HAL
open science

Nouvelles approches en optique cristalline: distributions angulaires de l'absorption et de l'émission, auto-doublage, quasi-accord de phase angulaire

Yannick Petit

▶ **To cite this version:**

Yannick Petit. Nouvelles approches en optique cristalline: distributions angulaires de l'absorption et de l'émission, auto-doublage, quasi-accord de phase angulaire. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2007. Français. NNT : . tel-00299197

HAL Id: tel-00299197

https://theses.hal.science/tel-00299197v1

Submitted on 17 Jul 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

YANNICK PETIT

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

Nouvelles approches en optique cristalline : distributions angulaires de l'absorption et de l'émission, auto-doublage, quasi-accord de phase angulaire

Thèse soutenue publiquement le 26 Octobre 2007 devant le jury :

M. Georges BOULON	Professeur à l'UCBL	Président du jury
M. Patrick GEORGES	Directeur de Recherche au LCFIO	Rapporteur
M. Michel LEFÈBVRE	Maître de Recherches à l'ONERA	Rapporteur
M. Gérard AKA	Professeur à l'ENSCP	Examinateur
Mme Patricia SEGONDS	Maître de Conférences à l'UJF	Directrice de thèse
M. Benoît BOULANGER	Professeur à l'UJF	Directeur de thèse

Avant-propos

Mon travail de thèse a été mené successivement au Laboratoire de Spectrométrie Physique, puis à l'Institut Néel à Grenoble, sous la direction de Patricia Segonds et Benoît Boulanger. Je tiens à les assurer de mon immense reconnaissance, pour leur soutien et pour la confiance qu'ils m'ont accordée au cours de ces trois années. Leur rigueur scientifique, leur très grande disponibilité, et l'énergie qu'ils communiquent quotidiennement ont été des éléments essentiels dans la progression et la réussite de ce travail.

Je tiens également à remercier l'ensemble des membres de l'équipe d'optique non linéaire du laboratoire, pour les nombreux et enrichissants échanges scientifiques, mais aussi pour les instants de convivialité partagés. Un grand merci à Bertrand Ménaert, Julien Zaccaro et Julien Debray pour les moments passés en salle de polissage, et pour le soin infini qu'ils ont su porter aux délicates sphères de $YCOB : Nd$ et de $PPLN$. Un grand merci également à Corinne Félix-Mathon pour ses nombreux apports techniques, qui ont grandement contribué à l'avancée des travaux sur sphère, et à la réalisation de belles mesures en luminescence. Je remercie également les étudiants Arthur Marcot, Jon Rosh et Georges Rakotonanahary pour leur fort investissement et leur enthousiasme au cours de leurs stages respectifs. Enfin, je remercie Takunori Taira, et toute son équipe, de m'avoir reçu au Japon durant un mois à l'Institut des Sciences Moléculaires, à Okasaki, et d'avoir eu la gentillesse de me faire découvrir une part de ce mystérieux pays.

Je souhaite également remercier les deux rapporteurs, Patrick Georges et Michel Lefèbvre, ainsi que les autres membres du jury, Gérard Aka et Georges Boulon, qui ont accepté d'évaluer ce travail. Que chacun d'entre eux soit assuré de ma profonde reconnaissance pour m'avoir accordé de leur temps et de leur disponibilité.

D'un point de vue personnel, je tiens à remercier Arnaud, Vincent, Mariem et Fabien

pour les repas et tous les moments de détente partagés. A ce moment, j'ai forcément une pensée toute spéciale pour Fabien, avec qui il a été un vrai plaisir de travailler et de partager ; pour ces trois années intenses où nous nous sommes soutenus l'un l'autre, je lui présente ici toute mon amitié. J'ai également une pensée par les secrétaires, les techniciens et tous les membres du laboratoire, qui contribuent à créer un environnement chaleureux.

Enfin, je souhaite beaucoup de réussite à Simon Joly, qui doit poursuivre certains axes de recherche que j'ai eu la chance d'aborder : les sphère monocristallines ont, j'en suis persuadé, encore de nombreux secrets à nous révéler !

A mes parents,

A ma grand-mère, Simone.

Table des matières

Table des matières **7**

Introduction **13**

1 Rappels d'optique cristalline et état de l'art de la méthode de la sphère **15**

1.1 Introduction 15

1.2 Eléments de théorie en optique cristalline 16

1.2.1 Optique linéaire 16

1.2.1.1 Du repère cristallographique au repère optique 16

1.2.1.2 De l'équation de Fresnel à la surface des indices 18

1.2.1.3 Modes propres de propagation 21

1.2.2 Optique non linéaire 22

1.2.2.1 Processus paramétriques quadratiques de conversion de fréquence 22

1.2.2.2 Equations couplées des champs électriques 25

1.2.2.3 Conditions d'accord de phase 26

1.2.2.4 Coefficient effectif 29

1.3 Méthodologie pour la métrologie en optique cristalline 31

1.3.1 Méthodes classiques 31

1.3.2 La méthode de la sphère : état de l'art 36

1.3.2.1 Métrologie sur sphère en optique linéaire 37

1.3.2.2 Métrologie sur sphère en optique non linéaire 39

1.4 Conclusion 42

2 Modélisation et mesure de la distribution angulaire d'absorption et de fluorescence de $YCOB : Nd$ 43

2.1 Introduction 43

2.2 Eléments de théorie sur l'absorption et l'émission 44

2.2.1 Processus d'absorption et d'émission 44

2.2.1.1 Définitions 44

2.2.1.2 Système à deux niveaux 46

2.2.1.3 Milieu à trois niveaux 49

2.2.2 Equation de Fresnel complexe 52

2.2.3 Surface d'absorption - Surface de fluorescence 55

2.3 Mesures sur $YCOB : Nd$ 59

2.3.1 Orientation du repère optique et des axes optiques 59

2.3.2 Méthodes classiques de mesures des propriétés d'absorption et d'émission 60

2.3.3 Mesures sur sphère : Stratégie et dispositif expérimental 62

2.3.4 Métrologie sur sphère de l'absorption 64

2.3.4.1 Distribution angulaire de la transmission et de l'absorption en lumière polarisée dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ 64

2.3.5 Métrologie sur sphère de l'émission 67

2.3.5.1 Spectres d'émission 67

2.3.5.2 Distribution angulaire de l'émission en lumière polarisée dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ 67

2.3.5.3 Analyse en polarisation des modes propres d'émission . . . 70

2.3.5.4 Imagerie et propagation des modes propres d'émission . . 72

2.4 Interprétation des mesures 73

2.4.1 Développements théoriques suggérés par l'expérience 73

2.4.1.1 Tenseurs non diagonaux des indices complexes 73

2.4.1.2 Equation de Fresnel complexe avec termes non diagonaux 76

2.4.2 Interpolation des données expérimentales dans les différents repères 79

2.4.2.1 Interpolation des donnés d'absorption et d'émission - Résultats . . . 79
2.4.2.2 Validation du modèle analytique par calcul numérique . . 85
2.5 Bilan des aspects fondamentaux et méthodologiques . . . 86
2.5.1 Synthèse des aspects fondamentaux . . . 87
2.5.2 Synthèse des aspects méthodologiques . . . 91
2.5.3 Interprétations complémentaires et topologie 3D de la surface imaginaire - Perspectives . . . 92
2.5.3.1 Anisotropie d'absorption et d'émission en fonction de la polarisation . . . 92
2.5.3.2 Topologie 3D des surfaces imaginaires sans termes non diagonaux . . . 93
2.6 Conclusion . . . 98

3 Vers une métrologie directe de l'auto-doublage 101

3.1 Introduction . . . 101
3.2 Génération de second harmonique de type I dans $YCOB : Nd$ . . . 102
3.3 Mesures le long du cône d'accord de phase . . . 104
3.4 Rappels sur les lentilles thermiques et les OPOs à base de cristaux cylindriques . . . 107
3.4.1 Les lentilles thermiques . . . 107
3.4.2 Les Oscillateurs Paramétriques Optiques cylindriques . . . 110
3.4.3 Bilan . . . 112
3.5 Quelle cavité laser pour l'étude des cristaux auto-doubleurs ? . . . 113
3.6 Domaine de stabilité de la cavité laser retenue . . . 115
3.6.1 Configuration et motif de la cavité . . . 115
3.6.2 Représentation du motif par le formalisme de l'optique matricielle . 116
3.6.3 Condition de stabilité et domaine de stabilité . . . 118
3.6.4 Restriction des configurations de la cavité stable pour l'étude de l'auto-doublage . . . 121
3.7 La cavité symétrique . . . 124

3.7.1 Intérêt d'une cavité symétrique 124
3.7.2 Les dimensions de la cavité symétrique 125
3.8 Caractéristiques spatiales des faisceaux gaussiens de la cavité laser symétrique 127
3.8.1 Caractéristiques géométriques et dimensions du mode laser 127
3.8.2 Mode laser soumis à la double réfraction 131
3.9 Adaptation de la taille du faisceau pompe à celle du mode laser de la cavité symétrique 133
3.9.1 Caractérisation des paramètres spatiaux du faisceau pompe 134
3.9.2 Modélisation du recouvrement du mode laser par le faisceau pompe dans la sphère 137
3.9.3 Estimation du recouvrement du mode laser par le faisceau pompe dans la sphère 140
3.10 Estimation du seuil de la cavité laser symétrique 144
3.11 Bilan de l'étude de la cavité laser avec milieu sphérique et première tentative de réalisation 148

4 Théorie du Quasi-Accord de Phase Angulaire (QAPA) 151

4.1 Position du problème et motivations 151
4.2 Rappels sur le QAP classique 154
4.3 Condition de QAPA 156
4.4 Types d'interaction en QAPA 160
4.5 Analyse en symétrie des solutions en QAPA 162
4.5.1 Symétries des surfaces impliquées en accord de phase et symétrie des solutions associées 162
4.5.2 Symétries des surfaces impliquées en QAPA et symétrie des solutions associées 165
4.5.3 Synthèse de l'analyse en symétrie 167
4.6 Topologie de QAPA dans les milieux uniaxes 169
4.7 Classes de solutions en QAPA dans les milieux alternés uniaxes 173
4.8 Interactions en QAPA dans le cristal $MgO : PPLN$ 179

4.9 Génération de second harmonique dans $MgO : PPLn$: comparaison entre le QAPA colinéaire et le QAP-1D, le QAP-2D et l'accord de phase par biréfringence 180

4.9.1 Accordabilité spectrale 181

4.9.2 Acceptance spectrale 185

4.10 Conclusion 188

Conclusion **189**

Bibliographie **191**

Annexes **201**

A Classes de solutions en QAPA dans les cristaux uniaxes **203**

B Facteur champ sollicité en QAPA dans $MgO : PPLN$ **207**

C Condition généralisée de QAPA **213**

Introduction

Les sources laser et paramétriques occupent aujourd'hui une place importante en recherche, tant au niveau fondamental que d'un point de vue applicatif, offrant ainsi de nombreuses possibilité telles que le ralentissement et le piègeage d'atomes, la génération d'états intriqués, la télémétrie laser à sécurité occulaire, la détection de gaz, de particules inertes voire de bactéries à l'état de traces dans l'atmosphère, la correction de la déformation par la turbulence atmosphérique des images en astronomie, le suivi de processus ultra-brefs tels que certaines cinétiques chimiques, *etc.*

La synthèse de nouveaux cristaux pour l'optique réalise de forts pogrès, comme les cristaux auto-convertisseurs de fréquence, qui présentent à la fois des propriétés laser et non linéaires. La structuration périodique de matériaux ferroélectriques parvient à être réalisée dans des volumes de matière de plus en plus grands, pouvant atteindre des dimensions millimétriques dans les trois directions de l'espace. Enfin, le développement de sources ultra-brèves, en régime femtoseconde voire attoseconde aujourd'hui, pose également de nouveaux défis quant à l'efficacité des processus de conversion de fréquence pour des sources de telles largeurs spectrales.

Les progrès en recherche fondamentale et technologique sont subordonnés à des développements méthodologiques, permettant des approches expérimentales adaptées aux nouveaux cristaux synthétisés, ainsi qu'aux nouveaux besoins. Il est également nécessaire de mener des études théoriques afin de consolider et d'élargir les concepts de l'optique cristalline. C'est dans ces perspectives que cette thèse s'inscrit : ce travail présente de nouvelles approches en optique cristalline linéaire et non linéaire, qui portent sur des aspects théoriques, méthodologiques et métrologiques.

Le chapitre 1 donne les bases théoriques en optique cristalline permettant d'aborder

les thèmes traités. Il y est également présenté un état de l'art sur la métrologie en optique cristalline.

Le chapitre 2 est dédié à une étude des distributions angulaires de l'absorption et de l'émission d'ions fluorescents dans un cristal de classe de symétrie d'orientation monoclinique. Cette étude a nécessité la mise au point d'une méthodologie adaptée, basée sur l'utilisation d'un échantillon de géométrie sphérique, et sur l'écriture d'une théorie rendant compte de l'ensemble des observations expérimentales.

Le chapitre 3 présente le travail préparatoire effectué en vue de la réalisation expérimentale d'une méthodologie nouvelle, dont l'objectif est la caractérisation simultanée des propriétés laser et de génération de second harmonique dans les cristaux autoconvertisseurs. L'étude porte sur la détermination théorique des caractéristiques d'une cavité laser contenant un milieu amplificateur de géométrie sphérique.

Enfin, le chapitre 4 décrit la théorie du « quasi-accord de phase angulaire », notée QAPA, qui vise à généraliser l'approche du quasi-accord de phase classique. Une analyse de la symétrie, basée sur la théorie des groupes, est donnée pour les ensembles de solutions de QAPA. Une première illustration des potentialités du QAPA est également décrite : elle porte en particulier sur les plages spectrales et les acceptances spectrales rendues accessibles par cette approche.

Chapitre 1

Rappels d'optique cristalline et état de l'art de la méthode de la sphère

1.1 Introduction

Ce premier chapitre a pour objectif de donner les connaissances classiques en optique cristalline linéaire et non linéaire, afin de servir de support à la compréhension des différents développements théoriques, relatifs à l'optique cristalline, qui seront présentés dans les chapitres suivants.

Ce chapitre présente également les méthodes permettant l'étude des propriétés optiques linéaires et non linéaires des milieux cristallins. Ces approches expérimentales peuvent être classées en deux catégories : les méthodes dites « classiques », qui nécessitent plusieurs échantillons parallélépipédiques ; et les méthodes basées sur l'utilisation d'un unique échantillon usiné sous forme de sphère, à l'origine de la « méthode de la sphère », qui constitue l'outil métrologique privilégié de l'équipe. Ce chapitre positionne la méthode la sphère par rapport aux méthodes classiques, et permet la compréhension des différents développements méthodologiques et métrologiques qui seront présentés dans le cadre de la thèse concernant l'absorption, la fluorescence, et la bi-fonctionnalité qui associe les propriétés laser et non linéaires.

1.2 Eléments de théorie en optique cristalline

1.2.1 Optique linéaire

Les propriétés optiques sont décrites d'un point de vue macroscopique en électromagnétisme classique, dans le cadre théorique des équations de Maxwell. Les longueurs d'onde considérées vont du proche Ultra-Violet à l'Infra-Rouge moyen en passant par le spectre visible, ce qui correspond à des longueurs d'onde λ de l'ordre de 100 nm à quelques microns. Les milieux considérés sont des milieux diélectriques non conducteurs électriquement, sans charges libres et non magnétiques. Ils sont également de grandes dimensions par rapport aux longueurs d'onde caractéristiques, ce qui permet de négliger tout phénomène de diffraction et de considérer une propagation électromagnétique non guidée. La relation entre la pulsation et la longueur d'onde est alors $\omega = \frac{2\pi c}{\lambda}$, où c est la célérité de la lumière dans le vide. La linéarité des équations de Maxwell permet la décomposition du champ électromagnétique sous la forme d'ondes planes monochromatiques dont le champ électrique $\vec{E}$, de pulsation ω, de vecteur d'onde $\vec{k}$ et de polarisation $\vec{e}$, s'écrit en notation complexe, à la position $\vec{r}$ [1] :

$$\vec{E}\left(\omega, \vec{r}\right) = E\left(\omega, \vec{r}\right) e^{j\left(\omega t - \vec{k}\vec{r}\right)} \vec{e} \tag{1.1}$$

1.2.1.1 Du repère cristallographique au repère optique

Les cristaux sont des milieux ordonnés et structurés périodiquement dans les trois dimensions de l'espace. Les éléments d'un cristal sont alors repérés dans le repère cristallographique, noté $\left(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}\right)$, qui caractérise la structure atomique. Ce repère est le repère de référence permettant l'orientation d'un cristal dans l'espace. Il est déterminé par diffraction de rayons X. Les propriétés optiques liées à la densité électronique au sein du cristal sont, quant à elles, définies dans un autre repère, appelé repère optique, qui va être défini par la suite.

En présence du champ électrique $\vec{E}$ d'une onde optique de faible amplitude à la pulsation ω, les électrons de valence du milieu se déplacent de leur position d'équilibre proportionnellement à l'amplitude de $\vec{E}$. La polarisation qui en résulte, $\vec{P}$, est dite linéaire [2] ;

elle est donnée par l'équation suivante :

$$\vec{P}(\omega) = \epsilon_0 \left[1 + \chi^{(1)}(\omega)\right] \vec{E}(\omega) \tag{1.2}$$

ϵ_0 est la permitivité diélectrique du vide, et $\left[\chi^{(1)}\right]$ est un tenseur polaire de rang 2, appelé tenseur de susceptibilité électrique linéaire du milieu. Le repère optique est alors défini comme le repère particulier, noté $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$, dans lequel le tenseur de permitivité diélectrique linéaire $[\epsilon(\omega)] = \epsilon_0 \left[1 + \chi^{(1)}(\omega)\right]$ est diagonal, soit :

$$\left[\frac{\epsilon(\omega)}{\epsilon_0}\right] = \begin{bmatrix} 1+\chi_{xx}(\omega) & 0 & 0 \\ 0 & 1+\chi_{yy}(\omega) & 0 \\ 0 & 0 & 1+\chi_{zz}(\omega) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} n_{xx}^2(\omega) & 0 & 0 \\ 0 & n_{yy}^2(\omega) & 0 \\ 0 & 0 & n_{zz}^2(\omega) \end{bmatrix} \tag{1.3}$$

Dans le repère optique $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$, les éléments diagonaux sont ainsi associés aux indices principaux n_{xx}, n_{yy} et n_{zz} tels que $n_{ii}(\omega) = \sqrt{1 + \chi_{ii}(\omega)}$ avec $i = x, y, z$. La notation contractée est généralement utilisée, de sorte que l'indice principal n_{ii} est écrit n_i. Les éléments du tenseur de susceptibilité électrique linéaire présentent une dépendance avec la pulsation ω de l'onde optique, ce qui a des conséquences considérables dans le cadre de l'optique non linéaire, comme cela sera expliqué ultérieurement.

De façon général, les indices possèdent une dispersion dite "normale", telle que $\frac{\partial n}{\partial \lambda} < 0$. Sur une plage de faible dispersion, comprise entre deux longueurs d'onde de résonnance du milieu, λ_c et λ_e, la dispersion des indices est correctement décrite par une modélisation d'oscillateurs électroniques et ioniques indépendants, ce qui conduit à une équation du type : $n_i^2(\lambda) = a_i + \frac{b_i}{1-(\lambda_c/\lambda)^{p_i}} + \frac{d_i}{1-(\lambda_e/\lambda)^{q_i}}$, avec $i = x, y, z$, et où les paramètres a_i, b_i, d_i, p_i et q_i dépendent des propriétés électroniques et structurales du milieu considéré [3, 4].

Au sein d'un cristal de classe optique uniaxe, deux des trois indices principaux sont égaux entre eux, tandis qu'un cristal de classe optique biaxe possède trois indices principaux distincts. A la différence des cristaux anisotropes, uniaxes ou biaxes, les cristaux de

classe optique isotrope présente trois indices principaux égaux.

La classe de symétrie d'orientation du cristal conditionne sa classe optique. La structure atomique du cristal est indépendante de toute pulsation ω de sollicitation par un champ électrique incident, ce qui impose que le repère cristallographique n'a pas de dépendance avec la longueur d'onde. En fonction du degré de symétrie de la structure cristalline considérée, l'orientation du repère optique peut être soit complètement imposée par celle du repère cristallographique, ce qui est le cas pour les cristaux de symétrie suffisamment élevée, soit partiellement imposée, dans le cas des cristaux de classe de symétrie monoclinique, soit complètement indépendante, pour les cristaux de classe de symétrie triclinique. Dans le cas des cristaux de classes de symétrie monoclinique et triclinique, en plus de la dispersion en longueur d'onde des indices principaux, il peut exister une dispersion en longueur d'onde de l'orientation du repère optique par rapport à celle du repère cristallographique [5].

1.2.1.2 De l'équation de Fresnel à la surface des indices

La direction de propagation d'une onde électromagnétique monochromatique de pulsation ω est définie par l'orientation, dans le repère optique, de son vecteur d'onde, $\vec{k} = \frac{\omega n}{c}\vec{u}$, où $\vec{u}$ est le vecteur unitaire colinéaire à $\vec{k}$, n l'indice sollicité dans le milieu anisotrope dans la direction $\vec{u}$, et c la célérité de la lumière dans le vide. Les équations de Maxwell conduisent à l'équation de Fresnel [6], dont l'expression est :

$$\frac{u_x^2}{n^{-2} - n_x^{-2}} + \frac{u_y^2}{n^{-2} - n_y^{-2}} + \frac{u_z^2}{n^{-2} - n_z^{-2}} = 0 \tag{1.4}$$

u_x, u_y et u_z sont les coordonnées cartésiennes dans le repère optique du vecteur unitaire $\vec{u}$; n_x, n_y et n_z sont les indices principaux du cristal, et n l'indice du milieu sollicité au cours de la propagation dans la direction $\vec{u}$.

Pour toute direction $\vec{u}$, qui peut être repérée par les angles (θ, ϕ) en coordonnées sphériques, l'équation de Fresnel possède deux solutions n^+ et n^- à la pulsation ω [7], vérifiant par définition $n^+(\omega; \theta, \phi) > n^-(\omega; \theta, \phi)$, et dont les expressions sont données par :

$$\begin{cases} n^{\pm} = \left(\dfrac{2}{-B \mp \left(B^2 - 4C\right)^{1/2}} \right)^{1/2} \\ B = -u_x^2 \left(b + c\right) - u_y^2 \left(a + c\right) - u_z^2 \left(a + b\right) \\ C = u_x^2 bc + u_y^2 ac + u_z^2 ab \\ a = n_x^{-2}, \qquad b = n_y^{-2}, \qquad c = n_z^{-2} \end{cases} \tag{1.5}$$

La surface des indices est la représentation géométrique de $n^{\pm}$ en fonction de (θ, ϕ). C'est une surface composée de deux nappes fermées, dont les distances au centre du repère optique en fonction de la direction de propagation valent respectivement n^+ et n^-. Chacun des trois plans principaux $(\vec{X}, \vec{Z})$, $(\vec{X}, \vec{Y})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$ du repère optique constitue un plan de symétrie miroir de la surface des indices. La description de la surface des indices au sein d'un unique octant du repère optique contient ainsi toute la généralité de cette surface.

Dans le cas des cristaux de classe optique isotrope, l'égalité des trois indices principaux pour toute pulsation ω conduit à une unique valeur d'indice, $n^+ (\omega; \theta, \phi) = n^- (\omega; \theta, \phi)$, indépendamment de la direction de propagation. La surface des indices associée est alors une unique nappe sphérique, de rayon n, traduisant le caractère isotrope de ces cristaux.

