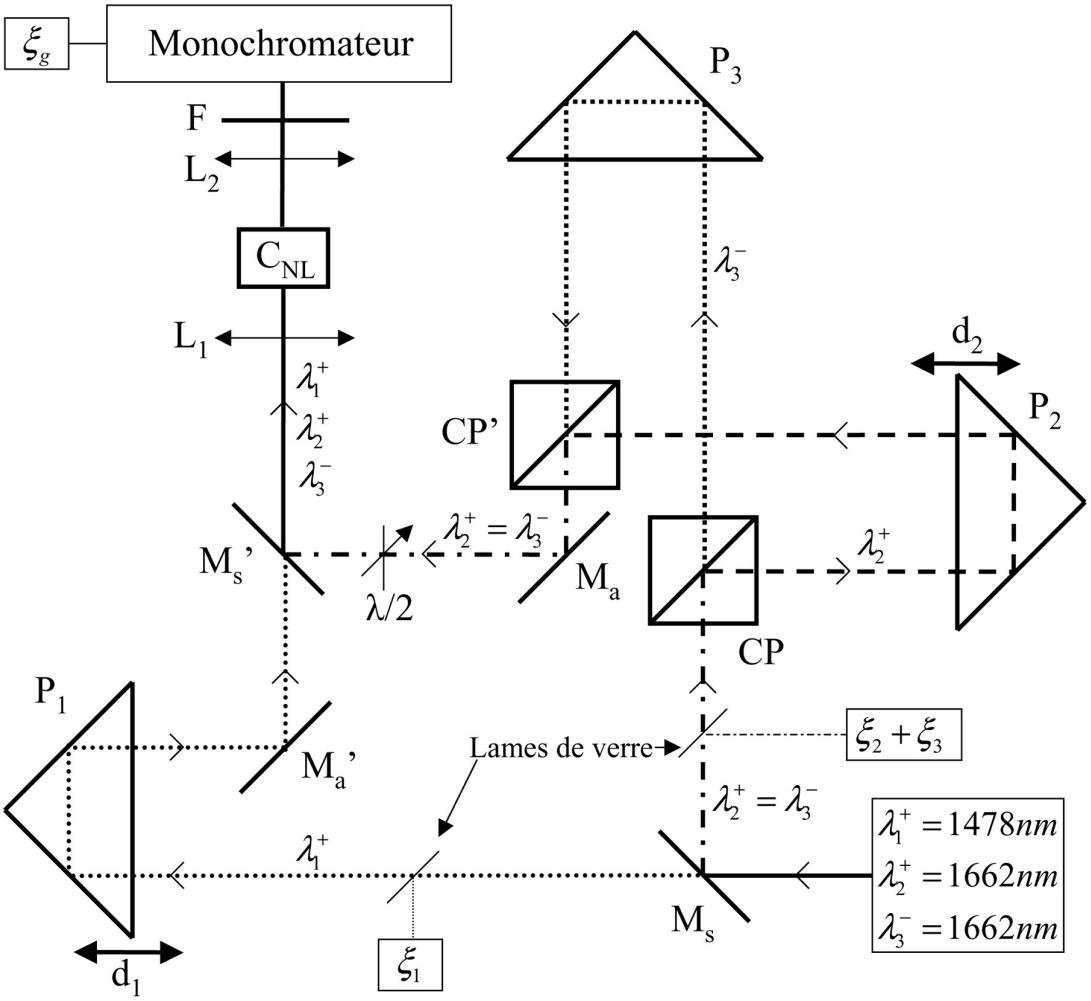


FIG. V.5 – *Montage utilisé pour l'étude des corrélations des triplets de photons. Les trois photons du triplet sont séparés sur trois bras par le miroir M_s et par le cube polariseur CP. Après avoir été retardés par les prismes P_1, P_2 et P_3, les trois photons sont recombinés par le cube polariseur CP' et le miroir M_s', puis focalisés par la lentille L_1 dans un cristal pour réaliser les recombinaisons de photons. L'énergie générée ξ_g est mesurée à la sortie du monochromateur.*

Ce dispositif devrait permettre de réaliser l'ensemble des expériences de recombinaison de photons envisagées dans la section V.2. Dans le cas de la recombinaison à trois photons, C_{NL} est un cristal de KTP taillé selon l'axe (Ox). La lame $\lambda/2$ doit alors être positionnée sur une ligne neutre pour que les trois photons restent dans la même configuration de polarisation que lors de leur génération. Dans le cas des recombinaisons à deux photons, C_{NL} est un cristal de KTP taillé à $\varphi = 0^o$ et $\theta = 52^o$; le faisceau n'intervenant pas dans la recombinaison à deux photons doit être coupé par un écran amovible. L'orientation de la lame $\lambda/2$ doit être ajustée pour chaque expérience (A), (B) et (C), afin de respecter la configuration de polarisation (V.4). L'orientation du cristal est également ajustée pour réaliser l'accord de phase. La longueur d'onde centrale du monochromateur est réglée à la valeur λ_g, selon le processus de recombinaison considéré.

Les déplacements d_1 et d_2 des prismes P_1 et P_2 permettent d'appliquer sur un aller-retour les retards $\alpha_1 = 2.d_1/c$ et $\alpha_2 = 2.d_2/c$ respectivement. La précision Δd des platines de translation utilisées est égale à 1 μm. Les retards associés sont donc réglés avec une précision de $2\Delta d/c = 6\ fs$; cette valeur est bien inférieure à la largeur du pic de corrélation, de l'ordre de la centaine de femtosecondes.

Enfin, les miroirs dichroïques M_s et M'_s ainsi que les cubes polariseurs CP et CP' ont un taux de réjection de l'ordre de 10^{-2}. Chaque composante passant deux fois dans un élément séparateur, le taux de réjection total est estimé à 10^{-4} ; cette valeur signifie que, par exemple, seulement $0,01$ % de l'énergie à λ_2 et λ_3 passe par le bras constitué du prisme P_1 au lieu de passer par les bras P_2 et P_3. Nous pouvons donc considérer que le déplacement des prismes induisent des retards "purs" pour chaque photon du triplet.

V.4 Premières expériences

Nos premiers tests du corrélateur ont concerné les scenarii de recombinaison à deux photons, car elles sont bien plus efficaces que la recombinaison à trois photons. L'expérience (C) décrite par (V.4) est en outre particulièrement intéressante, car elle implique les photons à $\lambda_2^+ = 1662,2\ nm$ et $\lambda_3^- = 1662,2\ nm$. Ces photons correspondent en effet aux deux ondes d'injection participant au processus de différence de fréquences, $\lambda_0^- - \lambda_2^+ - \lambda_3^- \rightarrow \lambda_1^+$, générant les triplets de photons. Les ondes à λ_2 et λ_3 sont donc présentes en entrée du cristal de KTP générant les triplets de photons, et sont amplifiées lors du processus de différence de fréquences (cf fig. II.3). Deux cas de figure sont alors envisageables.

Soit la courbe de corrélation (C) est tracée alors que le faisceau de pompe à $\lambda_0 = 532\ nm$ servant à la génération de triplets est coupé par un écran : il n'y a alors pas de génération de triplets de photons et le processus de recombinaison à deux photons n'implique que les photons d'injection à $\lambda_2^+ = 1662,2\ nm$ et $\lambda_3^- = 1662,2\ nm$. La courbe tracée est donc semblable à celle obtenue lors de la caractérisation temporelle

par autocorrélation du faisceau à $1662,2\ nm$ (fig. III.19) : elle ne contient que la courbe en "cloche" due au caractère impulsionnel du laser. Soit la courbe de corrélation (C) est tracée alors que la génération de triplets de photons est effective ; les photons générés par le processus de différence de fréquences participent alors au processus de recombinaison. Un pic de faible largeur, symptomatique des corrélations quantiques, devrait se superposer à la courbe précédente pour un retard α_2 nul.

La superposition des courbes obtenues dans les deux cas de figure permettra, d'une part de repérer la position de la ligne à retard pour laquelle le retard α_2 est nul, et d'autre part de supprimer les éventuelles fluctuations du profil temporel du faisceau à $1662,2\ nm$. Cette technique devrait donc augmenter nos chances de discerner le pic de corrélation.

La première courbe de corrélation a été tracée en plusieurs étapes, en réduisant progressivement le pas $\Delta\alpha_2$ entre deux retards successifs. La figure V.6 montre les points obtenus. La mesure a d'abord été effectuée avec un pas large (fig. V.6-a), $\Delta\alpha_2 = 60\ ps$, afin de délimiter la zone où la fonction de corrélation est maximale, encadrée sur la figure. Une deuxième acquisition a ensuite été réalisée avec un pas intermédiaire (fig. V.6-b), $\Delta\alpha_2 = 6\ ps$, limitée à la zone définie lors de l'expérience précédente. Bien qu'il soit difficile d'identifier une zone d'étude, nous pouvons identifier deux points, entourés sur la figure, qui semblent ressortir du reste de la courbe. La troisième acquisition s'est enfin concentrée autour de ces deux points (fig. V.6-c) avec un pas plus fin, $\Delta\alpha_2 = 0,6\ ps$, et en réalisant deux acquisitions pour chaque retard, une avec génération de triplets, et l'autre sans génération de triplets. Chaque point de mesure est moyenné sur 200 impulsions et normalisé par rapport à l'énergie $\xi_2 + \xi_3$ en entrée du corrélateur.

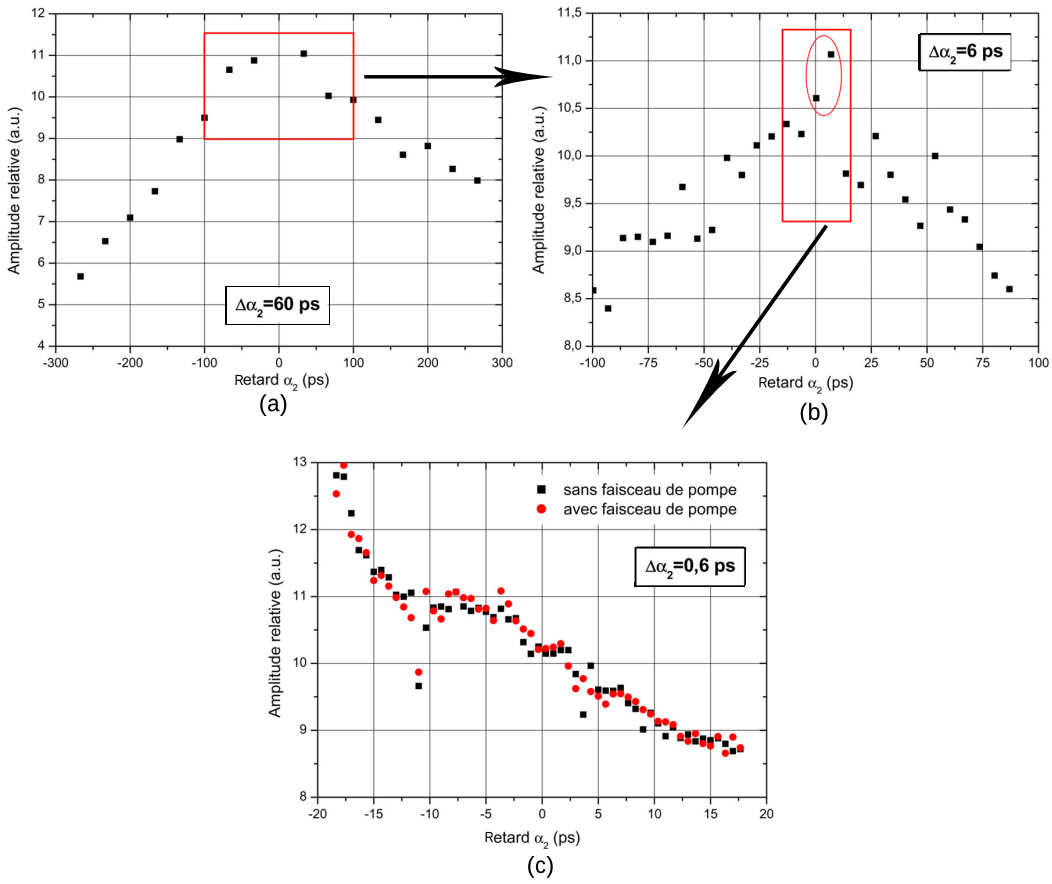


FIG. V.6 – *Courbes de corrélation dans le cas de la recombinaison des deux photons d'injection du triplet, $\lambda_2^+ + \lambda_3^- \rightarrow \lambda_C^-$, obtenues avec différents pas $\Delta\alpha_2$ entre deux retards successifs : $\Delta\alpha_2 = 60$ ps (a), $\Delta\alpha_2 = 6$ ps (b) et $\Delta\alpha_2 = 600$ fs (c). La zone d'étude est réduite progressivement sur le maximum de la courbe. L'acquisition (c) a été tracée avec production de triplets de photons, et sans productions de triplets de photons.*

La figure (V.6-c) ne permet malheureusement pas de conclure à un net détachement de la courbe tracée avec génération de triplets par rapport à la courbe tracée sans génération de triplets. Cette dernière courbe ne présente pas non plus un maximum prononcé permettant de mener plus loin l'expérience en diminuant encore le pas $\Delta\alpha_2$. En effet, la dernière valeur utilisée, 600 fs, est de l'ordre de grandeur de la largeur du pic de corrélation ; elle est donc encore trop grande pour une observation satisfaisante de celui-ci.

V.5 Conclusion

En se basant sur le générateur de triplets de photons décrit au chapitre précédent, l'expérience permettant l'étude des corrélations a pu être conçue et mise en place, sur la base d'une somme de fréquences à trois ondes. Plusieurs configurations ont été envisagées, impliquant deux ou trois photons du triplet. Une première réalisation expérimentale a été tentée, sans toutefois pouvoir discerner le pic de corrélation attendu, du fait d'une résolution temporelle probablement insuffisante. Les mesures sont toujours en cours.

Chapitre VI

Etude de TiO_2-rutile pour la réalisation d'interactions cubiques

C'est jusqu'à maintenant KTP qui a été utilisé et qui a donné les meilleures performances, que ce soit pour la THG ou pour la génération de triplets de photons. Toutefois, une activité de veille est maintenue afin de trouver de nouveaux matériaux encore plus performants. Nous avons identifié le dioxyde de Titane, TiO_2, dans sa phase rutile, comme étant très prometteur. Il est à noter que dans KTP ($KTiOPO_4$), c'est aussi la liaison chimique titane-oxygène, qui est responsable de la forte non-linéarité, KTP pouvant être considéré comme un TiO_2 "habillé" d'une matrice de phosphate.

VI.1 Données bibliographiques

Le dioxyde de titane est un matériau naturel. Son extraction sert essentiellement à la production de titane utilisé dans les alliages mécaniques. Le dioxyde de titane existe sous trois phases, caractérisées par trois symétries d'orientation différentes données dans l'annexe B, le rutile, l'anatase et le brookite. Nous nous intéresserons ici au rutile, qui est la phase la plus courante, ses principales propriétés étant données dans l'annexe B. Le rutile est un matériau centrosymétrique, ce qui le rend très intéressant pour réaliser des processus de conversion de fréquences cubiques, car aucune cascade quadratique ne peut venir polluer l'interaction cubique. L'annexe B donne la courbe de transmission d'un échantillon de rutile. Son domaine de transparence, de 430 nm à 6200 nm, comprend la gamme de longueurs d'onde considérée lors des précédentes expériences sur KTP. Le rutile est un milieu uniaxe positif, soit $n_o < n_e$, l'indice moyen étant assez élevé, de l'ordre de $2,5$. La conséquence directe est l'existence de forts coefficients de réflexion de Fresnel, de l'ordre de 20 % par face.

Comme cela a déjà été évoqué, le calcul des conditions d'accord de phase d'un processus optique non linéaire nécessite la connaissance précise de la dispersion des indices de réfraction avec la longueur d'onde. Trois couples d'équations $\{n_o(\lambda), n_e(\lambda)\}$ ont été identifiés dans la littérature [62–64], établis à partir de mesures de minimum de déviation

sur prisme, leurs domaines de validité étant similaires, de la longueur d'onde de coupure visible à environ 1500 nm. Ces équations sont données dans l'annexe B. Nous verrons qu'aucune de ces équations ne permet de décrire de façon satisfaisante les propriétés d'accord de phase des cristaux de rutile que nous avons étudiés.

La loi de Miller, qui est développée dans le cadre du modèle de Lorentz, établit le lien entre l'indice de réfraction et les différents ordres de la non-linéarité [65]. Dans un milieu centrosymétrique, la loi de Miller s'écrit :

$$\chi^{(3)}_{ijkl} = \delta_{ijkl}\left(n^2_{ii}-1\right)\left(n^2_{jj}-1\right)\left(n^2_{kk}-1\right)\left(n^2_{ll}-1\right) \tag{VI.1}$$

Les indices cartésiens i, j, k et l sont relatifs aux coordonnées x, y ou z du repère optique. δ_{ijkl} est l'indice de Miller qui dépend des liaisons chimiques du cristal et qui est associé à $\chi^{(3)}_{ijkl}$, qui est un élément quelconque des 81 éléments indépendants du tenseur de susceptibilité électrique de troisième ordre. Les $n_{\alpha\alpha}$ sont les indices principaux de réfraction. L'équation (VI.1) montre que la non-linéarité cubique est d'autant plus grande que les indices de réfraction sont élevés.

Quelques mesures de non-linéarité cubique de TiO_2 ont été effectuées par effet Kerr [66–68] : les valeurs publiées varient entre $1,5.10^{-21}\ m^2/V^2$ [66] et $12,4.10^{-21}\ m^2/V^2$ [68], sachant que ces articles de références ne permettent pas de savoir quels coefficients du tenseur $\chi^{(3)}$ sont impliqués.

Enfin, une expérience de Génération de Troisième Harmonique (THG) en accord de phase a été réalisée [69]. Même si aucune mesure d'efficacité n'a été effectuée, cette expérience montre que la biréfringence et la dispersion en longueur d'onde des indices de réfraction de TiO_2 permettent de réaliser l'accord de phase.

VI.2 Expression du coefficient effectif

Pour une interaction optique non linéaire cubique réalisée dans un cristal uniaxe, la relation d'accord de phase peut s'écrire sous la forme suivante compte tenu de (I.41) :

$$n^{o/e}\left(\omega_0\right)\omega_0 - n^{o/e}\left(\omega_1\right)\omega_1 - n^{o/e}\left(\omega_2\right)\omega_2 - n^{o/e}\left(\omega_3\right)\omega_3 = 0 \tag{VI.2}$$

avec $\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$. Selon la polarisation des ondes mises en jeu, les nappes ordinaire (o) ou extraordinaire (e) de la surface des indices sont sollicitées. La configuration de polarisation est imposée par le type d'accord de phase : les 7 types possibles sont donnés par les équations (I.44). Le coefficient effectif associé à un type particulier, s'établit à partir de l'équation (I.37) ; le calcul peut être effectué par le formalisme du tenseur champ en appliquant la relation suivante [70] :

$$\chi^{(3)}_{eff} = \sum_{i,j,k,l} F_{ijkl}\cdot\chi_{ijkl} \tag{VI.3}$$

avec :

$$F_{ijkl} = e_i^{o/e}(\omega_0).e_j^{o/e}(\omega_1).e_k^{o/e}(\omega_2)\,e_l^{o/e}(\omega_3) \tag{VI.4}$$

où i, j, k et l se réfèrent aux directions du repère optique (O, x, y, z) ; $e_\alpha^{o/e}$, avec $\alpha = \{i, j, k, l\}$, est la coordonnée cartésienne α du vecteur unitaire du champ électrique ordinaire ou extraordinaire. Pour un milieu uniaxe, les coordonnées des vecteurs champs électriques $\vec{e}^o$ et $\vec{e}^e$ sont données par les équations (I.20) et (I.21). Enfin, d'après le tableau de l'annexe A, le tenseur $\chi^{(3)}$ possède 4 termes non nuls et indépendants dans la classe $\frac{4}{m}mm$ et dans l'approximation de Kleinmann. Ceux-ci sont rappelés ci-dessous :

$$\begin{cases} \chi_{xxxx} = \chi_{yyyy}\,(\equiv \chi_{11}) \\ \chi_{xxzz} = \chi_{yzxz} = \chi_{xzzx} = \chi_{yyzz} = \chi_{yzyz} = \chi_{yzzy} \\ \qquad = \chi_{zyyz} = \chi_{zyzy} = \chi_{zzyy} = \chi_{zxxz} = \chi_{zxzx} = \chi_{zzxx}\,(\equiv \chi_{16}) \\ \chi_{xxyy} = \chi_{xyxy} = \chi_{xyyx} = \chi_{yxxy} = \chi_{yxyx} = \chi_{yyxx}\,(\equiv \chi_{18}) \\ \chi_{zzzz}\,(\equiv \chi_{33}) \end{cases} \tag{VI.5}$$

Compte tenu de (VI.3) et (VI.5), le coefficient effectif s'écrit :

$$\chi_{eff}^{(3)} = A_{11}.\chi_{11} + A_{16}.\chi_{16} + A_{18}.\chi_{18} + A_{33}.\chi_{33} \tag{VI.6}$$

avec :

$$\begin{cases} A_{11} = F_{xxxx} + F_{yyyy} \\ A_{16} = F_{xxzz} + F_{yzxz} + F_{xzzx} + F_{yyzz} + F_{yzyz} + F_{yzzy} \\ \qquad + F_{zyyz} + F_{zyzy} + F_{zzyy} + F_{zxxz} + F_{zxzx} + F_{zzxx} \\ A_{18} = F_{xxyy} + F_{xyxy} + F_{xyyx} + F_{yxxy} + F_{yxyx} + F_{yyxx} \\ A_{33} = F_{zzzz} \end{cases} \tag{VI.7}$$

Compte tenu de (VI.4), (VI.6), (I.20) et (I.21), il apparaît alors que les sept types d'accord de phase sont décrits par trois expressions du coefficient effectif.

Pour le type I, il s'écrit :

$$\begin{aligned} \chi_{eff}^{(3)} = &+ \frac{1}{4}\left[\cos(\theta - \rho_1(\theta))\cos(\theta - \rho_2(\theta))\cos(\theta - \rho_3(\theta))\sin(4\varphi)\right].\chi_{11} \\ &- \frac{3}{4}\left[\cos(\theta - \rho_1(\theta))\cos(\theta - \rho_2(\theta))\cos(\theta - \rho_3(\theta))\sin(4\varphi)\right].\chi_{18} \end{aligned} \tag{VI.8}$$

où ρ_α est l'angle de double réfraction, à la longueur d'onde λ_α, donné par (I.22).

Les types II, III et IV ont la même expression du coefficient effectif :

$$\begin{aligned}\chi_{eff}^{(3)} = &+ \frac{1}{2}\left[\cos\left(\theta - \rho_l\left(\theta\right)\right)\cos\left(\theta - \rho_m\left(\theta\right)\right)\sin^2\left(2\varphi\right)\right].\chi_{11} \\ &+ \left[\sin\left(\theta - \rho_l\left(\theta\right)\right)\sin\left(\theta - \rho_m\left(\theta\right)\right)\right]\chi_{16} \\ &+ \frac{1}{2}\left[\cos\left(\theta - \rho_l\left(\theta\right)\right)\cos\left(\theta - \rho_m\left(\theta\right)\right)\left(3\cos^2\left(2\varphi\right) - 1\right)\right].\chi_{18}\end{aligned} \tag{VI.9}$$

avec $\{l, m\} \equiv \{1, 2\}$ pour le type II, $\{l, m\} \equiv \{1, 3\}$ pour le type III et $\{l, m\} \equiv \{2, 3\}$ pour le type IV.

Les types V, VI et VII ont également une expression analogue du coefficient effectif :

$$\begin{aligned}\chi_{eff}^{(3)} = &- \frac{1}{4}\left[\cos\left(\theta - \rho_l\left(\theta\right)\right)\sin\left(4\varphi\right)\right].\chi_{11} \\ &+ \frac{3}{4}\left[\cos\left(\theta - \rho_l\left(\theta\right)\right)\sin\left(4\varphi\right)\right].\chi_{18}\end{aligned} \tag{VI.10}$$

avec $l \equiv 1$ pour le type V, $l \equiv 2$ pour le type VI et $l \equiv 3$ pour le type VII.

VI.3 Mesure des propriétés d'accord de phase par la méthode du cylindre

VI.3.1 Principe de la méthode

Le calcul des propriétés d'accord de phase nécessite la connaissance précise des équations de dispersion en longueur d'onde des indices de réfraction. Typiquement, une direction d'accord de phase peut être calculée à 1° près si les indices de réfraction sont connus à 10^{-4} près. La méthode la plus courante pour déterminer des indices de réfraction est la mesure du minimum de déviation par un prisme. Compte tenu de la précision requise, cette technique souffre de deux inconvénients majeurs : elle nécessite un assez gros volume de matière afin de pouvoir tailler plusieurs prismes centimétriques, et elle nécessite un dispositif d'imagerie non standard, à base d'une matrice $InGaAs$ par exemple, pour les longueurs d'onde supérieures à $1,1\ \mu m$.

Une méthode alternative a été développée dans le groupe de Benoît Boulanger : elle consiste à mesurer directement les propriétés d'accord de phase en utilisant un échantillon de géométrie cylindrique ou sphérique, la précision de mesure étant de l'ordre de $0,5°$. L'évolution des directions d'accord de phase des différents types en fonction de la longueur d'onde permet alors de déterminer les valeurs relatives des indices principaux de réfraction avec une précision de l'ordre de 10^{-5} [71]. Il est important de rappeler ici que les directions d'accord de phase ne dépendent que des valeurs relatives des indices de réfraction principaux : n_x/n_y, n_x/n_z, n_y/n_z dans le cas d'un cristal biaxe et n_o/n_e dans le cas d'un uniaxe. L'utilisation d'un échantillon cylindrique ou sphérique présente l'avantage de pouvoir tourner l'échantillon tout en restant en incidence normale. Une grande plage de

longueur d'onde est alors accessible car le débattement angulaire est infini, contrairement à des mesures effectuées sur un échantillon parallélépipédique.

Le rutile étant un uniaxe, la surface des indices présente une symétrie de révolution autour de l'axe (Oz), comme expliqué dans la section (I.2.4). Ainsi, un seul degré de rotation autour de n'importe quel axe orthogonal à (Oz), permet de décrire les propriétés d'accord de phase. Nous avons fabriqué un cylindre dont l'axe de rotation est confondu avec l'axe (Oy), permettant ainsi de décrire le plan (xOz). Par contre, le choix du cylindre a une limitation, car nous ne pouvons étudier que les interactions optiques non linéaires dont le coefficient effectif est non nul dans le plan du cylindre ; la réalisation d'un cylindre est par contre beaucoup plus simple que celle d'une sphère, et la seule étude du plan (xOz) nous suffit dans le cadre de ce travail.

La méthode d'usinage d'un cylindre poli sur la tranche à partir d'un échantillon parallélépipédique a été développé au laboratoire par Bertrand Ménaert [60]. Le rutile est non hygroscopique et possède une dureté importante, de l'ordre de $6,5$ sur l'échelle de Mohr, ce qui facilite son usinage. Le schéma du dispositif d'usinage est donné sur la figure VI.1.

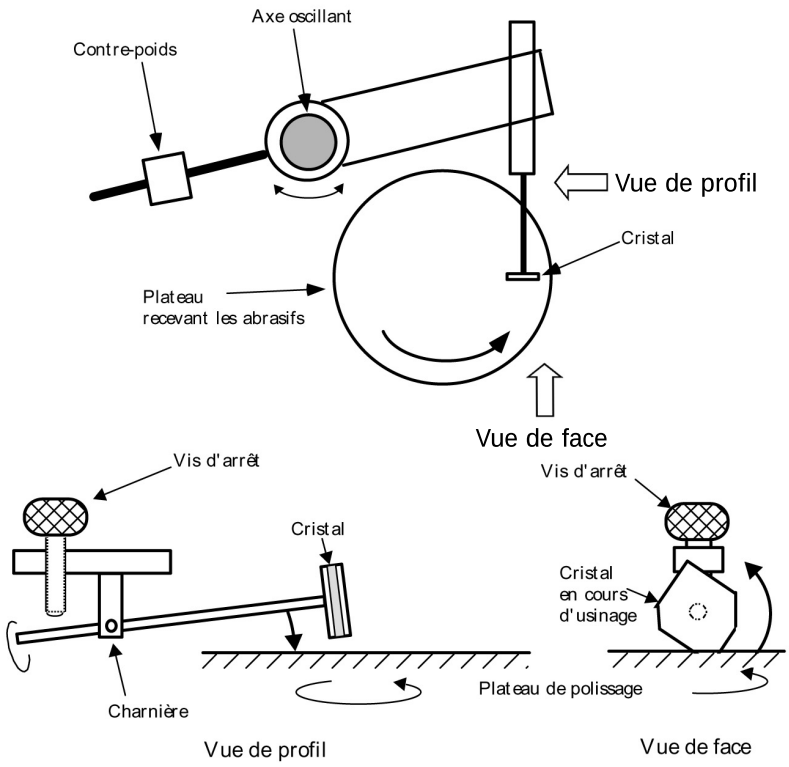


FIG. VI.1 – *Dispositif d'usinage d'un échantillon cylindrique. L'axe oscillant déplace le cristal sur le plateau tournant (haut) ; le cristal est entraîné en rotation et descendu progressivement grâce à la vis d'arrêt (bas-gauche) et s'use progressivement (bas-droite) [60].*

Le parallélépipède de départ nécessite une préparation spécifique. La face orthogonale à l'axe de révolution choisi, en l'occurrence l'axe (Oy), est usinée en contrôlant son

orientation aux rayons X, avec une précision de l'ordre de $0,1^o$. Le cristal est ensuite collé sur cette face. Par l'intermédiaire du bras oscillant, l'échantillon se déplace sur le plateau tournant recevant les abrasifs de différentes granulométries. Le cristal est mis en rotation par un moteur électrique et vient en contact du plateau pour s'user progressivement. La vis d'arrêt permet de contrôler la descente du cylindre. L'échantillon s'use jusqu'à atteindre une forme cylindrique ; le poli est alors optimisé en diminuant progressivement la granulométrie des abrasifs. Nous sommes partis d'un cristal de rutile acheté aux Etats-Unis à la société *MTI Corporation* : son épaisseur était de 5 mm dans la direction (Oy) et d'une section de 10 $mm * 10$ mm dans le plan (xOz). L'usinage a été réalisé dans l'équipe par Bertrand Ménaert et Jérôme Debray. Les premières tentatives d'usinage ont conduit à l'obtention d'un ellipsoïde dont les axes correspondaient exactement aux axes (Ox) et (Oz) du rutile. Nous en avons alors déduit que cette géométrie résultait directement de l'anisotropie de dureté de TiO_2. Bertrand Ménaert a alors proposé de "prendre en sandwich" le cristal avec deux lames de verre de façon à imposer une usure isotrope. Cette technique a donné un excellent résultat, avec l'obtention d'un cylindre de 8 mm de diamètre, avec une acylindricité inférieure à $0,5$ % et un poli de l'ordre de $\lambda/10$ (figure VI.2).

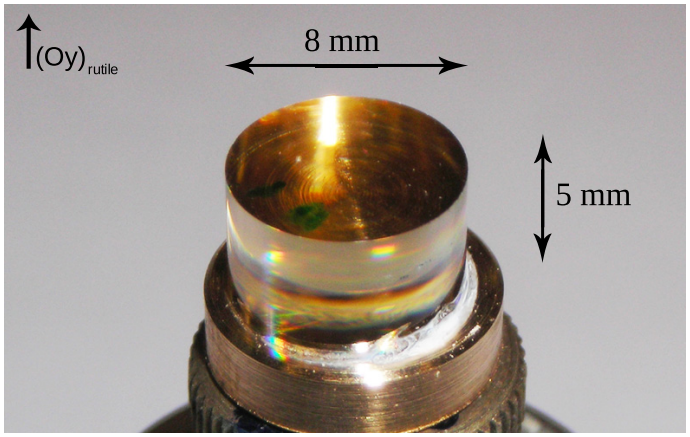


FIG. VI.2 – *Photo du cylindre de 8 mm de diamètre de rutile, dont l'axe de rotation est confondu avec l'axe (Oy) du repère optique.*

VI.3.2 Etude de l'accord de phase

Nous avons choisi la THG de type II, $\lambda^o + \lambda^e + \lambda^e \rightarrow (\lambda/3)^o$ pour mesurer les propriétés d'accord de phase. Cette interaction présente en effet un coefficient effectif non nul dans le plan (xOz), et ne nécessite qu'un seul faisceau incident.

VI.3.2.1 Calcul de l'angle d'accord de phase

La détermination des équations de dispersion des indices principaux de réfraction par la méthode du cylindre passe par la comparaison des angles d'accord de phase mesurés et

de leur expression théorique. Celle-ci s'établit en écrivant que le désaccord de phase est nul, soit d'après (VI.2), pour une THG de type II :

$$\Delta k = 2\pi\frac{n^o(\lambda/3,\theta)}{\lambda/3} - 2\pi\frac{n^e(\lambda,\theta)}{\lambda} - 2\pi\frac{n^e(\lambda,\theta)}{\lambda} - 2\pi\frac{n^o(\lambda,\theta)}{\lambda} = 0 \qquad \text{(VI.11)}$$

où λ est la longueur d'onde fondamentale. Les indices de réfraction n^o et n^e sont donnés par l'équation (I.15) pour un uniaxe positif. La condition d'accord de phase s'écrit alors :

$$3n_o(\lambda/3) - 2\frac{1}{\sqrt{\frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2(\lambda)} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2(\lambda)}}} - n_o(\lambda) = 0 \qquad \text{(VI.12)}$$

L'équation précédente est valable quel que soit l'angle φ, en vertu de la symétrie de révolution de la surface des indices autour de l'axe (Oz). Cette équation permet d'exprimer l'angle d'accord de phase θ_{AP} :

$$\theta_{AP} = arccos\left[\left(\frac{\left(\frac{n_o(\lambda)}{n_o(\lambda/3)}\right)^2 \frac{4}{\left(3-\frac{n_o(\lambda)}{n_o(\lambda/3)}\right)^2} - \left(\frac{n_o(\lambda)}{n_e(\lambda)}\right)^2}{1-\left(\frac{n_o(\lambda)}{n_e(\lambda)}\right)^2}\right)^{1/2}\right] \qquad \text{(VI.13)}$$

L'expression (VI.13) montre que l'exploitation des données expérimentales d'accord de phase en fonction de λ permet d'obtenir le rapport des indices principaux de réfraction $n_o(\lambda)/n_e(\lambda)$. L'ajout d'une donnée en absolue de l'un des indices, n_o ou n_e, à une longueur d'onde quelconque, permet alors d'obtenir les équations de dispersion. La figure VI.3 donne les courbes d'accord de phase de la THG de type II calculées à partir des équations de dispersion données dans la littérature [62–64].

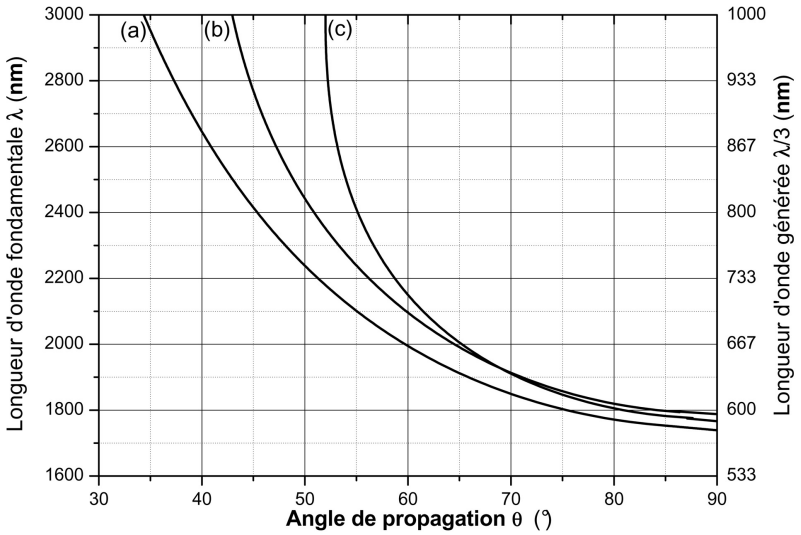


FIG. VI.3 – *Courbes d'accord de phase de THG de type II dans le rutile calculées à partir des équations de dispersion données par [63] (a), [62] (b) et [64] (c).*

La longueur d'onde fondamentale minimale est atteinte sur l'axe (Ox), elle varie

fortement selon les équations de dispersion utilisées, entre 1752 nm et 1794 nm. Ces écarts justifient pleinement la nécessité d'établir les équations de dispersion du cristal que nous possédons.

VI.3.2.2 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est donné sur la figure VI.4. La source utilisée est un laser Nd :YAG triplé Continuum pompant un OPO accordable Continuum Panther. Celui-ci permet de générer un faisceau dont la longueur d'onde est accordable entre 400 nm à 2200 nm. Le faisceau est focalisé sur le cylindre par la lentille convergente L_1, puis repris par la lentille L_2 ; la position des deux lentilles selon l'axe du faisceau est ajustée de telle sorte que l'ensemble, constitué des deux lentilles et du cylindre, forme un système afocal, les faisceaux à l'intérieur du cylindre et en sortie de L_2 étant alors relativement parallèles. Le cylindre est placé sur une rotation, de sorte qu'il peut tourner autour de son axe (Oy), l'angle de rotation θ_g étant directement lu sur un vernier. L'onde fondamentale à λ est coupée en sortie du cylindre par le filtre F, tandis que l'onde de troisième harmonique, à $\lambda/3$, est détectée par une photodiode silicium. Une partie du faisceau généré est prélevée à l'aide d'une lame de verre afin d'effectuer une mesure de la longueur d'onde générée grâce à un monochromateur. La polarisation de l'onde incidente est réglée à 30° de l'axe (Oz) de TiO_2, de façon à avoir une configuration de polarisation de type II. Le cylindre doit être positionné de telle sorte que le faisceau traverse un diamètre de celui-ci. Ce réglage s'effectue à l'aide d'un laser visible He-Ne, aligné de manière contre-propagative avec le faisceau incident infrarouge et polarisé selon l'axe du cylindre ; le faisceau He-Ne est polarisé ordinairement afin qu'il ne soit pas dévié lors de la traversée du cylindre. Enfin, la tête goniométrique supportant le cylindre doit être réglée de telle sorte que son axe de rotation soit confondu avec l'axe de révolution du cylindre.

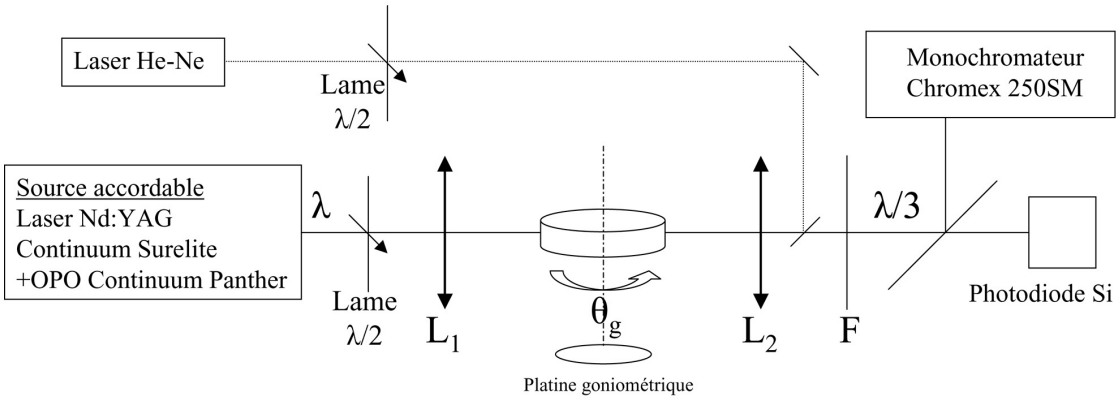


FIG. VI.4 – *Dispositif expérimental utilisé pour mesurer les angles d'accord de phase ; le faisceau fondamental est focalisé sur le cylindre pour réaliser une THG. Le faisceau triplé est détecté par une photodiode et sa longueur d'onde est mesurée.*

La méthode de mesure des directions d'accord de phase consiste à faire varier la longueur d'onde d'émission de l'OPO, et pour chaque valeur de λ, à mesurer la puissance

générée à $\lambda/3$ en fonction de la direction de propagation dans le plan considéré du cristal à l'étude. Concernant notre étude, le plan prospecté est un plan principal de la surface des indices, en l'occurrence le plan (xOz). Dans ce cas, pour chaque longueur d'onde, il y aura quatre directions d'accord de phase équivalentes, compte tenu de la symétrie de révolution des indices. La méthode consiste alors à repérer les quatre angles pour lesquels la puissance de troisième harmonique est maximale.

VI.3.2.3 Courbe d'accord de phase mesurée

La courbe d'accord de phase est présentée sur la figure VI.5 en fonction de l'angle θ_g lu sur la platine goniométrique.

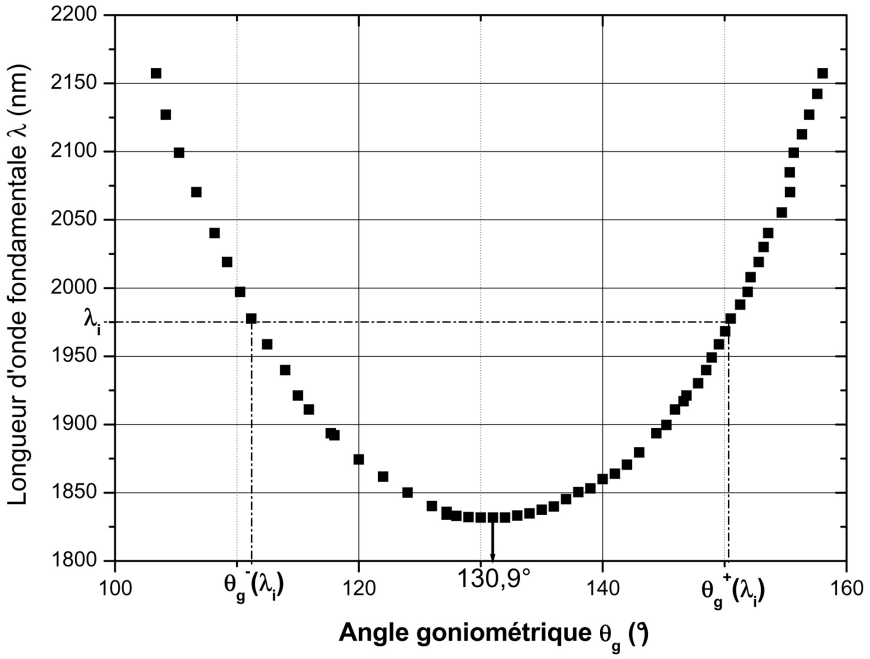


FIG. VI.5 – *Courbe d'accord de phase expérimentale de THG de type II dans le rutile; $\theta_g^-(\lambda_i)$ et $\theta_g^+(\lambda_i)$ sont les angles d'accord de phase symétriques correspondant à la longueur d'onde fondamentale λ_i.*

La courbe obtenue est symétrique par rapport à un angle pour lequel la valeur de λ est minimale. Pour chaque valeur de λ, les deux angles repérés correspondent à deux directions d'accord de phase équivalentes. La direction pour laquelle λ est minimale ne peut être que l'axe principal (Ox) et non pas (Oz). En effet, ce dernier est l'axe optique du cristal uniaxe, direction ne possédant pas de biréfringence et donc ne permettant pas l'accord de phase. Ainsi, si $\theta_g^+(\lambda_i)$ et $\theta_g^-(\lambda_i)$ sont les deux angles correspondant à une longueur d'onde λ_i donnée, l'angle d'accord de phase mesuré est donné par :

$$\theta_{AP}(\lambda_i) = \frac{\pi}{2} - \left(\frac{\theta_g^+(\lambda_i) - \theta_g^-(\lambda_i)}{2}\right) \tag{VI.14}$$

C'est la possibilité de pouvoir mesurer les angles d'accord de phase équivalents qui donne

toute la précision à la méthode ; elle est de l'ordre de $0,3^o$. D'autre part, la courbe d'accord de phase VI.5 permet de repérer précisément l'angle θ_g^X correspondant à l'axe principal (Ox), soit :

$$\theta_g^X = \frac{\theta_g^+(\lambda_i) + \theta_g^-(\lambda_i)}{2} \tag{VI.15}$$

La valeur obtenue est $\theta_g^X = 130,9^o$, pour laquelle la valeur de la longueur d'onde fondamentale est $\lambda^X = 1831,8\ nm$. La valeur maximale de la longueur d'onde fondamentale est de 2160 nm. Elle est limitée par la plage spectrale accessible de notre OPO. Il aurait évidemment été intéressant de pouvoir accéder à des longueurs d'onde supérieures.

VI.3.2.4 Etablissement des équations de dispersion des indices de réfraction à partir de la courbe d'accord de phase mesurée

Les points expérimentaux sont tracés sur la figure VI.6 à partir de la courbe VI.5, en calculant l'angle θ_{AP} à partir de l'équation (VI.14). La courbe obtenue est alors interpolée par l'expression VI.13, en considérant une dépendance des indices de réfraction principaux $n_o(\lambda)$ et $n_e(\lambda)$ du type Sellmeier :

$$n_i^2(\lambda) = A_i + \frac{B_i}{(C_i - \lambda^{-2})} - D_i\lambda^2 \tag{VI.16}$$

avec $i = \{o, e\}$ et λ en nanomètres.

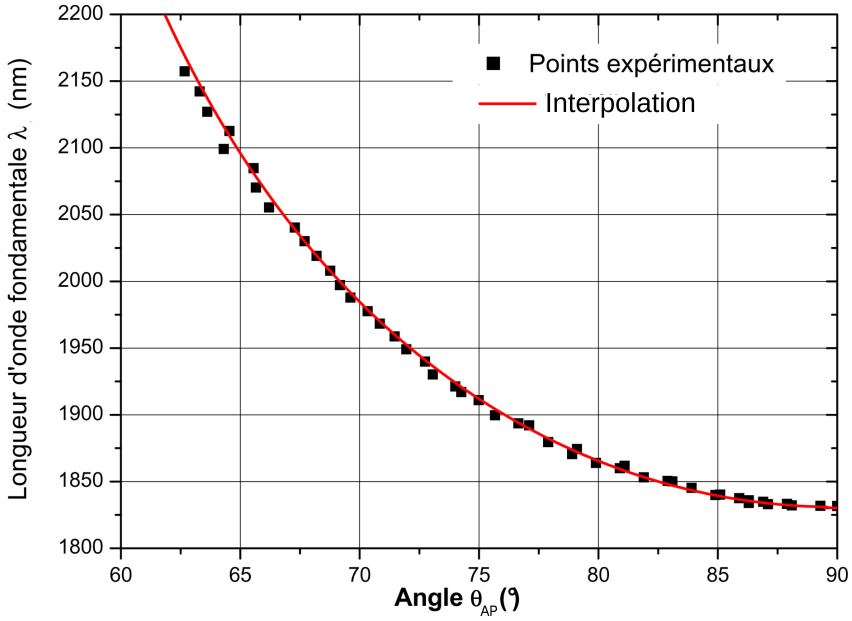


FIG. VI.6 – *Longueur d'onde fondamentale d'accord de phase en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{AP} de THG de type II dans le rutile. Les carrés correspondent aux points expérimentaux et le trait correspond à l'interpolation.*

L'équation (VI.13) montre que la connaissance de θ_{AP} à une longueur d'onde λ donnée permet uniquement de déterminer le rapport des indices de réfraction principaux $n_o(\lambda)/n_e(\lambda)$. La dispersion en absolu des indices peut être alors obtenue en ajoutant à nos données expérimentales d'angle d'accord de phase, la valeur d'un des indices à une longueur d'onde donnée. Nous avons pris $n_o(632,8\ nm) = 2,58047$, d'après les mesures effectuées sur prisme [64]. Les coefficients de Sellmeier A_i, B_i, C_i et D_i déduit de l'interpolation sont donnés dans le tableau suivant.

Coefficients de Sellmeier	onde ordinaire ($i \equiv o$)	onde extraordinaire ($i \equiv e$)
A_i	$3,3361$	$3,0705$
B_i	$3,1114.10^{-5}$	$4,9989.10^{-5}$
C_i	$1,1802.10^{-5}$	$1,2442.10^{-5}$
D_i	$5,3025.10^{-8}$	$7,1654.10^{-10}$

TAB. VI.1 – *Coefficients de Sellmeier de TiO_2 rutile déduits de la courbe d'accord de phase de THG de type II.*

Le domaine spectral de validité des équations de dispersion ainsi déterminées est directement donné par les domaines sur lesquels sont sollicités les indices de réfraction lors de l'expérience de THG. Ces domaines spectraux ne sont pas les mêmes pour l'indice ordinaire n_o et extraordinaire n_e, en vertu de l'équation (VI.13). Pour n_o, la fiabilité de l'équation est maximale pour des longueurs d'onde comprises entre 610 nm et 720 nm, ainsi qu'entre 1832 nm et 2160 nm. Pour n_e, cette plage s'étend de 1832 nm à 2160 nm.

Même si les domaines de validité sont restreints, cette étude complète les mesures effectuées sur prisme trouvées dans la littérature, qui impliquent toutes des longueurs d'onde inférieures à 1500 nm [62–64]. La figure de synthèse VI.7 montre à quel point il était nécessaire de mener cette étude d'accord de phase. En effet, il apparaît un écart très important entre les mesures et les courbes calculées à partir des équations publiées antérieurement.

De tels écarts peuvent être expliqués par la différence de provenance des cristaux de TiO_2 sur lesquels ont été réalisées les mesures. Cela révèle une fluctuation importante de la composition chimique du rutile, en terme d'écart à la stoechiométrie. Un cas analogue bien connu est celui de $LiNbO_3$.

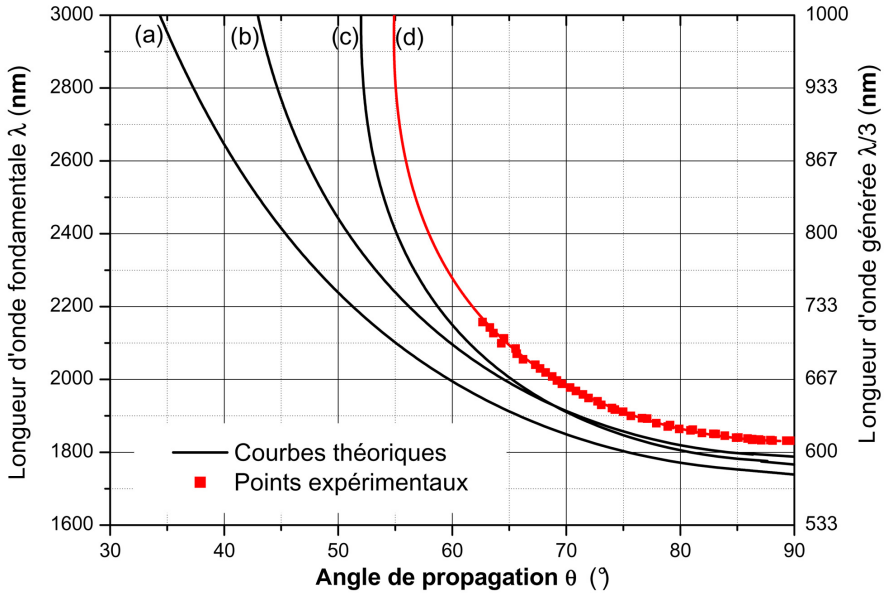


FIG. VI.7 – *Courbe d'accord de phase de THG de type II dans le rutile calculées à partir des équations de dispersion données par [63] (a), [62] (b) et [64] (c), et par l'expérience sur cylindre (d). Les points expérimentaux obtenus lors de cette expérience ont également été reportés.*

VI.4 Détermination de la figure de mérite

VI.4.1 Introduction

L'exploitation de l'expérience sur cylindre montre que la THG de type II , $\lambda^o + \lambda^e + \lambda^e \rightarrow (\lambda/3)^o$, est en accord de phase selon l'axe (Ox) du rutile pour une longueur d'onde fondamentale $\lambda = 1831,8\ nm$. De plus, l'équation (VI.9) montre que dans cette direction, $\theta = 90^o$ et $\varphi = 0^o$, le coefficient effectif associé est $\chi_{eff}^{rutile} = \chi_{16}$.

La mesure de la figure de mérite du rutile est effectuée en relatif, par rapport à une expérience de THG dans KTP, également en accord de phase de type II selon l'axe (Ox) : la longueur d'onde fondamentale d'accord de phase correspondante est égale à 1618 nm, et le coefficient effectif χ_{eff}^{KTP}, vaut [8, 42] :

$$\chi_{eff}^{KTP} = 9,9.10^{-22}\ m^2/V^2 \tag{VI.17}$$

Les deux interactions réalisées dans KTP et TiO_2 présentent la même configuration de polarisation, et l'angle de double réfraction est nul dans les deux cas. Pour cette étude, nous utilisons un parallélépipède de rutile de 1 mm dans la direction (Ox), la lame de KTP étant de $0,83\ mm$ d'épaisseur.

VI.4.2 Dispositif expérimental

Le schéma de l'expérience utilisée est donné sur la figure VI.8. La source utilisée est la même que dans l'expérience précédente menée avec le cylindre de rutile : elle est constituée d'un laser nanoseconde Nd :YAG triplé Continuum pompant un OPO accordable Continuum Panther. Des densités optiques (DO) permettent de faire varier l'énergie incidente. Le faisceau est focalisé dans le cristal parallélépipédique, de KTP ou de rutile, par la lentille convergente L_1 puis est repris par la lentille L_2. Le filtre F permet d'éliminer la composante fondamentale située dans l'infrarouge pour ne transmettre que la composante triplée visible. Une photodiode Silicium Thorlabs permet de mesurer l'énergie du faisceau à $\lambda/3$.

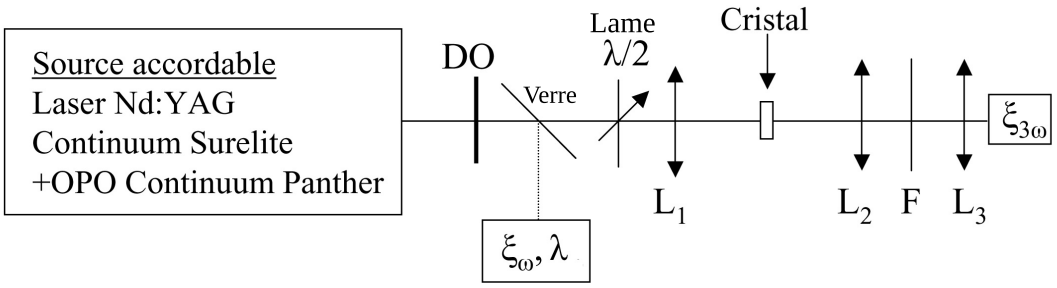


FIG. VI.8 – *Dispositif expérimental de mesure de la figure de mérite de THG, utilisé avec KTP et TiO_2.*

L'efficacité de conversion de THG est optimisée en translatant longitudinalement le cristal afin de le positionner au plan focal de la lentille L_2 et en ajustant l'angle de la lame $\lambda/2$. Pour chaque expérience, le cristal est autocollimaté et le processus de conversion est optimisé, en cherchant la longueur d'onde d'accord de phase qui est ensuite mesurée par un monochromateur Chromex 250SM. La longueur d'onde fondamentale d'accord de phase est de 1618 nm dans KTP, ce qui est conforme aux expériences précédentes. Dans le cas du rutile, elle vaut $1839,6$ nm alors qu'elle avait été mesurée à $1831,8$ nm lors de l'expérience sur cylindre. Cette différence est due au fait que les cristaux utilisés ne proviennent pas des mêmes échantillons initiaux.

La chaîne d'entrée est calibrée, en mesurant l'énergie fondamentale incidente sur le cristal, à l'aide d'un détecteur pyroélectrique Molectron, pour les deux longueurs d'onde d'accord de phase dans KTP et TiO_2. Ces deux mesures permettent de s'affranchir des transmissions des optiques constituant la chaîne d'entrée, qui sont différentes aux deux longueurs d'ondes d'accord de phase, mais également de l'efficacité de la source utilisée, qui est une fonction décroissante avec la longueur d'onde. Une fine lame de verre permet de prélever une partie du faisceau, dont l'énergie est mesurée par une photodiode InGaAs Thorlabs, afin de s'affranchir des fluctuations de la source. La chaîne de détection est

également calibrée, en utilisant le faisceau issu de l'OPO aux longueurs d'onde générées, afin d'établir la correspondance entre l'énergie à la sortie du cristal et le signal délivré par la photodiode Silicium, aux deux longueurs d'ondes générées.

La longueur de Rayleigh du faisceau focalisé dans les cristaux est environ de 5 mm. Le double de cette longueur est donc un ordre de grandeur plus grand que la largeur des cristaux, 1 mm pour TiO_2 et $0,83$ mm pour KTP, de sorte que la propagation peut être considérée comme étant en régime d'onde plane.

VI.4.3 Résultats expérimentaux

VI.4.3.1 Figure de mérite

Les énergies incidentes et générées, notées respectivement ξ_ω et $\xi_{3\omega}$, sont mesurées pour différentes valeurs de densités optiques. Le rendement de conversion en énergie, $\eta_E = \xi_{3\omega}/\xi_\omega$, est tracé sur la figure VI.9 en fonction de l'éclairement incident pour le cristal de KTP et de rutile(Annexe D).