Dans le cas des cristaux de classe optique uniaxe, il existe deux indices principaux indépendants, respectivement notés $n_o = n_x = n_y$ et $n_e = n_z$. Ceci conduit à deux nappes d'indices dans le repère optique représentées respectivement par une surface sphérique appelée nappe ordinaire, et une surface ellipsoïdale appelée nappe extraordinaire dont l'axe de révolution est l'axe $\vec{Z}$. L'équation (1.5) conduit, en fonction des directions (θ, ϕ), aux deux solutions $n_o (\theta, \phi)$ et $n_e (\theta, \phi)$, dont les expressions sont :

$$\begin{cases} n_o (\theta, \phi) = n_o \\ n_e (\theta, \phi) = \left(\dfrac{cos^2 (\theta)}{n_o^2} + \dfrac{sin^2 (\theta)}{n_e^2} \right)^{-1/2} \end{cases} \tag{1.6}$$

Dans le cas d'un cristal de classe optique uniaxe positif, défini par $n_e > n_o$, les nappes sphérique et ellipsoïdale correspondent respectivement aux nappes n^- et n^+. Au contraire, pour un cristal uniaxe négatif, où $n_e < n_o$, les nappes sphérique et ellipsoïdale correspondent respectivement aux nappes n^+ et n^-. Ces deux nappes, représentées par la figure

1.1.(a) dans le cas d'un cristal uniaxe négatif, sont tangentes entre elles selon l'axe $\vec{Z}$, qui correspond à l'axe optique des cristaux uniaxes.

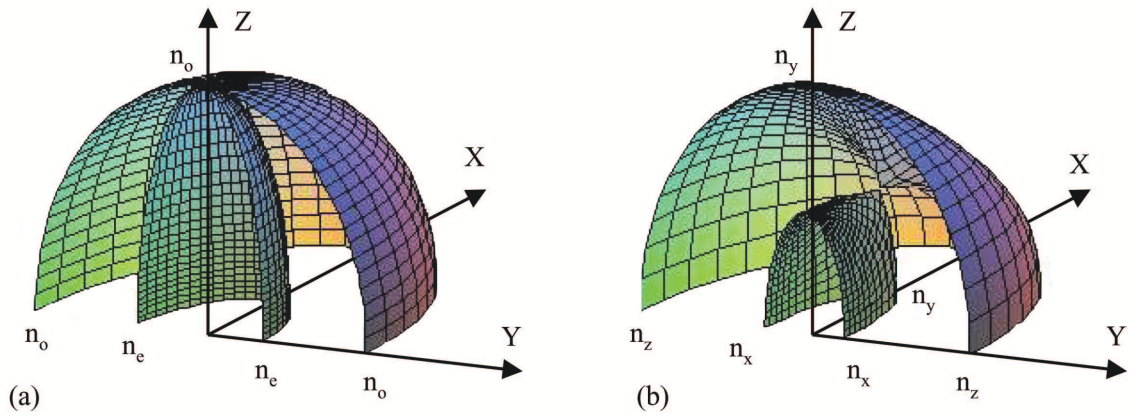


FIG. 1.1 – *Nappes d'indices $n^{\pm}$ dans le repère optique $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$ dans le quart-espace défini par les directions de propagation $\theta = [0, \pi/2]$ et $\phi = [0, \pi]$. (a) Surface des indices d'un cristal uniaxe avec $n_e < n_o$. (b) Surface des indices d'un cristal biaxe avec $n_x < n_y < n_z$.*

Dans le cas des cristaux de classe optique biaxe, les deux nappes n^+ et n^- sont de géométrie plus complexe, illustrée par la figure 1.1.(b). Les sections de la surface des indices dans les trois plans principaux $(\vec{X}, \vec{Y})$, $(\vec{Y}, \vec{Z})$ et $(\vec{X}, \vec{Z})$ du repère optique peuvent être décrites en terme de mode ordinaire et de mode extraordinaire, comme dans le cas des cristaux uniaxes. Leurs équations sont les suivantes :

$$\begin{cases} n_{o,xy}(\phi) = n_z \quad et \quad n_{e,xy}(\phi) = \left(\dfrac{cos^2(\phi)}{n_y^2} + \dfrac{sin^2(\phi)}{n_x^2}\right)^{-1/2} \\ n_{o,yz}(\theta) = n_x \quad et \quad n_{e,yz}(\theta) = \left(\dfrac{cos^2(\theta)}{n_y^2} + \dfrac{sin^2(\theta)}{n_z^2}\right)^{-1/2} \\ n_{o,xz}(\theta) = n_y \quad et \quad n_{e,xz}(\theta) = \left(\dfrac{cos^2(\theta)}{n_x^2} + \dfrac{sin^2(\theta)}{n_z^2}\right)^{-1/2} \end{cases} \tag{1.7}$$

Les deux nappes sont en contact ponctuel dans le plan principal $(\vec{X}, \vec{Z})$ en quatre positions, correspondant à quatre singularités qui constituent les ombilics de la surface des indices. Ceux-ci définissent deux directions particulières, correspondant aux deux axes optiques du cristal biaxe [8]. L'angle défini dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ entre l'axe $\vec{Z}$ et l'axe optique, noté V_Z, présente une dispersion en longueur d'onde, dépendant directement de la dispersion des indices principaux. Compte tenu des expressions de $n_{o,xz}(\theta)$ et $n_{e,xz}(\theta)$ dans l'équation (1.7), V_Z a pour expression :

$$V_Z(\omega) = \frac{n_y(\omega) - n_x(\omega)}{n_z(\omega) - n_x(\omega)} \tag{1.8}$$

1.2.1.3 Modes propres de propagation

Au cours d'une propagation dans un cristal anisotrope, deux indices n^+ et n^- sont susceptibles d'être sollicités en fonction de l'état de polarisation de l'onde électromagnétique qui se propage. La quantité $(n^+ - n^-)$ définit la biréfringence dans la direction (θ, ϕ) considérée. Pour toute direction $\vec{u}$ de propagation, il existe deux modes propres de polarisation de l'onde optique, $\vec{e}^{\,+}$ et $\vec{e}^{\,-}$, sollicitant respectivement les nappes d'indices n^+ et n^-, et où $\vec{e}^{\,\pm}$ est le vecteur unitaire décrivant la polarisation du champ électrique $\vec{E}^{\pm}$ de pulsation ω et de vecteur d'onde $\vec{k}^{\pm} = \frac{\omega n^{\pm}}{c}\vec{u}$ [7]. Les modes de polarisation portés par les vecteurs $\vec{e}^{\,\pm}$ sont systématiquement tangents à la nappe d'indice correspondante $n^{\pm}$.

La propagation de la lumière de vecteur d'onde $\vec{k}^{\pm}$, et de mode de polarisation $\vec{e}^{\,\pm}$, et de pulsation ω est associée au vecteur de Poynting $\vec{S}^{\pm}$ dont l'amplitude, $\| \vec{S}^{\pm} \|$, et l'orientation, $\vec{s}^{\,\pm}$, sont données par l'équation [8] :

$$\vec{S}^{\pm}(\omega) = \| \vec{S}^{\pm}(\omega) \| \, \vec{s}^{\,\pm} = \frac{\| \vec{k}^{\pm}(\omega) \|}{2\mu_0\omega} \| \vec{E}^{\pm}(\omega) \|^2 \, \vec{s}^{\,\pm} \tag{1.9}$$

où μ_0 est la permitivité magnétique du vide.

$\| \vec{S}^{\pm} \|$ est l'éclairement de l'onde lumineuse : il correspond à la valeur moyenne dans le temps de l'énergie par unité de temps et de surface propagée par l'onde lumineuse de vecteur d'onde $\vec{k}^{\pm}$, tandis que le vecteur unitaire $\vec{s}^{\,\pm}$ décrit la direction de propagation de l'énergie lumineuse.

L'angle de double réfraction , noté $\rho^{\pm}(\omega)$, est l'angle entre $\vec{k}^{\pm}$ et $\vec{s}^{\,\pm}$. Il est défini par [9] :

$$\rho^{\pm}(\theta, \omega) = arccos\left(\left[\frac{cos^2\theta}{n_x^2(\omega)} + \frac{sin^2\theta}{n_z^2(\omega)}\right]\left[\frac{cos^2\theta}{n_x^4(\omega)} + \frac{sin^2\theta}{n_z^4(\omega)}\right]^{-1/2}\right) \tag{1.10}$$

Pour une propagation de vecteur d'onde $\vec{k}^{\pm}$ au sein d'un cristal de classe optique uniaxe, le mode de polarisation associé à la nappe sphérique est orthogonal au plan $(\vec{Z}, \vec{k}^{\pm})$ ainsi qu'au vecteur $\vec{k}^{\pm}$. L'angle de double réfraction est donc nul et le vecteur

de Poynting associé est colinéaire à $\vec{k}^{\pm}$, ce qui conduit à une propagation dite ordinaire de l'onde. Le mode de polarisation associé à la nappe ellipsoïdale est tangent au plan $(\vec{Z}, \vec{k}^{\pm})$ et présente en général un angle de double réfraction non nul, ce qui conduit à une propagation dite extraordinaire de l'onde.

Dans le cas des cristaux de classe optique biaxe, les polarisations $\vec{e}^{\,\pm}$ ne sont, en général, pas orthogonales entre elles, et il existe un angle de double réfraction non nul, $\rho^{\pm}$, associé à la propagation de l'énergie lumineuse décrite par les vecteurs $\vec{S}^{\pm}$. Cependant, pour des propagations dans les plans principaux, les modes de polarisation $\vec{e}^{\,\pm}$ sont orthogonaux entre eux. Les intersections des nappes $n^{\pm}$ avec les plans principaux décrivent des courbes de sections circulaires ou elliptiques. Le mode de polarisation associé à la nappe de section circulaire est orthogonal au plan principal considéré, et l'angle de double réfraction associé est nul ; le mode de polarisation sollicitant la nappe de section elliptique est tangent au même plan principal considéré, et présente un angle de double réfraction en général non nul.

Les figures 1.2.(a) et 1.2.(b) représente respectivement, pour chaque nappe d'indices, les modes de polarisation et la propagation lumineuse correspondante, dans le cas particulier d'une propagation dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ du repère optique d'un cristal de classe d'optique uniaxe positif d'une part, et biaxe vérifiant $n_z > n_y > n_x$ d'autre part.

1.2.2 Optique non linéaire

1.2.2.1 Processus paramétriques quadratiques de conversion de fréquence

Lorsque les champs électriques des ondes optiques sont de faible intensité, les processus non linéaires sont difficilement observables de part la faiblesse de leur efficacité. Cependant, sous certaines conditions qui seront détaillées plus loin, ces phénomènes ne sont observables qu'à partir d'éclairements élevés, supérieurs à quelques $MW.cm^{-2}$. Ceci explique que les premiers effets non linéaires de conversion de fréquence n'ont été observés qu'à partir de 1961 [10, 11], soit peu de temps après l'invention et la mise en oeuvre des premiers laser [12], ouvrant ainsi le très large champ théorique et expérimental de l'optique non linéaire.

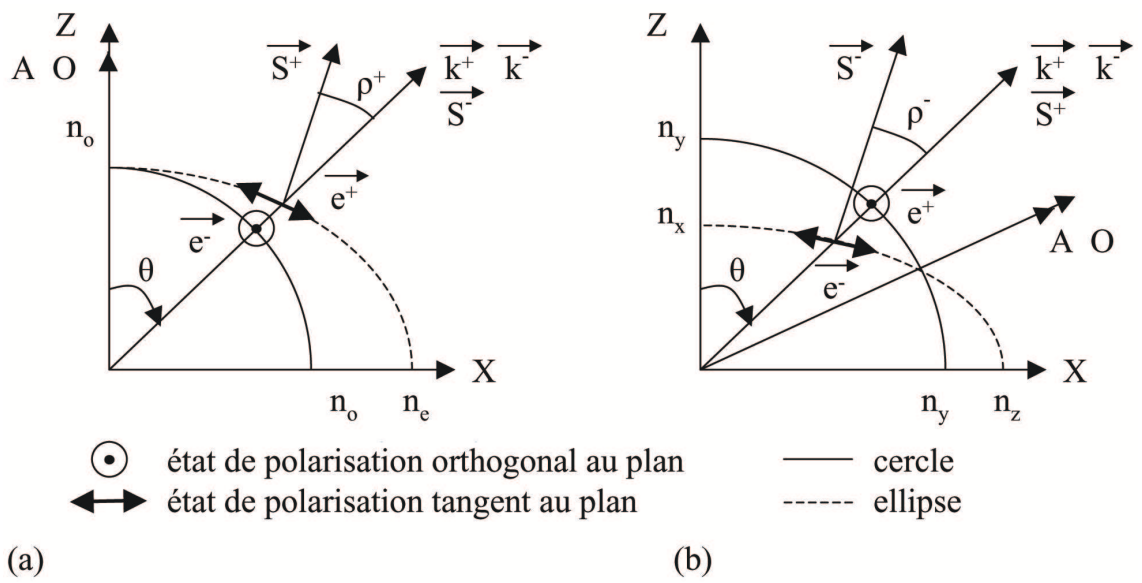


FIG. 1.2 – *Nappes d'indices n^+ et n^- de sections circulaire ou elliptique dans le plan principal $(\vec{X}, \vec{Z})$, respectivement sollicitées par les modes propres de polarisation $\vec{e}^+$ et $\vec{e}^-$. Propagation des ondes, de vecteurs d'onde $\vec{k}^+$ et $\vec{k}^-$, selon la direction θ. Directions de propagation de l'énergie selon les vecteurs de Poynting $\vec{S}^+$ et $\vec{S}^-$, associés aux angles de double réfraction $\rho^\pm$ non nuls pour les propagations dites extraordinaires. (a) Cristal uniaxe où $n_e > n_o$. (b) Cristal biaxe où $n_z > n_y > n_x$, dont les axes optiques sont notés A O.*

Les processus non linéaires de conversion de fréquence sont associés à une mise en oscillation de grande amplitude des électrons de valence du milieu sollicité, suite à l'excitation par un champ électrique de pulsation ω. La réponse du milieu conduit à l'apparition d'une polarisation non linéaire comportant de nouvelles composantes spectrales, qui rayonnent à leur tour des champs électriques à des pulsations qui diffèrent de la pulsation ω du champ excitateur. La propagation de forts éclairements peut donc conduire à l'apparition d'ondes à de nouvelles pulsations [13].

En présence de champs électriques incidents de fort éclairement, la polarisation $\vec{P}$ au sein d'un milieu peut être décrite par un développement en série de Taylor du champ électrique $\vec{E}$, soit [14] :

$$\vec{P}(\omega) = \vec{P}^{(0)}(\omega) + \vec{P}^{(1)}(\omega) + \vec{P}^{(2)}(\omega) + \vec{P}^{(3)}(\omega_0) + \dots \tag{1.11}$$

avec :

$$\begin{cases} \vec{P}^{(0)}(\omega) = \epsilon_0 \vec{E}(\omega) \\ \vec{P}^{(1)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) . \vec{E}(\omega) \\ \vec{P}^{(2)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2) : \left\{ \vec{E}(\omega_1) \otimes \vec{E}(\pm\omega_2) \right\} \\ \vec{P}^{(3)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3) \vdots \left\{ \vec{E}(\omega_1) \otimes \vec{E}(\pm\omega_2) \otimes \vec{E}(\pm\omega_3) \right\} \\ \quad \ldots \end{cases} \tag{1.12}$$

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

Les deux premiers termes de l'équation (1.14) correspondent à la polarisation linéaire, qui a été détaillée précédemment dans la partie 1.2.1.1. Les termes d'ordre supérieurs représentent la réponse non linéaire du milieu en présence d'un champ excitateur, à l'origine de l'apparition de champs électriques à de nouvelles pulsations optiques, ω_1, ω_2, ω_3, ..., qui diffèrent de la pulsation initiale ω.

Dans le cadre des processus dits quadratiques, le développement des termes non linéaires de la polarisation est restreint au seul premier terme non linéaire $\vec{P}^{(2)}$, ce qui correspond à des interactions mettant en jeu trois ondes. Le tenseur $\chi^{(2)}$, de rang 3, possède a priori 27 éléments indépendants, notés $\chi^{(2)}_{ijk}$ où i, j, k correspondent chacun à l'un des trois indices cartésiens du repère optique. Le nombre d'éléments indépendants peut être réduit en supposant que les pulsations des trois ondes en interaction sont éloignées des bandes d'absorption du milieu considéré. Loin de ces bandes, la dispersion en longueur d'onde des éléments du tenseur peut être négligée. Dans le cadre de cette approximation, dite de Kleinmann, les éléments du tenseur $\chi^{(2)}$ sont symétriques par rapport aux trois indices cartésiens, ce qui rend ce tenseur complètement symétrique et invariant par permutation des indices cartésiens [13]. Enfin, selon la symétrie d'orientation du milieu cristallin considéré, le principe de Neumann impose certaines relations entre les éléments $\chi^{(2)}_{ijk}$, pouvant conduire à l'annulation de certains d'entre eux : le nombre d'éléments indépendants est alors d'autant plus faible que le degré de symétrie du milieu est élevé [5,9].

1.2.2.2 Equations couplées des champs électriques

La propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu à propriétés optiques non linéaires est décrite par l'équation de propagation suivante, où la polarisation non linéaire, restreinte ici à $\vec{P}^{(2)}$, se comporte comme un terme source. En effet, au cours de l'interaction à trois ondes de pulsations respectives $\omega_1 < \omega_2 < \omega_3$, $\vec{P}^{(2)}$ est à l'origine du rayonnement à de nouvelles pulsations [14] :

$$\Delta\vec{E}\left(\omega_i\right) = \frac{\omega_i^2}{c^2}\epsilon\left(\omega_i\right)\vec{E}\left(\omega_i\right) + \omega_i^2\mu_0\vec{P}^{(2)}\left(\omega_i\right) \tag{1.13}$$

avec :

$$\begin{cases} \vec{P}^{(2)}\left(\omega_1\right) = \epsilon_0\chi^{(2)}\left(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2\right) : \left\{\vec{E}\left(\omega_3\right) \otimes \vec{E}^*\left(\omega_2\right)\right\} \\ \vec{P}^{(2)}\left(\omega_2\right) = \epsilon_0\chi^{(2)}\left(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1\right) : \left\{\vec{E}\left(\omega_3\right) \otimes \vec{E}^*\left(\omega_1\right)\right\} \\ \vec{P}^{(2)}\left(\omega_3\right) = \epsilon_0\chi^{(2)}\left(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2\right) : \left\{\vec{E}\left(\omega_1\right) \otimes \vec{E}\left(\omega_2\right)\right\} \end{cases} \tag{1.14}$$

où $\vec{E}^*\left(\omega_i\right)$ est l'écriture du complexe conjugué du champ électrique $\vec{E}\left(\omega_i\right)$.

Lorsque l'interaction non linéaire se produit entre trois ondes de vecteurs d'ondes colinéaires, dans des conditions où l'absorption, la diffraction et la dispersion des vitesses de groupes des champs sont négligées, et où les amplitudes des différents champs électriques varient lentement à l'échelle des longueurs d'onde mises en jeu, le système d'équations différentielles régissant l'évolution de l'amplitude complexe des champs électriques des trois ondes en interaction est décrit par l'équation suivante, qui est donnée dans le repère orthonormé du laboratoire $\left(\vec{\varsigma}, \vec{\zeta}, \vec{\xi}\right)$ où l'axe $\vec{\xi}$ est colinéaire à la direction de propagation associée aux trois ondes :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial E_1\left(\omega_1\right)}{\partial\xi} = j\kappa_1\chi_{eff}^{(2)}E_3\left(\omega_3\right)E_2^*\left(\omega_2\right)exp\left(j\Delta k.\xi\right) \\ \dfrac{\partial E_2\left(\omega_2\right)}{\partial\xi} = j\kappa_2\chi_{eff}^{(2)}E_3\left(\omega_3\right)E_1^*\left(\omega_1\right)exp\left(j\Delta k.\xi\right) \\ \dfrac{\partial E_3\left(\omega_3\right)}{\partial\xi} = j\kappa_3\chi_{eff}^{(2)}E_1\left(\omega_1\right)E_2\left(\omega_2\right)exp\left(-j\Delta k.\xi\right) \end{cases} \tag{1.15}$$

avec $\kappa_i = \pi/n_i\lambda_i cos^2\left(\rho_i\right)$, où ρ_i est l'angle de double réfraction associé à la pulsation ω_i ; les indices $i = 1, 2, 3$ font respectivement référence aux ondes de pulsation ω_i et de

longueur d'onde $\lambda_i = \frac{2\pi c}{\omega_i}$; $\Delta k.\xi$ est le déphasage entre la polarisation non linéaire et le champ qu'elle rayonne, où $\Delta k = k_3 - k_1 - k_2$ est le désaccord de phase de l'interaction colinéaire, et où $k_i = \frac{\omega_i n_i}{c}$ est le module du vecteur d'onde sollicitant l'indice de réfraction n_i à la pulsation ω_i ; $\chi^{(2)}_{eff}$ est le coefficient effectif de l'interaction quadratique.

Les deux grandeurs qui gouvernent l'efficacité du couplage non linéaires sont Δk et $\chi^{(2)}_{eff}$. Δk ne dépend que des propriétés optiques linéaires du milieu via les indices de réfraction. $\chi^{(2)}_{eff}$ dépend des propriétés optiques non linéaires quadratiques du milieu. L'influence de Δk et de $\chi^{(2)}_{eff}$ sur l'efficacité est détaillée dans les paragraphes 1.2.2.3 et 1.2.2.4.

1.2.2.3 Conditions d'accord de phase

Les processus de consersion de fréquence sont d'autant plus efficaces que l'interaction paramétrique au sein du milieu non linéaire vérifie la condition d'accord de phase, soit $\Delta k = 0$.

D'un point de vue ondulatoire, la condition d'accord de phase correspond à une oscillation en phase de la polarisation non linéaire et du champ électrique qu'elle rayonne. Cette interférence constructive assure un transfert optimum de l'énergie de la polarisation non linéaire vers le champ rayonné [11].

D'un point de vue corpusculaire, la condition d'accord de phase correspond à la conservation de l'impulsion au cours de l'interaction colinéaire à trois photons d'impulsions $p_i = \hbar k_i = \hbar n_i \omega_i / c$, où l'indice $i = 1, 2, 3$ est associé à chacune des pulsations ω_1, ω_2 et ω_3 :

$$\Delta p = \hbar \Delta k = \hbar k_3 - \hbar k_1 - \hbar k_2 = 0 \tag{1.16}$$

Notons qu'il y a également vérification de la conservation de l'énergie, soit :

$$\hbar \omega_3 = \hbar \omega_1 + \hbar \omega_2 \tag{1.17}$$

L'interaction à trois photons est associée à trois processus différents vérifiant les relations (1.16) et (1.17). Ces processus dépendent des photons incidents et de la relation de phase qui existe entre les trois particules [11] ; il sont présentés par la figure 1.3.