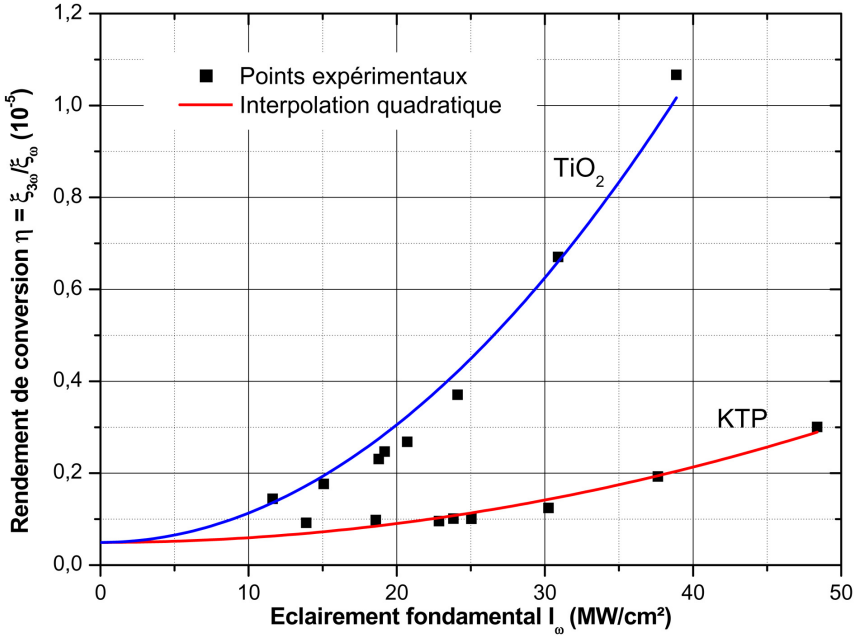


FIG. VI.9 – *Rendement de conversion de THG dans KTP et TiO_2. Les carrés sont les points expérimentaux et les traits pleins correspondent au calcul [72].*

L'équation (II.22) permet de calculer l'éclairement de troisième harmonique généré dans l'hypothèse de la pompe non dépeuplée pour une interaction en accord de phase sans double réfraction. En considérant des ondes planes et en négligeant la dispersion des vitesses de groupe, ce qui correspond bien à nos expériences, cette expression peut être réécrite vis-à-vis des énergies, soit :

$$\xi_{3\omega} = \frac{128}{3\pi}.\frac{\mu_0}{\epsilon_0}.\frac{T_1(\omega)\,T_2(\omega)\,T_3(\omega)\,T_4(3\omega)}{\lambda^2}.F.\frac{W_{3\omega}^2\tau_{3\omega}}{\left(W_\omega^2\tau_\omega\right)^3}.L^2.\xi_\omega^3 \tag{VI.18}$$

où F est la figure de mérite définie par :

$$F = \frac{\chi_{eff}^2}{n_1(\omega)\,n_2(\omega)\,n_3(\omega)\,n_4(3\omega)} \tag{VI.19}$$

et $T_i(\omega)$ le coefficient de réflexion de Fresnel :

$$T_i(\omega) = \frac{4n_i(\omega)}{\left(1+n_i(\omega)\right)^2} \tag{VI.20}$$

Les indices $\{n_1, n_2, n_3, n_4\}$ correspondent à $\{n_e, n_e, n_o, n_o\}$ dans le cas de TiO_2 et à $\{n_z, n_z, n_y, n_y\}$ pour KTP. W_ω et τ_ω sont respectivement le rayon et la durée totale du faisceau de pompe à $1/e^2$ alors que $W_{3\omega}$ et $\tau_{3\omega}$ sont le rayon et la durée totale du faisceau généré. Dans l'hypothèse de la pompe non dépeuplée, ceux-ci sont reliés par :

$$\begin{cases} W_{3\omega} = \dfrac{1}{\sqrt{3}}W_\omega \\ \tau_{3\omega} = \dfrac{1}{\sqrt{3}}\tau_\omega \end{cases} \tag{VI.21}$$

Le rendement de conversion de fréquence s'écrit alors en fonction de l'éclairement incident :

$$\eta_E = \xi_{3\omega}/\xi_\omega = \frac{4\pi^2}{9\sqrt{3}}.\frac{\mu_0}{\epsilon_0}.\frac{T_1(\omega)\,T_2(\omega)\,T_3(\omega)\,T_4(3\omega)}{\lambda^2}.F.L^2.I_\omega^2 \tag{VI.22}$$

La modélisation des points expérimentaux de la figure VI.9 par l'expression précédente montre que le rendement de conversion varie effectivement selon le carré de l'éclairement incident. Le rapport des figures de mérite de TiO_2 et de KTP, notées respectivement F_{rutile} et F_{KTP}, peut alors être déduit :

$$\frac{F_{rutile}}{F_{KTP}} = 7,5 \tag{VI.23}$$

Cette valeur montre la forte potentialité du rutile pour réaliser des processus cubiques. Elle permet également de déterminer la valeur absolue du coefficient χ_{16} de TiO_2 à la longueur d'onde générée, $\lambda/3 = 613,2\ nm$, à partir du coefficient effectif de la THG dans KTP, donné par (VI.17). En utilisant les équations de dispersion du rutile (VI.16) et de KTP [43], il vient :

$$|\chi_{16}(613,2\ nm)| = 5,0.10^{-21}\ m^2/V^2 \tag{VI.24}$$

Cette valeur est comprise dans l'intervalle des valeurs obtenues préalablement par effet Kerr [66–68]. La valeur absolue du coefficient χ_{16} peut enfin être obtenue à n'importe quelle

longueur d'onde en utilisant le coefficient de Miller cubique Δ_{16} en notation contractée ; compte tenu de (VI.1) ce paramètre non dispersif est donné par [65] :

$$|\Delta_{16}| = \frac{|\chi_{16}(3\omega)|}{(n_e^2(\omega)-1)(n_e^2(\omega)-1)(n_o^2(\omega)-1)(n_o^2(3\omega)-1)} \tag{VI.25}$$

A partir de la valeur de $|\chi_{16}|$ mesurée à $\lambda/3 = 613,2\ nm$ et de nos équations de dispersion du rutile (VI.16), $|\Delta_{16}|$ vaut :

$$|\Delta_{16}| = 3,5.10^{-24}\ m^2/V^2 \tag{VI.26}$$

VI.4.3.2 Acceptance spectrale

En gardant le cristal de TiO_2 à l'autocollimation dans la direction (Ox) et en faisant varier la longueur d'onde fondamentale autour de la valeur à l'accord de phase, il est possible de déterminer l'acceptance spectrale de la THG. Le rapport de l'énergie générée hors accord de phase $\xi_{3\omega}^{HAP}$, sur l'énergie générée à l'accord de phase, $\xi_{3\omega}^{AP}$, est tracée en fonction de la longueur d'onde fondamentale sur la figure VI.10.

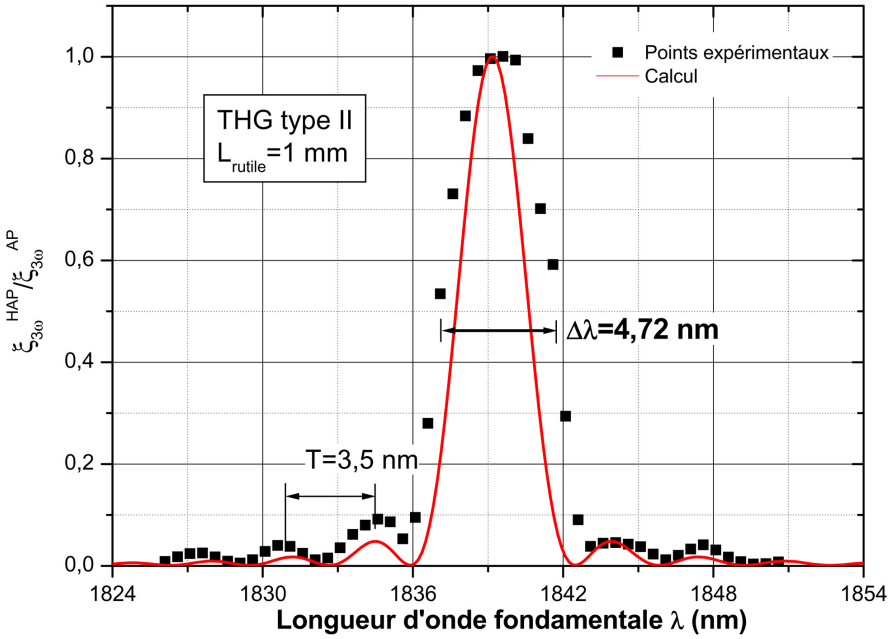


FIG. VI.10 – *Rapport $\xi_{3\omega}^{HAP}/\xi_{3\omega}^{AP}$ en fonction de la longueur d'onde fondamentale. Les carrés correspondent à l'expérience et le trait plein à la modélisation à partir des équations de dispersion déterminées par la méthode du cylindre [72].*

L'acceptance spectrale est définie comme la largeur totale de la courbe à 0,405 de son maximum, que multiplie la longueur du cristal : elle est évaluée à $L.\Delta\lambda = 0,47\ nm.cm$. Les points expérimentaux font apparaître, de chaque côté du pic principal centré sur la longueur d'onde d'accord de phase, des pics secondaires d'amplitudes décroissantes. Le rapport $\xi_{3\omega}^{HAP}/\xi_{3\omega}^{AP}$ s'écrit en effet hors de l'accord de phase :

$$\frac{\xi_{3\omega}^{HAP}}{\xi_{3\omega}^{AP}}(\lambda,\theta) = sinc^2\left(\frac{\Delta k(\lambda,\theta)\,L}{2}\right) \tag{VI.27}$$

où le désaccord de phase Δk se calcule à partir de (VI.11) et (VI.12), soit :

$$\Delta k(\lambda,\theta) = 2\pi\left[\frac{3}{\lambda}n_o(\lambda/3) - \frac{1}{\lambda}n_o(\lambda) - \frac{2}{\lambda}\frac{1}{\sqrt{\frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2(\lambda)} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2(\lambda)}}}\right] \tag{VI.28}$$

Le rapport $\xi_{3\omega}^{HAP}/\xi_{3\omega}^{AP}(\lambda)$, calculé à partir de (VI.27) et (VI.28), est tracé sur la figure VI.10 pour $\theta = \pi/2$, et en utilisant les équations de dispersion (VI.16). Le bon accord entre les points expérimentaux et la courbe théorique, en particulier au niveau des pics secondaires, valide bien les équations de dispersion obtenues par l'expérience sur cylindre ; il montre également que toute la longueur du cristal est impliquée dans le processus non linéaire. La pseudo-période T des oscillations entre deux pics secondaires consécutifs est évaluée expérimentalement à $3,50\ nm$; cette valeur est très proche de celle calculée à partir de (VI.27) et(VI.28) et de nos équations de dispersion, soit $T = 3,47\ nm$. Le calcul de la pseudo-période à partir des équations de dispersion trouvées dans la littérature aboutit à des valeurs plus éloignées : $2,71\ nm$ [62], $2,41\ nm$ [63], et $0,60\ nm$ [64].

VI.4.3.3 Acceptance angulaire

L'acceptance angulaire dans le plan (xOz) a également été déterminée expérimentalement en mesurant l'énergie générée en fonction de l'angle interne de propagation θ, la longueur d'onde fondamentale étant fixée à la valeur réalisant l'accord de phase, soit $1831,8\ nm$. Le cristal est tourné autour de son axe (Oy), et l'angle interne θ est déterminé à partir de l'angle de rotation externe en tenant compte de la réfraction. Le rapport expérimental $\xi_{3\omega}^{HAP}/\xi_{3\omega}^{AP}(\theta)$ est tracé sur la figure VI.11. L'acceptance angulaire correspondante est évaluée à $0,42^{o}.cm$. La courbe théorique est tracée à partir des équations (VI.27) et (VI.28), en fixant $\lambda = 1831,8\ nm$, et en utilisant les équations de dispersion déterminées dans la section VI.3.2.4. L'accord entre les points expérimentaux et la courbe théorique est là aussi très bon.

Il est à noter que l'acceptance angulaire dans le plan (xOy) est infinie du fait de la symétrie de révolution de la surface des indices autour de l'axe (Oz) ; si l'accord de phase existe pour un angle θ donné, alors il existe pour toute direction de coordonnées (θ,φ), avec $0^{o} \leq \varphi \leq 360^{o}$.

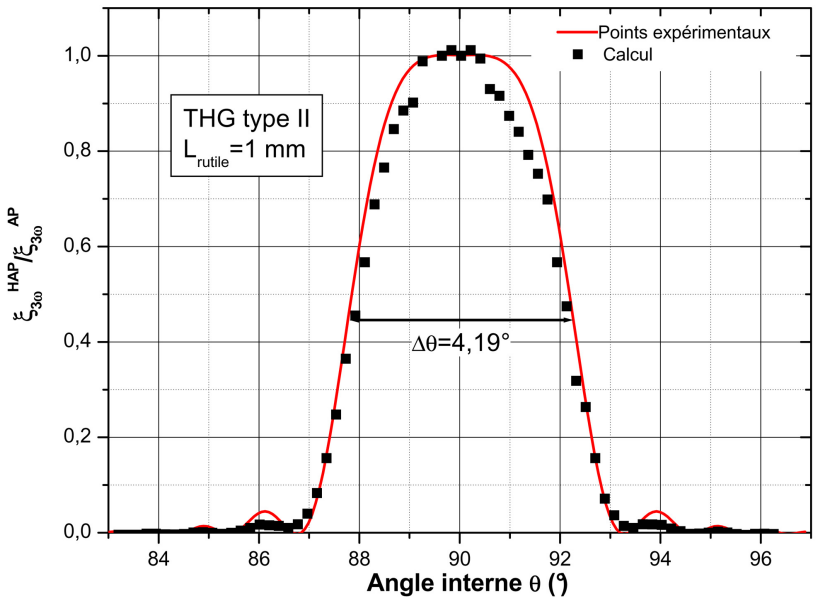


FIG. VI.11 – *Rapport $\xi_{3\omega}^{HAP}/\xi_{3\omega}^{AP}$ en fonction de l'angle de propagation interne θ. Les carrés correspondent à l'expérience et le trait plein à la modélisation à partir des équations de dispersion déterminées par la méthode du cylindre [72].*

VI.5 Etude prospective des possibilités offertes par le rutile

VI.5.1 THG à haut rendement de conversion

VI.5.1.1 Introduction

La mesure de la figure de mérite du rutile montre que ce milieu est potentiellement plus efficace que KTP pour réaliser une THG à haut rendement de conversion. L'expérience a été réalisée avec de faibles éclairements, de l'ordre de 50 MW/cm^2, conduisant à un rendement de conversion en énergie η_E environ égal à 10^{-5}. L'utilisation d'une source plus intense devrait permettre d'obtenir un rendement bien supérieur. De plus, la centrosymétrie du rutile assure une pureté maximale du processus cubique réalisé.

VI.5.1.2 Etude en pompe dépeuplée

L'amplitude complexe d'une onde plane en interaction à la pulsation ω_i est de la forme :

$$E(\omega_i) = |E(\omega_i)| e^{j\phi_i} \tag{VI.29}$$

où ϕ_i est la phase initiale du champ. En négligeant la double réfraction et dans le cas d'une interaction en accord de phase, $\Delta k = 0$, le système d'équations couplées (I.35) correspondant à une interaction de schéma A, $\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$, s'écrit :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial \left|E\left(\omega_0\right)\right|}{\partial Z} e^{j\phi_0} = j.\dfrac{\pi}{n\left(\omega_0\right)\lambda_0}.\chi_{eff}^{(3)}.\left|E\left(\omega_1\right)\right|.\left|E\left(\omega_2\right)\right|.\left|E\left(\omega_3\right)\right|.e^{j(\phi_1+\phi_2+\phi_3)} \\ \dfrac{\partial \left|E\left(\omega_1\right)\right|}{\partial Z} e^{j\phi_1} = j.\dfrac{\pi}{n\left(\omega_1\right)\lambda_1}.\chi_{eff}^{(3)}.\left|E\left(\omega_0\right)\right|.\left|E\left(\omega_2\right)\right|.\left|E\left(\omega_3\right)\right|.e^{j(\phi_0-\phi_2-\phi_3)} \\ \dfrac{\partial \left|E\left(\omega_2\right)\right|}{\partial Z} e^{j\phi_2} = j.\dfrac{\pi}{n\left(\omega_2\right)\lambda_2}.\chi_{eff}^{(3)}.\left|E\left(\omega_0\right)\right|.\left|E\left(\omega_1\right)\right|.\left|E\left(\omega_3\right)\right|.e^{j(\phi_0-\phi_1-\phi_3)} \\ \dfrac{\partial \left|E\left(\omega_3\right)\right|}{\partial Z} e^{j\phi_3} = j.\dfrac{\pi}{n\left(\omega_3\right)\lambda_3}.\chi_{eff}^{(3)}.\left|E\left(\omega_0\right)\right|.\left|E\left(\omega_1\right)\right|.\left|E\left(\omega_2\right)\right|.e^{j(\phi_0-\phi_1-\phi_2)} \end{cases} \tag{VI.30}$$

$n\left(\omega_i\right)$ est l'indice de réfraction à la pulsation ω_i. Le système précédent conduit à une relation entre les phases initiales des champs :

$$\phi_0 - \phi_1 - \phi_2 - \phi_3 = \pm\frac{\pi}{2} \tag{VI.31}$$

Le signe (-) correspond à un transfert d'énergie de l'onde à ω_0 vers les trois autres ondes, alors que le signe (+) correspond à un dépeuplement des ondes à ω_1, ω_2 et ω_3 vers l'onde à ω_0, ce qui est le cas de la somme de fréquences. Dans ce dernier cas, les équations couplées s'écrivent :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial \left|E\left(\omega_0\right)\right|}{\partial Z} = +\dfrac{\pi}{n\left(\omega_0\right)\lambda_0}.\chi_{eff}^{(3)}.\left|E\left(\omega_1\right)\right|.\left|E\left(\omega_2\right)\right|.\left|E\left(\omega_3\right)\right| \\ \dfrac{\partial \left|E\left(\omega_1\right)\right|}{\partial Z} = -\dfrac{\pi}{n\left(\omega_1\right)\lambda_1}.\chi_{eff}^{(3)}.\left|E\left(\omega_0\right)\right|.\left|E\left(\omega_2\right)\right|.\left|E\left(\omega_3\right)\right| \\ \dfrac{\partial \left|E\left(\omega_2\right)\right|}{\partial Z} = -\dfrac{\pi}{n\left(\omega_2\right)\lambda_2}.\chi_{eff}^{(3)}.\left|E\left(\omega_0\right)\right|.\left|E\left(\omega_1\right)\right|.\left|E\left(\omega_3\right)\right| \\ \dfrac{\partial \left|E\left(\omega_3\right)\right|}{\partial Z} = -\dfrac{\pi}{n\left(\omega_3\right)\lambda_3}.\chi_{eff}^{(3)}.\left|E\left(\omega_0\right)\right|.\left|E\left(\omega_1\right)\right|.\left|E\left(\omega_2\right)\right| \end{cases} \tag{VI.32}$$

A partir de la relation (I.18), l'évolution de l'éclairement $I_i\left(Z\right)$ à la pulsation ω_i s'écrit :

$$\frac{\partial I_i\left(Z\right)}{\partial Z} = \frac{1}{2}n\left(\omega_i\right)\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}\frac{\partial\left|E\left(\omega_i\right)\right|^2}{\partial Z} = n\left(\omega_i\right)\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}\left|E\left(\omega_i\right)\right|\frac{\partial\left|E\left(\omega_i\right)\right|}{\partial Z} \tag{VI.33}$$

L'évolution de l'éclairement généré à ω_0, noté $I_0\left(Z\right)$, peut alors être écrit en fonction des éclairements à ω_1, ω_2 et ω_3, notés respectivement $I_1\left(Z\right)$, $I_2\left(Z\right)$ et $I_3\left(Z\right)$:

$$\frac{\partial I_0\left(Z\right)}{\partial Z} = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}.\frac{4\pi\chi_{eff}^{(3)}}{\lambda_0}.\sqrt{\frac{I_0\left(Z\right)I_1\left(Z\right)I_2\left(Z\right)I_3\left(Z\right)}{n\left(\omega_0\right)n\left(\omega_1\right)n\left(\omega_2\right)n\left(\omega_3\right)}} \tag{VI.34}$$

A partir des équations de Manley-Rowe (II.8), nous obtenons alors l'équation différentielle régissant l'éclairement $I_0\left(Z\right)$:

$$\frac{\partial I_0\left(Z\right)}{\partial Z} = \Lambda.\sqrt{I_0\left(Z\right)\left(\gamma_1 - I_0\left(Z\right)\right)\left(\gamma_2 - I_0\left(Z\right)\right)\left(\gamma_3 - I_0\left(Z\right)\right)} \tag{VI.35}$$

avec :

$$\begin{cases} \gamma_1 = \dfrac{\lambda_0}{\lambda_1} I_1(0) + I_0(0) \\ \gamma_2 = \dfrac{\lambda_2}{\lambda_1} I_2(0) + I_0(0) \\ \gamma_3 = \dfrac{\lambda_3}{\lambda_1} I_3(0) + I_0(0) \\ \Lambda = \sqrt{\dfrac{\mu_0}{\epsilon_0}} . \dfrac{4\pi\chi^{(3)}_{eff}}{\sqrt{n(\omega_0)\, n(\omega_1)\, n(\omega_2)\, n(\omega_3)}} . \sqrt{\dfrac{\lambda_0}{\lambda_1\lambda_2\lambda_3}} \end{cases} \tag{VI.36}$$

Dans le cas de la THG, $\lambda_1 = \lambda_2 = \lambda_3 = \lambda_0/3 = \lambda$. Pour une THG de type II selon l'axe (Ox) du rutile, les indices de réfraction sont $\{n(\omega_0), n(\omega_1), n(\omega_2), n(\omega_3)\} = \{n_o(\lambda/3), n_e(\lambda), n_e(\lambda), n_o(\lambda)\}$. L'équation différentielle régissant l'éclairement généré $I_{3\omega}(Z)$ s'écrit alors :

$$\frac{\partial I_{3\omega}(Z)}{\partial Z} = \Lambda . \sqrt{I_{3\omega}(Z)} . [I_\omega(0) - I_{3\omega}(Z)]^{3/2} \tag{VI.37}$$

avec :

$$\Lambda = \frac{4\pi}{\sqrt{3}} . \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} . \frac{\chi^{(3)}_{eff}}{\lambda} . \frac{1}{n_e(\lambda)\sqrt{n_o(\lambda/3)\, n_o(\lambda)}} \tag{VI.38}$$

L'éclairement généré à $\lambda/3$ s'obtient en intégrant l'équation (VI.37) sur la longueur L du cristal :

$$\Lambda . L = \int_{I_{3\omega}(0)}^{I_{3\omega}(L)} \frac{dI_{3\omega}}{\sqrt{I_{3\omega}} . [I_\omega(0) - I_{3\omega}]^{3/2}} \tag{VI.39}$$

En supposant que $I_{3\omega}(0) = 0$, le calcul de l'intégrale précédente aboutit à :

$$I_{3\omega}(L) = \frac{\Lambda^2 I_\omega^3(0) L^2}{4 + (\Lambda I_\omega(0) L)^2} \tag{VI.40}$$

L'évolution de l'éclairement à la longueur d'onde fondamentale se déduit de (VI.40) grâce aux équations de Manley Rowe (II.8), ce qui donne :

$$I_\omega(L) = I_\omega(0) - I_{3\omega}(L) = I_\omega(0) \left[1 - \frac{\Lambda^2 I_\omega^2(0) L^2}{4 + (\Lambda I_\omega(0) L)^2} \right] \tag{VI.41}$$

La figure VI.12 représente l'évolution des éclairements $I_\omega(L)$ et $I_{3\omega}(L)$ en fonction de la longueur L du cristal dans les conditions expérimentales de la THG de type II réalisée selon l'axe (Ox) de TiO_2. La valeur du coefficient effectif est donnée par (VI.24) et les indices sont calculés à partir de nos équations de dispersion (VI.16). L'éclairement fondamental incident $I_\omega(0)$ est fixé à 55 GW/cm^2 ; cette valeur correspond à l'éclairement maximal utilisé lors de l'expérience de THG dans KTP qui avait permis d'obtenir un

rendement de conversion égal à $2,5$ % (cf II.3.3). L'éclairement généré, calculé à partir de (II.22) dans le cadre de l'approximation de la pome non dépeuplée est également tracé.

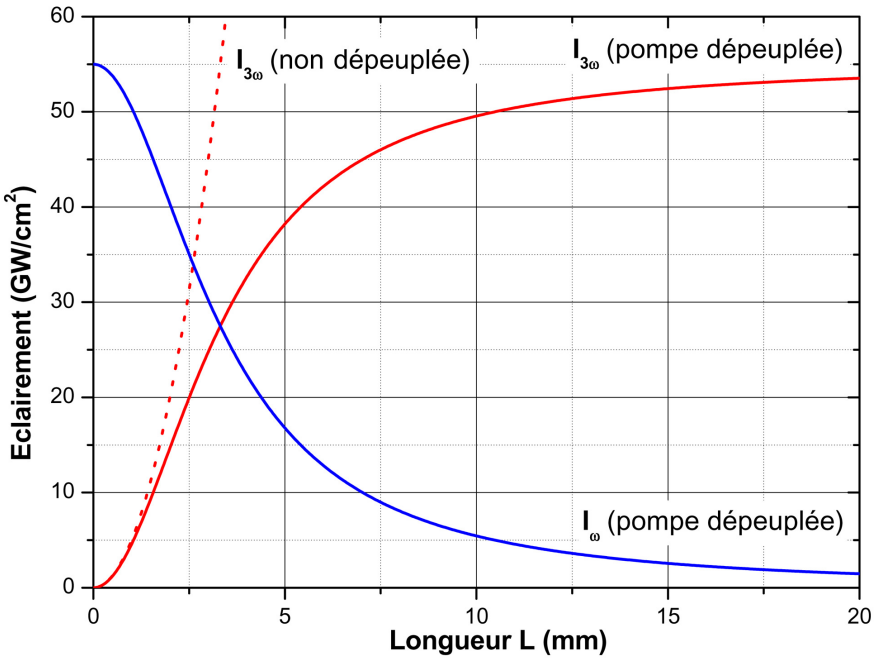


FIG. VI.12 – *Eclairements à λ et $\lambda/3$ en fonction de la longueur L du cristal pour une THG de type II dans TiO_2. Les traits pleins correspondent au modèle en pompe dépeuplée ; les traits en pointillés correspondent à l'approximation de la pompe non dépeuplée.*

La figure VI.12 montre qu'il est possible de générer dans un cristal de TiO_2 de 10 mm, un éclairement de troisième harmonique de 50 GW/cm^2 pour un éclairement fondamental incident de 55 GW/cm^2, ce qui correspond à un rendement de conversion en éclairement de :

$$\eta_I = 91 \ \% \tag{VI.42}$$

Les rayons et les durées d'impulsion des faisceaux incidents et générés étant supposés être liés par les équations (VI.21), le rendement de conversion en énergie vaut alors :

$$\eta_E = \frac{\eta_I}{3\sqrt{3}} = 17,5 \ \% \tag{VI.43}$$

C'est le rendement en énergie qu'il serait possible d'obtenir dans le cas d'un cristal de TiO_2 traité anti-reflet. En effet, les calculs précédents ont été menés dans le cas où le coefficient de Fresnel du cristal était pris égal à l'unité, quelle que soit la polarisation et la longueur d'onde. Si tel n'est pas le cas, le rendement en énergie (VI.43) est diminué du facteur $T_o(3\omega)\,T_e^2(\omega)\,T_o(\omega) = 0,41$ où T_o et T_e sont les transmissions de Fresnel des deux modes de polarisation, ordinaire et extraordinaire respectivement. Le rendement en énergie devient alors $\eta_E = 7,2$ %.

VI.5.2 Génération de triplets de photons

Nous avons considéré l'accord de phase de type II, qui est le même que celui de la THG dont nous avons déterminé la figure de mérite, soit $\lambda_0^o \rightarrow \lambda_1^e + \lambda_2^e + \lambda_3^o$.

La longueur d'onde de pompe est fixée à la valeur utilisée lors de l'expérience de génération de triplets de photons réalisée dans KTP, soit $\lambda_0^o = 532\ nm$. A partir de l'équation (VI.2), la direction de propagation θ assurant l'accord de phase est calculée numériquement pour un triplet de longueur d'onde $\{\lambda_1^e, \lambda_2^e, \lambda_3^o\}$, avec $1/\lambda_0^o = 1/\lambda_1^e + 1/\lambda_2^e + 1/\lambda_3^o$. Les résultats sont représentés sur la figure VI.13 par des courbes de niveau à θ constant dans le plan $(\lambda_1^e, \lambda_2^e)$. La surface grisée correspond aux longueurs d'onde pour lesquelles l'accord de phase est possible. Les longueurs d'ondes λ_1^e et λ_1^e pouvant être permutées, il existe deux domaines, symétriques par rapport à la diagonale $\lambda_1^e = \lambda_2^e$, où l'accord de phase est réalisable. Les situations partiellement dégénérées, $\lambda_1^e = \lambda_2^e$, $\lambda_1^e = \lambda_3^o$ et $\lambda_2^e = \lambda_3^o$ sont également représentées ; la situation complètement dégénérée, $\lambda_1^e = \lambda_2^e = \lambda_3^o$, correspond au point D.

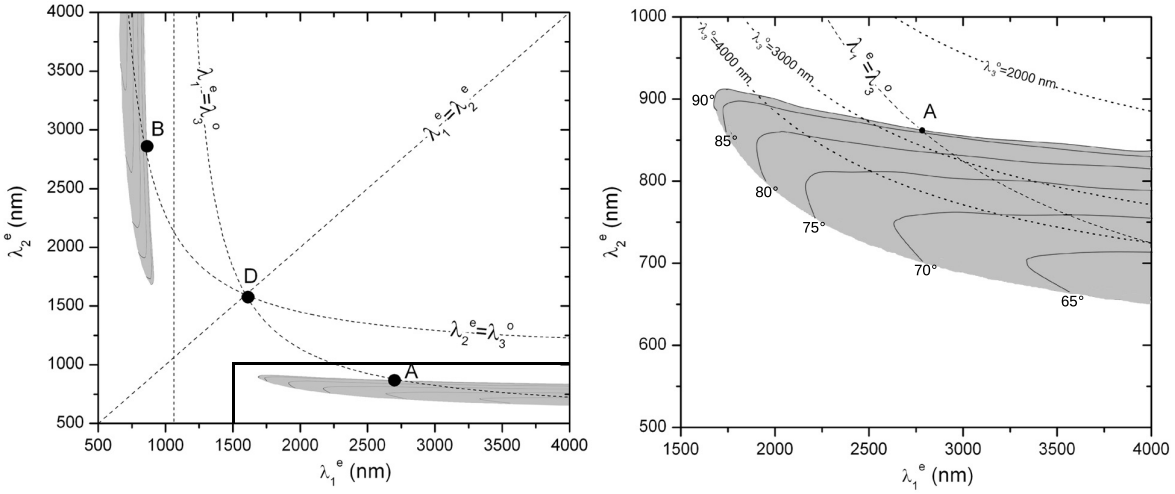


FIG. VI.13 – *Courbes d'accord de phase correspondant à l'interaction $\lambda_0^o \rightarrow \lambda_1^e + \lambda_2^e + \lambda_3^o$, avec $\lambda_0^o = 532\ nm$, dans le rutile. Les traits continus représentent les directions d'accord de phase à θ constant. Les zones grisées correspondent aux longueurs d'onde pour lesquelles l'accord de phase est possible. Les traits pointillés représentent les situations partiellement dégénérées, le point D correspondant à la complète dégénérescence. La figure de droite montre, avec une échelle plus petite, la zone encadrée de la figure de gauche. A droite, quelques courbes à λ_3^o constant ont été rajoutées.*

Les points symétriques A et B correspondent à l'intersection entre la courbe de niveau $\theta = 90^o$ et les courbes $\lambda_1^e = \lambda_3^o$ et $\lambda_2^e = \lambda_3^o$ respectivement. Les deux points sont équivalents et les longueurs d'onde générées sont, pour le point A par exemple :

$$\begin{cases} \lambda_1^e = 2738\ nm \\ \lambda_2^e = 870\ nm \\ \lambda_3^o = 2738\ nm \end{cases} \tag{VI.44}$$

Cette situation est particulièrement intéressante car elle se situe sur l'axe (Ox), où l'angle de double réfraction est nul. D'autre part, la dégénérescence partielle, $\lambda_2^e = \lambda_3^o$, permet d'envisager une double injection du processus de scission avec un seul faisceau à $\lambda_1^e = \lambda_3^o = 2738\ nm$, comme cela était possible avec KTP.

Enfin, il faut rester prudent sur la validité de ce résultat, car il implique des longueurs d'onde qui ne sont pas comprises dans le domaine de validité de nos équations de dispersion. Le calcul des longueurs d'onde réalisant l'accord de phase sur l'axe (Ox) du rutile, avec $\lambda_2^e = \lambda_3^o$, a également été effectué avec les équations de dispersion données dans l'annexe B ; l'accord de phase est possible mais pour des longueurs d'onde différentes de celles données par (VI.44), $\lambda_1^e = \lambda_3^o$ variant de 2360 nm à 2510 nm. L'accord de phase semble donc réalisable même si une incertitude subsiste sur les longueurs d'onde d'accord de phase.

VI.6 Conclusion

Cette première étude sur le rutile a montré une forte potentialité dans le cadre de la réalisation de processus non linéaires cubiques. Il possède à la fois une non-linéarité cubique élevée et une biréfringence suffisante pour réaliser des interactions en accord de phase. D'un point de vue de la caractérisation du rutile, l'étape suivante est d'utiliser une source accordable présentant une plage spectrale plus étendue que la source utilisée. En effet, à partir de nos équations de dispersion, le calcul des propriétés d'accord de phase montre qu'un certain nombre de processus sont en accord de phase pour des longueurs d'onde supérieures à la limite fixée par la source. La réalisation de ces interactions permettront d'affiner les équations de dispersion sur une plus grande plage spectrale et de mesurer d'autres coefficients du tenseur $\chi^{(3)}$.

Dans le cadre de la THG, l'utilisation d'une source accordable intense, permettant d'atteindre plusieurs dizaines de GW/cm^2, peut permettre d'obtenir un rendement de conversion de fréquences bien plus élevé que celui obtenu avec KTP, et donc d'ouvrir la voie vers l'étude des propriétés quantiques de ce processus. Enfin, une situation d'accord de phase intéressante a été identifiée pour la génération de triplets de photons, même si les longueurs d'onde d'accord de phase ne sont pas connues avec précision.

Conclusion

Ce travail de thèse se situe dans la continuité de ce qui avait déjà été fait dans le groupe de Benoît Boulanger sur la génération de triplets de photons. Des avancées significatives ont été réalisées, autant sur la modélisation du processus de conversion de fréquence que sur sa réalisation expérimentale. En adoptant la stratégie définie dans le cadre d'une précédente thèse, un nouveau générateur de triplets de photons efficace a été conçu et caractérisé. Les données expérimentales ont ensuite été confrontées avec succès au modèle établi. Nous disposons donc aujourd'hui d'un modèle général fiable, qui sera dans l'avenir d'une grande utilité pour l'étude de nouvelles stratégies expérimentales.

Une expérience pour la mesure des corrélations quantiques des triplets de photons a ensuite été conçue et mise en place. Un protocole expérimental a été développé, basé sur une expérience en régime classique. Les mesures sont en cours de réalisation

Le choix du milieu non linéaire est crucial dans la réalisation du processus de conversion de fréquence. Le dioxyde de titane dans sa phase rutile a été identifié comme étant un milieu prometteur pour la génération de triplets de photons. Une première phase de caractérisation a montré que sa non-linéarité cubique est importante, et a permis d'affiner les équations de dispersion en longueur d'onde de l'indice de réfraction. A partir de ces résultats, une étude prospective a permis d'identifier des situations expérimentales intéressantes, autant pour la génération de triplets de photons que pour la génération de troisième harmonique.

L'étude des corrélations de triplets de photons doit maintenant se poursuivre, dans un premier temps avec le laser de pompe utilisé dans ce travail, puis avec une autre source si cela est jugé nécessaire. De nouvelles stratégies de génération de triplets de photons doivent également être envisagées en parallèle des études quantiques, comme la mise en cavité du milieu non linéaire, dont l'effet attendu est l'augmentation du taux de triplets de photons par rapport aux photons d'injection. Enfin, les premières expériences de génération de triplets de photons dans le rutile devraient confirmer la forte potentialité de ce milieu.

Bibliographie

[1] N. Bloembergen. *Nonlinear Optics.* World Scientific, 1965.

[2] J.P. Pérez, R. Carles, and R. Fleckinger. *Électromagnétisme : fondements et applications avec 300 exercices et problèmes résolus.* Masson, 1996.

[3] A. Yariv and P. Yeh. *Optical waves in crystals.* Wiley New York, 1984.

[4] J.F. Nye. *Physical properties of crystals.* Clarendon Press, 1957.

[5] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics, 7th (expanded) ed.* Cambridge U. Press, Cambridge, 1999.

[6] B. Boulanger and J. Zyss. Chapter 1.7 : Nonlinear optical properties. *International tables for cristallography*, 2003.

[7] J.P. Fève, B. Boulanger, and G. Marnier. Experimental study of internal and external conical refractions in KTP. *Opt. Commun.*, 105(3-4) :243–252, 1994.

[8] J. Douady. Génération de tierce harmonique et production de triplets de photons pour l'optique quantique. *Thèse de doctorat de l'université Joseph Fourier*, 2004.

[9] L.A. Shuvalov. *Modern Crystallography IV : Physical properties of crystals.* Springer-Verlag, 1981.

[10] A Hadni. *Essentials of modern physics applied to the study of the infrared.* Oxford : Pergamon Press, 1967.

[11] P.A. Franken, A.E. Hill, C.W. Peters, and G. Weinreich. Generation of optical harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 7(4) :118–119, 1961.

[12] J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P.S. Pershan. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric. *Phys. Rev.*, 127(6) :1918–1939, 1962.

[13] D.A. Kleinman. Nonlinear dielectric polarization in optical media. *Phys. Rev.*, 126(6) :1977–1979, 1962.

[14] J.P. Fève, B. Boulanger, and J. Douady. Specific properties of cubic optical parametric interactions compared to quadratic interactions. *Phys. Rev. A*, 66(6) :063817, 2002.

[15] P.N. Butcher and D. Cotter. *The Elements of Nonlinear Optics.* Cambridge University Press, 1990.

[16] M.M. Fejer, G.A. Magel, D.H. Jundt, and R.L. Byer. Quasi-phase-matched second harmonic generation-Tuning and tolerances. *IEEE J. Quantum Electron.*, 28(11) :2631–2654, 1992.

[17] J.P. Fève and B. Boulanger. Suppression of quadratic cascading in four-photon interactions using periodically poled media. *Phys. Rev. A*, 65(6) :63814, 2002.

[18] A. Einstein, B. Podolsky, and N. Rosen. Can quantum-mechanical description of physical reality be considered complete ? *Phys. Rev.*, 47(10) :777–780, 1935.

[19] J.S. Bell. On the Einstein-Podolsky-Rosen paradox. *Physics*, 1(3) :195–200, 1964.

[20] S.J. Freedman and J.F. Clauser. Experimental test of Local hidden-Variable theories. *Phys. Rev. Lett.*, 28(14) :938–941, 1972.

[21] R.A. Holt and F.M. Pipkin. Quantum mechanics vs. hidden Variables : polarization correlation measurement on an atomic mercury cascade. *Adv. Atom and Molec. Phys*, 14 :281, 1978.

[22] A. Aspect, P. Grangier, and G. Roger. Experimental tests of realistic local theories via Bell's theorem. *Phys. Rev. Lett.*, 47(7) :460–463, 1981.

[23] A. Aspect, J. Dalibard, and G. Roger. Experimental test of Bell's inequalities using time-varying analyzers. *Phys. Rev. Lett.*, 49(25) :1804–1807, 1982.

[24] G. Weihs, T. Jennewein, C. Simon, H. Weinfurter, and A. Zeilinger. Violation of Bell's inequality under strict Einstein locality conditions. *Phys. Rev. Lett.*, 81(23) :5039–5043, 1998.

[25] W. Tittel, J. Brendel, H. Zbinden, and N. Gisin. Violation of Bell inequalities by photons more than 10 km apart. *Phys. Rev. Lett.*, 81(17) :3563–3566, 1998.

[26] I. Abram, R.K. Raj, J.L. Oudar, and G. Dolique. Direct observation of the second-order coherence of parametrically generated light. *Phys. Rev. Lett.*, 57(20) :2516–2519, 1986.

[27] P.W. Shor. Polynominal time algorithms for discrete logarithms and factoring on a quantum computer. *Proceedings of the First International Symposium on Algorithmic Number Theory*, 1994.

[28] L.K. Grover. Quantum mechanics helps in searching for a needle in a haystack. *Phys. Rev. Lett.*, 79(2) :325–328, 1997.

[29] C.H. Bennett, G. Brassard, C. Crépeau, R. Jozsa, A. Peres, and W.K. Wootters. Teleporting an unknown quantum state via dual classical and Einstein-Podolsky-Rosen channels. *Phys. Rev. Lett.*, 70(13) :1895–1899, 1993.

[30] A.K. Ekert. Quantum cryptography based on Bell's theorem. *Phys. Rev. Lett.*, 67(6) :661–663, 1991.

[31] T. Jennewein, C. Simon, G. Weihs, H. Weinfurter, and A. Zeilinger. Quantum cryptography with entangled photons. *Phys. Rev. Lett.*, 84(20) :4729–4732, 2000.

[32] D.S. Naik, C.G. Peterson, A.G. White, A.J. Berglund, and P.G. Kwiat. Entangled state quantum cryptography : eavesdropping on the Ekert protocol. *Phys. Rev. Lett.*, 84(20) :4733–4736, 2000.

[33] W. Tittel, J. Brendel, H. Zbinden, and N. Gisin. Quantum cryptography using entangled photons in energy-time Bell states. *Phys. Rev. Lett.*, 84(20) :4737–4740, 2000.

[34] R. Ursin, F. Tiefenbacher, T. Schmitt-Manderbach, H. Weier, T. Scheidl, M. Lindenthal, B. Blauensteiner, T. Jennewein, J. Perdigues, P. Trojek, B. Oemer, M. Fuerst, M. Meyenburg, J. Rarity, Z. Sodnik, C. Barbieri, H. Weinfurter, and A. Zeilinger. Free-Space distribution of entanglement and single photons over 144 km. *ArXiv Quantum Physics e-prints*, July 2006.

[35] A. Zeilinger, M.A. Horne, H. Weinfurter, and M. Żukowski. Three-particle entanglements from two entangled pairs. *Phys. Rev. Lett.*, 78(16) :3031–3034, 1997.

[36] J. Douady and B. Boulanger. Experimental demonstration of a pure third-order optical parametric downconversion process. *Opt. Lett.*, 29(23) :2794–2796, 2004.

[37] K. Koch, E.C. Cheung, G.T. Moore, S.H. Chakmakjian, and J.M. Liu. Hot spots in parametric fluorescence with a pump beam of finitecross section. *IEEE J. Quantum Electron.*, 31(5) :769–781, 1995.

[38] K. Bencheikh, F. Gravier, J. Douady, A. Levenson, and B. Boulanger. Triple photons : a challenge in nonlinear optics. *C.R. Physique 8*, 2007.

[39] P.F. Byrd and M.D. Friedman. *Handbook of Elliptic Integrals for Engineers and Physicists*. Berlin, 1954.

[40] B.C. Stuart, M.D. Feit, A.M. Rubenchik, B.W. Shore, and M.D. Perry. Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 74(12) :2248–2251, 1995.

[41] J. Douady and B. Boulanger. Calculation of quadratic cascading contributions associated with a phase-matched cubic frequency difference generation in a $KTiOPO_4$ crystal. *J. Opt. A : Pure Appl. Opt.*, 7(9) :467–471, 2005.

[42] B. Boulanger, J.P. Fève, P. Delarue, I. Rousseau, and G. Marnier. Cubic optical nonlinearity of KTiOPO 4. *J. Phys. B*, 32 :475–488, 1999.

[43] K. Kato. Parametric oscillation at 3.2 μm in KTP pumped at 1.064 μm. *IEEE J. Quantum Electron.*, 27(5) :1137–1140, 1991.

[44] D.M. Greenberger, M.A. Horne, A. Shimony, and A. Zeilinger. Bell's theorem without inequalities. *Am. J. Phys.*, 58(12) :1131–1143, 1990.

[45] U. Leonhardt. Measuring the quantum state of light. *Measurement Science and Technology*, 11(12) :1827–1828, 2000.

[46] H.A. Bachor and T.C. Ralph. *A guide to experiments in quantum optics*. Physics Textbook, Wiley-VCH, 2004.

[47] K. Banaszek and P.L. Knight. Quantum interference in three-photon down-conversion. *Phys. Rev. A*, 55(3) :2368–2375, 1997.

[48] S.F. Pereira, M. Xiao, H.J. Kimble, and J.L. Hall. Generation of squeezed light by intracavity frequency doubling. *Phys. Rev. A*, 38(9) :4931–4934, 1988.

[49] P.K. Lam, T.C. Ralph, B.C. Buchler, D.E. McClelland, H.A. Bachor, and J. Gao. Optimization and transfer of vacuum squeezing from an optical parametric oscillator. *J. Opt. B*, 1 :469–474, 1999.

[50] J.P. Fève, B. Boulanger, and Y. Guillien. Efficient energy conversion for cubic third-harmonic generation that is phase-matched in $KTiOPO_4$. *Opt. Lett.*, 25(18) :1373–1375, 2000.

[51] J.P. Feve and B. Boulanger. Calculated suppression of cascading quadratic processes in cubic third harmonic generation using periodically poled media. *Conference on Lasers and Electro-Optics*, pages 451–452, 2001.

[52] J. Douady, B. Boulanger, E. Fuchs, F. Smektala, and J. Troles. Symmetry and phase-matching properties of third-harmonic generation under the photoelastic effect in Ge-As-Se chalcogenide glasses. *J. Opt. Soc. Am. B*, 22(7) :1486–1492, 2005.

[53] B. Boulanger, J.P. Feve, G. Marnier, C. Bonnin, P. Villeval, and J.J. Zondy. Absolute measurement of quadratic nonlinearities from phase-matched second-harmonic generation in a single KTP crystal cut as a sphere. *J. Opt. Soc. Am. B*, 14(6) :1380–1386, 1997.

[54] G. Grynberg, A. Aspect, and C. Fabre. *Introduction aux lasers et à l'optique quantique.* Ellipses, 1997.

[55] S. Brosnan and R. Byer. Optical parametric oscillator threshold and linewidth studies. *IEEE J. Quantum Electron.*, 15(6) :415–431, 1979.

[56] A.E. Siegman. *Lasers.* University Science Books, 1986.

[57] D. Dangoisse, D. Hennequin, and V. Zehnlé-Dhaoui. *Les Lasers, Cours et Exercices.* Edition Dunod, 1998.

[58] J.C.M. Diels, J.J. Fontaine, I.C. McMichael, and F. Simoni. Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy. *Appl. Opt.*, 24 :1270–1282, 1985.

[59] J.J. Zondy. Comparative theory of walkoff-limited type-II versus type-I second harmonic generation with gaussian beams. *Opt. Commun.*, 81(6) :427–440, 1991.

[60] O. Pacaud. Oscillateurs Paramétriques Optiques basés sur des cristaux de géométrie cylindrique. *Thèse de doctorat de l'université Joseph Fourier*, 2001.

[61] F. Gravier and B. Boulanger. Third order Difference Frequency Generation : modelization and its experimental validation in KTP. *Soumis à Optics Express*, 2007.

[62] Données issues de Almazoptics Inc. *http ://www.almazoptics.com.*

[63] J.R. DeVore. Refractive indices of rutile and sphalerite. *J. Opt. Soc. Am*, 41(6) :416–419, 1951.

[64] J. Rams, A. Tejeda, and J.M. Cabrera. Refractive indices of rutile as a function of temperature and wavelength. *J. Appl. Phys.*, 82(3) :994–997, 1997.

[65] R.C. Miller. Optical second harmonic generation in piezoelectric crystals. *Appl. Phys. Lett.*, 5 :17, 1964.

[66] T. Hashimoto, T. Yoko, and S. Sakka. Sol–Gel Preparation and Third-Order Nonlinear Optical Properties of TiO 2 Thin Films. *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, 67(3) :653–660, 1994.

[67] E.M. Vogel, M.J. Weber, and D.M. Krol. Nonlinear optical phenomena in glass. *Phys. Chem. Glasses*, 32(6) :231–254, 1991.

[68] R. Adair, L.L. Chase, and S.A. Payne. Nonlinear refractive index of optical crystals. *Phys. Rev. B*, 39(5) :3337–3350, 1989.

[69] T. Hashimoto and T. Yoko. Phase matching of rutile single crystal. *Appl. Phys. Lett.*, 68(18) :2478–2479, 2006.

[70] B. Boulanger and G. Marnier. Field factor calculation for the study of the relationships between all the three-wave nonlinear optical interactions in uniaxial and biaxial crystals. *J. Phys. Condens. Matter*, 3(43) :8327–8350, 1991.

[71] B. Boulanger, P. Segonds, J.P. Fève, O. Pacaud, B. Ménaert, and J. Zaccaro. Spheres and cylinders in parametric nonlinear optics. *Opt. Mat.*, 26(4) :459–464, 2004.

[72] F. Gravier and B. Boulanger. Cubic parametric frequency generation in rutile single crystal. *Opt. Express*, 14(24) :11715–11720, 2006.

ANNEXES

Annexe A

Eléments des tenseurs de susceptibilité

PROPRIETES CRISTALLOGRAPHIQUES		PROPRIETES OPTIQUES		
		$\chi^{(1)}$	$\chi^{(2)}$	$\chi^{(3)}$
Système cristallin	**Classe de symétrie d'orientation**	**Classe Optique**	**Eléments non nuls et indépendants de $\chi^{(2)}$**	**Eléments non nuls et indépendants de $\chi^{(3)}$**
Cubique	$\bar{4}3m, 23$	**Isotrope** 1	1 *xyz = xzy = yzx = yxz = zxy = zyx*	2 *xxxx = yyyy = zzzz* *xxzz = xzxz = xzzx = xxyy = xyxy = xyyx = yyzz* *= yzyz = yzzy = yyxx = yxyx = yxxy = zzyy* *= zyzy = zyyz = zzxx = zxzx = zxxz*
	$432, m3m, m3$		0	
Trigonal	3	**Uniaxe** 2	4 *xxx = -xyy = -yyx = -yxy* *xzx = xxz = zxx = yyz = yzy = zyy* *yyy = -yxx = -xxy = -xyx* *zzz*	6 *xxxx = yyyy = xxyy + xyxy + xyyx* *xyyz = xyzy = xzyy = -xxxz = -xxzx = -xzxx* *= yxyz = yxzy = yyxz = yyzx = yzxy = yzyx* *= -zxxx = zxyy = zyxy = zyyx* *xxzz = xzxz = xzzx = yyzz = yzyz = yzzy = zyyz* *= zyzy = zzyy = zxxz = zxzx = zzxx* *xxyy = xyxy = xyyx = yxxy = yxyx = yyxx* *xxyz = xxzy = xyxz = xyzx = xzxy = xzyx* *= -yyyz = -yyzy = -yzyy = yxxz = yxzx = yzxx* *= -zyyy = zxxy = zxyx = zyxx* *zzzz*
	$\bar{3}$		0	
	$3m$		3 *xzx = xxz = zxx = yyz = yzy = zyy* *yyy = -yxx = -xxy = -xyx* *zzz*	5 *xxxx = yyyy = xxyy + xyxy + xyyx* *xxzz = xzxz = xzzx = yyzz = yzyz = yzzy = zyyz* *= zyzy = zzyy = zxxz = zxzx = zzxx* *xxyy = xyxy = xyyx = yxxy = yxyx = yyxx* *xxyz = xxzy = xyxz = xyzx = xzxy = xzyx* *= -yyyz = -yyzy = -yzyy = yxxz = yxzx = yzxx* *= -zyyy = zxxy = zxyx = zyxx* *zzzz*
	32		1 *xxx = -xyy = -yyx = -yxy*	
	$\bar{3}m$		0	
Tétragonal	$\frac{4}{m}$		0	5 *xxxx = yyyy* *xyyy = yxyy = yyxy = yyyx = -xxxy = -xxyx* *= -xyxx = -yxxx* *xxzz = xzxz = xzzx = yyzz = yzyz = yzzy = zyyz* *= zyzy = zzyy = zxxz = zxzx = zzxx* *xxyy = xyxy = xyyx = yxxy = yxyx = yyxx* *zzzz*
	$\bar{4}$		2 *xyz = xzy = yxz = yzx = zxy = zyx* *xzx = xxz = zxx = -yzy = -yyz = -zyy*	
	4		2 *xzx = xxz = zxx = yzy = yyz = zyy* *zzz*	
	$4mm$		2 *xzx = xxz = zxx = yzy = yyz = zyy* *zzz*	4 *xxxx = yyyy* *xxzz = xzxz = xzzx = yyzz = yzyz = yzzy = zyyz* *= zyzy = zzyy = zxxz = zxzx = zzxx* *xxyy = xyxy = xyyx = yxxy = yxyx = yyxx* *zzzz*
	$\bar{4}2m$		1 *xyz = xzy = yxz = yzx = zxy = zyx*	
	$422, \frac{4}{m}mm$		0	

PROPRIETES CRISTALLOGRAPHIQUES		PROPRIETES OPTIQUES		
		$\chi^{(1)}$	$\chi^{(2)}$	$\chi^{(3)}$
Système cristallin	**Classe de symétrie d'orientation**	**Classe Optique**	**Eléments non nuls et indépendants de $\chi^{(2)}$**	**Eléments non nuls et indépendants de $\chi^{(3)}$**
Hexagonal	$6, 6mm$	**Uniaxe** 2	$xzx = xxz = zxx = yyz = yzy = zyy$ zzz **2**	**4** $xxxx = yyyy = xxyy + xyxy + xyyx$ $xxzz = xzxz = xzzx = yyzz = yzyz = yzzy = zyyz$ $= zyzy = zzyy = zxxz = zxzx = zzxx$ $xxyy = xyxy = xyyx = yxxy = yxyx = yyxx$ $zzzz$
	$\bar{6}$		$xxx = -xyy = -yxy = -yyx$ $yyy = -yxx = -xyx = -xxy$ **2**	
	$\bar{6}2m$		$yyy = -yxx = -xxy = -xyx$ **1**	
	$\frac{6}{m}, 622, \frac{6}{m}mm$		**0**	
Orthorhombique	222	**Biaxe** 3	$xyz = xzy = yzx = yxz = zxy = zyx$ **1**	**6** $xxxx$ $xxzz = xzxz = xzzx = zxxz = zxzx = zzxx$ $xxyy = xyxy = xyyx = yxxy = yxyx = yyxx$ $yyyy$ $yyzz = yzyz = yzzy = zyyz = zyzy = zzyy$ $zzzz$
	$mm2$		$xzx = xxz = zxx$ $yyz = yzy = zyy$ zzz **3**	
	mmm		**0**	
Monoclinique	2		$xyz = xzy = yxz = yzx = zxy = zyx$ $xxz = xzx = zxx$ $yyz = yzy = zyy$ zzz **4**	**9** $xxxx$ $xyyy = yxyy = yyxy = yyyx$ $xyzz = xzyz = xzzy = yxzz = yzxz = yzzx = zxyz$ $= zxzy = zyxz = zyzx = zzxy = zzyx$ $xxzz = xzxz = xzzx = zxxz = zxzx = zzxx$ $xxyy = xyxy = xyyx = yxxy = yxyx = yyxx$ $xxxy = xxyx = xyxx = yxxx$ $yyyy$ $yyzz = yzyz = yzzy = zyyz = zyzy = zzyy$ $zzzz$
	m		xxx $xyy = yxy = yyx$ $xzz = zxz = zzx$ $xxy = xyx = yxx$ yyy $yzz = zyz = zzy$ **6**	
	$\frac{2}{m}$		**0**	
Triclinique	1		xxx $xyy = yxy = yyx$ $xzz = zxz = zzx$ $xyz = xzy = yxz = yzx = zxy = zyx$ $xxz = xzx = zxx$ $xxy = xyx = yxx$ yyy $yzz = zyz = zzy$ $yyz = yzy = zyy$ zzz **10**	**15** $xxxx$ $xyyy = yxyy = yyxy = yyyx$ $xzzz = zxzz = zzxz = zzzx$ $xyzz = xzyz = xzzy = yxzz = yzxz = yzzx = zxyz$ $= zxzy = zyxz = zyzx = zzxy = zzyx$ $xyyz = xyzy = xzyy = yxyz = yxzy = yyxz$ $= yyzx = yzxy = yzyx = zxyy = zyxy = zyyx$ $xxzz = xzxz = xzzx = zxxz = zxzx = zzxx$ $xxxz = xxzx = xzxx = zxxx$ $xxyy = xyxy = xyyx = yxxy = yxyx = yyxx$ $xxxy = xxyx = xyxx = yxxx$ $xxyz = xxzy = xyxz = xyzx = xzxy = xzyx$ $= yxxz = yxzx = yzxx = zxxy = zxyx = zyxx$ $yyyy$ $yzzz = zyzz = zzyz = zzzy$ $yyzz = yzyz = yzzy = zyyz = zyzy = zzyy$ $yyyz = yyzy = yzyy = zyyy$ $zzzz$
	$\bar{1}$		**0**	

Propriétés optiques linéaires et non linéaires des milieux cristallins dans l'approximation de Kleinmann ; le chiffre encadré dans chaque case correspond au nombre d'éléments non nuls indépendants.