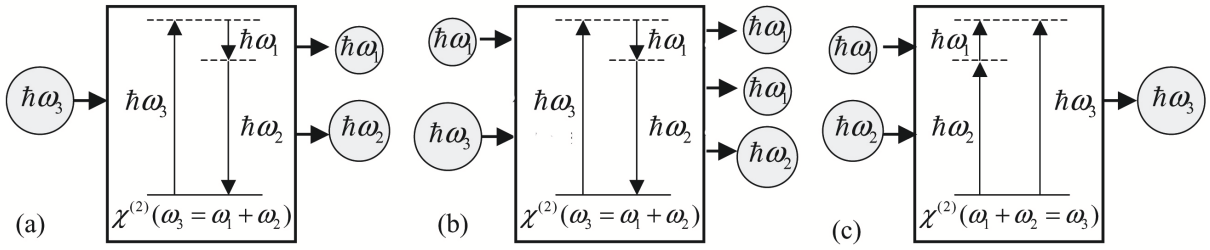


FIG. 1.3 – *Processus paramétriques d'interactions à trois ondes en accord de phase vérifiant les relations de conservation de l'impulsion et de l'énergie. (a) Génération de différence de fréquences par fission spontanée d'un photon de haute énergie. (b) Génération de différence de fréquences à partir d'un photon de haute énergie dont la fission est stimulée par un photon incident d'énergie moindre. (c) Génération de somme de fréquences par fusion de deux photons incidents en un photon de plus grande énergie.*

Les trois processus possibles de conversion de fréquence sont :

- La propagation d'un unique photon d'énergie $\hbar\omega_3$ peut conduire à un processus de fluorescence paramétrique, qui correspond à la fission spontanée en deux photons d'énergie moindre $\hbar\omega_1$ et $\hbar\omega_2$.
- La fission d'un photon d'énergie $\hbar\omega_3$ peut être stimulée par la présence d'un photon d'énergie moindre, $\hbar\omega_1$ ou $\hbar\omega_2$; ce processus de génération de différence de fréquences, dont l'acronyme anglais est DFG, conduit à un processus d'amplification du champ de pulsation $\omega_{1,2}$ et à la production d'un photon de nouvelle pulsation $\omega_{2,1}$ et d'énergie : $\hbar\omega_{2,1} = \hbar\omega_3 - \hbar\omega_{1,2}$.
- Deux photons incidents, d'énergie $\hbar\omega_1$ et $\hbar\omega_2$, peuvent fusionner et créer par génération de somme de fréquences (SFG en anglais), un photon de plus grande énergie, $\hbar\omega_3 = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2$.

L'expression de Δk conduit à l'équation d'accord de phase suivante :

$$n(\omega_3)\omega_3 - n(\omega_1)\omega_1 - n(\omega_2)\omega_2 = 0 \tag{1.18}$$

La dispersion des indices interdit toute interaction en accord de phase au sein des milieux isotropes. Pour réaliser la condition d'accord de phase, il faut nécessairement réaliser l'interaction non linéaire dans un milieu anisotrope, de sorte que la biréfringence puisse compenser la dispersion des indices. Parmi les $2^3 = 8$ types de configurations de polarisation à trois ondes, seuls trois types permettent de réaliser la condition d'accord de

phase. Ils sont définis par les états de polarisation, et sont décrits dans le tableau suivant, qui présente les équivalences entre les types pour les interactions de SFG et de DFG [15].

Relations d'accord de phase	Configurations de polarisation			Types d'interaction		
	ω_3	ω_1	ω_2	SFG (ω_3)	DFG (ω_1)	DFG (ω_2)
$\omega_3 n_3^- = \omega_1 n_1^+ + \omega_2 n_2^+$	$\vec{e}^-$	$\vec{e}^+$	$\vec{e}^+$	I	II	III
$\omega_3 n_3^- = \omega_1 n_1^- + \omega_2 n_2^+$	$\vec{e}^-$	$\vec{e}^-$	$\vec{e}^+$	II	III	I
$\omega_3 n_3^- = \omega_1 n_1^+ + \omega_2 n_2^-$	$\vec{e}^-$	$\vec{e}^+$	$\vec{e}^-$	III	I	II

TAB. 1.1 – *Types d'interaction autorisés en accord de phase, configurations de polarisation associées, et équivalences pour chacun des trois types entre les différents processus de SFG* ($\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$), *de DFG* ($\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$) *et de DFG* ($\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$).

Les solutions générales du système d'équations couplées (1.15) sont des fonctions elliptiques de Jacobi [14]. Dans le cas où une ou deux ondes présentent des variations négligeables d'amplitudes au cours de l'interaction non linéaire, le système devient plus simple à intégrer dans cette hypothèse dite de "pompe non dépeuplée".

Soient deux champs incidents de pulsations respectives, ω_1 et ω_2, en interaction sur la longueur L dans le milieu non linéaire. Dans l'approximation de la pompe non dépeuplée, la puissance générée associée au champ rayonné par SHG, à la pulsation $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, est donnée par [16] :

$$P_3(L) = BP_1(0)P_2(0)\frac{(\chi_{eff}^{(2)})^2 L^2}{\lambda_3^2 n_3 n_1 n_2} sinc^2(\frac{\Delta k.L}{2}) \tag{1.19}$$

$P_1(0)$ et $P_2(0)$ sont les puissances incidentes aux pulsations ω_1 et ω_2, B est un coefficient fonction des constantes universelles et de la géométrie des faisceaux incidents.

Dans le cas d'une interaction en accord de phase, la fonction *sinc* vaut 1, de sorte que l'interaction paramétrique est constructive sur toute la longueur d'interaction. La puissance générée associée au champ rayonné par la polarisation non linéaire croît alors de manière quadratique avec la distance d'interaction au sein du milieu non linéaire.

Dans le cas d'une interaction dite en "hors accord de phase", pour laquelle $\Delta k \neq 0$, l'évolution de la puissance générée à ω_3 varie sinusoïdalement selon que l'interférence entre la polarisation non linéaire et le champ rayonné est alternativement constructive et destructive, avec une périodicité spatiale égale à $2l_c$. La longueur de cohérence, définie

par $l_c = \pi/\Delta k$, correspond à la distance de propagation sur laquelle le déphasage entre la polarisation non linéaire et le champ rayonné varie de π. Le cas de l'accord de phase correspond à une longueur de cohérence infinie [14].

La figure 1.4 décrit le comportement de la puissance de l'onde rayonnée en fonction de la longueur d'interaction paramétrique dans le milieu non linéaire dans le cas de l'accord de phase (AP) et du hors accord de phase (HAP).

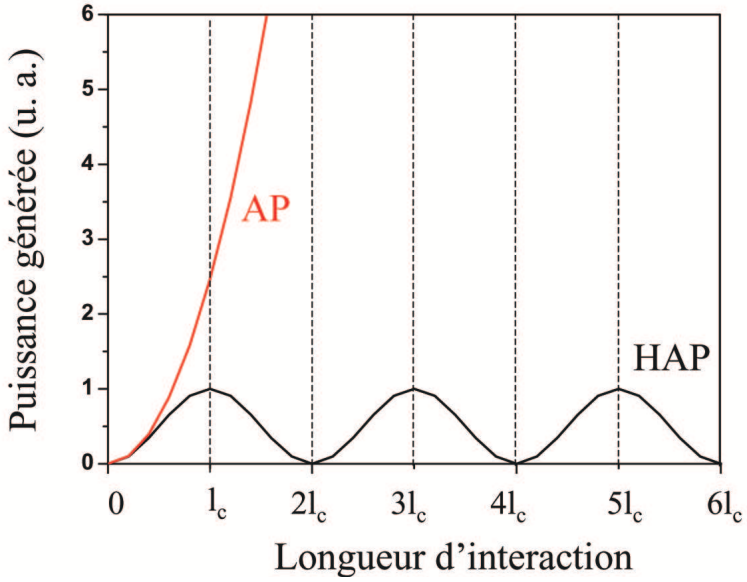


FIG. 1.4 – *Evolution de la puissance générée en fonction de la longueur d'interaction au sein du milieu non linéaire au cours d'un processus quadratique de conversion de fréquence en accord de phase (AP) et en hors accord de phase (HAP). l_c est la longueur de cohérence du processus paramétrique considéré, dans une direction de propagation donnée.*

1.2.2.4 Coefficient effectif

Si les pulsations ω_1, ω_2, et ω_3 appartiennent à un domaine spectral où le milieu non linéaire peut être considéré comme non absorbant et non dissipatif, alors le coefficient effectif introduit dans le paragraphe précédent est défini par :

$$\begin{aligned} \chi^{(2)}_{eff} &= \vec{e}_1.\left[\chi^{(2)}\left(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2\right) : \vec{e}\left(\omega_3\right) \otimes \vec{e}^{\,*}\left(\omega_2\right)\right] \\ &= \vec{e}_2.\left[\chi^{(2)}\left(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1\right) : \vec{e}\left(\omega_3\right) \otimes \vec{e}^{\,*}\left(\omega_1\right)\right] \\ &= \vec{e}_3.\left[\chi^{(2)}\left(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2\right) : \vec{e}\left(\omega_1\right) \otimes \vec{e}\left(\omega_2\right)\right] \end{aligned} \tag{1.20}$$

La partie entre crochets du coefficient effectif est un tenseur de rang 1, qui est contractée avec le vecteur champ électrique, qui est également un tenseur de rang 1. Le coefficient

effectif est donc de rang 0, c'est-à-dire un scalaire [15].

Le tenseur de rang 3, appelé tenseur champ, et défini par $F^{(2)} = \vec{e}_3 \otimes \vec{e}_1 \otimes \vec{e}_2$, est composé de 27 éléments d'expressions $F^{(2)}_{ijk} = e_{3i}\, e_{1j}\, e_{2k}$, où chacun des indices (i, j, k) fait référence à l'un des trois indices cartésiens du repère optique [9, 15].

Compte tenu des équations (1.20), le coefficient effectif s'écrit :

$$\chi^{(2)}_{eff} = \chi^{(2)} \cdot F^{(2)} = \sum_{ijk} \chi^{(2)}_{ijk}\, F^{(2)}_{ijk}$$

Ceci correspond au produit contracté entre le tenseur susceptibilité électrique d'ordre 2 et le tenseur champ. Cette écriture montre en particulier que, pour être non nul, le coefficient effectif doit contenir des éléments non nuls $\chi^{(2)}_{ijk}$ sollicités par des éléments non nuls $F^{(2)}_{ijk}$ du tenseur champ. Il faut également que la somme résultante du produit contracté entre les deux tenseurs soit non nulle.

La grandeur observable en optique étant l'éclairement, la puisssance générée au cours d'une interaction optique non linéaire paramétrique est proportionnelle au carré du coefficient effectif associé.

Pour toute direction d'accord de phase, l'écriture du tenseur champ, et donc du coefficient effectif, dépend directement des vecteurs unitaires $\vec{e}_i^{\pm}$ associés aux nappes d'indices $n_i^{\pm}$ à la pulsation ω_i. Or, pour tout type d'interaction non linéaire, l'orientation et les coordonnées des vecteurs $\vec{e}_i^{\pm}$ sont directement imposées par la condition d'accord de phase dans la direction considérée. Ainsi, le tenseur champ est uniquement gouverné par les indices de réfraction principaux.

En conclusion, pour effectuer une interaction optique non linéaire efficace, il faut que le milieu soit le plus transparent possible aux longueurs d'onde en interaction. Il est aussi nécessaire de réaliser la condition d'accord de phase associée au type d'interaction considéré. Cependant, la condition d'accord de phase étant une condition nécessaire mais non suffisante pour que l'interaction soit efficace, il faut choisir des directions d'accord de phase permettant de solliciter des coefficients effectifs non nuls et les plus grands possibles.

1.3 Méthodologie pour la métrologie en optique cristalline

1.3.1 Méthodes classiques

La méthode classique de caractérisation d'un cristal à propriétés optiques non linéaires est généralement effectuée en trois étapes : l'orientation cristallographique du cristal et la détermination du repère optique, la détermination des indices de réfraction principaux et de leur dispersion en longueur d'onde, et enfin la détermination des éléments du tenseur susceptibilité non linéaire $\chi^{(2)}$.

- *Orientation aux rayons X et conoscopie*

La première étape consiste à connaître l'orientation du cristal étudié. Une première orientation par diffraction des rayons X permet l'orientation du repère cristallographique. Cette étape conduit à une définition complète ou partielle de l'orientation du repère optique selon la classe de symétrie d'orientation, comme évoqué au paragraphe 1.2.1.1.

L'orientation du repère optique des cristaux monoclinique et triclinique se fait par la méthode conoscopique [6]. Cette méthode consiste à éclairer en lumière convergente, entre polariseur et analyseur parallèles et/ou croisés, le cristal anisotrope à l'étude. La figure d'interférences résultante, qui dépend du déphasage dû à des vitesses de phases différentes entre les deux modes de polarisation dans le milieu anisotrope, est composée de motifs de même intensité lumineuse, appelés isogyres. Ils sont associés à des configurations de même différences de phase entre les deux modes de polarisation. La topologie des isogyres permet de visualier les axes optiques du cristal biaxe, et donc de déterminer le plan principal $(\vec{X}, \vec{Z})$ du repère optique. Elle permet également de visualiser les axes principaux. La précision de l'orientation des directions principales du repère optique est au mieux de l'ordre de 1°.

- *Mesure des indices de réfraction sur prismes orientés*

Les directions d'accord de phase d'un cristal non linéaire sont uniquement gouvernées par ses propriétés optiques linéaires, par l'intermédiaire des équations de dispersion des indices principaux. La stratégie classique pour déterminer les directions d'accord de phase

d'un cristal consiste, dans un premier temps, à caractériser la dispersion des indices sur la plage de longueur d'onde la plus large possible. Ensuite, il s'agit de déterminer les équations de dispersion correspondantes, sur la base desquelles sont calculées les directions d'accord de phase [17].

La méthode classique de détermination des indices d'un cristal anisotrope est une mesure sur prisme orienté de l'angle de minimum de déviation d'une lumière monochromatique. Pour un prisme d'angle au sommet A, la relation entre l'indice sollicité et l'angle de minimum de déviation D_m à la longueur d'onde λ s'écrit [18] :

$$n(\lambda) = \frac{sin\left(\frac{A+D_m(\lambda)}{2}\right)}{sin\left(\frac{A}{2}\right)} \tag{1.21}$$

Pour les cristaux isotropes, il existe une unique valeur d'indice, de sorte que la mesure ne dépend pas de l'orientation dans laquelle le prisme a été taillé.

Pour les cristaux uniaxes, il faut caractériser les deux indices principaux n_o et n_e. Pour cela, il est nécessaire d'utiliser un prisme orienté, tel que l'axe optique du cristal soit orthogonal au plan de propagation de la lumière polarisée dans le prisme. La mesure du minimum de déviation associé à l'état de polarisation, respectivement parallèle et orthogonal à l'axe optique, conduit à la détermination des indices n_o d'une part et n_e d'autre part. La figure 1.5 illustre la détermination des deux indices principaux d'un milieu uniaxe avec un seul prisme orienté [16].

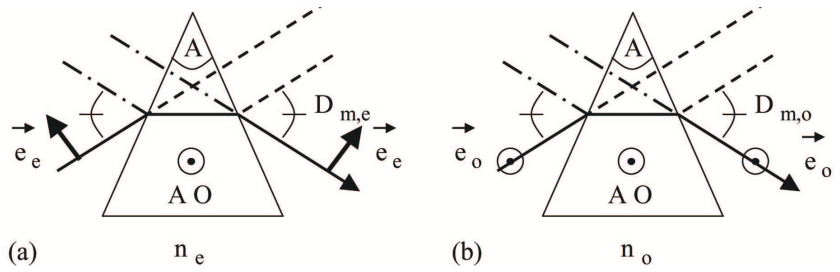


FIG. 1.5 – *Schéma de principe de la méthode du prisme sur un cristal uniaxe, dont l'axe optique est noté A O. Détermination pour différentes longueurs d'onde des angles de minimum de déviation D_m selon le mode de polarisation sollicité. (a) Mesure de n_e à partir de $D_{m,e}$ associé à l'état de polarisation $\vec{e}_e$ orthogonal à l'axe optique. (b) Mesure de n_o à partir de $D_{m,o}$ associé à l'état de polarisation $\vec{e}_o$ parallèle à l'axe optique.*

Pour les cristaux biaxes, la caractérisation des trois indices principaux fait nécessairement intervenir deux prismes orientés. L'orientation adaptée de chacun des deux prismes conduit, d'une part à une propagation au sein du prisme selon un premier axe principal du cristal lorsque le minimum de déviation est obtenu, et d'autre part à ce que la bissectrice de l'angle au sommet du prisme corresponde à un second axe principal du repère optique du cristal biaxe. Pour chaque prisme, les états de polarisation, respectivement orthogonal et tangent au plan de propagation, sollicitent distinctement deux indices principaux du cristal, auxquels sont attibuées deux mesures distinctes d'angles de minimum de déviation. La figure 1.6 illustre un jeu de deux prismes orientés permettant la détermination des trois indices principaux d'un cristal biaxe [16].

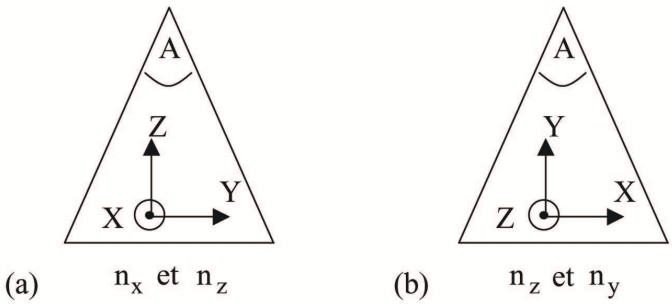


FIG. 1.6 – *Schéma de principe de la méthode du prisme avec deux prismes orientés pour un cristal biaxe. Détermination pour différentes longueurs d'onde des angles de minimum de déviation en fonction du mode de polarisation sollicité. (a) Mesures des indices n_x et n_z. (b) Mesures des indices n_y et n_z.*

La méthode de mesure de l'angle minimum de déviation sur prisme est couramment utilisée. Cette méthode est conceptuellement simple, et elle est adaptée à la détermination de la dispersion des indices des cristaux. Cependant, elle présente certaines difficultés de réalisation qui limitent le domaine de validité des mesures qui en découlent.

Premièrement, la mesure sur prisme repose sur l'observation du faisceau lorsque celui-ci est au minimim de déviation associé à la longueur d'onde utilisée et à l'indice sollicité. Dans le spectre visible et très proche infra-rouge, le faiseau est nettement visualisé, et la détermination du minimum de déviation conduit à des mesures à 10^{-4} près pour des prismes de dimensions centimétriques. Cependant, le minimum de déviation divient plus difficile à visualiser et à déterminer dans l'infra-rouge, ce qui contribue à faire chuter à 10^{-3} voire 10^{-2} la précision des indices dans cette plage spectrale. Sachant qu'une précision de

10^{-4} sur les indices conduit à une incertitude de 1° sur le calcul de directions d'accord de phase, et que les processus de conversion présentent une efficacité directionnelle très centrée sur les directions d'accord de phase, la précision de la méthode du prisme ne s'avère pas suffisante dans l'infra-rouge pour envisager un calcul fiable de directions d'accord de phase.

Deuxièmement, l'utilisation de cristaux usinés sous forme de prismes orientés est difficile à réaliser avec des échantillons de dimensions millimétriques, qui correspondent aux volumes typiques accessibles au cours des premiers stades de cristallogénèse de nouveaux matériaux. Des dimensions centimétriques sont requises pour réaliser des mesures sur prisme à 10^{-4}, ce qui est peu envisageable au cours des premiers stades de cristallogénèse de nouveaux matériaux. Lorsque l'usinage de prismes de dimensions millimétriques est possible, la mesure de l'angle au sommet, de même que le contrôle de la planéité des faces, ainsi que l'orientation cristallographique, sont des étapes difficiles, induisant des imprécisions non négligeables sur la mesure des indices de réfraction. La précision des mesures d'indices sur prismes millimétriques est généralement au mieux de l'ordre de 10^{-3}, ce qui est insuffisant en vue de prédire à mieux que 1° les directions d'accord de phase.

Troisièmement, pour les cristaux biaxes de classe d'orientation monoclinique ou triclinique présentant une dispersion de l'orientation de leur repère optique, la méthode du prisme impose d'utiliser un jeu de deux prismes orientés, dont l'orientation dépend de chaque longueur d'onde considérée. L'usinage et le polissage d'un grand nombre de jeux de prismes correctement orientés à différentes longueurs d'onde n'est pas envisageable en pratique ; ceci serait très lourd à réaliser et impliquerait une grande consommation en volume du matériau étudié.

- *Détermination des éléments du tenseur $\chi^{(2)}$ en hors accord de phase*

La détermination des éléments du tenseur de susceptibilité électrique $\chi^{(2)}$ est effectuée en général en hors accord de phase. Elle nécessite une mesure de rendement de conversion qui donne accès, soit à la valeur en absolu du coefficient effectif $\chi^{(2)}_{eff}$, soit à sa valeur en relatif par rapport à celle d'un échantillon étalon [16]. La combinaison de mesures obtenues dans différentes configurations de polarisation permet de définir le signe relatif des différents éléments du tenseur. La détermination des éléments de $\chi^{(2)}$ à partir des me-

sures de rendements de conversion fait intervenir la connaissance des indices de réfraction sollicités, pour lesquels une précision de 10^{-3} compatiblible avec des mesures sur prisme est suffisante. Il est également nécessaire de connaître l'énergie des faisceaux incidents, leurs profils spatiaux selon les directions transverses et longitudinales, et leurs profils temporels, en vue d'estimer de manière absolue les éléments de $\chi^{(2)}$. De façon générale, la détermination des éléments de $\chi^{(2)}$ est menée dans les cas simples de l'approximation de la pompe non dépeuplée et pour une propagation en faisceaux parallèles.

Les méthodes de mesure en hors accord de phase permettent de mesurer indépendamment chacun des éléments du tenseur χ^2, en laissant une complète liberté dans les directions de propagation choisies et dans les schémas de polarisation employés. Il existe principalement deux méthodes en hors accord de phase : la méthode du prisme translaté d'une part, et la méthode des franges de Maker d'autre part. Ces deux méthodes sont généralement employées pour des processus de SHG, et pour des schémas de polarisation sollicitant un coefficient effectif comportant un seul élément du tenseur $\chi^{(2)}$ [16].

La méthode du prisme translaté consiste à mesurer l'évolution du rendement de conversion en fonction de l'épaisseur traversée par les faisceaux en interaction au sein d'un prisme [19]. L'épaisseur traversée est contrôlée de manière continue en translatant le prisme transversalement à la direction d'incidence normale des faisceaux mis en jeu. L'évolution sinusoïdale du rendement est directement reliée à la longueur de cohérence de l'interaction, soit à la grandeur Δk qui demeure constante au cours de l'expérience. En sollicitant différents états de polarisation des faisceaux incidents, l'utilisation de trois prismes orientés dans le repère optique suffit, a priori, à déterminer tous les éléments indépendants du tenseurs $\chi^{(2)}$.

La méthode des franges de Maker consiste à mesurer le rendement de conversion en fonction de l'angle d'incidence des faisceaux sur un échantillon parallélépipédique. La mise en rotation de l'échantillon autours d'une direction qui n'est pas une direction d'accord de phase conduit à une modulation de la puissance générée au sein du cristal suite à la variation du désaccord de phase Δk [19]. Une expérience de Maker consiste habituellement en un balayage d'une dizaine de degrés de part et d'autre de la direction d'incidence normale au cristal.

Les méthodes de prisme translaté et de franges de Maker sont performantes pour la mesure indépendante et en valeur absolue des éléments du tenseur $\chi^{(2)}$. Par contre, elles permettent difficilement d'en déterminer les signes relatifs. La faiblesse des rendements de conversion obtenus par ces deux méthodes de caractérisation en hors accord de phase constitue leur inconvénient principal.

1.3.2 La méthode de la sphère : état de l'art

L'étude exhaustive des propriétés optiques cristallines linéaires et non linéaires des milieux anisotropes nécessite un accès expérimental à plusieurs directions de propagation selon lesquelles se produisent différents phénomènes, comme par exemple la réfraction conique intérieure ou des processus de conversion de fréquence. A chaque propriété visée, une approche sur cristal parallélépipédique impose l'usinage d'un échantillon selon chaque direction de propagation adaptée, et ceci pour toutes les longueurs d'onde. Ce besoin énorme d'échantillons orientés engendre une grande rigidité expérimentale dans cette approche.

Pour palier cette limitation, la méthode de la sphère a été développée depuis 1989 dans le groupe de Benoît Boulanger [20, 21]. Elle consiste à utiliser un échantillon poli de géométrie sphérique dont la qualité de surface est équivalente à celle d'un échantillon parallélépipédique. La géométrie sphérique permet à tout faisceau correctement focalisé d'être en incidence normale, quelle que soit la direction de propagation considérée. L'échantillon sphérique est collé sur une tête goniométrique, puis orienté aux rayons X en vue d'être monté sur un cercle d'Euler. Ce dernier permet à la sphère d'être mise en rotation sur elle-même.