Annexe B

Principales propriétés de $Ti0_2$-Rutile

Propriétés cristallographiques

Structure	**Rutile**	Anatase	Brookite
Système cristallin	**Tétragonal**	Tétragonal	Orthorhombique
Classe de symétrie d'orientation	**4/mmm**	4/mmm	mmm
Groupe d'espace	**P42/mnm**	I41/amd	Pbca

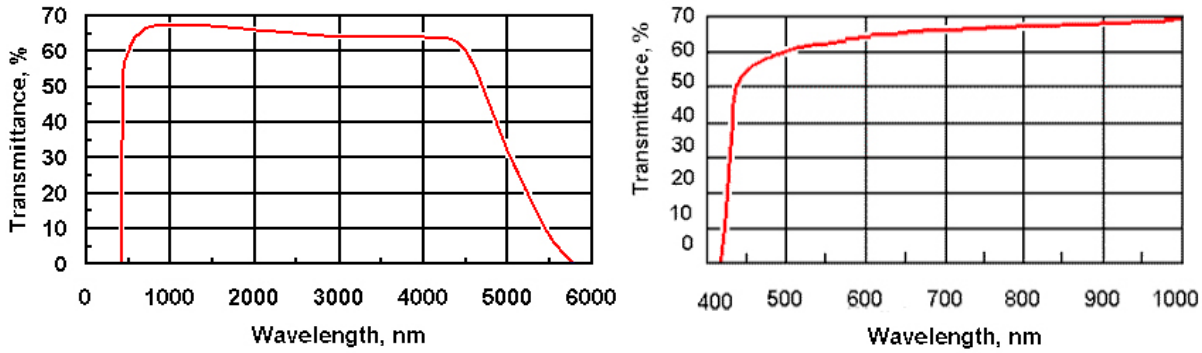
Propriétés optiques

Généralités

Classe optique	Uniaxe positif	
Domaine de transparence	430 - 6200 nm	
Indice de réfraction ordinaire n_o	2,484	à 1064 nm
Indice de réfraction extraordinaire n_e	2,710	à 1064 nm
Biréfringence n_e - n_o	0,226	à 1064 nm
Pertes en réflexion moyenne sur une face	19,7 %	à 1064 nm

Données issues de [62].

Transmission



Transmission d'un échantillon de 7 mm de Rutile (gauche) ; zoom sur le début du domaine de transparence (droite) [62].

Dispersion en longueur d'onde des indices de réfraction

Equations de dispersion	**Domaine de mesure**	**Source**
$n_o^2(\lambda) = 6,53133 + \frac{2,896.10^6}{\lambda^2 - 6,414.10^4} + \frac{3,7712.10^7}{\lambda^2 - 5,276.10^7}$ $n_e^2(\lambda) = 7,19398 + \frac{3,329.10^6}{\lambda^2 - 8,422.10^4}$	$440 < \lambda < 1530\ nm$	[62]
$n_o^2(\lambda) = 5,913 + \frac{2,441.10^5}{\lambda^2 - 0,803.10^5}$ $n_e^2(\lambda) = 7,197 + \frac{3,322.10^5}{\lambda^2 - 0,843.10^5}$	$440 < \lambda < 1540\ nm$	[63]
$n_o^2(\lambda) = 5,3427 + \frac{3,119.10^{-5}}{1,183.10^{-5} - \lambda^{-2}} - 48,775.10^{-9}\lambda^2$ $n_e^2(\lambda) = 3,0993 + \frac{5,0407.10^{-5}}{1,241.10^{-5} - \lambda^{-2}} + 2,483.10^{-9}\lambda^2$	$454 < \lambda < 1300\ nm$ $T = 25^oC$	[64]

Equations de dispersion du rutile ; la longueur d'onde est en nanomètre.

Annexe C

K. Bencheikh, F. Gravier, J. Douady, A. Levenson, B. Boulanger

Triple Photons : a challenge in nonlinear and quantum optics

Comptes-Rendus Physique de l'Académie des Sciences 8 (2007)

Available online at www.sciencedirect.com
ScienceDirect
C. R. Physique 8 (2007) 206–220
COMPTES RENDUS PHYSIQUE
http://france.elsevier.com/direct/COMREN/

Recent advances in crystal optics/Avancées récentes en optique cristalline

Triple photons: a challenge in nonlinear and quantum optics

Kamel Bencheikh [a], Fabien Gravier [b], Julien Douady [c], Ariel Levenson [a], Benoît Boulanger [b,*]

[a] *Laboratoire de photonique et de nanostructures, centre national de la recherche scientifique, route de Nozay, 91460 Marcoussis, France*
[b] *Institut Néel, centre national de la recherche scientifique – université Joseph-Fourier, 25, rue des Martyrs, BP 166, 38042 Grenoble cedex 9, France*
[c] *Laboratoire de spectrométrie physique, université Joseph-Fourier – centre national de la recherche scientifique, BP 87, 38402 Saint Martin d'Hères, France*

Available online 15 September 2006

Invited Paper

Abstract

This article is devoted to the generation and the quantum correlations of triple photons, which correspond to the creation of three highly correlated photons from the splitting of a single photon by a phase-matched third-order parametric nonlinear process. These triples constitute a Greenberger–Horne–Zeilinger state of light and are interesting from a fundamental point of view but also for new schemes of quantum cryptography. We give here the classical and quantum descriptions of triple photon generation, we report on the first experimental demonstration of such a generation, and we calculate the Wigner function of three-photon quantum states of light. ***To cite this article: K. Bencheikh et al., C. R. Physique 8 (2007).***
© 2006 Académie des sciences. Published by Elsevier Masson SAS. All rights reserved.

Résumé

Les triplets de photons : un défi pour l'optique non linéaire et l'optique quantique. Cet article est consacré à la generation et aux corrélations quantiques des triplets de photons. Il s'agit de la création de trois photons fortement corrélés produits à partir de la scission d'un seul photon par un processus non linéaire paramétrique du troisième ordre à l'accord de phase. Ces triplets constituent un état Greenberger–Horne–Zeilinger de la lumière ; ils sont intéressants non seulement d'un point de vue fondamental mais aussi pour de nouveaux protocoles de cryptographie quantique. Nous donnons ici la description à la fois classique et quantique de la génération de triplets de photons, nous décrivons la première démonstration expérimentale d'une telle génération, et nous calculons la fonction de Wigner des états quantiques à 3 photons. ***Pour citer cet article : K. Bencheikh et al., C. R. Physique 8 (2007).***
© 2006 Académie des sciences. Published by Elsevier Masson SAS. All rights reserved.

Keywords: Cubic nonlinear optics; Quantum optics; Nonlinear crystals; Nonclassical states of light; GHZ; Parametric frequency conversion; Quantum correlations; Parametric fluorescence

Mots-clés : Optique non linéaire cubique ; Optique quantique ; Cristaux non linéaires ; États non classiques de la lumière ; GHZ ; Conversion de fréquence paramétrique ; Corrélation quantiques ; Fluorescence paramétrique

* Corresponding author.
E-mail address: benoit.boulanger@grenoble.cnrs.fr (B. Boulanger).

1631-0705/$ – see front matter © 2006 Académie des sciences. Published by Elsevier Masson SAS. All rights reserved.
doi:10.1016/j.crhy.2006.07.014

1. Introduction: from twin to triple photons

It was only three years after the invention of the laser in 1958 by Arthur L. Schawlow and Charles H. Townes that the first nonlinear optical effect has been observed by Franken et al. [1]. Thanks to the strong electromagnetic field delivered by the 'freshly' invented laser, they observed the birth of a new electromagnetic field oscillating at the second harmonic frequency of the laser field shining on a quartz crystal. This was the beginning of a still ongoing story, where laser and crystal technologies play a major role and in which nonlinear optics reached a high level of maturity. A long road full of fundamental demonstrations and real applications have been achieved. Indeed, nonlinear optical effects such second and third harmonic generation, sum frequency or frequency mixing have become very common.

Quantum mechanically, the development of nonlinear optics allowed the generation and manipulation of new quantum states of light, going from the simplest and common one, the so-called coherent states [2], to squeezed states [3,4], Fock states [5] or entangled states [6].

Among the various nonlinear processes, twin photon generation is one of the most fundamental in manipulating the quantum properties of light. Twin-photon generation is a second order nonlinear process in which a pump photon disappears leading to the creation of two photons with lower energy. This generation is driven by an optical pump field oscillating at the frequency ω_p: it can occur spontaneously, which is called parametric fluorescence, or it can be forced by a seed field oscillating at one or both of the twin photon frequencies; this is the optical parametric amplification, or optical parametric oscillator if the twin photon generation process is enhanced by a resonant cavity.

From the classical point of view, the main interest of a parametric twin beam based process relies in the possibility of obtaining a widely tuneable optical source. Tuneability is associated to the choice of the emission frequency by the phase-matching condition, which corresponds to photon momentum conservation. These types of sources are nowadays commercially available and are widely used in research laboratories. They largely and advantageously expand the spectral regions attained by lasers. Although parametric amplifiers and oscillators are used as 'lasers' in most usual applications, an inherent property makes them deeply different from lasers: in a laser, photons are emitted one-by-one according to Poisson statistics; this is no longer the case in optical parametric twin-photon generators where the photons are emitted by pairs, altering drastically their behaviour at the very heart of several non classical properties, such as second order coherence, quantum correlations between the twins, squeezing of quantum fluctuations and, the more intriguing, quantum entanglement. Besides the tuneable optical parametric sources that are widely developed nowadays, these quantum aspects constitute the key feature in huge number of demonstrations such as noiseless optical amplification [7], quantum cryptography [8] and quantum teleportation [9].

Since the twin photons have deeply influenced the history of nonlinear and quantum optics by their wide range of applications and their paradigmatic place they stand in generating new quantum states of light, we can ask whether the properties of triple photons can play a similar major role in the future of nonlinear and quantum optics.

From the classical point of view, triple photon generation is a real challenge. Indeed, a few attempts have been made in the past ten years, but without any success. These failures were due in part to the weak magnitude of the third order electric susceptibility, but also to partial knowledge of the specific of the corresponding processes, which cannot be deduced from a simple analogy with second order interactions. The most symptomatic feature deals with the phase-matching properties, since a third order parametric fluorescence would generate a broad continuum instead of discrete wavelengths, which leads to a huge spreading of the energy and thus to a weak amount of photons *per* generated spectral component. This behaviour is due to the existence of only two equations, i.e. the energy and momentum conservations, to fix the values of three parameters, i.e. the wavelengths of the three generated photons. The development of the classical theory of the third order nonlinear parametric interactions is then the starting point, from which it will be possible to define the most suitable schemes to achieve an efficient triple photon generation and hence to perform quantum experiments.

Quantum mechanically, triple photon generation is obviously the most direct way to produce pure quantum states of light whose statistics go beyond the usual Gaussian statistics associated with coherent sources and optical parametric twin-photon generators. The simultaneous birth of three photons is indeed at the origin of intrinsic three-body quantum properties such as three-particle Greenberger–Horne–Zeilinger quantum entanglement and Wigner functions presenting quantum interferences and negativities.

From the seminal work of [10,11] on optical parametric conversion to the nowadays mature sources for both classical and quantum optical applications, a long road has been covered thanks to the development of a classical and

a quantum theoretical framework that has allowed one to drive the experimental efforts, and thanks to the development of high-quality and highly second order nonlinear optical materials. As regards three-photon generation, the story is only starting and efficient third order nonlinear materials beyond three-photon generation as efficient as those permitting twin-photon generation are not yet available.

In this article, we consider the generation of triple photons where a pump field incident on a nonlinear material gives birth simultaneously to three photons. We give a classical description of the phenomenon and a realistic scheme that lead to the first experimental demonstration of an optical parametric amplification based on three-photon generation in a KTP crystal. Furthermore, we calculate the efficiency of a third order parametric fluorescence process, and we address, through the calculation of the Wigner function, the quantum properties of three-photon quantum states of light, showing their purely non classical behaviour.

2. Classical theory of parametric third-order nonlinear optics

Two possible schemes of third-order nonlinear optical interactions can be distinguished according to energy conservation:

$$\hbar\omega_0 + \hbar\omega_1 = \hbar\omega_2 + \hbar\omega_3 \tag{1}$$

$$\hbar\omega_0 = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 + \hbar\omega_3 \tag{2}$$

Relation (1) corresponds to a wide range of nonlinear processes such as a nonlinear index, two-photon absorption, solitons, phase conjugation, four-wave mixing or Raman scattering, for example. These interactions are not able to produce photon triples, since none of the four photons involved have an energy equal to the sum of the energy of the three others, contrary to the situations described by relation (2). Actually in this last case, the splitting of a photon at $\hbar\omega_0$ can lead to the generation of three lower-energy photons at $\hbar\omega_1$, $\hbar\omega_2$ and $\hbar\omega_3$, which corresponds to third order parametric fluorescence as shown in Fig. 1.

Note that third order sum-frequency generation, like third harmonic generation for example, is the reverse process of triple photon generation: it is also described by relation (2), but it corresponds to the fusion of three incoming photons at $\hbar\omega_1$, $\hbar\omega_2$ and $\hbar\omega_3$, leading to the generation of a photon at $\hbar\omega_0$.

The Cartesian coordinates of the four spectral components of the macroscopic third order electronic polarization of a unit volume corresponding to a nonlinear process described by relation (2) are given by [12]:

$$P_i^{(3)}(\omega_a) = \varepsilon_0 \cdot \sum_{j,k,l} \left(\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_a = \omega_b + \omega_c + \omega_d) \cdot E_j(\omega_b) \cdot E_k(\omega_c) \cdot E_l(\omega_d)\right) \tag{3}$$

with $\{\omega_b, \omega_c, \omega_d\} = \{\omega_1, \omega_2, \omega_3\}, \{\omega_0, -\omega_2, -\omega_3\}, \{\omega_0, -\omega_1, -\omega_3\}, \{\omega_0, -\omega_1, -\omega_2\}$ for $\omega_a = \omega_0, \omega_1, \omega_2, \omega_3$ respectively; the Cartesian indices i, j, k, and l are relative to the optical frame (O, x, y, z), the E_α are the components of the complex amplitudes of the electric fields of the four interacting waves, and the $\chi_{ijkl}^{(3)}$ are the components of the third order electric susceptibility tensor of the medium at the different circular frequencies.

$\chi^{(3)}$ is a rank-four polar tensor: it has 81 independent components in the general case, but Kleinmann approximation and the orientation symmetry of the medium according to the Neumann principle allow us to reduce this

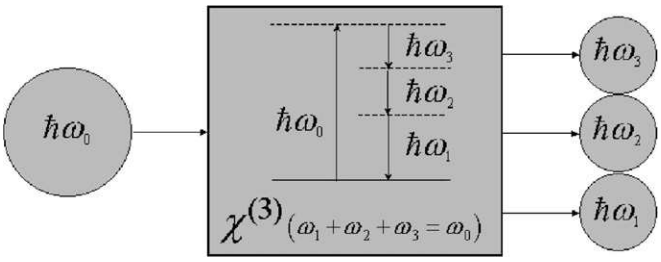


Fig. 1. Photonic diagram of the parametric fluorescence governed by the third order electric susceptibility $\chi^{(3)}$: an incoming photon at $\hbar\omega_0$ is splitted into three photons at $\hbar\omega_1$, $\hbar\omega_2$ and $\hbar\omega_3$ in the nonlinear medium.

number [13]. Both centrosymmetric and noncentrosymmetric crystal classes have a nonzero third order electric susceptibility, its magnitude being very weak and ranging typically between 10^{-21} m^2/V^2 and 10^{-19} m^2/V^2 [14].

In the case of non magnetic and non-conducting medium, the resolution of Maxwell equations leads to the following propagation equations for each of the four interacting waves:

$$\overrightarrow{\mathrm{rot}}\big(\overrightarrow{\mathrm{rot}}\big(\vec{E}(\omega_i)\big)\big) + \mu_0 \cdot \varepsilon_0 \cdot \varepsilon_r(\omega_i) \cdot \frac{\partial^2 \vec{E}(\omega_i)}{\partial t^2} = \mu_0 \cdot \frac{\partial^2 \vec{P}^{(3)}}{\partial t^2} \tag{4}$$

where $i = 0, 1, 2$, or 3, and the Cartesian components of $\vec{P}^{(3)}$ are given by (3).

By considering that the four interacting waves propagate in the same direction, Z, by neglecting the absorption and by assuming the slowly varying envelope and ABDP approximation, i.e., $\chi^{(3)}_{ijkl}(\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3) = \chi^{(3)}_{jikl}(\omega_1 = \omega_0 - \omega_2 - \omega_3) = \chi^{(3)}_{kijl}(\omega_2 = \omega_0 - \omega_1 - \omega_3) = \chi^{(3)}_{lijk}(\omega_3 = \omega_0 - \omega_1 - \omega_2)$ Eq. (4) leads to the following coupled system:

$$\frac{\partial E(\omega_a)}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi \cdot \chi^{(3)}_{\mathrm{eff}}}{n(\omega_a) \cdot \lambda_a . \cos(\gamma(\omega_a))} \cdot E(\omega_b) \cdot E(\omega_c) \cdot E(\omega_d) \cdot \mathrm{e}^{j.\xi.\Delta k.Z} \tag{5}$$

with $\{\omega_b, \omega_c, \omega_d, \xi\} = \{\omega_1, \omega_2, \omega_3, -1\}$, $\{\omega_0, -\omega_2, -\omega_3 + 1\}$, $\{\omega_0, -\omega_1, -\omega_3, +1\}$, $\{\omega_0, -\omega_1, -\omega_2, +1\}$ for $\omega_a = \omega_0, \omega_1, \omega_2, \omega_3$ respectively.

$n(\omega_i)$ is the refractive index corresponding to $E(\omega_i)$, $\lambda_i = \frac{2\pi \cdot c}{\omega_i}$ is the wavelength associated with ω_i, and $\gamma(\omega_i)$ is the walk-off angle corresponding to the double refraction effect.

The effective coefficient, $\chi^{(3)}_{\mathrm{eff}}$, is the contraction between the third order electric susceptibility tensor $\chi^{(3)}$ and the field tensor $F^{(3)}$ [13]:

$$\chi^{(3)}_{\mathrm{eff}} = \chi^{(3)} \cdot F^{(3)} \tag{6}$$

where $F^{(3)}$ is also a rank-four tensor expressed as the tensorial product $\otimes$ between the unit electric field vectors of the four interacting waves:

$$F^{(3)} = \vec{e}(\omega_0) \otimes \vec{e}(\omega_1) \otimes \vec{e}(\omega_2) \otimes \vec{e}(\omega_3) \tag{7}$$

The symmetry and the components of the field tensor are directly linked with the configuration of polarization of the nonlinear process, and thus they are trigonometric functions of the direction of propagation [13]. So the effective coefficient depends on both the linear and nonlinear optical properties.

The phase mismatch Δk is given by:

$$\Delta k = k_0 - k_1 - k_2 - k_3 \tag{8}$$

where $k_i = \frac{\omega_i}{c} n(\omega_i)$ is the modulus of the wave vector associated with $\vec{E}(\omega_i)$. The product $\Delta k \cdot Z$ represents the dephasing between the nonlinear polarization $\vec{P}^{(3)}(\omega_i)$ and the corresponding radiated electric field $\vec{E}(\omega_i)$. The transfer of energy between the interacting waves is maximum for $\Delta k = 0$, which defines phase-matching: it is realized by the matching of the refractive indices using birefringence of anisotropic media. Phase-matching can be achieved only if the direction of propagation has a birefringence that compensates the dispersion. Except for a propagation along the optical axis, there are two possible values, n^+ and n^-, which are the two solutions of the Fresnel equation [13], for each of the four refractive indices involved in relation (8). Thus, there are 2^4 possible combinations of refractive indices, but only 7 are compatible with both the dispersion in frequency, the phase-matching relation (8) and the energy conservation (2): $\{-, +, +, +\}$, $\{-, -, -, +\}$, $\{-, -, +, -\}$, $\{-, +, -, -\}$, $\{-, -, +, +\}$, $\{-, +, -, +\}$ and $\{-, +, +, -\}$ corresponding to $\{n(\omega_0), n(\omega_1), n(\omega_2), n(\omega_3)\}$ [13]. The loci of the phase-matching direction of each of these configurations are calculated by using the corresponding phase-matching relation and the dispersion equations of the principal refractive indices of the considered crystal. Note that from the point of view of the quantum theory of light, the phase-matching of the waves corresponds to the total photon-momentum conservation, i.e. $\hbar\vec{k}_0 = \hbar\vec{k}_1 + \hbar\vec{k}_2 + \hbar\vec{k}_3$. For a fixed direction of propagation and a given pump wavelength λ_0, the triple $(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3)$ generated by parametric fluorescence is not a single one but is spread over a broad continuum. Actually, there are only two coupled relations, i.e. the energy and the momentum conservations, for the determination of three unknown values. Note that it is different in the case of the second order parametric fluorescence for which there are only two unknown values. Fig. 2 gives the example of a propagation along x-axis in a $KTiOPO_4$ crystal with $\lambda_0 = 532$ nm and with the following configuration: $\lambda_0^{(-)} \to \lambda_1^{(+)} + \lambda_2^{(-)} + \lambda_3^{(+)}$.

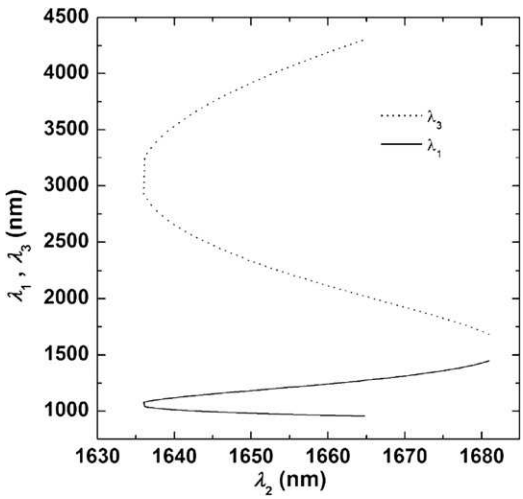


Fig. 2. Calculated phase-matching curves corresponding to the parametric fluorescence $\lambda_0^{(-)} \to \lambda_1^{(+)} + \lambda_2^{(-)} + \lambda_3^{(+)}$ along x-axis of KTP pumped at $\lambda_0 = 532$ nm.

The calculations show a huge spreading, which covers the range 950 to 4500 nm. Such a situation is strongly detrimental to our objective. Actually, it is necessary to concentrate the energy on a single triple if we want to be able to make any observation and measurement, all the more so since the amplitude of $\chi^{(3)}$ is weak. An alternative to avoid any spreading is to fix the value of the wavelength of one photon of the triple: it can be done by irradiating the nonlinear medium with the pump beam at λ_0 and an injection beam at λ_1, λ_2 or λ_3. This process corresponds to a parametric difference-frequency mixing. From the quantum point of view, this process can be seen as the stimulated splitting of the pump photon by the injection photon, and thus the corresponding generated optical state contains a mix of $(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ triple photons and injection photons at ω_1, ω_2 or ω_3. Note that the triple generation can also be stimulated by two injection photons.

Contrary to $\chi^{(2)}$ processes, the quasi-phase-matching of $\chi^{(3)}$ interactions is not possible in periodically poled crystals such as PPLN and PPKTP, or any other ferroelectric crystals: the technique of Z-axis reversal does not lead to the reversal of the sign of the highest third order nonlinear coefficient, $\chi^{(3)}_{zzzz}$, since this coefficient is relative to an even number of the Z-Cartesian index. Note that in the case of an odd number, the quasi-phase-matching of a third order parametric process would be possible.

The complex electric field amplitudes in Eq. (5) are written $E(\omega_i) = |E(\omega_i)| \cdot \mathrm{e}^{j\phi_i}$, where i stands for 0, 1, 2 and 3, and the angles ϕ_i correspond to the initial phases. In the case of phase-matching, i.e. $\Delta k = 0$, system (5) becomes:

$$\frac{\partial |E(\omega_a)| \cdot \mathrm{e}^{j\phi a}}{\partial Z} = j \cdot \frac{\pi \cdot \chi^{(3)}_{\mathrm{eff}}}{n(\omega_a) \cdot \lambda_a \cdot \cos(\gamma(\omega_a))} \cdot \left|E(\omega_b)\right| \cdot \left|E(\omega_c)\right| \cdot \left|E(\omega_d)\right| \cdot \mathrm{e}^{j(\phi_b + \phi_c + \phi_d)} \tag{9}$$

with $\{(\omega_b, \phi_b), (\omega_c, \phi_c), (\omega_d, \phi_d)\} = \{(\omega_1, \phi_1), (\omega_2, \phi_2), (\omega_3, \phi_3)\}$, $\{(\omega_0, \phi_0), (-\omega_2, -\phi_2), (-\omega_3, -\phi_3)\}$, $\{(\omega_0, \phi_0), (-\omega_1, -\phi_1), (-\omega_3, -\phi_3)\}$, $\{(\omega_0, \phi_0), (-\omega_1, -\phi_1), (-\omega_2, -\phi_2)\}$ for $\omega_a = \omega_0, \omega_1, \omega_2, \omega_3$, respectively.

In the case of the generation of triple photons, which corresponds to $\frac{\partial |E(\omega_0)|}{\partial Z} < 0$ and $\frac{\partial |E(\omega_{i\neq 0})|}{\partial Z} > 0$, the initial phases are necessary locked such as $\phi_0 - \phi_1 - \phi_2 - \phi_3 = -\pi/2$. This situation is considered for the following calculations.

We take the example of a triple photon generation pumped at ω_0 and stimulated by two injection photons at ω_1 and ω_2, which corresponds to $|E(\omega_{i\neq 1}, Z = 0)| \neq 0$ and to $|E(\omega_1, Z = 0)| = 0$. Then the integration of Eqs. (9) over the crystal length L leads to the intensity of each of the four interacting beams, according to $I(\omega_i, Z = L) = \frac{1}{2} n(\omega_i) \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} |E(\omega_i, Z = L)|^2$ [15]:

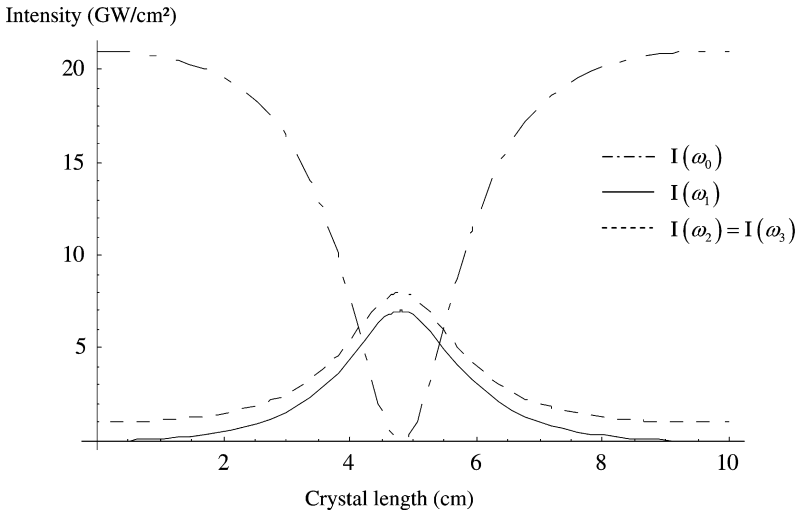


Fig. 3. Calculated intensities of a phase-matched parametric third order frequency mixing along the direction of propagation in a KTP crystal; $\omega_0 = 3\omega$, $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega$.

$$\begin{cases} I(\omega_0, Z=L) = \dfrac{I(\omega_0, Z=0)\cdot(\gamma_{31}+\gamma_{01})\cdot cn^2(a_1\cdot L|1-m_1)}{\Gamma} \\ I(\omega_1, Z=L) = \dfrac{\gamma_{31}\cdot\gamma_{01}\cdot sn^2(a_1\cdot L|1-m_1)}{\Gamma} \\ I(\omega_{2,3}, Z=L) = \dfrac{I(\omega_{2,3}, Z=0)\cdot(\gamma_{31}+\gamma_{01})\cdot(\beta_{2,3}\cdot sn^2(a_1\cdot L|1-m_1)+cn^2(a_1\cdot L|1-m_1))}{\Gamma} \end{cases} \tag{10}$$

where $sn(u|m)$ and $cn(u|m)$ are Jacobi elliptic functions,

$$\Gamma = \gamma_{31}\cdot m_1\cdot sn^2(a_1\cdot L|1-m_1) + (\gamma_{31}+\gamma_{01})\cdot cn^2(a_1\cdot L|1-m_1)$$

$$\gamma_{ij} = \frac{\lambda_i}{\lambda_j} I(\omega_i, Z=0) + I(\omega_j, Z=0)$$

$$\beta_2 = 1,\ \beta_3 = m_1 \text{ with } m_1 = \frac{\gamma_{21}\cdot(\gamma_{01}+\gamma_{31})}{\gamma_{31}\cdot(\gamma_{01}+\gamma_{21})}, \text{ and}$$

$$a_1 = \frac{\Lambda_1}{2}\cdot\sqrt{\gamma_{31}\cdot(\gamma_{01}+\gamma_{21})} \text{ with } \Lambda_1 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}}\cdot\frac{4\pi\cdot\chi^{(3)}_{\text{eff}}}{\sqrt{n(\omega_0)\cdot n(\omega_1)\cdot n(\omega_2)\cdot n(\omega_3)}}\cdot\sqrt{\frac{\lambda_1}{\lambda_0\cdot\lambda_2\cdot\lambda_3}}$$

We consider as a numerical example the interaction $3\omega^- \to \omega^+ + \omega^+ + \omega^-$, with $\lambda_\omega = 1620$ nm, $I(\omega_0 = 3\omega, Z = 0) = 21$ GW/cm^2 and $I(\omega_2 = \omega, Z = 0) = I(\omega_3 = \omega, Z = 0) = 1$ GW/cm^2, phase-matched along the X-axis of KTP. The corresponding curves are plotted in Fig. 3.