La réalisation d'un échantillon sphérique de dimensions millimétriques est compatible avec les volumes de matériaux disponibles au cours des premiers stades de la cristallogénèse d'un nouveau matériau. L'utilisation de la méthode de la sphère permet donc d'estimer les potentialités d'un nouveau cristal dès les premières synthèses.

La méthode de la sphère permet la métrologie de l'ensemble des propriétés optiques linéaires et non linéaires des cristaux décrites par l'organigramme de la figure 1.7 [22] :

L'utilisation couplée d'une sphère et d'une source accordable spectralement permet

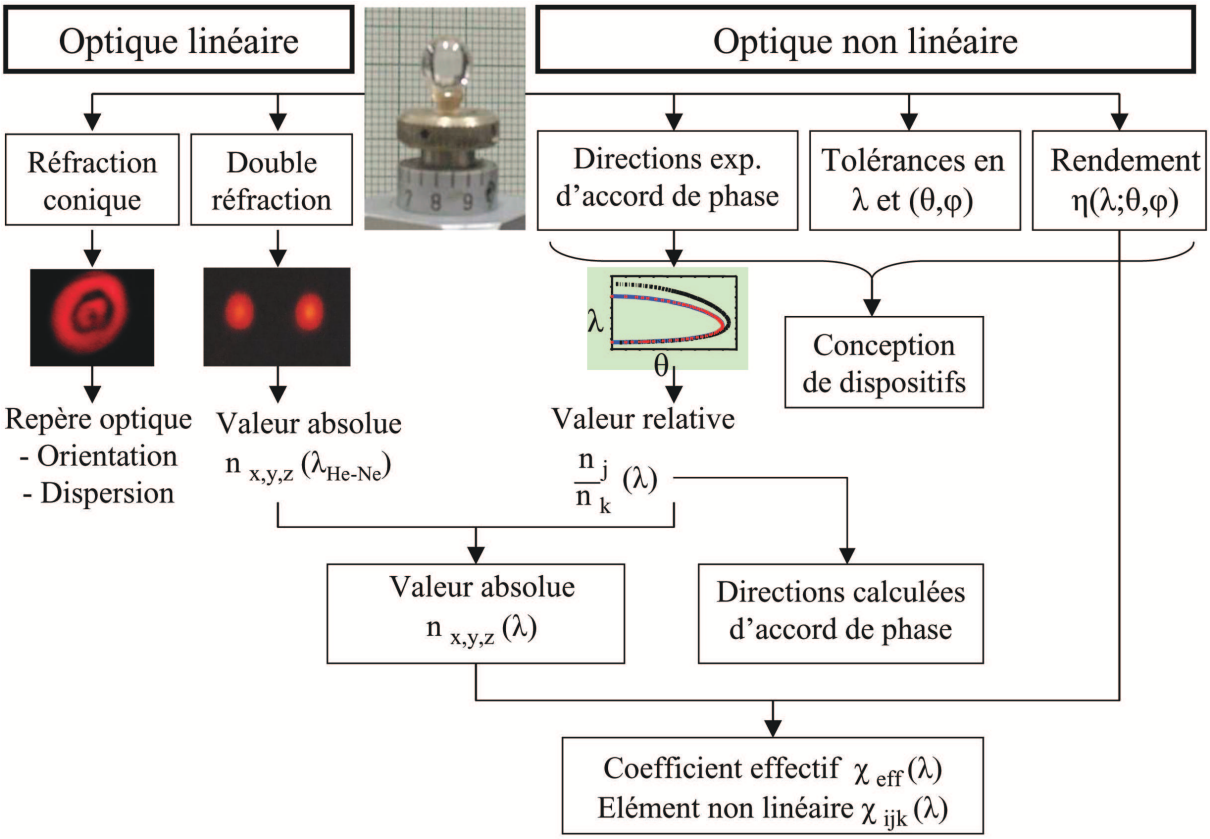


FIG. 1.7 – *Organigramme fonctionnel de la méthode de la sphère pour la caractérisation d'un cristal de classe optique biaxe.*

la caractérisation de la dispersion en longueur d'onde des propriétés optiques du cristal considéré. La force métrologique de cette méthode réside dans l'accès expérimental direct à toutes les directions de propagation, permettant la mesure directe d'un grand nombre de propriétés qui vont être détaillées par la suite. Avant les travaux réalisées au cours de cette thèse, les propriétés accessibles étaient : l'orientation du repère optique ; la dispersion en longueur d'onde des indices de réfraction ; la valeur absolue des indices de réfraction dans les milieux biaxes ; les directions d'accord de phase avec les tolérances spectrale et angulaires et les rendements de conversion associés ; enfin les signes relatifs et les valeurs en absolu des éléments du tenseur $\chi^{(2)}$.

1.3.2.1 Métrologie sur sphère en optique linéaire

L'étude directe des propriétés optiques linéaires est illustrée par la figure 1.8. Elle repose sur l'imagerie et l'observation des deux modes de polarisation d'un faisceau en sortie du cristal sphérique. Il s'agit de caractériser la position relative et l'allure des spots

lumineux associés pour différentes directions de propagation au sein des plans principaux [20–23].

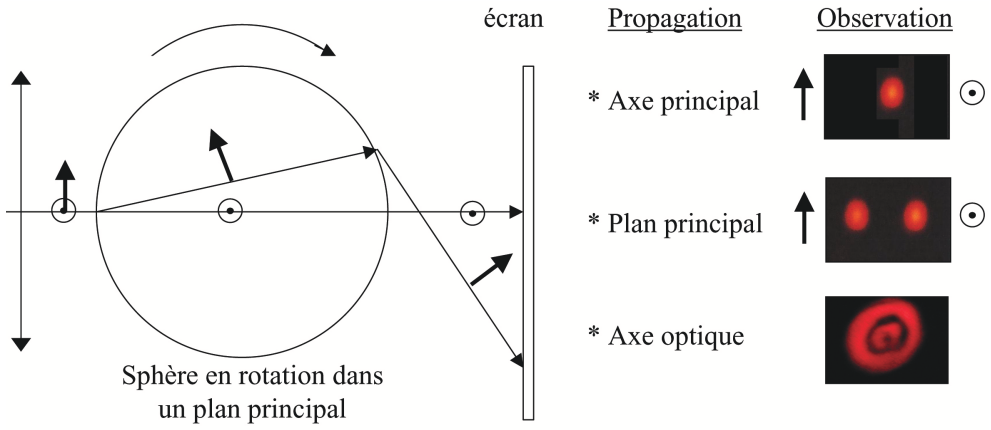


FIG. 1.8 – *Schéma de principe de l'utilisation d'un cristal de géométrie sphérique pour déterminer l'orientation du repère optique et la valeur absolue des indices de réfraction d'un cristal biaxe.* $\uparrow$ *et* $\odot$ *correspondent aux deux directions de polarisation autorisées.*

- *Orientation du repère optique*

Les récentes synthèses de cristaux de classe de symétrie d'orientation monoclinique [24, 25], ont rendu nécessaire le développement d'une méthodologie permettant de palier les limitations de la conoscopie pour la caractérisation complète de l'orientation du repère optique.

Le cristal monoclinique qui a servi à mettre au point la méthode est $YCOB$, de classe d'orientation monoclinique $C_s\left(m//\vec{b}\right)$, où l'axe $\vec{b}$ est orthogonal au plan miroir de la maille cristalline contenant les axes $\vec{a}$ et $\vec{c}$. L'axe $\vec{Y}$ du repère optique étant colinéaire à l'axe $\vec{b}$, les axes $\vec{X}$ et $\vec{Z}$ sont aussi contenus dans le plan miroir.

Pour déterminer l'orientation des axes $\vec{X}$ et $\vec{Z}$ dans le repère cristallographique, il a été conçu une méthode couplant un diffractomètre à rayons X et un faisceau laser accordable se propageant selon le diamètre de la sphère, dans le plan de la sphère contenant le plan principal $(\vec{X}, \vec{Z})$ [23]. La mise en rotation de la sphère autour de l'axe vertical $\vec{Y}$ par le diffractionmètre conduit à un balayage du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ par le faisceau source, et à l'observation du phénomène de réfraction conique intérieure, selon les quatre ombilics de la suface des indices du cristal biaxe à la longueur d'onde de travail [26, 27]. Les axes $\vec{X}$ et $\vec{Z}$ sont repérés par symétrie de la surface des indices selon les bissectrices entre deux ombilics successifs. Les deux axes principaux sont discriminés entre eux par l'observation

de l'orientation de la déviation de l'état de polarisation subissant la double réfraction dans ce plan, ce qui détermine complètement le repère optique par rapport au repère cristallographique.

L'étude des positions des axes du repère optique en fonction de la longueur d'onde permet de caractériser la dispersion en longueur d'onde de l'orientation du repère optique [23].

Par des balayages successifs, la méthode couplant la diffraction des rayons X et la réfraction conique intérieure peut être appliquée aux futurs cristaux dont la classe de symétrie d'orientation serait triclinique, ce qui correspond à la situation la plus complexe où les repères cristallographique et optique sont complètement indépendants.

- *Valeurs absolues des indices de réfraction*

La mesure en absolu des valeurs des indices de réfraction est basée sur l'exploitation de la double réfraction sur la face de sortie du dioptre sphérique. Pour chaque direction de propagation dans les plans principaux d'un cristal biaxe, l'étude de la séparation angulaire des deux modes de polarisation permet la détermination, en valeur absolue, des trois indices principaux. La précision de cette méthode, dont le principe est illustré par la figure 1.8, est de 6.10^{-3} à la longueur d'onde d'étude $\lambda = 632,8$ nm [28].

La précision de 6.10^{-3} sur sphère est inférieure à celle de 10^{-4} obtenue sur prisme dans le visible. Toutefois, cette méthodologie est essentielle car elle rend la méthode de la sphère autonome vis-à-vis de la mesure des indices en valeur absolue. L'intérêt d'une mesure d'indices sur sphère sera rediscuté dans le paragraphe 1.3.2.2 qui porte sur la détermination des éléments du tenseur $\chi^{(2)}$. Cependant, une telle mesure de la valeur des indices, grâce à la mesure de l'angle de double réfraction, n'a pas vocation à être effectuée sur toute la plage de transparence du matériau. En effet, il n'est pas recherché d'établir par cette seule méthode, les équations de dispersion des indices du matériau à l'étude.

1.3.2.2 Métrologie sur sphère en optique non linéaire

L'étude directe des propriétés optiques non linéaires illustrée par la figure 1.9 repose d'une part sur la mesure directe sur sphère des directions d'accord de phase pour toute interaction paramétrique, et d'autre part sur la mesure des rendements de conversion de

fréquence associés [20].

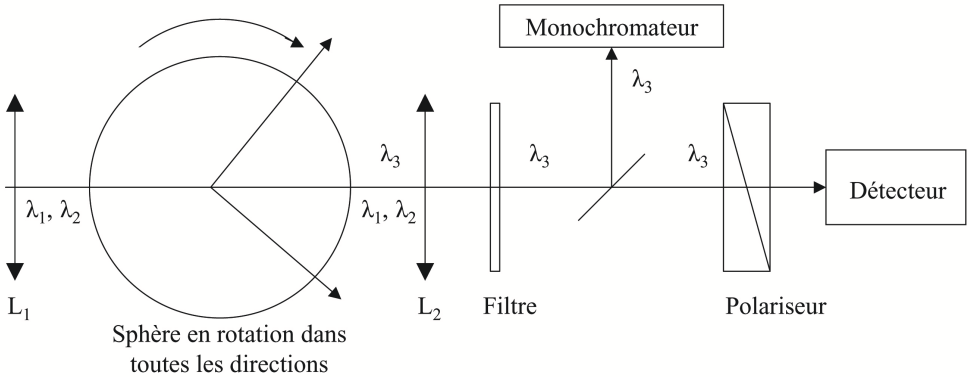


FIG. 1.9 – *Schéma de principe de la mesure sur sphère des directions d'accord de phase et des rendements de conversion associés.*

- *De la mesure des directions d'accord de phase aux équations de dispersion des indices*

La méthode de la sphère ne nécessite pas un calcul des directions d'accord de phase pour une interaction donnée : elle conduit à leur mesure expérimentale directe.

En mesurant les directions d'accord de phase sur sphère dans les plans principaux pour différentes longueurs d'onde, il est possible de suivre l'évolution en longueur d'onde de l'intersection des cônes d'accord de phase avec les plans principaux. La modélisation simultanée par l'algorithme de Levenberg-Marquardt [29, 30] des couples de solutions $(longueur\ d'onde - angle)$ en accord de phase au sein de chaque plan principal, permet la détermination des équations de dispersion des rapports d'indices $\frac{n_x}{n_y}(\lambda)$, $\frac{n_y}{n_z}(\lambda)$ et $\frac{n_z}{n_x}(\lambda)$, à mieux que 10^{-4} sur tout le domaine de transparence du matériau.

Il est important de noter que le calcul de toute direction d'accord de phase repose uniquement sur la connaissance des rappports d'indices sur toute la plage de transparence du matériau.

Les équations de Sellmeier associées à chacun des indices principaux peuvent être obtenues en callant les équations des rapports d'indices principaux à l'aide d'une mesure en valeur absolue d'un indice principal à une longueur d'onde choisie. Ces valeurs proviennent en général de mesures sur prisme, à 10^{-4} près dans le visible. Cependant, pour les cristaux biaxes, ces valeurs peuvent aussi provenir de valeurs mesurées sur sphère avec la méthodologie décrite dans le paragraphe 1.3.2.2.

- *Tolérances angulaires et spectrales*

Pour un type d'interaction paramétrique donné, le désaccord de phase Δk dépend des longueurs d'onde mises en jeu et des angles (θ, ϕ) de la direction de propagation. En particulier, les variations de $\Delta k\,(\xi_0 + \delta\xi)$, où la variable ξ_0 correspond aux angles ou aux longueurs d'onde associés à une condition d'accord de phase, et où $\delta\xi$ traduit les variations de ces paramètres au voisinage de cette même condition d'accord de phase, conduisent à une modulation du rendement de l'interaction non linéaire décrit par l'équation (1.19), ce qui est illustré par la figure 1.10. La sensibilité du désaccord de phase Δk avec $\delta\xi$ au voisinage d'un accord de phase en ξ_0 traduit la criticité de l'interaction paramétrique vis-à-vis de ses conditions de réalisation. Le critère habituellement choisi pour quantifier la tolérance d'une interaction est de lui attribuer la largeur totale à 0,405 du maximum de la fonction $sinc^2$ de l'équation (1.19).

La mise en rotation de la sphère au voisinage d'une direction de propagation en accord de phase permet de mesurer directement les acceptances angulaires. L'emploi d'une source accordable permet, dans une direction d'accord de phase, de mesurer directement l'acceptance angulaire.

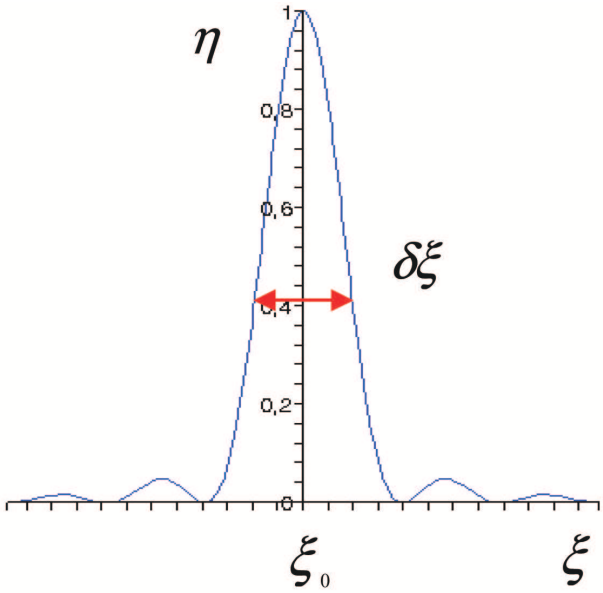


FIG. 1.10 – *Evolution du rendement de conversion normalisé η en fonction de la variable ξ, autours de la valeur ξ_0 associée à une condition d'accord de phase. $\delta\xi$ est la largeur totale à 0,405 du maximum.*

- *Du rendement de conversion aux éléments du tenseur*

La mesure du rendement de conversion en accord de phase est réalisée sur sphère monocristalline avec une précision de l'ordre de 10 % [31]. L'expression du rendement de conversion est proportionnelle à $\frac{\left(\chi_{eff}^{(2)}\right)^2}{n_1 n_2 n_3}$. En couplant les mesures sur sphère de rendement de conversion de fréquence avec la détermination des équations de dispersion des indices principaux, la méthode de la sphère conduit de manière complètement autonome à une détermination des coefficients effectifs à 5 % [28].

En choisissant plusieurs interactions adaptées, de directions de propagation dans et hors des plans principaux, les mesures de rendements de conversion de fréquence permettent la détermination des coefficients effectifs sur sphère. Ceux-ci conduisent aux valeurs des éléments du tenseur $\chi^{(2)}$, ainsi qu'à leur signe relatif [31].

1.4 Conclusion

Ce premier chapitre présente les fondements théoriques de l'optique cristalline linéaire, avec l'introduction du repère optique, de la surface des indices et des modes propres de polarisation dans les milieux cristallins anisotropes. Ces concepts sont associés aux propriétés optiques linéaires relatives à la propagation de la lumière dans les cristaux. Ceci doit faciliter la compréhension des développements théoriques, présentés dans le chapitre 2, concernant les propriétés optiques linéaires relatives à l'absorption et à l'émission dans les milieux cristallins dopés avec des ions fluorescents.

La présentation du potentiel métrologique offert par les cristaux de géométrie sphérique a pour but de justifier l'intérêt et la nécessité des développements méthodologiques présentés dans les chapitres 2 et 3. Ceux-ci portent sur deux aspects distincts : la mesure directe de l'anisotropie des propriétés d'absorption et d'émission dans les cristaux monocliniques ; la volonté d'effectuer la mesure simultanée des propriétés laser et non linéaire dans les cristaux auto-convertisseurs, en vue de réaliser la caractérisation directe des propriétés d'auto-doublage.

Enfin, l'introduction à l'optique non linéaire doit permettre d'appréhender les développements théoriques présentés au chapitre 4. Ceux-ci portent sur les processus de conversion de fréquence en « quasi-accord de phase angulaire ».

Chapitre 2

Modélisation et mesure de la distribution angulaire d'absorption et de fluorescence de $YCOB : Nd$

2.1 Introduction

Ce second chapitre présente une étude de l'anisotropie des propriétés d'absorption et d'émission des ions fluorescents Nd^{3+}, qui sont contenus dans la matrice cristalline $YCOB$, de classe de symétrie d'orientation monoclinique, et donc de classe optique biaxe.

Ce chapitre commence par une présentantion des éléments de théorie concernant l'absorption et l'émission des systèmes laser à trois niveaux, puis à quatre niveaux. Ensuite, il présente un formalisme développé dans *Principals of Optics* de M. Born et E. Wolf [6], pour l'étude des milieux conducteurs faiblement absorbants, formalisme que nous avons adapté pour l'absorption et l'émission d'ions fluorescents dans un milieu biaxe.

La méthodologie développée pour l'étude de l'anisotropie des propriétés d'absorption et d'émission de $YCOB : Nd$ conduit à une approche expérimentale basée sur l'exploitation du potentiel métrologique offert par la géométrie sphérique du cristal à l'étude. Les mesures obtenues constituent, à notre connaissance, la première observation de la distribution angulaire, en lumière polarisée, de l'absorption et de l'émission dans un milieu biaxe. Cependant, la première confrontation entre théorie et expérience n'est pas satis-

faisante. En effet, il apparaît que la théorie transposée ne rend pas compte de l'ensemble des comportements mis en évidence, à la fois pour l'absorption, et pour l'émission.

Enfin, dans l'objectif de décrire correctement les expériences, ce chapitre présente les développements théoriques réalisés, qui viennent enrichir le formalisme présenté en début de chapitre. Il s'en suit alors une deuxième confrontation entre les données expérimentales et le nouveau formalisme étendu : celle-ci s'avère concluante.

2.2 Eléments de théorie sur l'absorption et l'émission

2.2.1 Processus d'absorption et d'émission

2.2.1.1 Définitions

Ce paragraphe a pour objet de présenter de façon simple et rapide les processus fondamentaux liés à l'absorption, l'émission spontanée et l'émission stimulée, schématisés dans la figure 2.1. Ces processus, de nature quantique, résultent de l'interaction résonnante entre un photon d'énergie $\hbar\omega_0$ et un système physique présentant deux niveaux quantiques d'énergies E_1 et E_2, telles que $E_2 > E_1$ et $\Delta E = E_2 - E_1 = \hbar\omega_0$. Le système physique peut être un ion, un atome, une molécule, et les niveaux considérés aux longueurs d'onde optique sont des niveaux électroniques.

L'absorption, illustrée par la figure 2.1.(a), traduit l'interaction qui consomme un photon d'énergie $\hbar\omega_0$, en portant le système physique du niveau E_1 au niveau de plus haute énergie E_2. L'absorption correspond à un transfert d'énergie du champ électromagnétique vers le système à deux niveaux, ce qui assure le stokage de l'énergie $\hbar\omega_0$ durant un temps fini. Ce transfert d'énergie résulte de la mise en oscillation résonnante de la distribution spatiale de la densité électronique associée au niveau d'énergie E_1, conduisant à une nouvelle distribution spatiale stationnaire de la densité électronique associée au niveau d'énergie E_2.

L'émission spontanée, illustrée par la figure 2.1.(b), traduit l'interaction qui émet un photon d'énergie $\hbar\omega_0$ en permettant au système physique de relaxer du niveau E_2 vers le niveau de plus basse énergie E_1. Le système porté au niveau d'énergie E_2 n'est pas dans l'état fondamental, qui minimise son énergie ; le système est alors dans un état excité. Ceci

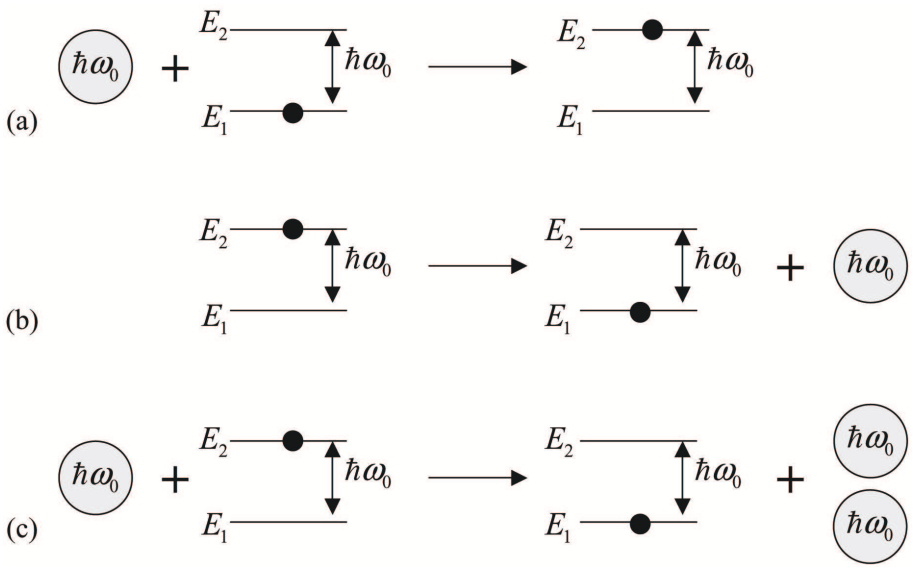


FIG. 2.1 – *Processus fondamentaux d'interaction entre un système à deux niveaux d'énergies E_1 et E_2 et un photon d'énergie $\hbar\omega_0 = E_2 - E_1$. (a) Absorption. (b) Emission spontanée. (c) Emission stimulée.*

conduit à une stabilité temporelle limitée du système dans cet état, dont la durée de vie est donc finie. L'émission spontanée traduit la mise en oscillation spontanée de la densité électronique associée au niveau E_2, qui engendre d'une part l'émission d'un rayonnement à l'origine d'un photon d'énergie $\hbar\omega_0$, et qui permet d'autre part à la distribution spatiale de densité électronique de revenir à l'état stationnaire du niveau d'énergie E_1. L'émission spontanée correspond à un transfert réel spontané d'énergie depuis le système à deux niveaux vers le champ électromagnétique. Les propriétés de phase, d'orientation du vecteur d'onde et de polarisation du photon émis sont produites de façon aléatoire.