According to the periodic evolution of the Jacobi elliptic functions, the intensities of the four interacting fields have a periodic evolution: the photon fusion $\omega^+ + \omega^+ + \omega^- \to 3\omega^-$ starts up when the pump at 3ω is completely depleted by the splitting $3\omega^- \to \omega^+ + \omega^+ + \omega^-$, and so on. That kind of behaviour is the same than for the second order parametric interactions [16].

Having established the main theoretical framework able to describe classically the three-photon generation, we will in the next section address the quantum aspect of three-photon generation.

3. Parametric three-photon fluorescence

The generated three photons are analogous to the Greenberger–Horne–Zeilinger (GHZ) states. They are very attractive because of their three-body quantum correlations that can find a wide range of applications in quantum information domain and more particularly in quantum cryptography. The starting point to the quantum description of three-photon

generation is the estimation of the number of the triplets generated in the fluorescence process by which a pump photon with energy $\hbar\omega_0$ incident on a third order nonlinear crystal splits into three highly correlated photons following the energy conservation relation given by Eq. (2), and the photon momentum conservation:

$$\vec{k}_0 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 + \vec{k}_3 \tag{11}$$

In this process, the only fixed quantities are the pump frequency ω_0 and the pump momentum vector $\vec{k}_0$. The determination of the fluorescence power is based on the Fermi golden rule [17]

$$W = \frac{2\pi}{\hbar}\left|\langle\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3\left|\widehat{H}_i\right|0,0,0\rangle\right|^2\rho \tag{12}$$

that gives the rate of transition from the three-photon quantum state $|0,0,0\rangle$ containing no photons in each mode to the three-photon quantum state $|\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3\rangle$ with a single photon having a momentum $\vec{k}_i$ in each of the three modes. In Eq. (12), ρ is the density per unit energy of the final states and the Hamiltonian $\widehat{H}_i$ describes the third order nonlinear interaction process responsible of the generation of triple photons. It is expressed as following:

$$\widehat{H}_i = \frac{3}{4}\varepsilon_0\chi^{(3)}\left(\frac{2\hbar}{\varepsilon_0 L^3}\right)^2\frac{\sqrt{\omega_0\omega_1\omega_2\omega_3}}{n_0 n_1 n_2 n_3}\alpha_0\int \mathrm{d}^3\vec{r}\left(f(\vec{r})\hat{a}_1^+\hat{a}_2^+\hat{a}_3^+\mathrm{e}^{+i\Delta\vec{k}.\vec{r}-\mathrm{i}\Delta\omega t} + \mathrm{h.c.}\right) \tag{13}$$

where h.c. denotes the Hermitian conjugate. α_0 is a complex number representing the amplitude of the pump field that is supposed strong enough to be described classically; $\hat{a}_i^+$ $(i = 1, 2, 3)$ are the creation operators describing the triple photons, L^3 is the quantification volume and $f(\vec{r}) = \sqrt{2/\pi}(L/w_0)\exp(-\vec{r}^2/w_0^2)$ is a normalization function that accounts for the Gaussian profile of the pump field having a waist size w_0. In Eq. (13), the quantities $\Delta\vec{k} = \vec{k}_0 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2 - \vec{k}_3$ and $\Delta\omega = \omega_0 - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3$ denote the photon-momentum and the energy mismatches, respectively.

The density of final states per unit energy is deduced from the number of modes contained in the element $\mathrm{d}^3\vec{k}_1\,\mathrm{d}^3\vec{k}_2\,\mathrm{d}^3\vec{k}_3$. It is given by:

$$\rho = \frac{1}{(2\pi/L^3)^3}\left(\frac{n_1}{\hbar c}\right)^3 E_1^2\,\mathrm{d}^3\vec{k}_2\,\mathrm{d}^3\vec{k}_3 \tag{14}$$

where $E_1 = \hbar\omega_1$ and $2\pi/L^3$ being the elementary volume occupied by a single mode. The radiated power in the frequency interval $\mathrm{d}\omega_2$ along the direction $\vec{k}_2$ within the solid angle $\mathrm{d}\Omega_2$ is obtained by multiplying (12) by $\hbar\omega_2$ and integrating over $\mathrm{d}^3\vec{k}_3$. Using (12)–(14), we obtain:

$$\begin{aligned} P_2 &= \frac{9\hbar^2}{128\pi^4\varepsilon_0^2 c^7}\left[\chi^{(3)}\right]^2\frac{n_1 n_2}{n_0 n_3^2}P_0 L_{\mathrm{int}}\omega_1^3\omega_2^4\omega_3\,\mathrm{d}\omega_2\,\mathrm{d}\Omega_2 \\ &= \frac{288\hbar^2\pi^5 c^2}{8\varepsilon_0^2}\left[\chi^{(3)}\right]^2\frac{n_1 n_2}{n_0 n_3^2}P_0 L_{\mathrm{int}}\frac{\mathrm{d}\lambda_2\,\mathrm{d}\Omega_2}{\lambda_1^3\lambda_2^6\lambda_3} \end{aligned} \tag{15}$$

For comparison, we recall the expression of the integrated signal power generated in the case of twin-photon parametric fluorescence $\omega_P \to \omega_s + \omega_i$ [17]:

$$P_s = \frac{\hbar}{\pi\varepsilon_0 c^3}\frac{d^2}{n_p^2}P_p L_{\mathrm{int}}\frac{\omega_s^3\omega_i^2}{\omega_p}\,\mathrm{d}\omega_s = \frac{32\hbar\pi^4 c}{\varepsilon_0}\frac{d^2}{n_p^2}P_p L_{\mathrm{int}}\frac{\lambda_p}{\lambda_s^5\lambda_i^2}\,\mathrm{d}\lambda_s \tag{16}$$

where the subscripts p, s and i stand for the pump, signal and idler photons, respectively; d is the effective second order nonlinear coefficient. Eq. (16) can be compared to Eq. (15), making abstraction of the solid angle $\mathrm{d}\Omega_2$, which vanishes after the integration.

As in the case of twin-photon, triple-photon parametric fluorescence is proportional to the pump power and to the interaction length L_{int}. However, Eq. (15) shows that the generated power varies like the reciprocal of the tenth power of the triple-photons wavelengths. In comparison, the fluorescence power of the generated twin-photons given by (16) shows a dependence to the inverse of the seventh power of the twin-photons wavelengths. Though the efficiency is strongly dependent on the wavelength, triple-photon generation is more severely limited by the rather low values of the third order nonlinear susceptibility, i.e. $\chi^{(3)} \approx 10^{-21}\ \mathrm{m}^2/\mathrm{V}^2$, of the most known materials at present days.

Considering the laser source and nonlinear crystal that are used in the present study, we can easily make an estimate from Eq. (15) of the number of triplets we expect to generate with the maximum available pump intensity of about

350 GW/cm^2, corresponding to a pump power $P_0 = 37$ MW, within the 25-mm-long KTP crystal. For simplicity, we suppose that all three wavelengths are equal and are taken to be $\lambda_1 = \lambda_2 = \lambda_3 \approx 1665$ nm. For a detection bandwith $\mathrm{d}\lambda = 50$ nm and $\mathrm{d}\Omega = 10^{-5}$ str, we find that the generated power is about $P_2 \approx 3 \times 10^{-17}$ W, which is very low to be detected. Indeed, if we consider a 10 Hz repetition rate and a 22 ps pulse duration laser source, we expect to produce less than 0.01 triplets *per* day, whereas, according to Eq. (16), about 10^6 twins *per* day are generated if we consider the twin-photon generation process in the same KTP crystal pumped with same pump power at 532 nm and when the phase-matching condition is fulfilled in order to produce degenerate twin photons at 1064 nm, the second order nonlinear susceptibility of the crystal being taken at $d \approx 1$ pm/V. At this stage, the efficiency of triple-photon parametric fluorescence is still very low in comparison with twin-photon fluorescence. This prevents us performing any parametric fluorescence experiments to detect the triplets and studying their quantum properties.

Thus the main conclusion of this quantum description is that it will be necessary to stimulate the photon splitting to achieve an efficient triple photon generation, as proposed above within the framework of the classical description on the basis of the phase-matching analysis.

4. Three-photon quantum states of light

A full quantum theoretical analysis of the three-photon states is contained in the Wigner function [18]:

$$W(q,p) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{e}^{\mathrm{i}px} \langle q - x/2 | \hat{\rho} | q + x/2 \rangle \, \mathrm{d}x \tag{17}$$

that has proven to be very helpful to visualize in the phase space — the amplitude q and phase p quadratures — quantum mechanical system defined by its density matrix $\hat{\rho} = |\psi\rangle\langle\psi|$. This has already been the case for some quantum states of light such as the coherent state, the squeezed vacuum or the bright squeezed state [19,20], whose Wigner function has been experimental reconstructed using homodyne quantum tomography, a technique that allows the measurement of the marginal probability distribution

$$P(q,\theta) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} W(q\cos\theta - p\sin\theta, q\sin\theta + p\cos\theta) \, \mathrm{d}p \tag{18}$$

that expresses the quadrature amplitude distribution.

More generally, the Wigner function contains the full information about the quantum states. More particularly, it allows us to establish the quantum correlations between the different generated modes in the case of twin photons or photon triplets. The Wigner function is a positive definite function in the phase space for classical states with Gaussian marginal probability distributions. However, it can be negative in some circumstances for particular quantum states of light. These negativities are the signature of highly nonclassical behaviour of a quantum state as it has been observed for a quantum state of light prepared in a single-photon Fock state [5]. These quantum negativities are also present in the case of complete degenerate three-photon states obtained by third order optical parametric fluorescence or amplification. This particular case has been investigated by K. Banaszek et al. [21] and T. Felbinger et al. [22], who showed that the Wigner function has a shape of star with three branches in the phase space.

According to the definition (17), the knowledge of the Wigner function depends on the determination of the density operator of the quantum state and thus on the determination of the wave function itself:

$$\left|\psi(t)\right\rangle = \mathrm{e}^{\mathrm{i}\widehat{H}_i t/\hbar} \left|\psi(0)\right\rangle \tag{19}$$

where $\widehat{H}_i = \hbar g(\hat{a}_p \hat{a}_e^{+2} \hat{a}_o^+ + \hat{a}_p^+ \hat{a}_o^2 \hat{a}_e)$ is the interaction Hamiltonian accounting for the nonlinear process through the third order nonlinear coefficient g proportional to $\chi^{(3)}$ and where the annihilation (creation) of a pump photon leads to the creation (annihilation) of two photons in the extraordinary mode e and one photon in the ordinary mode o. Here, we consider the relevant situation where 2 photons (called e) out of 3 are degenerate. We also suppose that all three photons have the same energy $\hbar\omega$. This particular configuration is suited to describe theoretically the experimental situation of the next section. The two degenerate e modes are easily obtained by a linear superposition of the modes $\lambda_2^+ = \lambda_3^- = 1665$nm. The o mode is that corresponding to $\lambda_1^- = 1474$ nm.

At instant $t = 0$, the wave function of the quantum system can be decomposed as:

$$\left|\psi(0)\right\rangle = |\beta, \alpha, 0\rangle = \sum_{n=0}^{\infty}\sum_{m=0}^{\infty} \mathrm{e}^{-(|\beta|^2+|\alpha|^2)/2}\frac{\beta^n\alpha^m}{\sqrt{n!m!}}|n, m, 0\rangle \tag{20}$$

where the pump and extraordinary modes are considered to be coherent states $|\beta\rangle$ and $|\alpha\rangle$. The state $|n, m, 0\rangle = |n\rangle|m\rangle|0\rangle$ is the product of the Fock states with n photon in the pump mode, m photon in the extraordinary mode and no photon in the ordinary mode. The case $|\alpha \neq 0\rangle$ corresponds to the injection at $\lambda_2^+ = \lambda_3^- = 1665$ nm in the seeded KTP-based optical parametric amplifier. The particular situation of no photon in the extraordinary mode can easy be deduced by reducing the sum over m to the first term $m = 0$. Since the free-field Hamiltonian $\widehat{H}_0 = 3\hbar\omega\hat{a}_p^+\hat{a}_p + 2\hbar\omega\hat{a}_e^+\hat{a}_e + \hbar\omega\hat{a}_o^+\hat{a}_o$ is a constant of motion, the total photon number $3\langle\hat{a}_p^+\hat{a}_p\rangle + 2\langle\hat{a}_e^+\hat{a}_e\rangle + \langle\hat{a}_o^+\hat{a}_o\rangle$ is conserved. Moreover, it is easy to show that the set of quantum states $\vec{\Psi}^T = \{|n-k, m+2k, k\rangle,\ k = 0, \ldots, n\}$ are eigenstates of the Hamiltonian $\widehat{H}_0$. Our calculations of the Wigner function corresponding to the state (19) are inspired by the pioneering work of D.F. Walls and R. Barakat in the early 1970s [23]. A preliminary step is the calculation of the state $|\psi(t)\rangle$ itself. This is done by first computing the eigenstates and the eigenvalues of the interaction Hamiltonian $\widehat{H}_i$, or in other words diagonalize the $(n+1)\times(n+1)$ matrix A such that:

$$H_i\vec{\Psi}^T = \hbar g A.\vec{\Psi}^T \tag{21}$$

and where:

$$A = \begin{pmatrix} 0 & a_1 & & & \cdots & & 0 \\ a_1 & 0 & a_2 & & & & \\ 0 & a_2 & 0 & a_3 & & & \vdots \\ & & & \ddots & & & \\ \vdots & & & & \ddots & & 0 \\ 0 & & \cdots & 0 & a_{n-1} & 0 & a_n \\ 0 & & \cdots & & 0 & a_n & 0 \end{pmatrix} \tag{22}$$

with $a_l = \sqrt{(n-k+l)(m+2l+1)(m+2l+2)l}$, $l = 1, \ldots, n$.

The eigenstates $\vec{\Phi}$ of the Hamiltonian $\widehat{H}_i$ are linear superpositions of the free-field Hamiltonian eigenstates $\vec{\Psi}$. This is expressed through the relation $\vec{\Phi}^T = U.\vec{\Psi}^T$ where U is a $(n+1)\times(n+1)$ matrix whose each row i elements are the eigenstates of the matrix A with the eigenvalue λ_i. After some mathematical manipulations, we deduce the three-photon quantum state:

$$\left|\psi(t)\right\rangle = \mathrm{e}^{-(|\beta|^2+|\alpha|^2)/2}\sum_{n=0}^{\infty}\sum_{m=0}^{\infty}\sum_{l=1}^{n+1}\sum_{k=0}^{n}\frac{\beta^n\alpha^m}{\sqrt{n!m!}}\mathrm{e}^{-\mathrm{i}r\lambda_l}u_{l,1}u_{l,k+1}|n-k, m+2k, k\rangle \tag{23}$$

where $r = g \times t$, with t being the interaction time, and $u_{i,j}$ are the matrix U elements. Eq. (23) expresses that the final quantum state can be written as a complex linear superposition of the Fock states $|n-k, m+2k, k\rangle$.

Fig. 4 shows the so-called star state Wigner function in the case of completely degenerate three photons generation. This Wigner function is obtained by setting $\alpha = 1$ and $m = 0$ in Eq. (23). We obtain:

$$\left|\psi(t)\right\rangle = \mathrm{e}^{-|\beta|^2/2}\sum_{n=0}^{\infty}\sum_{l=1}^{n+1}\sum_{k=0}^{n}\frac{\beta^n}{\sqrt{n!}}\mathrm{e}^{-\mathrm{i}r\lambda_l}u_{l,1}u_{l,k+1}|n-k, 3k\rangle \tag{24}$$

and the corresponding density operator:

$$\hat{\rho} = \mathrm{Tr}_p\left(\left|\psi(t)\right\rangle\left\langle\psi(t)\right|\right) = \sum_{j=0}^{\infty}\left\langle j|\psi(t)\right\rangle\left\langle\psi(t)|j\right\rangle \tag{25}$$

where the trace is made over the Fock states $|j\rangle$ of the pump mode. The Wigner function represented in Fig. 4 is obtained for a pump field in the coherent state $|\beta = 2\rangle$. Such weak pump field is considered in order to reduce the long calculation times. The Wigner function in Fig. 5 shows a star-state shape with interferences that can take negative

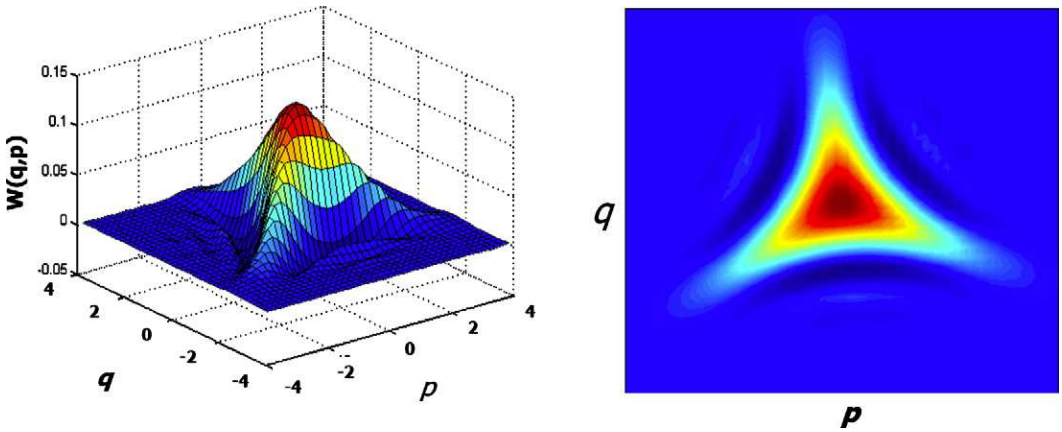


Fig. 4. Wigner function of a degenerate three-photon quantum state for $|\psi(t=0)\rangle = |\beta = 2, 0\rangle$.

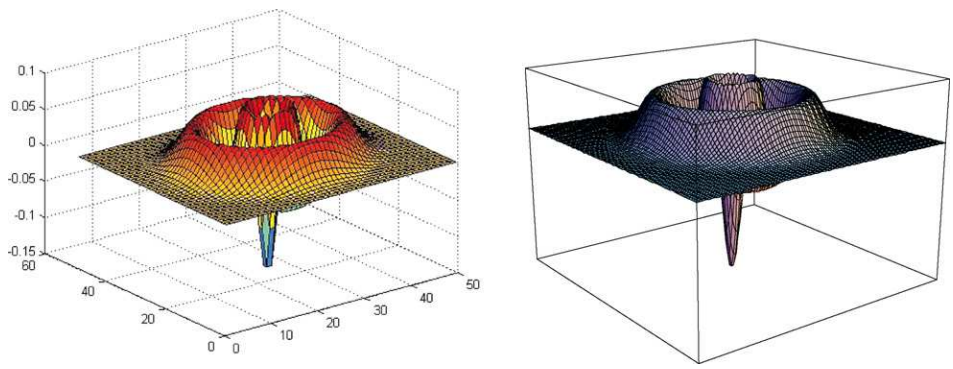


Fig. 5. Left: Wigner function of degenerate triplet photons for a pump field in the Fock number state $|1\rangle$. Right: Wigner function of a Fock number state $|3\rangle$.

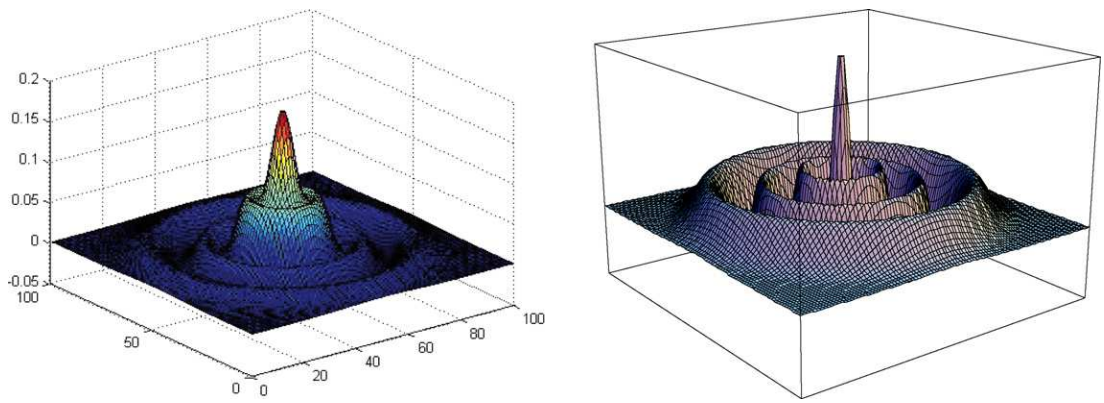


Fig. 6. Left: Wigner function of degenerate triplet photons for a pump field in the Fock number state $|2\rangle$. Right: Wigner function of a Fock number state $|6\rangle$.

values as predicted in Refs. [21,22]. This confirms the validity of our calculations. Moreover, if we consider a pump field in a single photon Fock state $|n_{3\omega} = 1\rangle$, the Wigner function (Fig. 5) associated with the quantum state of the generated three photons is similar to the Wigner function of the Fock state $|n_\omega = 3\rangle$ as we expect. Similarly, we obtain a Wigner function (Fig. 6) close to the one of the Fock state $|n_\omega = 6\rangle$ when the pump field is in the photon number state $|n_{3\omega} = 2\rangle$.

Consider now the situation in which the annihilation of a pump photon leads to the generation of two degenerated photons in the extraordinary mode e and to the creation of a third photon in the ordinary o mode. This situation corresponds to the experimental configuration described in the next paragraph. The quantum state of these photons is given by the wave function (23). The Wigner representation in Fig. 7 of the quantum state of the photons in the e mode is obtained after calculating the density operator traced over the Fock states $|j_p\rangle$ and $|f_o\rangle$ of the pump and ordinary modes:

$$\hat{\rho}_e = \mathrm{Tr}_{p+o}\big(|\psi(t)\rangle\langle\psi(t)|\big) = \sum_{j_p=0}^{\infty}\sum_{f_o=0}^{\infty}\langle j_p, f_o|\psi(t)\rangle\langle\psi(t)|j_p, f_o\rangle \tag{26}$$

whereas the Wigner function (Fig. 7) of the quantum state of the photons in mode o is obtained using the density operator:

$$\hat{\rho}_o = \mathrm{Tr}_{p+e}\big(|\psi(t)\rangle\langle\psi(t)|\big) = \sum_{j_p=0}^{\infty}\sum_{f_e=0}^{\infty}\langle j_p, f_e|\psi(t)\rangle\langle\psi(t)|j_p, f_e\rangle \tag{27}$$

where the trace operation is made this time over the Fock states $|j_p\rangle$ and $|f_e\rangle$ of the pump and extraordinary modes. Though the Wigner functions of both modes show non-Gaussian shapes, they do not take negative values like the Wigner function of fully degenerated three-photon state.

The ordinary and extraordinary modes are experimentally distinguishable since they have different wavelengths and can thus be separated. The quantum correlations between the quadratures of the two modes can be theoretically estimated using their joint probability distribution defined as:

$$P(X_o, X_e) = \int_{-\infty}^{+\infty} \big|\langle \widehat{X}_p, \widehat{X}_o, \widehat{X}_e|\psi(t)\rangle\big|^2 \,\mathrm{d}X_p \tag{28}$$

and represented in Fig. 8 for different pump fields and r parameters. The figure shows cross shaped probability distributions revealing quantum correlations between the o and e mode quadratures. Indeed, when measuring the quadrature of the mode o photons, it is most likely to obtain the same quadrature value for the e mode photons. However, at this stage, the observation of such quantum correlations is strongly limited due to the low efficiency in generating triple photons. This is equivalent to have $r \ll 1$ in our calculations.

5. First experiments in triple photon generation

We considered a triple generation pumped at ω_0 and stimulated by two injection photons, at ω_2 and ω_3. We identified KTP as a good potential material: its third order non-linearity is high, of about 10^{-21} $\mathrm{m}^2/\mathrm{V}^2$ [24], phase-matching is allowed for standard pump wavelengths, and big size crystals with very high optical quality are available. However, our motivation being to generate a pure optical triple state, we have to take care of any possible second order processes which may occur during the wanted third order interaction since KTP is a noncentrosymmetric crystal. Actually, three possible second order cascading interactions with nonzero effective coefficients can occur in the direction of propagation where the third order process is phase-matched:

$$\chi^{(2)}(\omega_2+\omega_3 \to \Omega_a) : \chi^{(2)}(\omega_0-\Omega_a \to \omega_1), \quad \chi^{(2)}(\omega_0-\omega_2 \to \Omega_b) : \chi^{(2)}(\Omega_b-\omega_3 \to \omega_1) \quad \text{and}$$
$$\chi^{(2)}(\omega_0-\omega_3 \to \Omega_c) : \chi^{(2)}(\Omega_c-\omega_2 \to \omega_1)$$

These interactions can pollute the triple photon experiment because they involve the same incident photons, at ω_0, ω_2, ω_3, and produce photons at ω_1, the generation at the new circular frequencies Ω_a, Ω_b and Ω_c revealing the occurrence of such events. Even if the quadratic processes are not phase-matched, they might be more efficient than the phase-matched cubic process itself because of the relative amplitudes of the $\chi^{(2)}$ and $\chi^{(3)}$ coefficients. It is then of prime importance to minimize the contributions of all the cascading processes. We performed a complete calculation that takes into account both the second- and third-order processes by assuming that the pump and injection beams are undepleted, i.e. $\frac{\partial E(\omega_0)}{\partial Z} = \frac{\partial E(\omega_2)}{\partial Z} = \frac{\partial E(\omega_3)}{\partial Z} = 0$ [25]. It is then possible to calculate the cascading rate, which is the

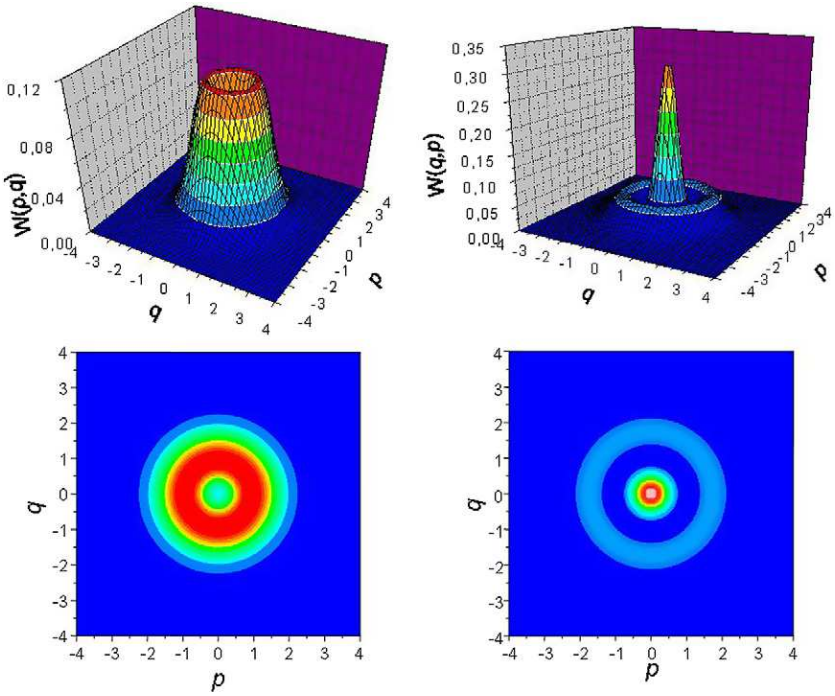


Fig. 7. Left: Wigner function of the photons in the ordinary mode. Right: Wigner function of the photon in the extraordinary mode. For both modes, the pump field is in the coherent state $|\beta = 1\rangle$ and the nonlinear interaction parameter $r = 5.6$.

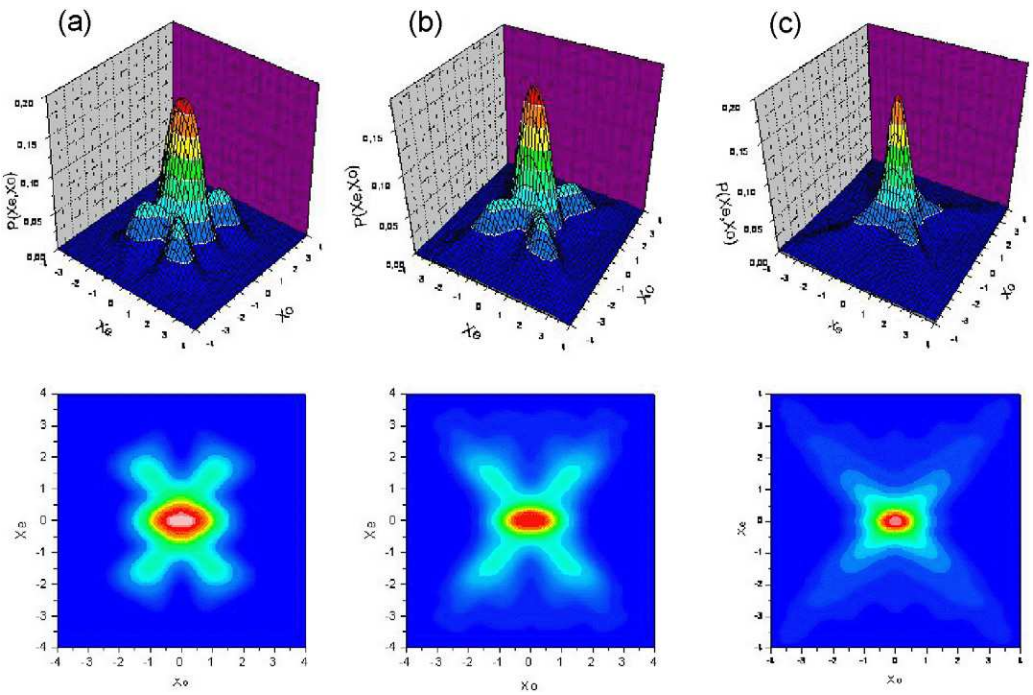


Fig. 8. Density of the joint probability distribution of the ordinary and extraordinary three photons. The pump field and the r parameter are: (a) $|\beta = 1, \alpha = 0, 0\rangle$ and $r = 1.0$; (b) $|\beta = 2, \alpha = 0, 0\rangle$ and $r = 0.5$; (c) $|\beta = 3, \alpha = 0, 0\rangle$ and $r = 0.3$.

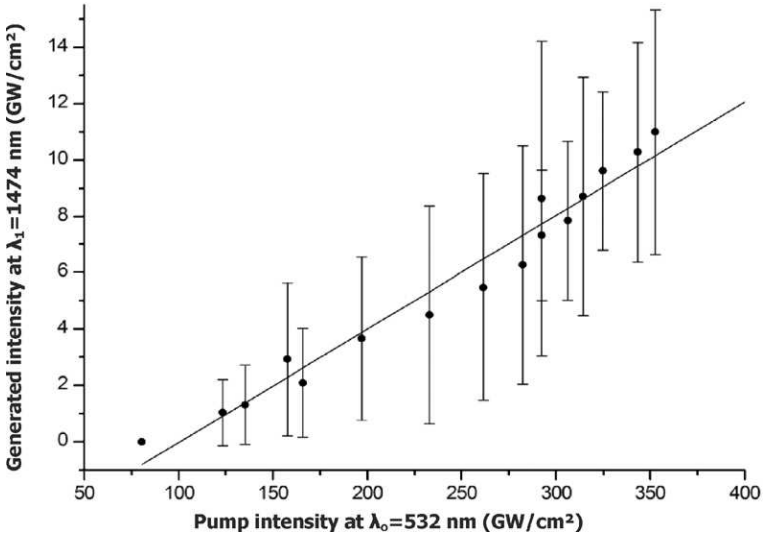


Fig. 9. Generated intensity at $\lambda_1 = 1474$ nm along the X-axis of KTP as a function of the pump intensity at $\lambda_0 = 532$ nm; the injection intensity at $\lambda_2 = \lambda_3 = 1665$ nm is maintained at 100 GW/cm^2. The crystal length is $L = 25$ mm. The circles are the experimental data, and the straight line is the associated linear fit.

ratio between the intensity generated at ω_1 by the cascading process only, $I^{(2)}(\omega_1, Z = L)$, and by the phase-matched third order interaction, $I^{(3)}(\omega_1, Z = L)$ [25]:

$$\eta = \frac{I^{(2)}(\omega_1, Z = L)}{I^{(3)}(\omega_1, Z = L)} = \left(\frac{\sum_i \left(-\frac{\pi}{n(\Omega_i)\cdot\lambda_{\Omega,i}\cdot\cos^2(\gamma(\Omega_i))} \cdot \frac{\chi_{\mathrm{eff},i}^{(2)\text{-I}} \cdot \chi_{\mathrm{eff},i}^{(2)\text{-II}}}{\Delta k_i^{\mathrm{quad}}} \right)}{\chi_{\mathrm{eff}}^{(3)}} \right)^2 \tag{29}$$

where the index $i = a, b, c$ refers to the ith cascading process involving the intermediate circular frequency Ω_i; the phase-mismatch $\Delta k_i^{\mathrm{quad}}$, and the effective coefficients of the two associated quadratic interactions, $\chi_{\mathrm{eff},i}^{(2)\text{-I}}$ and $\chi_{\mathrm{eff},i}^{(2)\text{-II}}$. Note that $\Delta k_i^{\text{quad-I}} = -\Delta k_i^{\text{quad-}II} (= \Delta k_i^{\mathrm{quad}})$ since the $\chi^{(3)}$ process is phase-matched.

Among the seven possible $\chi^{(3)}$ phase-matching types and all the corresponding directions in KTP, we chose to realize the experiment of triple photon generation with the mode combinations $\{-, +, +, -\}$ for $\{n(\omega_0), n(\omega_1), n(\omega_2), n(\omega_3)\}$ and the X-axis because the corresponding third order effective coefficient is maximal, the walk-off angle is nil, the cascading rate is weak, i.e. $\eta = 0.5\%$, and the waves at $\omega_2 = \omega_3$ can be easily separated because their polarizations are orthogonal [25]. The 25-mm-long KTP crystal cut along the X-axis is pumped with a doubled Nd:YAG laser at $\lambda_0 = 532$ nm with a pulse duration of 22 ps (FWHM) and a 10 Hz repetition rate. The injection beam at $\lambda_2 = \lambda_3$ is emitted by a tuneable Optical Parametric Generator pumped with the third harmonic of the Nd:YAG laser. The polarizations of the pump and injection beams are adjusted according to the chosen phase-matching configuration, i.e. $\{-, +, +, -\}$. The injection wavelength $\lambda_2 = \lambda_3$ corresponding to a perfect phase-matching is found at 1665 nm. The wavelength of the associated generated beam is measured at $\lambda_1 = 1474$ nm, which is exactly equal to $(\lambda_0^{-1} - \lambda_2^{-1} - \lambda_3^{-1})^{-1}$ according to the energy conservation. Our photodiode cannot detect any signal at $\lambda_a = 832.5$ nm or at $\lambda_b = \lambda_c = 781.8$ nm that correspond to the intermediate wavelengths involved in the second order cascading processes, while photons at $\lambda_1 = 1474$ nm can be detected. These processes are then negligible with regard to the third order parametric interaction, as expected from the calculation. The measured intensity $I(\lambda_1, Z = L)$ is plotted in Fig. 9 as a function of the pump intensity, $I(\lambda_0, Z = L)$, the injection intensity, $I(\lambda_2, Z = L) + I(\lambda_3, Z = L)$ with $I(\lambda_2, Z = L) = I(\lambda_3, Z = L)$, being maintained at a fixed value of 50 GW/cm^2 [26]. The amount of the generated intensity is such that an undepleted pump and injection approximation can be assumed for the fit. Thus $I(\lambda_1, Z = L)$, which is given by the combination of Jacobian elliptic functions (10), reduces to a simple linear function of the product of the three incident intensities, i.e. $I(\lambda_0, Z = L).I(\lambda_2, Z = L).I(\lambda_3, Z = L)$. These first results are encouraging: we obtained as much as 4.5 μJ/pulse at $\lambda_1 = 1474$ nm, which corresponds to $N(\omega_1, Z = L) = 3.34 \times 10^{13}$ photons/pulse [26]. That means that $3.34 \times 10^{13}\{\omega_1, \omega_2, \omega_3\}$ triple photons/pulse are created, since the generation at

ω_1 is symptomatic of the triple photon generation. Note that the photons at ω_2 and ω_3 that belong to the triple state are mixed with the injection photons, i.e. $N(\omega_2, Z = 0) = 4.19 \times 10^{14}$ photons/pulse and $N(\omega_3, Z = 0) = 4.19 \times 10^{14}$ photons/pulse, the number of pump photons being $N(\omega_0, Z = 0) = 2.0 \times 10^{15}$ photons/pulse.

6. Conclusion

The experiment described in the last section has demonstrated the feasibility of the generation of triple photons in the travelling wave regime based on a double injection scheme in a phase-matched KTP crystal, opening the door to quantum correlations measurements.

Despite of this good result, KTP is probably not the best material for the purpose, the magnitude of its third order electric susceptibility being not so high. The identification of a better phase-matched crystal with a higher cubic nonlinearity is then an open issue. Recently, we shown that TiO_2 rutile could be an interesting candidate, with a figure of merit 7.5 times that of KTP [27]. Furthermore it is a centrosymmetric crystal, so that no quadratic processes able to pollute the triple photons can occur. Other materials, like photonic crystals or fibers have also to be seriously considered.

Finally, by achieving the triple photon generation inside a resonant cavity, which corresponds to a third order optical parametric oscillator, it may be possible to increase the ratio between the generated photons and the injection ones.

References

[1] P. Franken, A.E. Hill, C.W. Peters, G. Weinreich, Generation of optical harmonics, Phys. Rev. Lett. 7 (1961) 118.
[2] R.J. Glauber, Coherent and incoherent states of the radiation field, Phys. Rev. 131 (1963) 2766.
[3] H.P. Yuen, Two-photon coherent states of the radiation field, Phys. Rev. A 13 (1976) 2226.
[4] D.F. Walls, Squeezed states of light, Nature 306 (1983) 141.
[5] A.I. Lvovsky, H. Hansen, T. Aichele, O. Benson, J. Mlynek, S. Schiller, Quantum state reconstruction of the single-photon Fock state, Phys. Rev. Lett. 87 (2001) 050402.
[6] Z.Y. Ou, S.F. Pereira, H.J. Kimble, K.C. Peng, Realization of the Einstein–Podolsky–Rosen paradox for continuous variables, Phys. Rev. Lett. 68 (1992) 3663.
[7] K. Bencheikh, C. Simonneau, J.A. Levenson, Cascaded amplifying quantum optical taps: A robust noiseless optical bus, Phys. Rev. Lett. 78 (1997) 34.
[8] W. Tittel, J. Brendel, H. Zbinden, N. Gisin, Quantum cryptography using entangled photons in energy-time Bell states, Phys. Rev. Lett. 84 (2000) 4737.
[9] D. Bouwmeester, J.-W. Pan, K. Mattle, M. Eibl, H. Weinfurter, A. Zeilinger, Experimental quantum teleportation, Nature 390 (1997) 575.
[10] J.A. Giordmaine, R.C. Miller, Tunable coherent parametric oscillation in $LiNbO_3$ at optical frequencies, Phys. Rev. Lett. 14 (1965) 973.
[11] G.D. Boyd, A. Ashkin, Theory of parametric oscillator threshold with single-mode optical masers and observation of amplification in $LiNbO_3$, Phys. Rev. 146 (1966) 187.
[12] P.N. Butcher, D. Cotter, The Elements of Nonlinear Optics, Cambridge Series in Modern Optics, Cambridge Univ. Press, London, 1990.
[13] B. Boulanger, J.P. Fève, G. Marnier, Field-factor formalism for the study of the tensorial symmetry of four-wave nonlinear optical parametric interactions in uniaxial and biaxial crystal, Phys. Rev. E 48 (1993) 4730.
[14] R. Adair, L.L. Chase, S.A. Payne, Nonlinear refractive index of optical crystals, Phys. Rev. B 39 (5) (1989) 3337–3350.
[15] J.P. Fève, B. Boulanger, J. Douady, Specific properties of cubic optical parametric interactions compared to quadratic interactions, Phys. Rev. A 66 063817 (2002) 1–11.
[16] J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P.S. Pershan, Interactions between light-waves in a nonlinear dielectric, Phys. Rev. 117 (6) (1962) 1918–1939.
[17] K. Koch, E.C. Cheung, G.T. Moore, S.H. Chakmakjian, J.M. Liu, Hot spots in parametric fluorescence with a pump beam of finite cross section, IEEE J. Quant. Electron. 31 (1995) 769.
[18] U. Leonhardt, Measuring the Quantum State of Light, Cambridge Univ. Press.
[19] G. Breitenbach, T. Müller, S.F. Pereira, J.Ph. Poizat, S. Schiller, J. Mlynek, Squeezed vacuum from a monolithic optical parametric oscillator, J. Opt. Soc. Am. B 12 (1995) 2304;
G. Breitenbach, S. Schiller, J. Mlynek, Measurement of the quantum states of squeezed light, Nature 387 (1997) 471.
[20] D.T. Smithey, M. Beck, M.G. Raymer, Measurement of the Wigner distribution and the density matrix of a light mode using optical homodyne tomography: application to squeezed states and the vacuum, Phys. Rev. Lett. 70 (1993) 1244.
[21] K. Banaszek, P.L. Knight, Quantum interference in three-photon down-conversion, Phys. Rev. A 55 (1997) 2368.
[22] T. Felbinger, S. Schiller, J. Mlynek, Oscillation and generation of nonclassical states in three-photon down-conversion, Phys. Rev. Lett. 80 (1998) 492.
[23] D.F. Walls, R. Barakat, Quantum-mechanical amplification and frequency conversion with a trilinear Hamiltonian, Phys. Rev. A 1 (1970) 446.
[24] B. Boulanger, J.P. Fève, P. Delarue, I. Rousseau, G. Marnier, Cubic optical nonlinearity of $KTiOPO_4$, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 32 (1999) 475–488.

[25] J. Douady, B. Boulanger, Calculation of quadratic cascading contributions associated with a phase-matched cubic frequency difference generation in a $KTiOPO_4$ crystal, J. Opt. A: Pure Appl. Opt. 7 (2005) 467–471.
[26] J. Douady, B. Boulanger, Experimental demonstration of a pure third-order optical parametric downconversion process, Opt. Lett. 29 (23) (2004) 2794–2796.
[27] F. Gravier, B. Boulanger, Phase-matched third-order frequency generation in TiO_2 rutile single crystal, in: Conference on Laser and Electro-Optics, Long Beach California, 21–26 May 2006.

Annexe D

F. Gravier and B. Boulanger

Cubic parametric frequency generation in rutile single crystal

Optics Express Vol 14, N 24 (2006)

Cubic parametric frequency generation in rutile single crystal

Fabien Gravier and Benoît Boulanger

Laboratoire de Spectrométrie Physique
Université Joseph Fourier & Centre National de la Recherche Scientifique
BP 87, 38402 St Martin d'Hères Cedex, France
benoit.boulanger@ujf-grenoble.fr

Abstract: We experimentally investigated third harmonic generation in TiO_2 rutile single crystal, including phase-matching and cubic nonlinearity. We refined the dispersion equations of rutile and we demonstrated that this crystal allows angular non critical phase-matching at useful wavelengths, with a figure of merit 7.5 times that of $KTiOPO_4$. The measured cubic non linear coefficient and the corresponding Miller coefficients are : χ_{16} = $5.0\text{x}10^{-21}$ $m^{2/}V^2$ at 613.2 nm and Δ_{16} = $3.5\text{x}10^{-24}$ $m^{2/}V^2$. These results are used to predict the phase-matching conditions and the efficiency of triple photon generation in rutile.

©2006 Optical Society of America

OCIS codes: (190.4400) Nonlinear optics, materials; (190.2620) Frequency conversion.

References and links

1. J. P. Fève, B. Boulanger, and Y. Guillien, "Efficient energy conversion for cubic third-harmonic generation that is phase-matched in $KTiOPO_4$," Opt. Lett. **25**, 1373-1375 (2000).
2. J. Douady and B. Boulanger, "Experimental demonstration of a pure third-order optical parametric downconversion process," Opt. Lett. **29**, 2794-2796 (2004).
3. J. Douady and B. Boulanger, "Calculation of quadratic cascading contributions associated with a phase-matched cubic frequency difference generation in a $KTiOPO_4$," J. Opt. A: Pure and Applied Optics **7**, 467-471 (2005).
4. R. DeSalvo, M. Sheik-Bahae, A. A. Said, D. J. Hagan and E. W. Van Stryland, "Z-scan measurements of the anisotropy of nonlinear refraction and absorption in crystals," Opt. Lett. **18**, 194-196 (1993).
5. B. Boulanger, J. P. Fève, P. Delarue, I. Rousseau, and G. Marnier, "Cubic optical nonlinearities of $KTiOPO_4$," J. Phys. B :At. Mol. Opt. Phys. **32**, 475-488 (1999).
6. B. Boulanger, B. and J. Zyss, in *International Tables for Crystallography, Vol. D : Physical Properties of Crystals* , A. Authier ed., (International Union of Crystallography, Kluwer Academic Publisher, Dordrecht, Netherlands, 2003), Chap. 1.8, pp. 178-219.
7. V. Vogel, M. J. Weber, and D. M. Krol, "Nonlinear optical phenomena in glass," Phys. Chem. Glasses **32**, 231 (1991).
8. R. Adair, L. L. Chase, and S. A. Payne, "Nonlinear refractive index of optical crystals," Phys. Rev. B **39**, 3337-3350 (1989).
9. T. Hashimoto, T. Yoko and S. Sakka, "Sol-Gel preparation and third-order nonlinear optical properties of TiO_2 thin films," Bull. Chem. Soc. Jpn **67**, 653-660 (1994).
10. T. Hashimoto and T. Yoko, "Phase matching of rutile single crystal," Appl. Phys. Lett. **68**, 2478-2479 (1996).
11. J. R. DeVore, "Refractive indexes of rutile and spharelite," J. Opt. Soc. Am. **41**, 416 (1951).
12. J. Rams, A. Tejeda, and J. M. Cabrera, "Refractive indices of rutile as a function of temperature and wavelength," J. Appl. Phys. **82**, 994 (1997).
13. Data from Almaz Optics, Inc., http://www.almazoptics.com/TiO2.htm.
14. R. C. Miller, "Optical second harmonic generation in piezoelectric crystals," App. Phys. Lett.5, 17-19 (1964).
15. I. Abram, R. K. Raj, J. L. Oudar, and G. Dolique, "Direct observation of the second-order coherence of parametrically generated light," Phys. Rev. Lett.**57** (20), 2516-2519 (1986).

#73255 - $15.00 USD Received 21 July 2006; revised 15 September 2006; accepted 20 September 2006

The measurement of three-photon quantum correlation requires one to perform efficient third-order nonlinear interactions, like third harmonic generation (THG) or triple photon generation (TPG). Both of these interactions were recently performed with success by using phase-matching in $KTiOPO_4$ (KTP): a THG conversion efficiency of 2.5% was obtained [1], and the first experiment of TPG, stimulated by two photons, was demonstrated, leading to 3.34×10^{13} triple photons/pulse [2]. Despite these good results, KTP is probably not the best material for the purpose: owing to the absence of inversion center, the cubic interactions can be polluted by quadratic cascading processes, with contributions of about 10 % for the THG and 0.5 % for the TPG mentioned above [1, 3], and the magnitude of the third-order electric susceptibility $\chi^{(3)}$ is not so high : $\chi_{11} = 2.32 \times 10^{-21}$ m^2/V^2 and $\chi_{22} = 1.96 \times 10^{-21}$ m^2/V^2 at 1064 nm measured by z-scan experiments [4]; $\chi_{24} = 1.46 \times 10^{-21}$ m^2/V^2 at 539 nm and $\chi_{16} = 0.80 \times 10^{-21}$ m^2/V^2 at 491 nm determined by THG [5]. The identification of a better phase-matched crystal with a higher cubic nonlinearity is then an open issue for the achievement of quantum experiments.

A good candidate seems to be TiO_2 rutile. It belongs to the centrosymmetric tetragonal crystal class 4/mmm and to the positive uniaxial optical class, *i.e.* $n_e > n_o$ where n_o and n_e denote the principal ordinary and extraordinary refractive indices. The $\chi^{(3)}$ third order electric susceptibility tensor of rutile has the four following independent elements under Kleinman symmetry [6]:

$$\chi_{xxxx} = \chi_{yyyy} (\equiv \chi_{11})$$

$$\chi_{xxzz} = \chi_{xzxz} = \chi_{xzzx} = \chi_{yyzz} = \chi_{yzyz} = \chi_{yzzy} = \chi_{zyyz} = \chi_{zyzy} = \chi_{zzyy} = \chi_{zxxz} = \chi_{zxzx} = \chi_{zzxx} (\equiv \chi_{16})$$

$$\chi_{xxyy} = \chi_{xyxy} = \chi_{xyyx} = \chi_{yxxy} = \chi_{yxyx} = \chi_{yyxx} (\equiv \chi_{18})$$

$$\chi_{zzzz} (\equiv \chi_{33}) \qquad (1)$$

The indices x, y and z refer to the dielectric frame where the z-axis is oriented along the quaternary axis. The χ_{ij} correspond to the contracted notation according to the standard convention. The third order effective coefficient magnitude ranges between 13.0×10^{-21} m^2/V^2 and $16.0 \times 10^{-21} m^2/V^2$ according to nonlinear index measurements performed by degenerate four-wave mixing (DFWM) or by nearly degenerate three-wave mixing (TWM) methods respectively [7, 8], and according to non phase-matched THG [9]. Furthermore rutile exhibits phase-matching: the THG $\omega(e) + \omega(e) + \omega(e) \rightarrow 3\omega(o)$, where $\omega(o)$ and $\omega(e)$ denote the circular frequencies of the ordinary and extraordinary waves respectively, was investigated in a (110) oriented plate, which lead to the determination of the phase-matching angle corresponding to a fundamental wavelength of $\lambda_\omega = 1900$ nm [10].

The present work deals with a quantitative investigation of collinear phase-matched third order parametric interactions in a TiO_2 rutile single crystal involving two ordinary waves (o) and two extraordinary waves (e) : the THG $[\omega(e) + \omega(e) + \omega(o) \rightarrow 3\omega(o)]$ and the TPG $[\omega_4(o) \rightarrow \omega_1(e) + \omega_2(e) + \omega_3(o)]$. Collinear phase-matching corresponds to $\Delta k = 0$ where the mismatch parameter Δk, is defined as :

$$\Delta k = k_o(\omega_a) - k_e(\omega_b) - k_e(\omega_c) - k_o(\omega_c) \qquad (2)$$

with $(\omega_a, \omega_b, \omega_c, \omega_d) = (3\omega, \omega, \omega, \omega)$ for THG and $(\omega_a, \omega_b, \omega_c, \omega_d) = (\omega_4, \omega_1, \omega_2, \omega_3)$ for TPG; $k_{o,e}(\omega_i) = [\omega_i/c]\ n_{o,e}(\omega_i)$ are the wave vectors where $n_{o,e}$ correspond to the ordinary and extraordinary refractive indices in the considered direction of propagation. The associated effective coefficient is given by [6]:

$$\chi_{eff} = \sum_{i,j,k,l} \left[e_i^o(\omega_a).e_j^e(\omega_b).e_k^e(\omega_c).e_l^o(\omega_d) \right] \chi_{ijkl}(\omega_a) \qquad (3)$$

#73255 - $15.00 USD Received 21 July 2006; revised 15 September 2006; accepted 20 September 2006
(C) 2006 OSA

The indices i, j, k and l refer to the dielectric frame (x, y, z). e_α^β , with α=(i, j, k, l) and β=(o,e), is the α Cartesian coordinate of the unit vector of the ordinary (o) or extraordinary (e) electric field. χ_{ijkl} refers to the third order nonlinear coefficients given by (1).

We performed THG measurements on a 1mm-thick (100) rutile crystal provided by MTI Corporation. A Continuum Panther OPO pumped by a tripled Nd:YAG laser (10-Hz repetition-rate, 5-ns half-width at $1/e^2$) and tuneable from 400 nm to 2400 nm, is used as the fundamental beam for the THG experiments. The beam is focused with a 10-mm-focal length in the rutile plate. The optimization of the THG conversion efficiency is made by adjusting the polarization of the fundamental wave with an achromatic half wave plate, and by translating the crystal with respect to the fundamental beam waist. A collecting lens that is placed behind the crystal allows the emergent beams to be focused on a prism. The third harmonic (TH) beam is separated from the non converted fundamental by the prism and a long-wavelength rejection filter. The TH power is measured with a silicon detector and the corresponding wavelength is determined by using a Chromex 250SM monochromator. The THG fundamental wavelength, corresponding to the maximum of the THG conversion efficiency, is measured at λ_ω^{PM} = 1839.6 nm. Calculations made from available dispersion equations of rutile lead to smaller values of λ_ω^{PM}, which ranges between 1752 nm and 1794 nm [11-13]. We refined the dispersion equations of the ordinary and extraordinary principal refractive indices of rutile by taking into account our phase-matching measurement. We found the following equations:

$$n_o^2(\lambda) = 6.0125 + \frac{0.20136}{\lambda^2 - 0.10146} - 0.05072\lambda^2$$

$$n_e^2(\lambda) = 7.07355 + \frac{0.29834}{\lambda^2 - 0.07957} \tag{4}$$

The measured spectral acceptance (full width of the tuning curve at 0.405 of the maximum) is $L.\delta\lambda_\omega$ = 0.47nm.cm, as shown in Fig. 1 where the normalized TH intensity $I(\xi)$ / $I(\xi^{PM})$ is plotted as a function of the fundamental wavelength $\xi = \lambda_\omega$ from either side of the phase-matching fundamental wavelength $\xi^{PM} = \lambda_\omega^{PM}$ = 1839.6 nm.

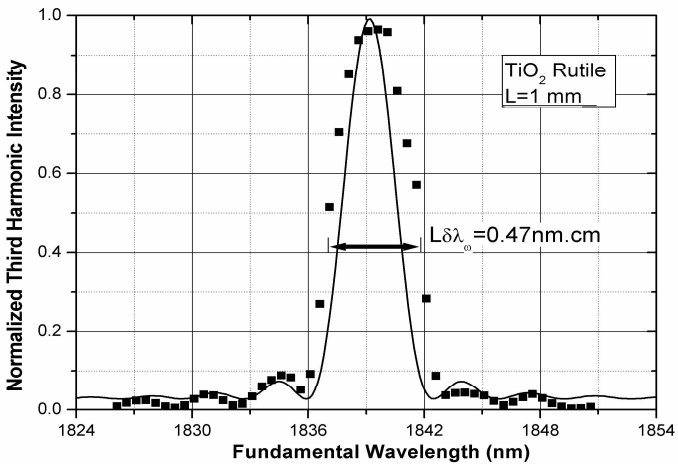


Fig. 1. Normalized generated third harmonic intensity as a function of the fundamental wavelength around phase-matching. The squares are the experimental data and the line is the calculation from the refined dispersion equations of the principal refractive indices.

#73255 - $15.00 USD Received 21 July 2006; revised 15 September 2006; accepted 20 September 2006
(C) 2006 OSA

As shown in Fig. 1, there is a good agreement between the measurement and the calculation from the dispersion Eq. (4) and the following general expression :

$$\frac{I_{3\omega}(\xi)}{I_{3\omega}(\xi^{PM})} = \mathrm{sinc}^2\left(\frac{\Delta k\,(\xi)L}{2}\right) \tag{5}$$

where L is the crystal length, ξ is the dispersive parameter, and Δk is the mismatch parameter given by Eq. (2).

The fundamental wavelength being kept maintained at the phase-matching value λ_ω^{PM}, the rutile plate is then rotated on it-self around the y-axis of the dielectric frame (x, y, z) in order to determine the θ angular acceptance associated with the phase-matching direction [100], *i.e.* the x-axis with the spherical coordinates $\theta = 90°$ and $\phi = 0°$: the measured angular acceptance is equal to $L.\delta\theta = 0.42°.cm$ as shown in Fig. 2; it is close to the theoretical value calculated with relation (5), where $\xi = \theta$ and $\xi^{PM} = 90°$, and with the dispersion Eq. (4). Note that $L.\delta\phi$ is infinite because rutile is an uniaxial crystal.