L'émission stimulée, illustrée par la figure 2.1.(c), traduit la stimulation de la déexcitation du système à deux niveaux par un photon incident résonnant d'énergie $\hbar\omega_0$, permettant ainsi l'émission d'un second photon d'énergie $\hbar\omega_0$ correspondant à la relaxation du système physique du niveau E_2 vers le niveau E_1. Le photon émis est un photon identique en phase, vecteur d'onde et état de polarisation au photon incident à l'origine de la stimulation. L'émission stimulée traduit la mise en oscillation forcée par le photon indicent de la densité électronique associée au niveau E_2, ce qui engendre d'une part l'émission d'un rayonnement correspondant à un photon d'énergie $\hbar\omega_0$, et qui permet d'autre part à la distribution spatiale de densité électronique de revenir à un état stationnaire correspondant au niveau d'énergie E_1. L'émission stimulée correspond donc à un transfert réel

forcé d'énergie depuis le système à deux niveaux vers le champ électromagnétique.

Pour un système à deux niveaux en interaction résonnante avec un photon, les processus fondamentaux d'absorption, d'émission spontanée et d'émission stimulée sont des processus réversibles. L'énergie $\hbar\omega_0$ se conserve au cours de ces processus, et elle est stokée de manière réversible, soit dans un photon d'énergie $\hbar\omega_0$ du champ électromagnétique, soit dans le système à deux niveaux porté dans l'état excité d'énergie E_2.

2.2.1.2 Système à deux niveaux

Dans le cas d'un rayonnement électromagnétique baignant un ensemble de systèmes à deux niveaux identiques et indépendants dont la densité volumique est N, les niveaux E_1 et E_2 sont respectivement peuplés avec des densités volumiques N_1 et N_2, telles que $N_1 + N_2 = N$. Dans ce milieu, supposé isotrope, les équations de population des niveaux N_1 et N_2 vérifient l'équation :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial N_2}{\partial t} = \dfrac{\partial N_2}{\partial t}_{abs} + \dfrac{\partial N_2}{\partial t}_{spont} + \dfrac{\partial N_2}{\partial t}_{stim} = -\dfrac{\partial N_1}{\partial t} \\ \dfrac{\partial N_2}{\partial t} = (B_{12}N_1 - B_{21}N_2)\, u(\omega_0) - A_{21}N_2 \end{cases} \tag{2.1}$$

où $u(\omega_0)$ est la densité volumique spectrale d'énergie du rayonnement électromagnétique ambiant à la pulsation optique ω_0. Les coefficients B_{12}, B_{21} et A_{21} sont les coefficients phénoménologiques d'Einstein tels que $B_{12}u(\omega_0)$ traduit la probabilité de transision du niveau E_1 vers le niveau E_2 par absorption, tandis que $B_{21}u(\omega_0)$ et A_{21} traduisent les probabilités de transition du niveau E_2 vers le niveau E_1, par émission stimulée et par émission spontanée respectivement [32].

A l'équilibre thermodynamique, les populations sont en équilibre avec le champ électromagnétique décrit par la loi de Planck. Les populations sont à l'état stationnaire, soit $\frac{\partial N_{1,2}}{\partial t} = 0$; elles doivent donc être compatibles avec la distribution de Maxwell-Boltzmann [33], ce qui conduit aux relations :

$$\begin{cases} \dfrac{N_1}{N_2} = \dfrac{A_{21}}{B_{21}u(\omega_0)} + \dfrac{B_{21}}{B_{12}} \\ g_1 B_{12} = g_2 B_{21} \\ \dfrac{A_{21}}{B_{21}} = \dfrac{2\hbar}{\pi}\left(\dfrac{n(\omega_0)\omega_0}{c}\right)^3 \end{cases} \tag{2.2}$$

où g_1 et g_2 sont respectivement la dégénérescence des niveaux E_1 et E_2, $n(\omega_0)$ est l'indice de réfraction du milieu à la fréquence optique ω_0, et c la célérité de la lunière.

Des photons d'énergie $\hbar\omega$, au voininage de $\hbar\omega_0$, peuvent aussi conduire à des transitions entre les deux niveaux d'énergie E_1 et E_2. Ceci est pris en compte par l'introduction de la fonction « largeur de raie » $f(\omega - \omega_0)$, qui est une densité de probabilité dans l'espace des pulsations optiques, et dont la valeur maximale est centrée sur la fréquence ω_0. Chaque transition d'un niveau à l'autre induit la génération ou la disparition d'un photon d'énergie $\hbar\omega$ dans le champ électromagnétique de densité volumique d'énergie $\rho(\omega)$ qui vérifie $u(\omega) = f(\omega - \omega_0)\rho(\omega)$. En négligeant l'émission spontanée, l'équation bilan pour le champ électromagnétique est donnée par l'équation :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial\rho(\omega)}{\partial t} = \dfrac{\partial\rho(\omega)}{\partial t}_{abs} + \dfrac{\partial\rho(\omega)}{\partial t}_{stim} = -\hbar\omega\dfrac{\partial N_2}{\partial t}_{abs} + \hbar\omega\dfrac{\partial N_2}{\partial t}_{stim} \\ = \hbar\omega f(\omega - \omega_0)\rho(\omega)B_{12}\left(\dfrac{g_1}{g_2}N_2 - N_1\right) \end{cases} \tag{2.3}$$

La densité volumique $\rho(\omega)$ et l'intensité $I(\omega)$ sont réliées localement par la relation $I(\omega) = v(\omega)\rho(\omega)$, où $v(\omega) = \frac{c}{n(\omega)}$. Pour une propagation sur la distance z selon une direction quelconque de propagation, les variations de ces deux grandeurs vérifient : $\frac{\partial\rho(\omega,z)}{\partial t} = \frac{\partial I(\omega,z)}{\partial z}$. Ceci conduit à l'équation d'évolution de l'intensité au cours de la propagation :

$$\frac{\partial I(\omega, z)}{\partial z} = \sigma(\omega - \omega_0) I(\omega) \Delta N(z) \tag{2.4}$$

où la section efficace d'interaction $\sigma(\omega - \omega_0)$ et $\Delta N(z)$ valent :

$$\begin{cases} \sigma(\omega - \omega_0) = \dfrac{h\omega}{v(\omega)} f(\omega - \omega_0) B_{12} \\ \Delta N(z) = \dfrac{g_1}{g_2} N_2(z) - N_1(z) \end{cases} \tag{2.5}$$

A l'état stationnaire, et dans le cas où $g_1 = g_2$, les relations (2.1) permettent d'écrire la différence de population $\Delta N(z)$ en toute position. Celle-ci s'écrit sous la forme $\Delta N(z) = -\frac{N(z)}{1+I(z)/I_{sat}}$ avec $I_{sat} = \frac{A_{21}v(\omega)}{2B_{12}f(\omega-\omega_0)}$. Cette écriture met en évidence que $\Delta N(z) < 0$, c'est-à-dire que $N_2 < N_1$: ceci est en accord avec la distribution de Maxwell-Boltzmann à l'équilibre thermodynamique pour laquelle $\frac{N_2}{N_1} = exp\left(-\frac{h\omega_0}{k_B T}\right)$, où k_B est la constante de Boltzmann, et où T est la température absolue du milieu. L'évolution de l'intensité s'écrit donc :

$$\frac{\partial I(\omega, z)}{\partial z} = -\sigma(\omega - \omega_0) N(z) \frac{I(\omega, z)}{1 + \frac{I(\omega,z)}{I_{sat}}} \tag{2.6}$$

Ainsi, dans le cas de systèmes à deux niveaux, la grandeur $\frac{\partial I(\omega,z)}{\partial z}$ est toujours négative. Bien qu'il existe simultanément des processus d'absorption et d'émission, ceci traduit qu'un milieu composé d'un ensemble de systèmes à deux niveaux conduit globalement à une atténuation systématique du rayonnement optique au voisinage de ω_0.

Losrque $I >> I_{sat}$, l'équation (2.6) devient $\frac{\partial I(\omega,z)}{\partial z} = -\sigma(\omega - \omega_0) N I_{sat}$. Après intégration, l'intensité résultante s'écrit :$I(\omega, z) = I_0 - \sigma(\omega - \omega_0) N I_{sat} z$. Dans ces conditions, la transmission du milieu $T = \frac{I(\omega,z)}{I_0}$, tend vers 1 lorsque $I_0 \to \infty$. Le milieu tend à devenir transparent au voisinage de la pulsation ω_0 : la transition est dite saturée.

Losrque $I << I_{sat}$, l'équation (2.6) se réduit à $\frac{\partial I(\omega,z)}{\partial z} = -\sigma(\omega - \omega_0) N I(\omega, z)$. Pour une intensité incidente I_0, en introduisant le coefficient d'absorption linéaire, $\alpha(\omega - \omega_0) = \sigma(\omega - \omega_0) N$, l'intensité résultante s'écrit :

$$I(\omega, z) = I_0 e^{-\alpha(\omega-\omega_0)z} \tag{2.7}$$

L'absorption du milieu composé de systèmes à deux niveaux peut être décrite, à la pulsation ω, par la partie imaginaire d'un indice complexe défini par : $\hat{n}(\omega) = n(\omega) + jn'(\omega)$. Dans ces conditions, le champ électrique de l'onde optique peut alors être décrit, selon la direction de propagation z, sous la forme d'une onde plane, soit $\vec{E}(\omega, z) = \vec{E}_0(\omega, z = 0) e^{-\frac{\omega n'(\omega)}{c} z} e^{-j\left(\omega t - \frac{\omega n(\omega)}{c} z\right)}$. Ceci correspond alors à une évolution de l'intensité de la forme :

$$I(\omega, z) = I_0 e^{-2\omega n'(\omega)} z \tag{2.8}$$

La comparaison entre les équations (2.7) et (2.8) permet alors d'écrire :

$$\alpha(\omega - \omega_0) = \frac{2\omega n'(\omega)}{c} \tag{2.9}$$

2.2.1.3 Milieu à trois niveaux

Compte tenu de (2.4), il est nécessaire de réaliser $\Delta N > 0$, pour envisager une amplification du rayonnement à la pulsation ω_0. Il s'agit donc de réaliser une inversion de population, en plaçant le système hors de l'équilibre thermodynamique. Ceci est envisageable pour des systèmes comportant au moins trois niveaux [32].

Soit un système isotrope composé de systèmes indépendants à trois niveaux, vérifiant $E_3 < E_1 < E_2$ avec $E_2 - E_3 = \hbar\omega_p$ et $E_2 - E_1 = \hbar\omega_s$, dont la représentation shématique est donnée par la figure 2.2, les transitions d'énergies $\hbar\omega_p$ et $\hbar\omega_s$ étant respectivement associées aux rayonnements pompe et signal. Les trois niveaux sont alors peuplés par les densités volumiques N_1, N_2, et N_3. Les probabilités de transition font intervenir les coefficients d'Einstein A_{21}, A_{23}, $B_{21} = B_{12}$ et $B_{23} = B_{32}$, ainsi que les densités volumiques spectrales d'énergie du champ électromagnétique $u(\omega_s)$ et $u(\omega_p)$ aux longueurs d'onde $\hbar\omega_p = E_2 - E_3$ et $\hbar\omega_s = E_2 - E_1$.

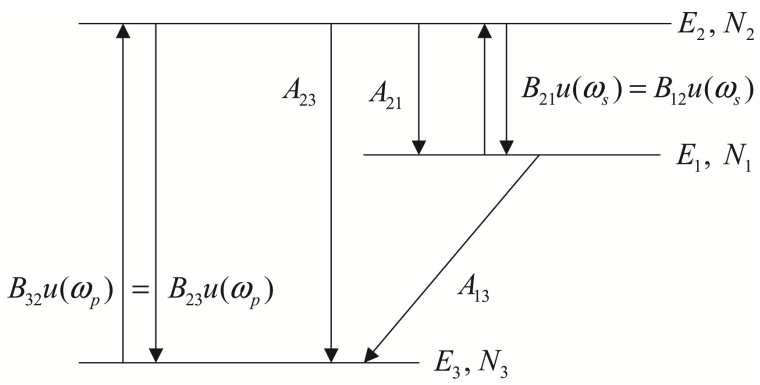


FIG. 2.2 – *Schéma d'un système à trois niveaux.*

Dans le cas où les trois niveaux ne sont pas dégénérés et vérifient $g_1 = g_2 = g_3 = 1$, les équations de population du système présenté par la figure 2.2 sont données par les

équations suivantes :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial N_2}{\partial t} = B_{32}u\left(\omega_p\right)\left(N_3 - N_2\right) - B_{12}u\left(\omega_s\right)\left(N_2 - N_1\right) - \left(A_{23} + A_{21}\right)N_2 \\ \dfrac{\partial N_1}{\partial t} = B_{12}u\left(\omega_s\right)\left(N_2 - N_1\right) + A_{21}N_2 - A_{13}N_1 \\ \dfrac{\partial N_3}{\partial t} = -B_{32}u\left(\omega_p\right)\left(N_3 - N_2\right) + A_{32}N_2 + A_{31}N_1 \end{cases} \tag{2.10}$$

où $u\left(\omega_{p,s}\right) = \rho_{p,s}f_{p,s}$, où $\rho_{p,s}$ est la densité volumique d'énergie, et $f_{p,s}$ est la fonction « largeur de raie » des transitions associées aux transferts d'énergie $\hbar\omega_p$ et $\hbar\omega_s$.

Lorsque l'état stationnaire est atteint, les populations vérifient $\frac{\partial N_{1,2,3}}{\partial t} = 0$, ce qui permet d'établir, entre les populations des niveaux E_1 et E_2, la relation suivante :

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{B_{12}\rho_s f_s + A_{13}}{B_{12}\rho_s f_s + A_{21}} \tag{2.11}$$

Dans le cas où $A_{13} > A_{21}$, le temps de vie du niveau E_2 est supérieur à celui du niveau E_1 , ce qui permet de réaliser l'inversion de population telle que $N_2 > N_1$, soit $\Delta N > 0$. Dans ces conditions d'équilibre des populations, l'équation (2.10) conduit à l'expression suivante de l'inversion de population ΔN :

$$\Delta N = N_2 - N_1 = \frac{Nr\left(A_{13} - A_{21}\right)}{A_{13}\left(A_{23} + A_{21}\right) + B_{21}\rho_s f_s\left(A_{13} + A_{23}\right)} \tag{2.12}$$

où le paramète r vérifie : $r = B_{32}\rho_p f_p \frac{N_3 - N_2}{N} > 0$. Comme pour le système à deux niveaux, le cas du système à trois niveaux conduit à l'équation d'évolution de l'intensité qui s'écrit :

$$\frac{\partial I\left(\omega, z\right)}{\partial z} = \sigma_\omega I\left(\omega, z\right)\Delta N \tag{2.13}$$

avec :

$$\begin{cases} \sigma_\omega = \dfrac{\hbar\omega}{v(\omega)} f_s B_{12} \\ \Delta N = \dfrac{Nr\kappa}{1 + I/I_{sat}} \\ \kappa = \dfrac{A_{13} - A_{21}}{A_{13}(A_{23} + A_{21})} \\ I_{sat} = v(\omega) \dfrac{A_{13}(A_{23} + A_{21})}{B_{21} f_s (A_{13} + A_{23})} \end{cases} \tag{2.14}$$

Lorsque $I >> I_{sat}$, l'équation (2.13) se réduit à $\frac{\partial I(\omega,z)}{\partial z} = G_\omega I_{sat}$, où $G_\omega = \sigma_\omega Nr\kappa$ est appelé « coefficient d'amplification linéaire » ou « gain laser ». L'intensité résultante s'écrit alors : $I(\omega, z) = I_0 + G_\omega I_{sat} z$. Dans ces conditions, la transmission $T = \frac{I(\omega,z)}{I_0}$ tend vers 1 lorsque $I_0 \to \infty$. Le milieu tend alors à devenir transparent au voisinage de la pulsation ω_s, et l'amplification relative à ce rayonnement tend à être nulle.

Lorsque $I << I_{sat}$, l'équation (2.13) devient $\frac{\partial I(\omega,z)}{\partial z} = G_\omega I(\omega)$. Pour une intensité incidente I_0, l'intensité résultante s'écrit :

$$I(\omega, z) = I_0 e^{G_\omega z} \tag{2.15}$$

Comme indiqué par l'expression (2.14), le milieu est respectivement atténuateur ou amplificateur pour le rayonnement à la pulsation ω_s, selon que le signe de $(A_{13} - A_{21})$ est négatif ou positif. Ainsi, les coefficents d'amplification G_ω, ou d'atténuation α_ω, sont égaux en valeur absolue et vérifient :

$$G_\omega = \sigma_\omega Nr\kappa = -\alpha_\omega = -\frac{2\omega n'(\omega)}{c} \tag{2.16}$$

où $n'(\omega)$ est la contribution imaginaire qui est apportée à l'indice de réfraction par la transition résonnante $E_1 \leftrightarrow E_2$, lorsque celle-ci est susceptible d'être sollicitée. En effet, il ne suffit pas qu'il existe un rayonnement à $\hbar\omega_s$ pour générer des transitions entre les niveaux E_1 et E_2, il faut aussi que ces niveaux résonnants soient peuplés. Par exemple, en l'absence de rayonnement pompe à $\hbar\omega_p$, un rayonnement à $\hbar\omega_s$ ne génère aucune transition $E_1 \leftrightarrow E_2$ puisque tous les systèmes à trois niveaux du milieu sont dans leur état fondamental E_3 : le milieu est alors transparent au rayonnement à $\hbar\omega_s$ et le gain laser associé est nul.

Dans le cas du milieu isotrope à trois niveaux que nous venons de décrire, les parties réelles et imaginaires des indices optiques, les coefficients de gain et d'absorption, ainsi que les sections efficaces d'absorption et d'émission stimulée σ ont tous été décrits par des grandeurs scalaires.

2.2.2 Equation de Fresnel complexe

Le paragraphe 2.2.1 a mis en évidence le lien qui existe, dans un milieu isotrope, entre la partie imaginaire de l'indice optique et les phénomènes d'atténuation ou d'amplification d'un rayonnement électromagnétique au voisinnage d'une pulsation résonnante. L'objet de ce paragraphe est l'étude de ces phénomènes dans un cristal biaxe dont les propriétés d'absorption et d'émission proviennent d'un dopage par des ions fluorescents. En particulier, le milieu cristallin est un milieu diélectrique au sein duquel la conductivité électrique est négligée. Ainsi, les processus qui influencent l'amplitude du rayonnement à la pulsation de fluorescence ω_l sont uniquement des processus résonnants entre les deux niveaux E_2 et E_1, et toute dissipation de ce rayonnement par effet Joule au sein du milieu est exclue.

Les propriétés optiques linéaires d'un cristal biaxe diélectrique dopé avec des ions fluorescents sont décrites par le tenseur de susceptibilité électrique linéaire complexe $[\hat{\epsilon}(\omega)]$. Il s'agit d'un tenseur polaire, de rang 2, dont la forme est :

$$[\hat{\epsilon}(\omega)] = \begin{bmatrix} \hat{\epsilon}_{xx}(\omega) = \hat{n}_x^2(\omega) & 0 & 0 \\ 0 & \hat{\epsilon}_{yy}(\omega) = \hat{n}_y^2(\omega) & 0 \\ 0 & 0 & \hat{\epsilon}_{zz}(\omega) = \hat{n}_z^2(\omega) \end{bmatrix} \tag{2.17}$$

Les éléments diagonaux sont des grandeurs complexes : $\hat{\epsilon}_{ii}(\omega) = \hat{n}_i^2(\omega)$, avec $i = x, y, z$. Les indices principaux complexes sont notés : $\hat{n}_i(\omega) = n_i(\omega) + jn'_i(\omega)$, où $n_i(\omega)$ est la partie réelle de l'indice associée aux propriétés de propagation au sein du milieu à la pulsation ω, et où $n'_i(\omega)$ est la partie imaginaire de l'indice sollicitant de manière résonnante des transitions entre différents niveaux d'énergie du milieu.

L'introduction d'une susceptibilité électrique linéaire complexe et diagonale conduit de manière directe à l'équation de Fresnel complexe, qui fait intervenir trois indices principaux complexes $\hat{n}_i$, avec $i = x, y, z$, et dont les solutions complexes $\hat{n}$ correspondent à l'indice complexe sollicité par une onde optique au cours de sa propagation, dans une direction donnée et pour un état de polarisation donné. L'équation de Fresnel complexe s'écrit :

$$\frac{u_x^2}{\hat{n}^{-2} - \hat{n}_x^{-2}} + \frac{u_y^2}{\hat{n}^{-2} - \hat{n}_y^{-2}} + \frac{u_z^2}{\hat{n}^{-2} - \hat{n}_z^{-2}} = 0 \tag{2.18}$$

où u_x, u_y et u_z sont les coordonnées cartésiennes dans le repère optique du vecteur unitaire $\vec{u}$ associé à la direction de propagation de l'onde. Nous utilisons là un formalisme qui a été utilisé dans le livre *Principals of Optics* de M. Born et E. Wolf pour modéliser les propiétés d'absorption des cristaux par effet Joule [6].

Les solutions complexes $\hat{n}^{\pm}$ de l'équation de Fresnel complexe (2.18) contituent une surface complexe, au sens mathématique, avec une partie imaginaire non nulle, qui est composée de deux nappes associées à des valeurs complexes d'indices de réfraction. Les solutions complexes $\hat{n}^{\pm}$ proposées par l'équation (2.19) sont une extension des solutions usuelles $n^{\pm}$ présentées au chapitre 1 et dont les expressions (1.5) sont issues de l'équation de Fresnel réelle (1.4). Ainsi, par extension, les solutions complexes $\hat{n}^{\pm}$ s'écrivent :

$$\begin{cases} \hat{n}^{\pm} = \left(\dfrac{2}{-\hat{B} \mp \left(\hat{B}^2 - 4\hat{C}\right)^{1/2}} \right)^{1/2} \\ \hat{B} = -u_x^2 \left(\hat{b} + \hat{c}\right) - u_y^2 \left(\hat{a} + \hat{c}\right) - u_z^2 \left(\hat{a} + \hat{b}\right) \\ \hat{C} = u_x^2 \hat{b}\hat{c} + u_y^2 \hat{a}\hat{c} + u_z^2 \hat{a}\hat{b} \\ \hat{a} = \hat{n}_x^{-2}, \qquad \hat{b} = \hat{n}_y^{-2}, \qquad \hat{c} = \hat{n}_z^{-2} \end{cases} \tag{2.19}$$

Les milieux anisotropes dopés, classiquement employés dans les dispositifs laser, présentent des propriétés d'absorption et d'émission qui induisent des atténuations ou des amplifications faibles à l'échelle de la longueur d'onde. Par exemple, pour un coefficient d'absorption de l'ordre de $\alpha = 3\ cm^{-1}$ à la longueur d'onde pompe $\lambda_p = 812$ nm dans le cristal $YCOB : Nd$ [17], le taux d'atténuation sur λ_p vaut $e^{-\alpha\lambda_p} \approx 0,9998$. Un tel coeffi-

cient d'absorption correspond à une partie imaginaire $n' = \frac{\alpha\lambda_p}{4\pi} \approx 2.10^{-5}$. Ceci démontre que les milieux habituels sont faiblement absorbants et faiblement fluorescents à l'échelle de la longueur d'onde. Ceci signifie que $Im\,(\hat{n}^{\pm}) = n'^{\pm} << n^{\pm} = Re\,(\hat{n}^{\pm})$, et que les expressions contenant l'indice de réfraction complexe peuvent être linéarisées. Ceci permet en particulier de séparer les parties réelles et imaginaires.

La linéarisation au premier ordre de l'expression (2.19) aboutit à l'équation suivante :

$$\hat{n}^{\pm} = n^{\pm} + jn'^{\pm} = n^{\pm} + j\frac{(n^{\pm})^3}{2}\left(I_B \pm \frac{I_B B + 2I_C}{\sqrt{B^2 - 4C}}\right) \tag{2.20}$$

où $n^{\pm}$, B et C sont les grandeurs réelles décrites dans l'équation (1.5) et où :

$I_B = u_x^2\left(b\frac{n'_y}{n_y} + c\frac{n'_z}{n_z}\right) + u_y^2\left(a\frac{n'_x}{n_x} + c\frac{n'_z}{n_z}\right) + u_z^2\left(a\frac{n'_x}{n_x} + b\frac{n'_y}{n_y}\right)$

$I_C = u_x^2 bc\left(\frac{n'_y}{n_y} + \frac{n'_z}{n_z}\right) + u_y^2 ac\left(\frac{n'_z}{n_z} + \frac{n'_x}{n_x}\right) + u_z^2 ab\left(\frac{n'_x}{n_x} + \frac{n'_y}{n_y}\right)$

où $a = n_x^{-2}$, $b = n_y^{-2}$ et $c = n_z^{-2}$ ont été définis dans l'expression (1.5) du chapitre 1, et sont donc simplement les parties réelles des grandeurs $\hat{a}$, $\hat{b}$ et $\hat{c}$ introduites par l'expression (2.19).

L'équation (2.20) met en évidence le fait que la partie réelle de $\hat{n}^{\pm}$ est $n^{\pm}$. Ceci montre que, dans le formalisme utilisé, et au premier ordre dans les développements limités, l'introduction aux indices principaux complexes d'une partie imaginaire très faible n'affecte pas les valeurs des indices réels $n^{\pm}$. De même, cette partie imaginaire n'affecte pas les propriétés de propagation telles que les deux modes propres de polarisation, les valeurs des indices réels sollicités en fonction de la direction de propagation et de l'état de polarisation, ainsi que les éventuels angles de double réfraction. Celle-ci va simplement contribuer à affecter l'amplitude des rayonnements selon chaque mode propre de polarisation.

Puisque le paramètre B de l'équation (2.20) est négatif par définition, il n'est pas évident de comparer a priori $Im\,(\hat{n}^{+})$ et $Im\,(\hat{n}^{-})$. Afin d'éviter toute confusion, les deux nappes associées aux parties imaginaires de $\hat{n}^{+}$ et $\hat{n}^{-}$ seront respectivement notées n'_{n^+} et n'_{n^+}.

Dans les plans principaux, l'expression de la partie imaginaire des indices complexes est simple. Comme pour la partie réelle des indices, la surface des indices présente une

section ordinaire de géométrie circulaire, notée n'_o, qui est associée à un état de polarisation orthogonal au plan principal. La surface des indices présente également une section extraordinaire, notée n'_e, qui est associée à un état de polarisation tangent au plan principal. Les expressions analytiques des sections n'_o et n'_e sont données dans les trois plans principaux, soit [6] :

$$\begin{cases} n'_{o,xy}(\phi) = n'_z \quad et \quad n'_{e,xy}(\phi) = \dfrac{\frac{n'_y}{n_y^3}cos^2(\phi) + \frac{n'_x}{n_x^3}sin^2(\phi)}{\left(\frac{cos^2(\phi)}{n_y^2} + \frac{sin^2(\phi)}{n_x^2}\right)^{3/2}} \\ n'_{o,yz}(\theta) = n'_x \quad et \quad n'_{e,yz}(\theta) = \dfrac{\frac{n'_y}{n_y^3}cos^2(\theta) + \frac{n'_z}{n_z^3}sin^2(\theta)}{\left(\frac{cos^2(\theta)}{n_y^2} + \frac{sin^2(\theta)}{n_z^2}\right)^{3/2}} \\ n'_{o,xz}(\theta) = n'_y \quad et \quad n'_{e,xz}(\theta) = \dfrac{\frac{n'_x}{n_x^3}cos^2(\theta) + \frac{n'_z}{n_z^3}sin^2(\theta)}{\left(\frac{cos^2(\theta)}{n_x^2} + \frac{sin^2(\theta)}{n_z^2}\right)^{3/2}} \end{cases} \tag{2.21}$$

La section extraordinaire de la partie imaginaire est plus compliquée que la section elliptique des indices réels [6]. Ces sections sont données dans les trois plans principaux par les équations précédentes. Les équations relatives à la partie réelle de l'indice ont été données par les équations (1.7) du chapitre 1.

2.2.3 Surface d'absorption - Surface de fluorescence

L'absorption et l'émission spontanée ou stimulée dans un milieu anisotrope sont influencées par l'anisotropie du milieu environnant, ce qui confère à ces processus un caractère anisotrope lié à la partie imaginaire de l'indice optique complexe. Par conséquent, au sein d'un milieu anisotrope, les coefficients d'Einstein devraient être décrits en toute généralité par des tenseurs de rang 2, ce qui nécessiterait un développement tensoriel complet du paragraphe 2.2.1. Dans ce qui suit, nous faisons l'hypothèse que l'anisotropie relative liée à la partie imaginaire est prépondérante devant l'anisotropie relative liée à la partie réelle. Ceci permet de considérer que les anisotropies des coefficients d'atténuation α, de gain G, et d'émission spontanée A_{21}, sont majoritairement gouvernées par l'anisotropie de n'.

Dans le cadre de cette hypothèse, les grandeurs α, G et A_{21} sont simplement proportionnelles à n'. Chacun de ces coefficients sont alors représentés dans le repère optique

par une surface fermée, composée de deux nappes associées respectivement à chacun des deux modes propres de polarisation. Ainsi, les surfaces liées à l'absorption et à l'émission sont supposées être proportionnelles à la surface décrivant n'.

Afin de décrire de manière progressive la surface liée à n', seules les sections de cette surface avec les plans principaux du repère optique seront tracées dans cette partie. Ces sections sont représentées par la figure 2.3.(b) qui a été tracée à partir des expressions (2.21). La figure 2.3.(a), qui correspond à la partie réelle de l'indice, est tracée à partir des expressions (1.7) établies au chapitre 1.

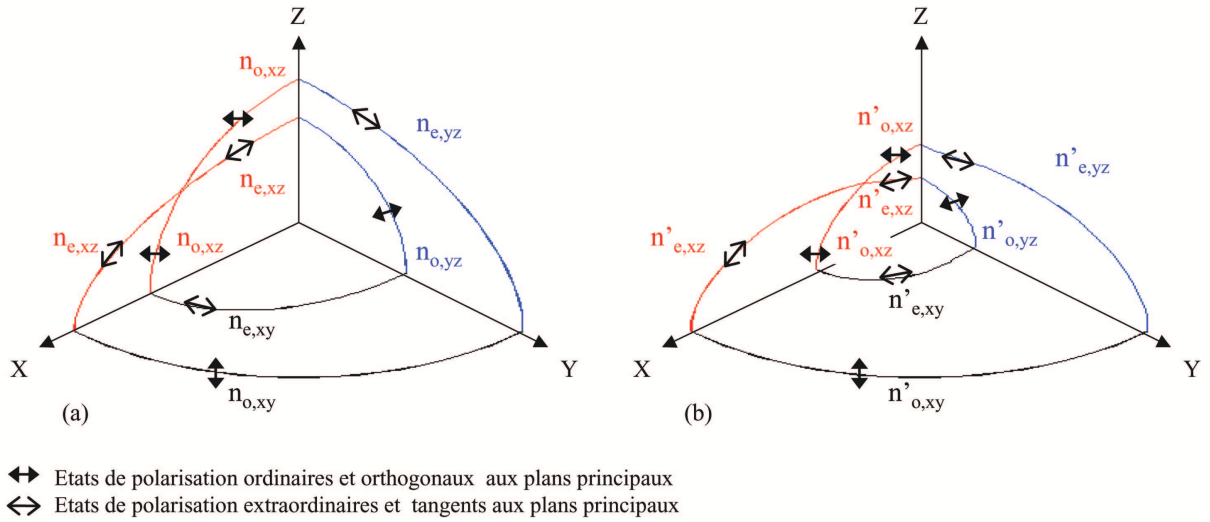


FIG. 2.3 – *Sections des nappes associées à un indice complexe dans les plans principaux du repère optique. (a) Sections circulaires et elliptiques dans les plans principaux des nappes de la partie réelle de l'indice complexe. (b) Sections circulaires et elliptiques déformées, dans les plans principaux, des nappes de la partie imaginaire de l'indice complexe.*

Dans le cadre de ce paragraphe, les plans principaux du repère optique sont des plans de symétrie miroir pour les propriétés optiques linéaires. Il suffit donc de tracer les nappes liées à la partie réelle et à la partie imaginaire de l'indice complexe dans un octant de l'espace. Le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ est un plan particulier puisqu'il contient les ombilics de la surfaces des indices réels de réfraction, comme le montre la figure 2.4.

Les figures 2.4.(a) et 2.4.(b) illutrent respectivement les sections des nappes ordinaire et extraordinaire associées aux parties réelle et imaginaire avec le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. Il apparaît, comme pour la partie réelle, qu'il existe une direction selon laquelle les sections de la partie imaginaires vérifient $n'_o = n'_e$. Les nappes n_o et n_e d'une part, et n'_o et n'_e d'autre part, n'ont

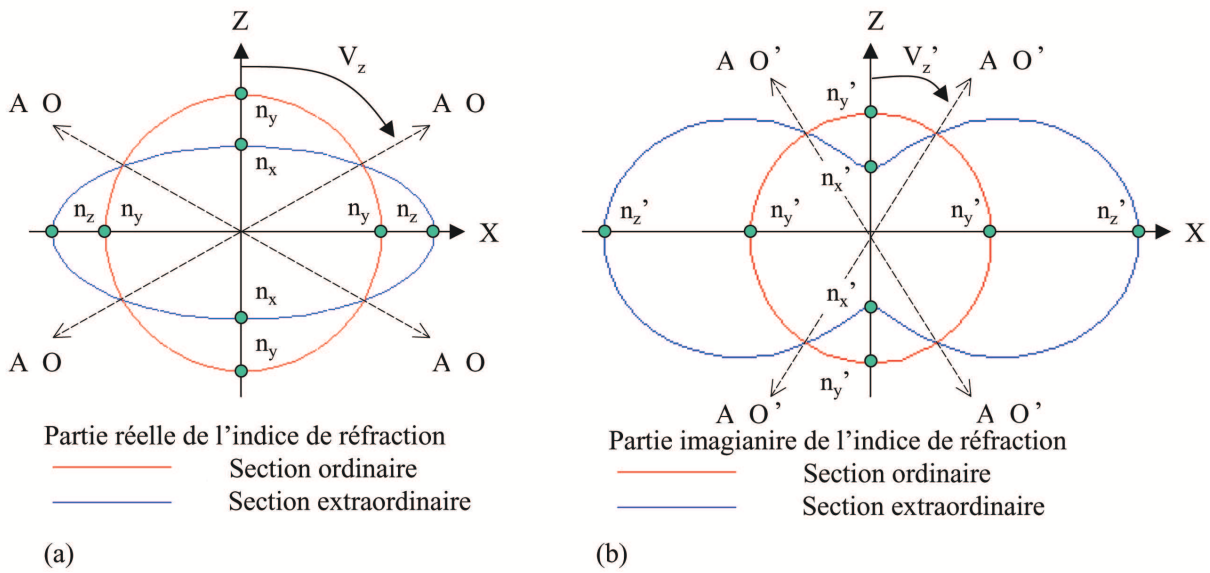


FIG. 2.4 – *Sections ordinaires et extraordinaires dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ des nappes associées aux deux modes propres de polarisation. (a) Sections de la partie réelle de l'indice ; mise en évidence des quatre axes optiques, notés A O, faisant un angle V_z avec l'axe $\vec{Z}$. (b) Sections de la partie imaginaire de l'indice ; mise en évidence des quatre axes optiques imaginaires, notés A O', faisant un angle V_z' avec l'axe $\vec{Z}$.*

aucune raison a priori de se couper au même angle. Ces nappes se coupent respectivement en V_z, lorsque $n_e = n_o$, selon des directions associées aux axes optiques pour la partie réelle, et en V_z', lorsque $n_e' = n_o'$, selon des directions que nous appelons axes de fluorescence ou d'absorption pour la partie imaginaire. L'expression de V_Z est donnée par la relation (1.8) du chapitre 1. Les axes de fluorescence ou d'absorption correspondent aux directions particulières selon lesquelles les deux modes propres de polarisation subissent la même amplification ou atténuation dans le repère optique, au cours d'une propagation sollicitant de manière résonnante des niveaux peuplés. Comptée dans le repère optique depuis $\vec{Z}$, la direction des axes de fluorescence ou d'absorption est donnée, dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, par la résolution de l'équation suivante :

$$V_z' = Arcsin\left[\left(\frac{\frac{n'_{o,xz}}{n^3_{e,xz}(V'_z)} - \frac{n'_x}{n^3_x}}{\frac{n'_z}{n^3_z} - \frac{n'_x}{n^3_x}}\right)^{1/2}\right] \tag{2.22}$$

Les figures 2.5.(a) et 2.5.(b) illustrent les sections, dans le premier quadrant du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, des nappes n^+ et n^- d'une part, ainsi que n'_{n^+} et n'_{n^+} d'autre part.

Les nappes n^+ et n^- sont en contact ponctuel selon V_z au niveau de l'ombilic de

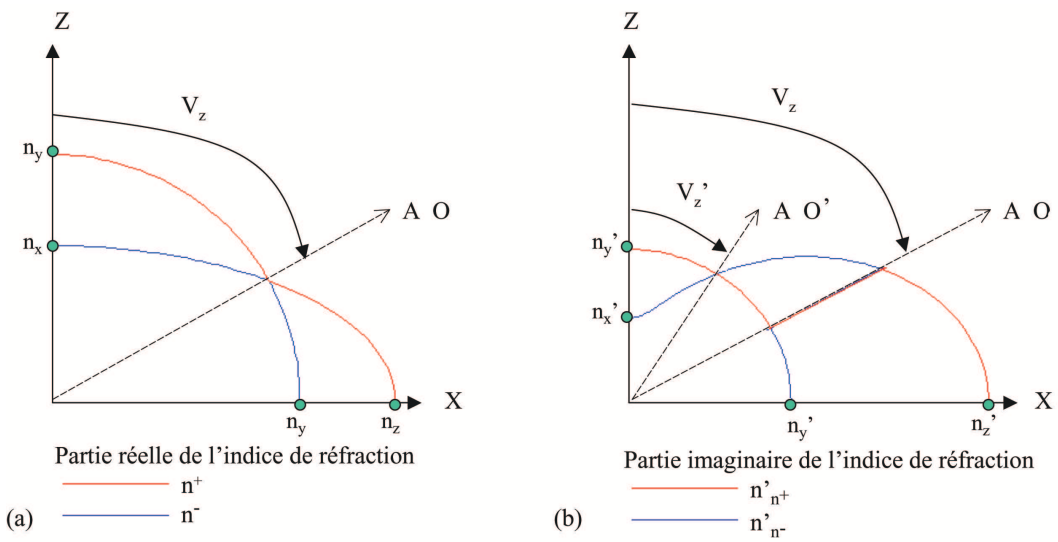


FIG. 2.5 – *Sections dans le premier quadrant du plan* $(\vec{X}, \vec{Z})$ *des nappes associées aux deux modes propres de polarisation. (a) Sections des nappes* n^+ *et* n^- *et mise en évidence l'axe optique noté A O. (b) Sections des nappes* n'_{n+} *et* n'_{n+} *et mise en évidence de l'axe optique imaginaire noté A O'. Mise en évidence de la discontinuité de ces nappes à l'angle* V_z.

la partie réelle de la surface des indices de réfraction. Ces nappes réelles subissent une discontinuité de leur dérivée en V_z. Les nappes n'_{n+} et n'_{n+} sont en intersection en V'_z. Elles présentent en plus une discontinuité selon V_z où leurs valeurs n'_{n+} et n'_{n+} sautent d'une des deux nappes n'_o ou n'_e à l'autre. Les nappes associées à la partie imaginaire subissent une discontinuité correspondant à un décrochage de leurs valeurs en V_z, ce qui résulte de la discontinuité de polarisation existant selon la direction des axes optiques réels.

Notons enfin qu'il n'y a pas de relation d'ordre a priori entre V_z et V'_z. Par exemple, lorsque $V_z < V'_z$, la figure 2.5 met en évidence qu'il n'y a pas de relation d'ordre systématique entre n'_{n+} et n'_{n+}. En effet, les nappes vérifient :

- $n^- < n^+$ et $n'_{n-} < n'_{n+}$ pour $0 < \theta < V'_z$
- $n^- < n^+$ et $n'_{n-} > n'_{n+}$ pour $V'_z < \theta < V_z$
- $n^- < n^+$ et $n'_{n-} < n'_{n+}$ pour $V_z < \theta < \pi/2$

Il est bien clair que le même raisonnement est également applicable dans le cas où $V_z > V'_z$; il suffit alors de permuter les bornes V'_z et V_z dans les trois inégalités notées ci-dessus.

2.3 Mesures sur $YCOB : Nd$

2.3.1 Orientation du repère optique et des axes optiques

L'orientation sous rayons X couplée à l'observation sur sphère de la réfraction conique intérieure permet l'orientation du repère optique par rapport au repère cristallographique selon la méthode décrite dans le paragraphe 1.3.2.1.

Cette méthode a été appliquée à la sphère de $YCOB : Nd$. Les vecteur $\vec{a}$ et $\vec{b}$, ainsi que $\vec{c}$ et $\vec{b}$ sont orthogonaux entre eux ; le dernier angle cristallographique est mesuré à la valeur $\widehat{\vec{a},\vec{c}} = 101,0^\circ \pm 0,2^\circ$. L'observation des quatre axes optiques réels de $YCOB : Nd$ a conduit à déterminer les positions des axes principaux $\vec{X}$ et $\vec{Z}$, telles que $\widehat{\vec{a},\vec{Z}} = 24,4^\circ \pm 0,5^\circ$ et $\widehat{\vec{c},\vec{X}} = 13,4^\circ \pm 0,5^\circ$, ce que représente la figure 2.6. Le positionnement des quatre axes optiques conduit également à la détermination de l'angle $V_Z = 60,5^\circ \pm 0,3^\circ$ à cette même longueur d'onde.

A la précision de nos mesures près, les angles $\widehat{\vec{a},\vec{c}}$, $\widehat{\vec{a},\vec{Z}}$, $\widehat{\vec{c},\vec{X}}$ et V_Z sont identiques dans $YCOB : Nd$ à ceux mesurés par ailleurs sur une matrice non dopée de $YCOB$ [17,23].

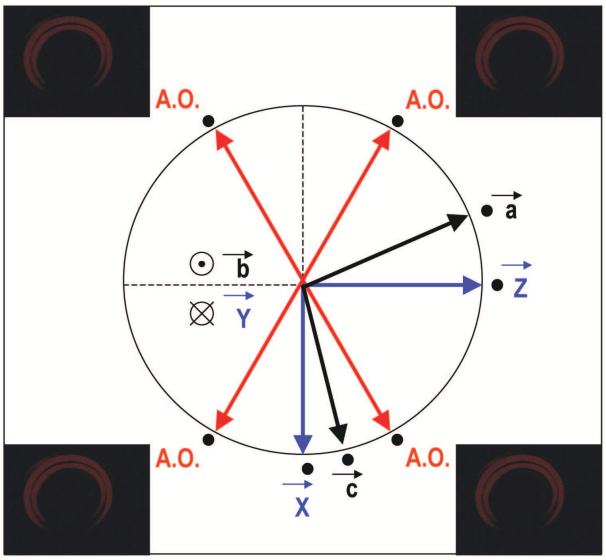


FIG. 2.6 – *Orientation relative des repères cristallographique et optique du cristal biaxe $YCOB : Nd$, avec $\widehat{\vec{a},\vec{c}} = 101,0^\circ \pm 0.2^\circ$, ainsi que $\widehat{\vec{a},\vec{Z}} = 24,4^\circ \pm 0,5^\circ$ et $\widehat{\vec{c},\vec{X}} = 13,4^\circ \pm 0,5^\circ$ à la longueur d'onde 632,8 nm.*

2.3.2 Méthodes classiques de mesures des propriétés d'absorption et d'émission

Les méthodes classiques de caractérisation des propriétés d'absorption et d'émission de fluorescence reposent sur l'utilisation d'un cristal parallélépipédique dont les six faces planes sont polies et orientées orthogonalement aux trois axes principaux du repère optique. L'étude des propriétés d'absorption consiste à mesurer des spectres de transmission en lumière polarisée, tandis que les propriétés d'émission de fluorescence sont obtenues à partir de la mesure de spectres d'émission, en lumière polarisée, qui résultent de la déexcitation d'ions fluorescents auparavant excités par l'absorption d'un faisceau pompe.

La mesure des spectres de transmission conduit pour chacun des modes propres de polarisation, à la détermination des coefficients d'absorption ainsi qu'aux sections efficaces correspondantes selon les axes principaux du repère optique. Pour une telle mesure, il est nécessaire d'avoir une bonne connaissance de la concentration volumique ou massique des ions fluorescents du cristal à l'étude [17,34]. La détermination des différentes sections efficaces d'absorption est réalisée par l'analyse de Judd-Ofelt [35–37] qui peut être appliquée aux milieux anisotropes uniaxes [38] et biaxes [17, 39, 40]. Cette analyse permet de caractériser le comportement d'absorption des ions optiquement actifs au sein de leur environnement cristallin [41, 42].

La mesure des spectres d'émission en lumière polarisée selon les axes principaux du repère optique permet de déterminer les valeurs des sections efficaces d'émission correspondantes selon deux méthodes : la méthode de réciprocité [43–45], et la méthode de Füchtbauer-Ladenburg [46]. Cette dernière fait notamment intervenir les temps de vie radiatifs des niveaux sollicités, ainsi que les rapports de branchement entre un niveau excité et différents niveaux de plus basse énergie autorisant une transition radiative. La détermination des sections efficaces d'absorption et d'émission associées à chaque raie de transission prend en compte les niveaux sollicités, leurs éventuelles levées de dégénérescence dues à différents termes perturbatifs intervenant dans le Hamiltonien des ions fluorescents étudiés, ainsi que les règles de sélection régissant l'intensité des transitions optiques [17].

De nombreux articles font état de l'anisotropie des propriétés optiques liées à la présence d'ions fluorescents au sein de matrices cristallines anisotropes [25, 47–50]. La dispersion en longueur d'onde des propriétés d'émission est également discutée [51]. Des ouvrages récapitulent l'ensemble des données spectroscopiques des ions fluorescents aux sein des différentes matrices cristallines [52]. Certains travaux mentionnent aussi l'observation de cette anisotropie hors des axes principaux [47, 51].

La connaissance des valeurs de sections efficaces selon les axes principaux du repère optique fournit une première détermination de l'anisotropie de fluorescence dans un milieu uniaxe ou biaxe. Cependant, la description de l'anisotropie selon toute direction de propagation, ou de façon analogue, selon tout état de polarisation n'est pas triviale. En particulier, une estimation de l'anisotropie de la section efficace d'émission stimulée σ_{stim}, en fonction de la direction de polarisation, est parfois mise en oeuvre [53, 54] à partir de l'expression suivante :

$$\sigma_{stim}\left(\theta,\phi\right) = \frac{\sigma_x\sigma_y\sigma_z}{\left(\sigma_x^2\sigma_y^2 cos^2\left(\theta\right) + \sigma_y^2\sigma_z^2 sin^2\left(\theta\right) + \sigma_x^2\sigma_z^2 sin^2\left(\phi\right) sin^2\left(\theta\right)\right)^{(1/2)}} \tag{2.23}$$

où les angles (θ, ϕ) en coordonnées sphériques caractérisent la direction de polarisation, et où σ_x, σ_x et σ_x sont les sections efficaces d'émission stimulée selon les axes principaux du repère optique .