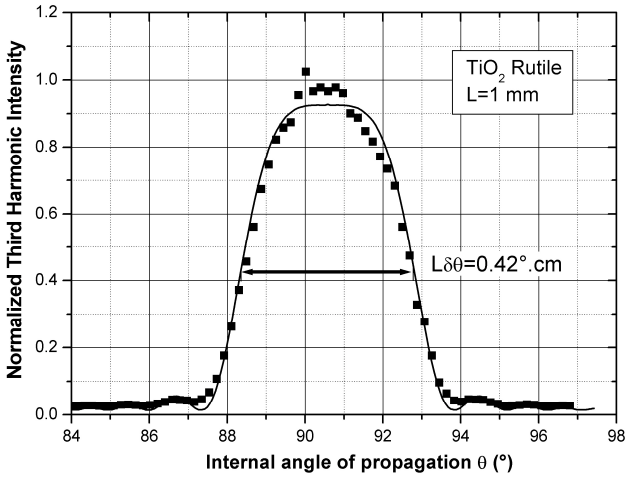


Fig. 2. Normalized generated third harmonic intensity as a function of the direction of propagation : θ is the angle between the z-axis and the x-axis of the dielectric frame (x,y,z). The squares are the experimental data and the line is the calculation from the refined dispersion equations of the principal refractive indices.

The very good agreement between the measured and calculated angular and spectral acceptances indicates that the refined dispersion equations are valid over the concerned wavelength range on one hand, and that the whole crystal length L corresponds to the effective interaction length on the other hand. This last point is of prime importance for the determination of the effective coefficient from frequency conversion measurements.

The THG [$\omega(e) + \omega(e) + \omega(o) \rightarrow 3\omega(o)$] in rutile was compared with a THG of same type in a 1 mm-thick (100) KTP crystal phase-matched at $\lambda_\omega = 1618$ nm. In the two cases, there is not spatial walk-off because the waves propagate along a principal axis of the dielectric frame. The THG energy conversion efficiencies, $\eta_{THG}=u_{3\omega} / u_\omega$, of KTP and TiO_2 are measured by using the same experimental setup; they are given in Fig. 3 as a function of the incident fundamental intensity, I_ω. The measured efficiencies are weak because the considered fundamental intensities are very low, below 50 MW/cm^2. For both crystals, η_{THG} versus I_ω exhibit a quadratic behavior as expected by the theory.

#73255 - $15.00 USD Received 21 July 2006; revised 15 September 2006; accepted 20 September 2006
(C) 2006 OSA

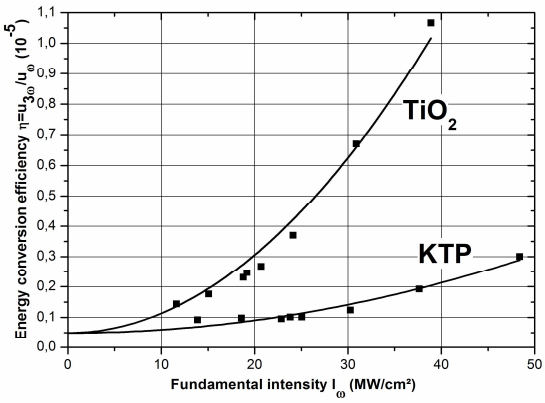


Fig. 3. Third harmonic energy conversion efficiency as a function of the fundamental intensity in a 1-mm-long TiO_2 crystal and a 1-mm-long KTP crystal phase-matched along the x-axis. The squares are the experimental data and the lines correspond to the calculation.

The exact calculation of η_{THG} under the plane-wave limit and the undepleted pump approximation, in the case of temporally and spatially Gaussian beams that are phase-matched in a direction without spatial and temporal walk-off gives:

$$\eta_{THG} = \frac{4\pi^2}{9\sqrt{3}} \frac{T_1(\omega)T_2(\omega)T_3(\omega)T_4(3\omega)}{\lambda_\omega^2} F_{OM} I_\omega^2 L^2 \tag{5}$$

The different T_a coefficients correspond to the Fresnel transmissions of the interacting waves, L is the crystal length, and F_{OM} is the figure of merit expressed as:

$$F_{OM} = \frac{\chi_{eff}^2}{n_1(\omega)n_2(\omega)n_3(\omega)n_4(3\omega)} \tag{6}$$

χ_{eff} is the THG effective coefficient that reduces to χ_{16} (3ω) for TiO_2 and χ_{24} (3ω) for KTP according to (1) and (3) for the considered phase-matching type and direction of propagation. The corresponding refractive indices are $(n_1, n_2, n_3, n_4) \equiv (n_e, n_e, n_o, n_o)$ for TiO_2 and $(n_1, n_2, n_3, n_4) \equiv (n_z, n_z, n_y, n_y)$ for KTP.

Equation (5) can be applied to our experimental conditions since the Rayleigh length of the focused beam is larger than the crystal length, the walk-off angle is nil, and the group velocity dispersion is negligible in nanosecond regime. F_{OM} of TiO_2 is found to be 7.5 larger than that of KTP according to Fig. 3 and Eq. (5). Then from Eq. (6) and the magnitude of χ_{24} of KTP [5], we find that $\chi_{16} = 5.0\text{x}10^{-21}$ m^2/V^2 for TiO_2 at $\lambda_{3\omega} = 613.2$ nm. This value is smaller than those previously determined by nonlinear index measurements [7-9], which can be explained in part by the fact that the involved coefficients of the $\chi^{(3)}$ tensor are different. The calculation of χ_{16} at any wavelength can be done by considering the cubic Miller coefficient Δ_{16}, which is a non dispersive parameter given by [14]:

$$\Delta_{16} = \frac{\chi_{16}(3\omega)}{(n_e^2(\omega)-1)(n_e^2(\omega)-1)(n_o^2(\omega)-1)(n_o^2(3\omega)-1)} \tag{7}$$

We find $\Delta_{16} = 3.5\text{x}10^{-24}$ m^2/V^2 from Eq. (7) and the magnitude of χ_{16} measured at $\lambda_{3\omega} = 613.2$ nm.

The present measurements of F_{OM} and dispersion equations show us that TiO_2 rutile is a very promising crystal for cubic frequency conversion when compared with the previous performances of KTP [1, 2]. Firstly, rutile should lead to a phase-matched THG [1839.6 nm (e) + 1839.6 nm (e) + 1839.6 nm (o) → 613.2 nm (o)] conversion efficiency of about 30% for

#73255 - $15.00 USD Received 21 July 2006; revised 15 September 2006; accepted 20 September 2006
(C) 2006 OSA

a fundamental intensity of few GW/cm^2 and a crystal length of 10 mm. Such high conversion efficiency should be enough to perform statistical properties measurements of both fundamental and TH beams. Note that this expected efficiency would be very close to that obtained with cascading quadratic processes in KTP: [$\lambda_\omega + \lambda_\omega \rightarrow \lambda_{2\omega}$] coupled with [$\lambda_\omega + \lambda_{2\omega} \rightarrow \lambda_{3\omega}$]. Secondly, the calculation from Eq. (2), by setting $\Delta k = 0$, and the dispersion Eq. (4) indicates interesting situations of phase-matching for the TPG [$\lambda_4^o \rightarrow \lambda_1^e + \lambda_2^e + \lambda_3^o$], pumped at λ_4^o = 532nm, as shown in Fig. 4 in the space of coordinates (λ_1^e,λ_2^e).

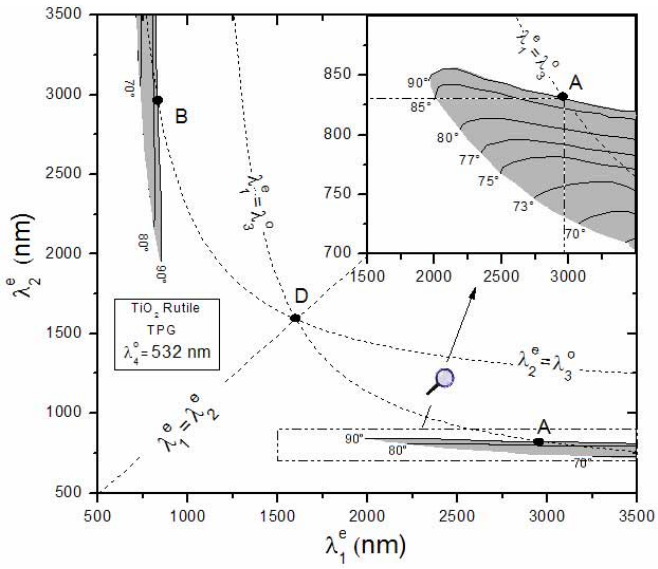


Fig. 4. Calculated phase-matching curves of TPG [$\lambda_4^o \rightarrow \lambda_1^e + \lambda_2^e + \lambda_3^o$] in TiO_2 rutile. The indices o and e refer to the ordinary and extraordinary polarizations respectively. The three dotted lines correspond to the situations where two wavelengths are equal. Point D corresponds to the degeneracy in wavelength, *i.e.* $\lambda_1^e = \lambda_2^e = \lambda_3^o$. Each continuous line refers to phase-matching directions of equal θ angles. The points A and B are defined by the intersections between the phase-matching curves at θ=90° and the locations where $\lambda_1^e = \lambda_3^o$ and $\lambda_2^e = \lambda_3^o$.

The two phase-matching areas are symmetrical according to the diagonal, where $\lambda_1^e = \lambda_2^e$, since these two wavelengths can be permuted due to the identity of their polarization states. Note that the value of λ_3^o corresponding to a given set (λ_1^e, λ_2^e) is easily obtained by using photon-energy conservation, *i.e.* $(\lambda_3^o)^{-1} = (\lambda_4^o)^{-1} - (\lambda_1^e)^{-1} - (\lambda_2^e)^{-1}$. The two phase-matching areas are formed by a framework of curves, each of them corresponding to a given phase-matching angle. The locations where $\lambda_3^o = \lambda_1^e$ and $\lambda_3^o = \lambda_2^e$ given in Fig. 4 allow us to identify two interesting situations that are marked out by the two symmetrical points A and B: they correspond to the equivalent triple states [λ_1^e = 2940 nm, λ_2^e = 830 nm, λ_3^o = 2940 nm], and [λ_1^e = 830 nm, λ_2^e = 2940 nm, λ_3^o = 2940 nm], respectively. These schemes are relevant from the experimental point of view because the spatial walk-off is nil and they facilitate the necessary stimulation of the TPG, by two photons, as previously demonstrated in the case of KTP [2]: the double injection in TiO_2 can be done at a single wavelength, *i.e.* at 2940 nm, in the ordinary and extraordinary polarizations states. In this situation and according to the magnitude of F_{OM} of TiO_2 compared with that of KTP, it is possible to expect more than 10^{14} triple photons per pulse for few tenths of GW/cm^2 and a crystal length of 10 mm, which is suited to correlation measurements [15].

Acknowledgments

The authors whish to thank Martin M. Fejer from Stanford University for stimulating discussions.

Annexe E

F. Gravier and B. Boulanger

Third order Difference Frequency Generation : modelization and its experimental validation in KTP

Soumis à Optics Express (2007)

Third Order Difference Frequency Generation : modelization and its experimental validation in KTP

Fabien Gravier and Benoît Boulanger*

Institut Néel / CNRS - UJF
BP 166,
F 38042 Grenoble Cedex 9, FRANCE
**Corresponding author:* benoit.boulanger@grenoble.cnrs.fr

Abstract: We performed the experimental validation of a model based on Jacobi elliptic functions describing collinear phase-matched difference frequency generation governed by the third order electric susceptibility. KTP crystals with different lengths and sub-nanosecond laser beams were used for the experiments.

©2007 Optical Society of America

OCIS codes: (190.4410) Nonlinear optics, parametric processes, (190.2620) Frequency conversion

References and links

1. J.P. Fève, B. Boulanger, J. Douady, "Specific properties of cubic optical parametric interactions compared to quadratic interaction," Phys. Rev. A. **66,** 063817 1 (2002).
2. J. Douady, B. Boulanger, "Experimental demonstration of a pure third-order optical parametric downconversion process," Opt. Lett. **29** (23) 2794 (2004).
3. P.F Bird, M.D. Friedman, *Handbook of elliptic integrals for engineers and physicists* (Springer, 1954).
4. B. Boulanger, J.P. Fève, P. Delarue, I. Rousseau, G. Marnier, "Cubic optical nonlinearity of $KTiOPO_4$," J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys. **32**,475 (1999).

1. Introduction

This work is devoted to non resonant parametric Difference Frequency Generation (DFG : $\lambda_1^{-1} = \lambda_0^{-1} - \lambda_2^{-1} - \lambda_3^{-1}$) interactions governed by the third order electric susceptibility $\chi^{(3)}$. We calculated the energies of the interacting beams in the depleted regime from an intensity-model that we previously introduced in the general case of third order non linear processes [1]. In order to validate our model, we performed several DFG experiments in KTP crystals with different crystal lengths L in order to measure the generated energy ξ_1 as a function of the pump energy ξ_0, injection energy $\xi_i = \xi_2 + \xi_3$, and crystal length L. The present study follows and completes our first experimental work where we had demonstrated the first pure third order DFG [2].

2. Theoretical model

The integration along the direction of propagation X of the system of the coupled complex electric field amplitudes of the four interacting waves, *i.e.* $\partial E_k/\partial X$ ($k = 0, 1, 2$ and 3), under phase-matching condition had lead to analytical expressions of the intensities I_k that were described by Jacobi elliptic functions [1]. Here we calculated the corresponding energies ξ_k by assuming plane waves with Gaussian temporal and transverse profiles, so that energy and intensity are linked by :

$$I_k = \frac{\xi_k}{\left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2} \frac{\tau_k}{2} w_k{}^2} \tag{1}$$

where τ_k and w_k are the full-width pulse duration and the radius at $1/e^2$, respectively.

The evolutions of the energies of the four interacting waves, as a function of the crystal length L and incident energies $\xi_0(0)$, $\xi_2(0)$ and $\xi_3(0)$, are then given by the following expressions:

$$\begin{cases} \xi_0(L) = \xi_0(0) - \left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2} \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_0}\right)\left(\frac{w_0^2\tau_0}{2}\right) \frac{\gamma_3 \cdot \gamma_0 \cdot sn^2\left(a_1 \cdot L \,|\, 1-m_1\right)}{\Gamma} \\ \xi_1(L) = \left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2} \left(\frac{w_1{}^2\tau_1}{2}\right) \frac{\gamma_3 \cdot \gamma_0 \cdot sn^2\left(a_1 \cdot L \,|\, 1-m_1\right)}{\Gamma} \\ \xi_2(L) = \xi_2(0) + \left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2} \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)\left(\frac{w_2^2\tau_2}{2}\right) \frac{\gamma_2 \cdot \gamma_0 \cdot sn^2\left(a_1 \cdot L \,|\, 1-m_1\right)}{\Gamma} \\ \xi_3(L) = \xi_3(0) + \left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2} \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_3}\right)\left(\frac{w_3^2\tau_3}{2}\right) \frac{\gamma_3 \cdot \gamma_0 \cdot sn^2\left(a_1 \cdot L \,|\, 1-m_1\right)}{\Gamma} \end{cases} \tag{2}$$

where $sn(u/m)$ and $cn(u/m)$ are Jacobi elliptic functions [3], and

$\Gamma = \gamma_3 \cdot m_1 \cdot sn^2\left(a_1 \cdot L \,|\, 1-m_1\right) + \left(\gamma_3 + \gamma_0\right) \cdot cn^2\left(a_1 \cdot L \,|\, 1-m_1\right)$, with

$\gamma_k = \frac{\lambda_k}{\lambda_1}\left(\frac{2}{\pi}\right)^{3/2} \frac{2}{w_k{}^2 \tau_k} \xi_k$ with $k \equiv (0, 2, 3)$,

$$m_1 = \frac{\gamma_2 \cdot \left(\gamma_0 + \gamma_3\right)}{\gamma_3 \cdot \left(\gamma_0 + \gamma_2\right)},$$

$a_1 = \frac{\Lambda_1}{2} \cdot \sqrt{\gamma_3 \cdot \left(\gamma_0 + \gamma_2\right)}$ where $\Lambda_1 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \cdot \frac{4\pi \cdot \chi_{eff}^{(3)}}{\sqrt{n_0 \cdot n_1 \cdot n_2 \cdot n_3}} \cdot \sqrt{\frac{\lambda_1}{\lambda_0 \cdot \lambda_2 \cdot \lambda_3}}$.

$\chi_{eff}^{(3)}$ is the third order effective coefficient, n_k is the refractive index of wave k.

w_k is the beam radius and τ_k is the full-width pulse duration, the spatial and temporal characteristics of the generated beam being related to those of the incident beams by $\sigma_1^{-2} = \sigma_0^{-2} + \sigma_2^{-2} + \sigma_3^{-2}$, with σ standing for τ or w.

3. Experimental results

The experimental setup is given in figure 1. The pump beam, at λ_0 = 532 nm, is the second harmonic of a 5 Hz Nd:YAG laser (Ekspla SL312-P) with a full-width pulse duration τ_0 = 106 ps. We considered the case where the wavelengths $\lambda_2 = \lambda_3$ = 1665 nm emitted by a "home-made" optical parametric oscillator using KTP pumped by the Nd:YAG laser at 1064 nm

mentioned above. The beam waist radii of these beams were deduced from camera measurements : w_0 = 125 μm and w_2 = w_3 = 110 μm. The pulse duration at 1665 nm was measured by second order auto-correlation using second harmonic generation : τ_2 = τ_3 = 230 ps. The energy generated at λ_1 = 1474 nm is measured with a calibrated photodiode Thorlabs DET410. The incident energies can be tuned with optical densities and their values are measured with a Molectron pyroelectric detector. The beams at 532 nm and 1665 nm are successively focused in several flux grown *X*-cut KTP crystals with lengths ranging between 0.8 mm and 21 mm produced by Cristal Laser SA. The temporal coincidence between the pulses at 532 nm and 1665 nm is ensured by a variable optical delay with an accuracy better than 3 ps. According to the beam waist radii, the plane wave regime can be assumed since the Rayleigh lengths are bigger than the length of each considered crystal.

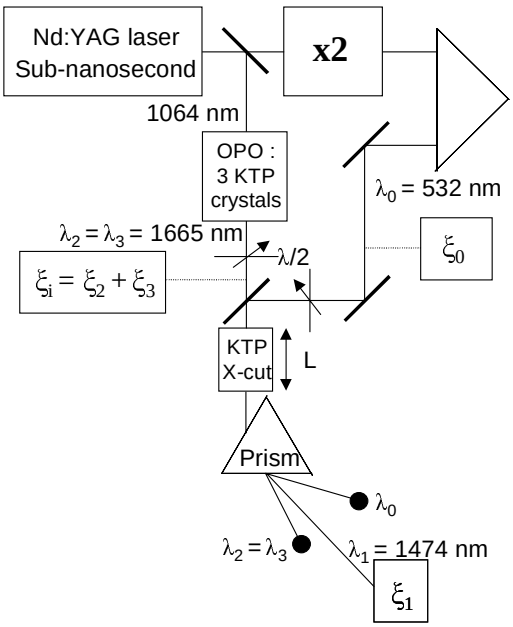


Fig. 1 : DFG Experimental setup. ξ_0, ξ_1, ξ_2 and ξ_3 are the energy of the beams at λ_0, λ_1, λ_2 and λ_3 , respectively.

The beam at 532 nm is polarized along the *Y*-axis of KTP, and the beam at 1665 nm is polarized at 45° of the *Z*-axis in order to ensure phase-matching. Figures 2, 3 and 4 show respectively the variation of the difference-frequency-generation energy ξ_1 measured as a function of three parameters : the pump energy $\xi_0(0)$ (experiment A), the injection energy, $\xi_i(0) = \xi_2(0) + \xi_3(0)$ with $\xi_2(0) = \xi_3(0)$ (experiment B), and the crystal length *L* (experiment C). For each set of measurement, two of the three parameters are fixed : $\xi_i(0)$ = 182 μJ and *L* = 13 mm (fig. 2), $\xi_0(0)$ = 4.5 mJ and *L* = 13 mm (fig. 3), and $\xi_0(0)$ = 4.5 mJ, $\xi_i(0)$ = 182 μJ (fig. 4).

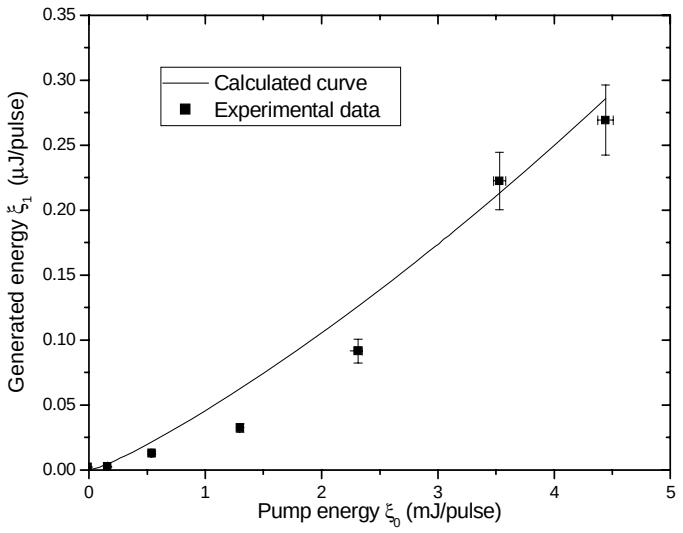


Fig. 2 : DFG energy ξ_1 as a function of pump energy ξ_0 with an injection energy ξ_i = 320 μJ and a KTP crystal length L = 13 mm The squares are the experimental data and the straight lines correspond to the calculation.

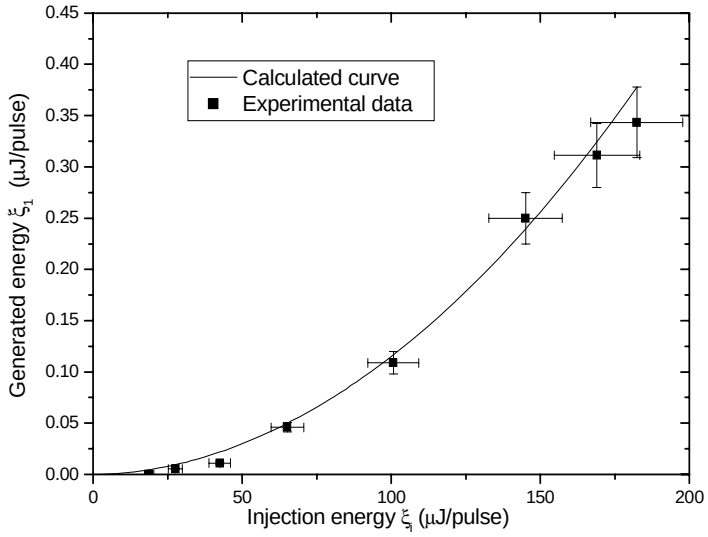


Fig. 3 : DFG energy ξ_1 as a function of the injection energy ξ_i, with a pump energy ξ_0 = 4.5 mJ and a KTP crystal length L = 13 mm The squares are the experimental data and the straight lines correspond to the calculation.

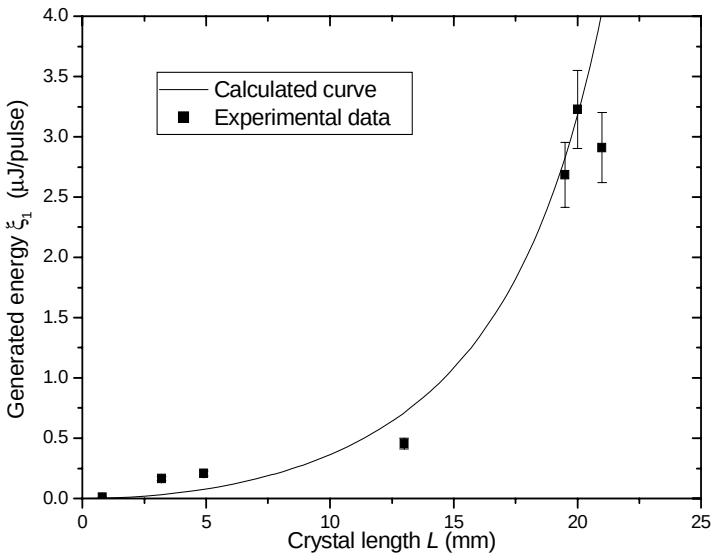


Fig. 4 : DFG energy ξ_1 as a function of the interaction length L, with a pump energy ξ_0 = 4.5 mJ and an injection energy ξ_i = 320 μJ. The squares are the experimental data and the straight lines correspond to the calculation.

We fitted the generated intensity ξ_1 corresponding to these different experiments with equation (2), by using the refractive indices and cubic nonlinear coefficients of KTP given in reference [4].

The pulses at λ_2 and λ_3 are identical since they come from the same beam. They are in temporal coincidence with the pulse at λ_0, but the intensities and pulse durations are different. We took into account the corresponding overlap by calculating the integral F_t defined as :

$$F_t = \frac{\left(\int_{-\infty}^{-t_1} p_0(t)dt + \int_{-t_1}^{+t_1} p_{2,3}(t)dt + \int_{+t_1}^{+\infty} p_0(t)dt \right)}{\int_{-\infty}^{+\infty} p_{2,3}(t)dt} \tag{3}$$

$p_0(t)$, $p_{2,3}(t)$ are the instantaneous powers at λ_0 and $\lambda_2 = \lambda_3$ respectively, with $p_2(t) = p_3(t)$. The parameters $+t_1$ and $-t_1$ are the intersection times between the pulses at λ_0 and $\lambda_2 = \lambda_3$ defined as $p_0(\pm t_1) = p_{2,3}(\pm t_1)$, which gives :

$$\pm t_1 = \pm \sqrt{\frac{\ln\left(\frac{\xi_0(0)}{\xi_{2,3}(0)} \frac{\tau_0}{\tau_{2,3}} \right)}{\frac{2}{\tau_0^2} - \frac{2}{\tau_{2,3}^2}}} \tag{4}$$

where $\xi_2(0) = \xi_3(0) = \xi_i(0)/2$.

For the fit of the data of experiments A, B and C, we used equation (2) where the parameters γ_2 and γ_3 are multiplied by the function F_t defined by (3). The corresponding values of F_t are given in figure 5. The two fixed experimental parameters for each of the three experiments are adjusted with a least squares method. We find the following sets of parameters : $\xi_i(0)$ = 138 μJ and L = 7.9 mm (fig. 2) ; $\xi_0(0)$ = 3.5 mJ and L = 7.9 mm (fig. 3) ; $\xi_0(0)$ = 3.5 mJ and $\xi_i(0)$ = 138 μJ (fig. 4). The overall convergence is ensured with the same set of $\xi_0(0)$, $\xi_i(0)$ and L parameters, which is a very satisfying point. Furthermore, the behaviours of the three curves are well described. The magnitudes of the fit parameters are slightly smaller than the experimental ones, *i.e.* 3.5 mJ < 4.5 mJ for $\xi_0(0)$, 138 μJ < 182 μJ for $\xi_i(0)$, 7.9 mm < 13 mm for L, which is mainly due to the spatial misoverlap between the incident beams.

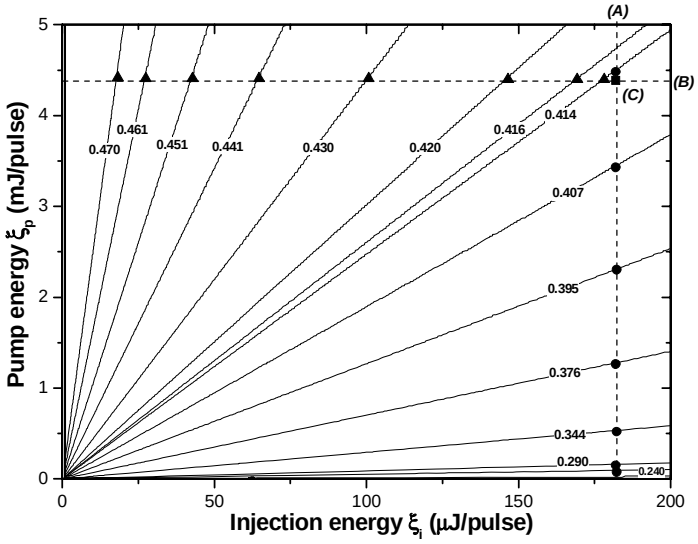


Fig. 5 : Diagram given the values of the overlap integral F_t used for the fit of the data of experiments A (●), B (▲) and C (■).

This comparison between theory and experiments shows the necessity to use the general model as described above, without any approximation with respect to the depletion level of the pump and injection, and that even at a very weak value of the conversion efficiency : in our experiments, a maximal conversion efficiency, defined as $\xi_1(L) / [\xi_0(0) + \xi_2(0) + \xi_3(0)]$, is reached at about 7.10^{-4} ; the calculation in the undepleted pump and injection approximation, $\xi_1(L)$ being simply proportional to the product of the incident energies, $\xi_0(0) \,.\, \xi_2(0) \,.\, \xi_3(0)$, according to the limits of equations (2), leads to a value of 3.10^{-2}.

4. Conclusion

This study definitively validates the model of third order optical parametric interactions based on Jacobi elliptic functions. This result is of prime importance within the framework of the research of new states of light based on triple photon generation [2].

Acknowledgment

We wish to thank Cristal Laser SA for providing us the KTP crystals.