Le tracé de σ_{stim} associé à l'expression (2.23) conduit à une surface sans discontinuité, dont les plans principaux sont des plans de symétrie miroir. Cette surface est représentée par la figure 2.7 dans un quart de l'espace des directions de polarisation :

Avec des échantillons de géométrie parallélépipédique, l'étude des propriétés d'absorption et d'émission sont restreintes aux directions principales du repère optique. Ces mesures conduisent uniquement à trois valeurs d'absorption ou d'émission, ce qui impose d'extrapoler le comportement en absorption ou en émission pour l'ensemble des autres directions de propagation dans le repère optique. Cette extrapolation est effectuée, en considérant que les valeurs mesurées sont les valeurs propres liées à l'absorption ou l'émission, et en supposant a priori la forme (2.23) de l'évolution angulaire de ces deux

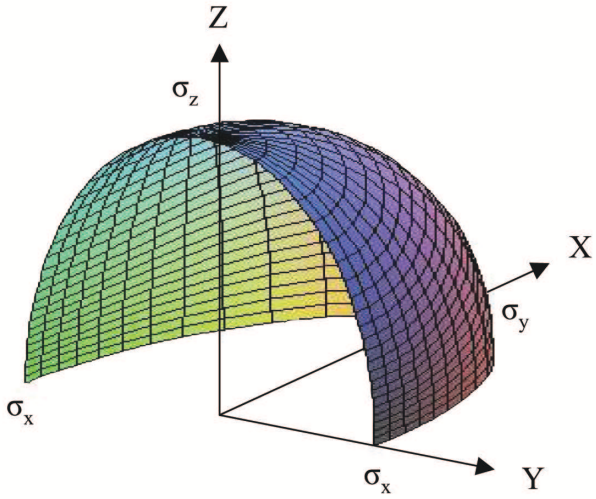


FIG. 2.7 – *Surface anisotrope de la section efficace d'émission stimulée σ_{stim}, décrite à partir des valeurs σ_x, σ_y et σ_z selon les axes principaux du repère optique, en fonction de la direction de polarisation.*

propriétés.

L'étude classique repose donc sur des mesures limitées angulairement, et également sur une extrapolation dont l'expression reste à démontrer. Pour cela, il apparaît important de vérifier la validité de l'approche classique, tant au niveau méthodologique qu'au niveau de la description théorique qu'elle utilise. Comme il a été présenté dans le paragrahe 1.3.2 du chapitre 1, un cristal de géométrie sphérique permet l'accès expérimental direct à toutes les directions de propagation dans le repère optique : nous allons donc mettre à profit une telle géométrie sphérique pour l'étude d'un cristal de $YCOB : Nd$, de façon à effectuer, à notre connaissance, la première mesure directe de la distribution angulaire des propriétés d'absorption et d'émission. Ces considérations méthodologiques et métrologiques justifient et ont motivé l'étude proposée ci-dessous dans ce chapitre.

2.3.3 Mesures sur sphère : Stratégie et dispositif expérimental

La détermination complète de l'anisotropie des propriétés optiques linéaires repose sur une caractérisation, pour chaque mode propre de polarisation, selon toutes les directions de propagation au sein du cristal. Comme pour l'étude des propriétés optiques non linéaires, la géométrie sphérique de l'échantillon constitue un outil puissant permettant la mesure directe selon toutes les directions de propagation.

Le cristal $YCOB : Nd$ est de classe de symétrie d'orientation monoclinique $C_s(m//\vec{b})$, où le vecteur $\vec{b}$ est orthogonal au plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, ce qui confère une grande particularité à ce plan. En effet, la symétrie cristallographique impose que ce plan soit un plan de symétrie miroir pour l'ensemble des propriétés optiques linéaires, qu'il s'agisse de la propagation, de l'absorption ou de l'émission de fluorescence. De plus, ce plan est riche d'un point de vue phénoménologique puisqu'il contient les ombilics de la surface des indices, ainsi que ce que ceux des surfaces d'absorption et de fluorescence.

L'étude de l'anisotropie de l'absorption et de l'émission de $YCOB : Nd$ a donc été effectuée dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ pour différents angles θ de propagation sur 360°, et pour les deux modes propres de polarisation. Le dispositif expérimental utilisé est représenté par la figure 2.8 :

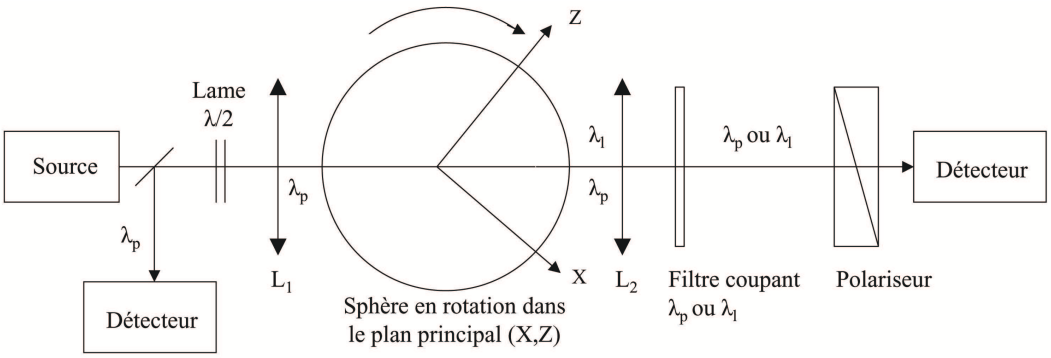


FIG. 2.8 – *Schéma de l'expérience de caractérisation de l'anisotropie d'absorption et d'émission de fluorescence du cristal $YCOB : Nd$ en fonction de la direction de propagation dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ et en fonction des modes propres de polarisation.*

Ce dispositif comporte : une source OPO accordable ; un contrôle de l'état de polarisation du faisceau pompe incident, par le biais d'une lame retardatrice demi-onde à la longueur d'onde λ_p ; un jeu de lentilles, d'une part pour injecter le faisceau pompe dans la sphère, et d'une part pour collecter le faisceau en sortie de sphère ; un jeu de filtres absorbants afin de sélectionner en sortie de la sphère, soit le faisceau pompe à la longueur d'onde λ_p pour effectuer une mesure de transmission, soit le faisceau de fluorescence à la longueur d'onde λ_l pour effectuer une mesure d'amplitude d'émission de fluorescence ; enfin un polariseur afin de selectionner l'un ou l'autre des deux modes propres de polarisation, à λ_p ou λ_l. Le cristal sphérique monté sur une tête goniométrique placée au sein

d'un cercle d'Euler permet la mise en rotation dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. La source est un OPO Panther de la marque Continuum qui est pompé à 355 nm par le troisième harmonique d'un laser Continuum $YAG : Nd$ impulsionnel de durée 7 ns, de cadende 10 Hz et triplé en fréquence. Les détecteurs sont des photodiodes Silicium de modèle Det 110 de la société Thorlabs.

2.3.4 Métrologie sur sphère de l'absorption

2.3.4.1 Distribution angulaire de la transmission et de l'absorption en lumière polarisée dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$

Les mesures de transmission ont été effectuées par pas de 10° sur 360°, pour chacun des deux modes propres de polarisation, qui sont soit orthogonal, soit tangent au plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. Les mesures sont corrigées par le coefficient de Fresnel de réflexion en entrée et en sortie de cristal sphérique. Une calibration relative des mesures a été effectuée en lumière polarisée pour les deux modes propres de polarisation. De plus, une calibration en absolu du dispositif expérimental a été réalisée, permettant une précision sur les mesures de transmission de l'ordre de 10 %.

Des études préalables en transmission à partir d'échantillons à faces planes de $YCOB : Nd$ ont permis de sélectionner la longueur d'onde $\lambda_p = 812$ nm pour les mesures d'absorption [17]. En effet, cette longueur d'onde est associée à une forte absorption ; elle est d'ailleurs fréquemment utilisée pour le pompage de $YCOB : Nd$ au sein de cavité laser.

Les figures 2.9.(a) et 2.9.(b) présentent les mesures expérimentales de transmission T, respectivement en coordonnées cartésiennes et polaires. Ces mesures de transmission T ont été corrigées du pouvoir réflecteur de Fresnel, en fonction du mode propre de polarisation et de l'angle θ de propagation dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$.

Ces mesures montrent deux nappes de transmission associées à chacun des deux modes propres de polarisation, et révèlent bien le caractère anisotrope de l'absorption dans $YCOB : Nd$. Ces nappes présentent quatre intersections, et leurs topologies respectives constituent une image non homothétique du coefficient d'absorption α. Notons que le grand axe de la nappe extraordinaire (polarisation tangentielle) présente un décalage

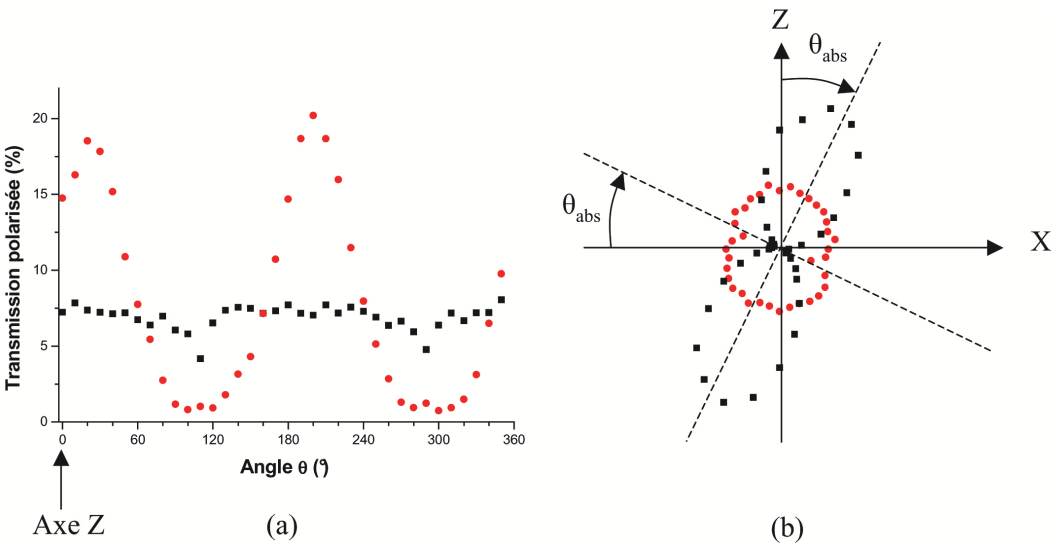


FIG. 2.9 – *Données expérimentales de transmission T en fonction de la direction de propagation repérée par l'angle θ dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ pour les modes propres de polarisation orthogonal (points rouges) et tangent (carrés noirs) au plan d'étude. Mise en évidence de deux nappes de transmission en intersection. (a) Représentation en coordonnées cartésiennes. (b) Représentation en coordonnées polaires.*

angulaire algébrique $\theta_{abs} \approx +30^{\circ}$ par rapport aux axes du repère optique, ce qui brise les symétries miroirs par rapport aux plans principaux $(\vec{X}, \vec{Y})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$ du repère optique. C'est la première fois, à notre connaissance, que de telles mesures sont réalisées.

Les courbes d'absorption sont obtenues à partir des données de transmission T en utilisant la relation (2.7), soit $\alpha = -\frac{1}{D} ln(T)$. Les figure 2.10.(a) et 2.10.(b) présentent alors, en coordonnées cartésiennes et en coordonnées polaires, les valeurs du coefficient d'absorption α associées aux valeurs de transmission dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ pour une sphère de diamètre $D = 7,44$ mm.

Ces mesures de α montrent deux nappes d'absorption associées à chacun des deux modes propres de polarisation dans $YCOB : Nd$. Ces nappes présentent également quatre intersections ; la section de nappe est sphérique pour le mode polarisation ordinaire, et elliptique déformée pour le mode de polarisation extraordinaire. Comme sur les courbes de transmission, il apparaît nettement le même décalage angulaire algébrique θ_{abs} par rapport aux axes du repère optique, ce qui brise les symétries miroirs par rapport aux plans principaux $(\vec{X}, \vec{Y})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$ du repère optique. Ainsi, le tracé des nappes d'absorption dans le premier quadrant du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ n'aurait pas été suffisant, de sorte qu'il s'avère

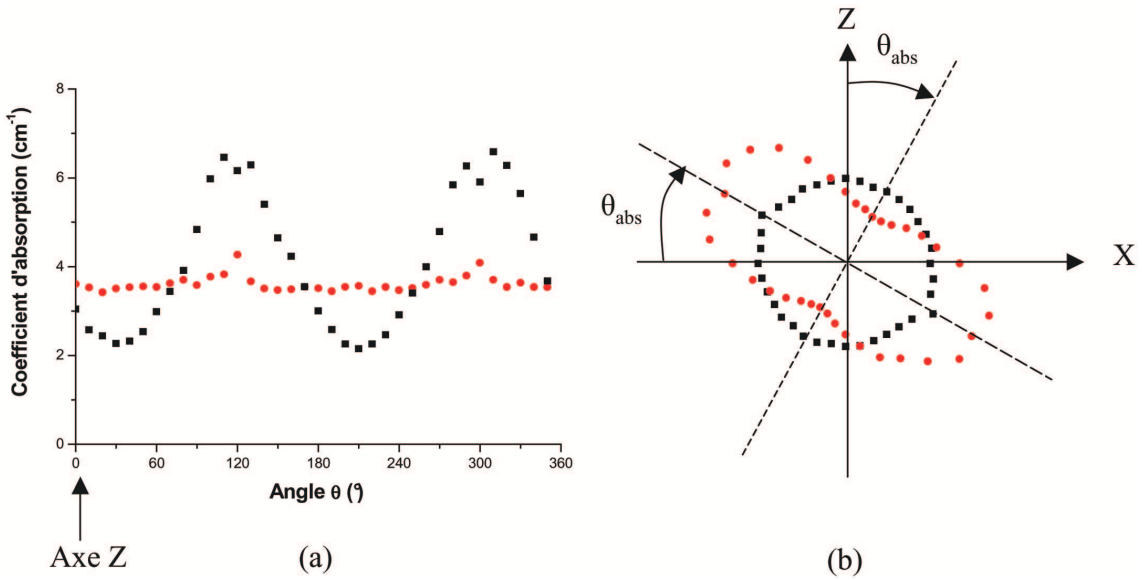


FIG. 2.10 – *Coefficient d'absorption α en fonction de la direction de propagation repérée par l'angle θ dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ du repère optique, et du mode propre de polarisation orthogonal (points rouges) et tangent (carrés noirs) au plan d'étude. Mise en évidence de deux nappes d'absorption en intersection et présentant un décalage angulaire θ_{abs}. (a) Représentation en coordonnées cartésiennes. (b) Représentation en coordonnées polaires.*

indispensable d'en faire la caractérisation sur les 360° dans le plan considéré.

Notons que l'angle algébrique θ_{abs} est bien le même angle sur les courbes de transmission T de la figure 2.9, et sur les courbes d'absorption α de la figure 2.10. En particulier, cet angle θ_{abs} reste de même signe pour les deux représentations. De plus, à un fort coefficient d'absorption, il correspond une faible transmission (et vice-versa). Il est donc cohérent que les maxima du coefficient d'absorption de la figure 2.9 soient associés à des minima de la figure 2.10 (et vice-versa). Par conséquent, le grand axe de la nappe extraordinaire d'absorption est orienté à 90° de celui de la nappe extraordinaire de transmission.

Les expressions (2.20) et (2.21) du modèle développé dans le paragraphe 2.2.2 ne permettent pas d'expliquer le décalage angulaire mis en évidence par nos mesures. Ceci rend nécessaire de développer des aspects de théorie, afin de prendre en compte ce comportement, ce qui sera présenté dans le paragraphe 2.4.

Enfin, les courbes de transmission semblent également présenter un comportement particulier selon la direction de propagation située au voisinage l'axe optique à $\theta = \pi - V_z$ modulo $\pi \approx 120°$, où $V_z = 60,7°$ caractérise la position des ombilics de la partie réelle des indices de réfraction à la longueur d'onde de pompe $\lambda_p = 812nm$. Ce comportement sera

discuté dans le paragraphe 2.5.3.

2.3.5 Métrologie sur sphère de l'émission

2.3.5.1 Spectres d'émission

Des spectres d'émission de fluorescence en lumière polarisée ont été enregistrés sur le même sphérique de $YCOB : Nd$ selon la direction de propagation associée à l'axe principal $\vec{X}$, pour des états de polarisation respectivement orientés selon les directions $\vec{Y}$ et $\vec{Z}$. Ces spectres, donnés par la figure 2.11, présentent un maximum d'amplitude d'émission de fluorescence à $\lambda_l = 1061 \pm 1$ nm, en accord avec des mesures effectuées préalablement dans $YCOB : Nd$ [17].

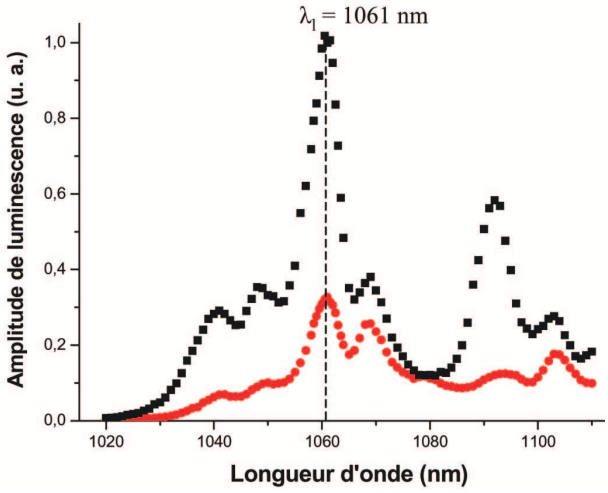


FIG. 2.11 – *Spectres de fluorescence en lumière polarisée mesurés sur un échantillon de $YCOB : Nd$ de géométrie sphérique, pour une propagation selon l'axe $\vec{X}$ du repère optique, et pour des états de polarisation respectivement selon les axes $\vec{Z}$ (carrés noirs) et $\vec{Y}$ (ronds rouges).*

2.3.5.2 Distribution angulaire de l'émission en lumière polarisée dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$

La sphère de $YCOB : Nd$ a été pompée par un faisceau pompe à $\lambda_p = 812$ nm, dont l'absorption a été caractérisée dans le paragraphe précédent. L'état de polarisation du faisceau pompe a été pris orthogonal au plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, de manière à solliciter une absorption ordinaire. Une telle absorption présente l'avantage d'être indépendante de la

direction de propagation dans le plan d'étude, excepté au voisinage des axes optiques, comme le montre la figure 2.10.

En plus d'effectuer un pompage de $YCOB : Nd$ avec une polarisation ordinaire, de réaliser une absorption constante dans un même volume de matière quelle que soit la direction de propagation le long du diamètre de la sphère, il est nécessaire de collecter la fluorescence de la même manière tout au long de l'expérience. La fluorescence est mesurée dans la direction de pompage, pour chaque direction de propagation considérée. Quelque soit l'orientation de la sphère et la direction de propagation associée, la disposition physique et la nature des différents éléments optiques demeurent les mêmes. Ceci conduit à la sélection systématique, le long de la direction d'étude, du même angle solide de vecteurs d'onde de fluorescence parmi la distribution sur les 4π stéradians des vecteurs d'onde issus de l'émission spontanée. D'autre part, c'est la sphère qui est mise en rotation sous le faisceau pompe tandis que le détecteur reste à la même position.

A partir d'un pompage à $\lambda_p = 812$ nm, il existe plusieurs longueurs d'onde d'émission de fluorescence. Cependant, la déeexcitation du niveau $^4F_{3/2}$ vers le niveau $^4I_{11/2}$, associée à une émission centrée sur $\lambda_l = 1061$ nm, est celle qui présente le rapport de branchement le plus élevé, de l'ordre de 60% [17]. Ainsi, seule la plage d'émission de fluorescence centrée sur $\lambda_l = 1061$ nm a été étudiée ; les autres plages d'émission centrées sur 900-940 nm et 1330-1400 nm ont été filtrées et éliminées au cours des mesures.

Les mesures de puissance d'émission de fluoresence ont été effectuées sur les 360° du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ par pas de 5°, voire parfois par pas plus fin au voisinage des axes optiques et des intersections des nappes de fluorescence. Pour chaque mode propre de polarisation, respectivement orthogonal et tangent au plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, les mesures ont été corrigées, en sortie de sphère, par les coefficients de réflexion de Fresnel à la longueur d'onde de luminescence $\lambda_l = 1061$ nm . Cependant, les mesures sont obtenues en valeurs relatives uniquement et sont donc données en unités arbitraires.

Les figures 2.12.(a) et 2.12.(b) présentent, en coordonnées cartésiennes et en coordonnées polaires, les mesures expérimentales d'émission pour les deux modes propres de polarisation en fonction l'angle θ de propagation dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. Ces mesures étant en unités arbitraires, elles sont représentées normalisées par rapport à la base constante

associée au mode de polarisation ordinaire, ce qui porte l'émission ordinaire à la valeur 1.

Ces mesures montrent deux nappes d'émission associées à chacun des deux modes propres de polarisation, et révèle également la nature intrinsèque anisotrope de l'émission dans $YCOB : Nd$. Ces nappes présentent à nouveau quatre intersections. Comme pour les distributions angulaires de l'absorption, il existe un décalage angulaire algébrique, de valeur θ_{fluo} par rapport aux axes du repère optique, qui brise les symétries miroirs par rapport aux plans principaux $(\vec{X}, \vec{Y})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$ pour les phénomènes d'émission. Comme pour l'absorption, ces mesures de distribution angulaire de la fluorescence sont, à notre connaissance, tout-à-fait originales.

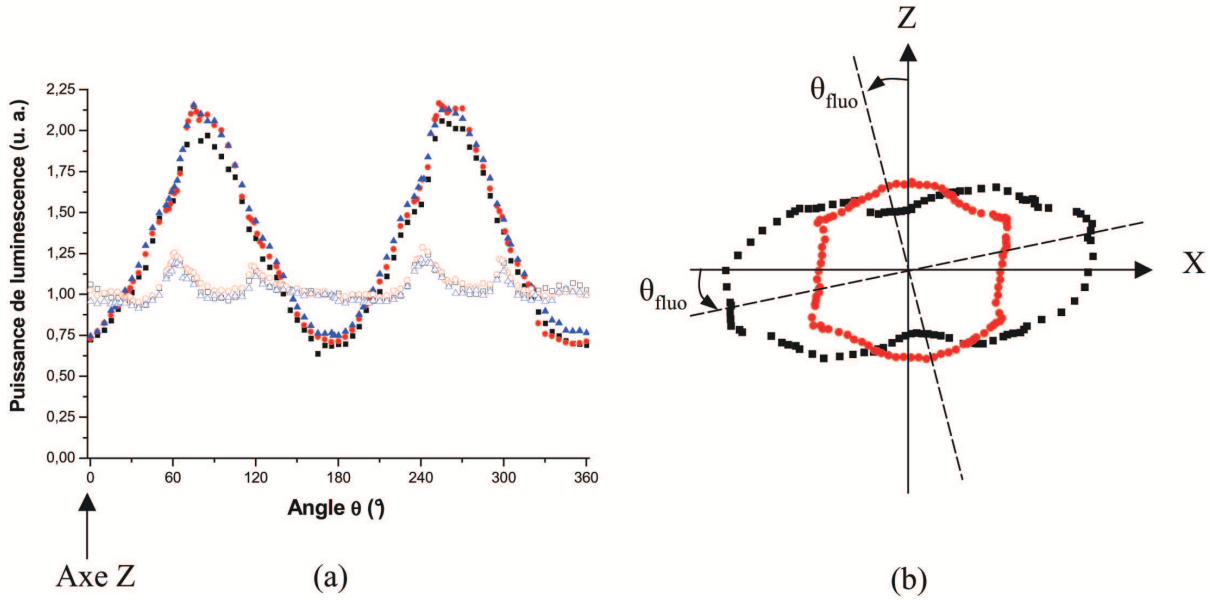


FIG. 2.12 – *Données expérimentales de puissance d'émission en fonction de la direction de propagation repérée par θ dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, pour chacun des deux modes propres de polarisation. Mise en évidence de deux nappes d'émission en intersection et présentant un décalage angulaire θ_{fluo}. (a) Représentation en coordonnées cartésiennes de trois séries de données associées au mode orthogonal (symboles creux) et au mode tangent (symboles pleins) au plan d'étude. (b) Représentation en coordonnées polaires d'une série de données correspondant à l'émission dans les modes de polarisation orthogonal (points rouges) et tangent (carrés noirs) au plan d'étude.*

Les puissances mesurées sont faibles. Cependant, il n'est pas évident de conclure, a priori, sur les contributions relatives de l'émission spontanée et de l'émission stimulée. Ceci sera à nouveau discuté dans le paragraphe 2.4.2.1 en vue de modéliser et d'interpoler les distributions angulaires d'émission.

Comme pour les données d'absorption, l'existence d'un décalage angulaire, $\theta_{fluo} \approx -7^{\circ}$

n'est pas prédit par les expressions (2.20) et (2.21). Ceci rend d'autant plus nécessaire de développer des aspects de théorie, car les angles $\theta_{abs} \approx +30^\circ$ et $\theta_{fluo} \approx -7^\circ$ sont clairement différents. Cela sera présenté et discuté en détail dans le paragraphe 2.4.

Enfin, les courbes d'émission présentent une déformation notable par rapport à la topologie attendue au voisinage des directions associées aux axes optiques, et particulier selon l'axe optique repéré par l'angle $V_z(\lambda_l)$ modulo π. Cela sera également discuté dans le paragraphe 2.5.3 afin de proposer une interprétation de l'origine de cette observation.

2.3.5.3 Analyse en polarisation des modes propres d'émission

Les deux nappes d'émission qui ont été mesurées sont relatives aux deux modes propres, ordinaire et extraordinaire. La description théorique du paragraphe 2.2.2 précise que les seuls états de polarisation existant dans un cristal diélectrique anisotrope fluorescent sont les modes propres de polarisation qui sont définis par les propriétés optiques linéaires relatives à la partie réelle des indices optiques complexes. Nous proposons donc de confirmer que les états de polarisation de la fluorescence correspondent bien aux modes propres de polarisation du cristal anisotrope, et que les propriétés laser ne font que peupler ou dépeupler ces modes aux longueurs d'onde respectives λ_p ou λ_l.

Une analyse en polarisation de la puissance d'émission a été effectuée en faisant tourner un polariseur en sortie de sphère pour différentes directions de propagation dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. Des directions remarquables ont été choisies : l'axe principal $\vec{X}$ du repère optique à $\theta_1 = 90^\circ$; le grand axe associé à l'ellipse déformée de fluorescence à $\theta_2 = 90^\circ + \theta_{lum.} \approx 83^\circ$; les directions aux angles $V_z(\lambda_l)$ à $\theta_3 = 60,7^\circ$ et $V'_z(\lambda_l)$ à $\theta_4 \approx 25^\circ$; enfin l'axe principal $\vec{Z}$ à $\theta_1 = 90^\circ$, et le petit axe associé à l'ellipse déformée de fluorescence à $\theta_6 = \theta_{lum.} \approx -7^\circ$.

La figure 2.13.(a) montre, en coordonnées cartésiennes, une série de données expérimentales de puissance d'émission pour les deux modes de polarisation, en fonction de l'angle θ dans $(\vec{X}, \vec{Z})$. La figure 2.13.(b) donne les résultats obtenus suite à l'analyse, selon les six directions spécifiques de propagation aux angles θ_1, θ_2, θ_3, θ_4, θ_5 et θ_6, en fonction de l'angle α entre la polarisation transmise par le polariseur et le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. Par convention, les angles $\alpha = 0^\circ$ modulo π et $\alpha = 90^\circ$ modulo π sont ainsi associés à la transmission de l'état de polarisation respectivement, tangent et orthogonal au plan

$(\vec{X}, \vec{Z})$.

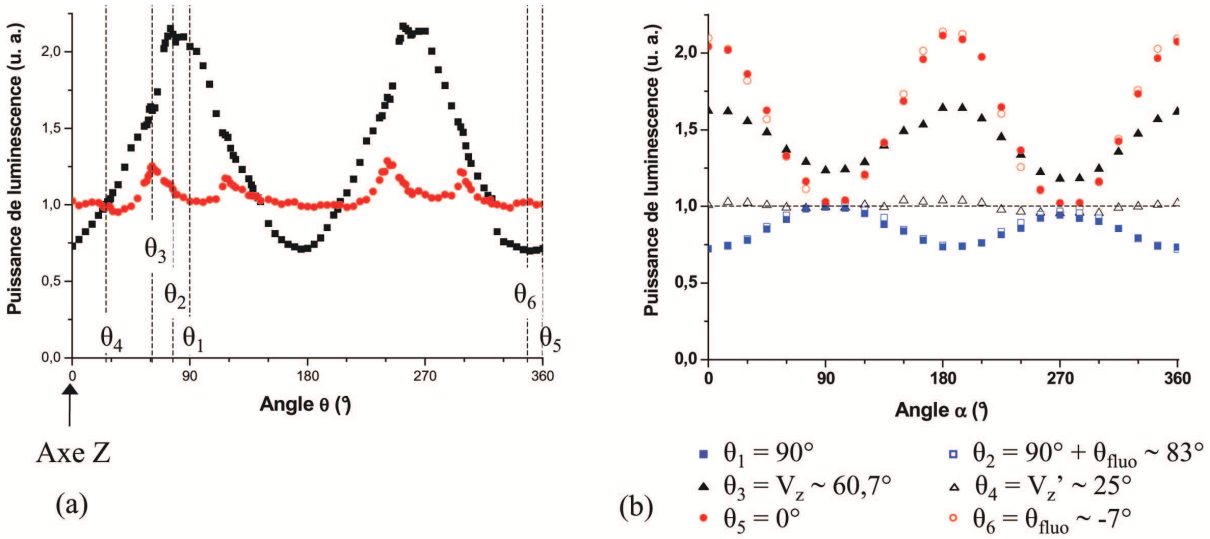


FIG. 2.13 – *Mesures de la puissance d'émission de fluorescence en coordonnées cartésiennes pour chacun des deux modes propres de polarisation. (a) Puissance d'émission en fonction de la direction de propagation repérée par l'angle θ dans le plan (X, Z). (b) Puissance d'émission en fonction de l'orientation repérée par l'angle α du polariseur en sortie de sphère pour les directions de propagation repérées par les angles θ_i.*

L'analyse en polarisation de la figure 2.13.(b) montre clairement l'évolution continue de la puissance de fluorescence en fonction de la direction α de polarisation, pour chacune des directions de propagation $\theta_{i=1..6}$. La dépendance en α de la puisance de luminescence correspond à la modulation classique de puissance mesurée du type « loi de Malus » [18].

Pour chacune des directions de propagation imposées, les maxima et minima de puissance transmise sont obtenus pour des angles α valant 0° modulo π ou 90° modulo π, ce qui correspond bien aux états propres de polarisation par la partie réelle de l'indice de réfraction. Selon la direction V_z', l'allure de la courbe est constante pour tout angle α d'analyse : ceci est bien en accord avec l'intersection des nappes de fluorescence observée sur la figure 2.13.(a), les taux d'émission de fluorescence selon cette direction étant similaires pour les deux modes propres de propagation.

Ces mesures montrent que, sans surprise, les modes propres de polarisation associés à l'émission de fluorescence sont les modes propres de polarisation définis par la partie réelle des indices de réfraction. D'autre part, l'observation du décalage angulaire θ_{fluo} montre que les directions propres d'émission, qui sont des directions correspondant à des extrema

de puissance émises pour un mode propre de polarisation donné, ne sont pas les directions principales du repère optique.

2.3.5.4 Imagerie et propagation des modes propres d'émission

Nous avons pu visualiser les deux modes propres d'émission à l'aide d'une caméra CCD bidimensionnelle de modèle Scorpio de la marque Spiricon. Le cône de fluorescence prélevé en sortie de sphère est refocalisé par une lentille de courte focale sur la matrice de pixels de la caméra.

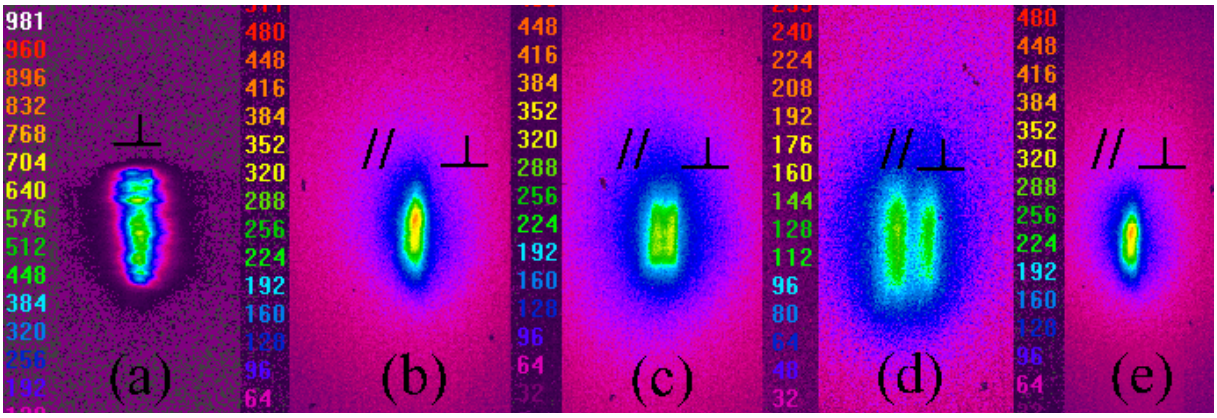


FIG. 2.14 – *Imagerie des profils transverses des modes propres de polarisation associés à l'émission de fluorescence pour différentes directions de propagation dans le plan* $(\vec{X}, \vec{Z})$. *Représentation des deux modes propres, tangent et orthogonal, au plan d'étude par les symboles respectifs // et* $\perp$. *(a) Profil astigmate du faisceau pompe à* $\lambda_p = 812$ *nm (b) Axe principal* $\vec{Z}$ *(c) Axe de fluorescence (d)* $\theta \approx 30^\circ$ *(e) Axe principal* $\vec{X}$

La figure 2.14.(a) met en évidence le fort astigmatisme du faisceau pompe utilisé pour exciter le matériau $YCOB : Nd$ en vue de générer une émission de fluorescence. Cet astigmatisme influence la géométrie du volume contenant les ions Nd^{3+} portés dans un état excité, ce qui se répercute sur les profils transverses de fluorescence collectés et focalisés sur la caméra : ils apparaîssent aussi très astigmates. Les images (b) et (f) montrent que les vecteurs de Poynting relatifs aux deux modes de polarisation de l'émission sont en coïncidence spatiale pour une propagation selon les axes principaux $\vec{X}$ et $\vec{Z}$ du repère optique. Les images (c) et (d) montrent la séparation spatiale des modes de polarisation, dans le cas d'une émission hors des axes principaux dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$: cette observation est permise grâce à l'amplification de la double réfraction par le dioptre de sortie de la sphère.

En conclusion de ce paragraphe, l'imagerie effectuée sur les faisceaux de fluorescence en fonction de la direction de propagation et du mode propre de polarisation confirme le fait qu'une fois que la fluorescence est émise, elle subit une propagation classique, entièrement pilotée par la partie réelle des indices de réfraction du milieu. Bien que les photons de fluorescence apparaissent dans le cristal, leurs propriétés de propagation sont les mêmes que celles de photons incidents qui traversent de part en part le cristal.

2.4 Interprétation des mesures

2.4.1 Développements théoriques suggérés par l'expérience

2.4.1.1 Tenseurs non diagonaux des indices complexes

Les expériences d'absorption et d'émission dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ ne peuvent pas être interprétées entièrement à partir des éléments de théorie donnés dans le paragraphe 2.2.2. En effet, la présence des décalages angulaires θ_{fluo} et θ_{abs} suggèrent l'existence de deux repères propres relatifs à l'absorption et à l'émission respectivement, qui sont différents du repère optique, de sorte que la représentation matricielle de l'indice complexe $\hat{n}$ est la suivante :

$$[\hat{n}(\omega)] = \begin{bmatrix} \hat{n}_{xx}(\omega) & 0 & \hat{n}_{xz}(\omega) \\ 0 & \hat{n}_{yy}(\omega) & 0 \\ \hat{n}_{zx}(\omega) & 0 & \hat{n}_{zz}(\omega) \end{bmatrix} \tag{2.24}$$

soit, en séparant la partie réelle et la partie imaginaire :

$$[\hat{n}(\omega)] = \begin{bmatrix} n_{xx}(\omega) & 0 & 0 \\ 0 & n_{yy}(\omega) & 0 \\ 0 & 0 & n_{zz}(\omega) \end{bmatrix} + j \begin{bmatrix} n'_{xx}(\omega) & 0 & n'_{xz}(\omega) \\ 0 & n'_{yy}(\omega) & 0 \\ n'_{zx}(\omega) & 0 & n'_{zz}(\omega) \end{bmatrix} \tag{2.25}$$

Dans le cadre des milieux faiblement absorbants et faiblement fluorescents, les éléments du tenseur relatif à la partie imaginaire de l'indice complexe sont plusieurs ordres de grandeurs inférieurs à ceux du tenseur relatif à la partie réelle de l'indice, comme expliqué dans la partie 2.2.2. En conservant uniquement les termes du premier ordre contenant les éléments de la partie imaginaire, la permitivité diélectrique linéaire complexe est donnée par l'expression suivante :

$$\left[\frac{\hat{\epsilon}(\omega)}{\epsilon_0}\right] = \left[\hat{n}^2(\omega)\right] = \begin{bmatrix} \frac{\hat{\epsilon}_{xx}(\omega)}{\epsilon_0} & 0 & \frac{\hat{\epsilon}_{xz}(\omega)}{\epsilon_0} \\ 0 & \frac{\hat{\epsilon}_{yy}(\omega)}{\epsilon_0} & 0 \\ \frac{\hat{\epsilon}_{zx}(\omega)}{\epsilon_0} & 0 & \frac{\hat{\epsilon}_{zz}(\omega)}{\epsilon_0} \end{bmatrix} \tag{2.26}$$

dont la partie réelle se restreint à l'expression (1.3) du chapitre 1, et dont la partie imaginaire s'écrit :

$$\begin{bmatrix} 2n'_{xx}(\omega)\, n_{xx}(\omega) & 0 & n'_{xz}(\omega)\left(n_{xx}(\omega) + n_{zz}(\omega)\right) \\ 0 & 2n'_{yy}(\omega)\, n_y(\omega) & 0 \\ n'_{xz}(\omega)\left(n_{xx}(\omega) + n_{zz}(\omega)\right) & 0 & 2n'_{zz}(\omega)\, n_{zz}(\omega) \end{bmatrix} \tag{2.27}$$

La matrice décrivant la partie imaginaire, n', est hermitique, comme c'est le cas pour la partie réelle, n. Il existe donc un repère orthonormé dans lequel cette matrice est diagonale. Nous noterons R' ce repère, avec $R' \equiv R'_{abs}$ ou R'_{fluo}, suivant que l'absorption ou l'émission est considérée. Le repère optique est, quant à lui, noté R_{opt}. Les axes principaux de ces repères sont notés ($\vec{X}$, $\vec{Y}$, $\vec{Z}$) pour le repère R_{opt}, ($\vec{X}'_{abs}$, $\vec{Y}'_{abs}$, $\vec{Z}'_{abs}$) pour R'_{abs}, et ($\vec{X}'_{fluo}$, $\vec{Y}'_{fluo}$, $\vec{Z}'_{fluo}$) pour R'_{fluo}.

De part la symétrie monoclinique de $YCOB : Nd$, les axes $\vec{Y}$, $\vec{Y}_{abs}$ et $\vec{Y}_{fluo}$ sont colinéaires entre eux et orhogonaux au plan miroir de la maille cristalline. Ces axes sont donc colinéaires à l'axe cristallographique $\vec{b}$. Les autres axes $(\vec{X}, \vec{Z})$, $(\vec{X}'_{abs}, \vec{Z}'_{abs})$, et $(\vec{X}'_{fluo}, \vec{Z}'_{fluo})$ sont tous contenus dans le plan miroir. Ainsi, l'orientation des trois repères R', R'_{abs} et R'_{fluo} ne diffère que par une rotation autour de l'axe $\vec{b}$.

Dans le repère propre R', d'axes ($\vec{X}'$, $\vec{Y}'$, $\vec{Z}'$), la matrice décrivant la partie imaginaire de l'indice complexe est diagonale, soit :

$$[n'(\omega)] = \begin{bmatrix} n'_{xx}(\omega) & 0 & n'_{xz}(\omega) \\ 0 & n'_{yy}(\omega) & 0 \\ n'_{zx}(\omega) & 0 & n'_{zz}(\omega) \end{bmatrix}_{R_{opt}} = \begin{bmatrix} n'_{x'x'}(\omega) & 0 & 0 \\ 0 & n'_{y'y'}(\omega) & 0 \\ 0 & 0 & n'_{z'z'}(\omega) \end{bmatrix}_{R'} \tag{2.28}$$

Les valeurs propres $n'_{x'x'}$, $n'_{y'y'}$ et $n'_{z'z'}$, ainsi que l'angle $\tilde{\theta}$ caractérisant l'angle de rotation permettant de passer du repère R_{opt} au repère R' sont donnés par les expressions suivantes :

$$\begin{cases} n'_{x'x'}(\omega) = \dfrac{n'_{xx}(\omega) + n'_{zz}(\omega)}{2} - \sqrt{\left(\dfrac{n'_{xx}(\omega) - n'_{zz}(\omega)}{2}\right)^2 + (n'_{xz}(\omega))^2} \\ n'_{y'y'}(\omega) = n'_{yy}(\omega) \\ n'_{z'z'}(\omega) = \dfrac{n'_{xx}(\omega) + n'_{zz}(\omega)}{2} + \sqrt{\left(\dfrac{n'_{xx}(\omega) - n'_{zz}(\omega)}{2}\right)^2 + (n'_{xz}(\omega))^2} \\ \tilde{\theta} = Arctan\left(\dfrac{-n'_{xz}(\omega)}{\frac{n'_{xx}(\omega)-n'_{zz}(\omega)}{2} - \sqrt{\left(\frac{n'_{xx}(\omega)-n'_{zz}(\omega)}{2}\right)^2 + (n'_{xz}(\omega))^2}}\right) \end{cases} \tag{2.29}$$

Les écritures tensorielles de $[n'(\omega)]$ dans les repères R_{opt} et R' sont reliées par la matrice $\Re_Y(\tilde{\theta})$ décrivant la rotation d'un angle algébrique $\tilde{\theta}$ autours de l'axe $\vec{Y}$. Le changement de repère vérifie la relation de passage : $n'(\omega)_{R_{opt}} = \Re_Y(\tilde{\theta}) n'(\omega)_{R'} \Re_Y(-\tilde{\theta})$ et $n'(\omega)_{R'} = \Re_Y(-\tilde{\theta}) n'(\omega)_{R_{opt}} \Re_Y(\tilde{\theta})$, où la matrice de rotation $\Re_Y(\tilde{\theta})$ dans le repère optique est donnée par l'expression :

$$\Re_Y\left(\tilde{\theta}\right) = \begin{bmatrix} cos\,\tilde{\theta} & 0 & sin\,\tilde{\theta} \\ 0 & 1 & 0 \\ -sin\,\tilde{\theta} & 0 & cos\,\tilde{\theta} \end{bmatrix}_{R_{opt}} \tag{2.30}$$

2.4.1.2 Equation de Fresnel complexe avec termes non diagonaux

A ce stade du travail, il est nécessaire d'établir l'équation de Fresnel en prenant en compte l'existence de termes non diagonaux. Nous devons donc affiner le modèle de Born et Wolf [6] décrit dans la partie 2.2.2, où la partie réelle et la partie imaginaire de l'indice étaient supposées avoir les mêmes repères propres.

Pour une onde optique de pulsation ω se propageant dans la direction portée par le vecteur unitaire $\vec{u}$ dans un milieu de permitivité diélectrique linéaire complexe $[\hat{\epsilon}(\omega)]$, l'équation relative au champ électrique $\vec{E}$ est donnée par l'expression suivante :

$$\left(\hat{n}\left(\omega\right)\right)^2 \vec{u} \wedge \vec{u} \wedge \vec{E} = \left[\frac{\hat{\epsilon}\left(\omega\right)}{\epsilon_0}\right] \vec{E} \tag{2.31}$$

où $\hat{n}\left(\omega\right)$ est l'indice complexe sollicité par la polarisation du champ électrique $\vec{E}$.

Dans ce cas, en procédant de la même manière que pour un tenseur permitivité électrique complexe complètement diagonal [6], il est possible de réécrire l'équation de Fresnel complexe avec des termes non diagonaux, soit :

$$\frac{u_x^2}{\hat{n}^{-2} - \hat{n}_{xx}^{-2}} + \frac{u_y^2}{\hat{n}^{-2} - \hat{n}_{yy}^{-2}} + \frac{u_z^2}{\hat{n}^{-2} - \hat{n}_{zz}^{-2}} - \frac{\hat{\epsilon}_{xz}\hat{n}^{-2}}{\epsilon_0(\vec{u}.\vec{E})}\left[\frac{u_x E_z}{\hat{n}^{-2} - \hat{n}_{xx}^{-2}} + \frac{u_z E_x}{\hat{n}^{-2} - \hat{n}_{zz}^{-2}}\right] = 0 \tag{2.32}$$

où u_x, u_y et u_z sont les coordonnées cartésiennes dans le repère optique du vecteur unitaire $\vec{u}$ associé à la direction de propagation de l'onde, et où E_x, E_y et E_z sont celles du champ électrique $\vec{E}$.

La validité de l'équation (2.32) est restreinte aux propagations pour lesquelles $\vec{u}.\vec{E} \neq 0$. De plus, cette équation contient encore des composantes du champ électrique, ce qui ne permet pas d'en déduire de manière directe une expression lisible de l'indice de réfraction complexe sollicité au cours de la propagation dans le milieu considéré. Cette approche en terme d'équation de Fresnel généralisée n'est pas concluante à ce stade d'écriture.

Afin de déterminer une expression analytique simple de l'indice complexe, il faut revenir à l'équation de propagation (2.31). Sa projection sur les axes propres $\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z}$ du repère optique conduit à un système de trois équations linéaires par rapport aux composantes du champ électrique, avec $\epsilon_{xz} = \epsilon_{zx}$, ce qui s'écrit :

$$\begin{cases} \left(\frac{\hat{\epsilon}_{xx}}{\epsilon_0} - \hat{n}^2\left(u_y^2 + u_z^2\right)\right) E_x + \hat{n}^2 u_x u_y E_y + \left(\frac{\hat{\epsilon}_{xz}}{\epsilon_0} + n^2 u_x u_z\right) E_Z = 0 \\ \hat{n}^2 u_y u_x E_x + \left(\frac{\hat{\epsilon}_{yy}}{\epsilon_0} - \hat{n}^2\left(u_x^2 + u_z^2\right)\right) E_y + n^2 u_x u_z E_Z = 0 \\ \left(\frac{\hat{\epsilon}_{xz}}{\epsilon_0} + n^2 u_z u_x\right) E_x + n^2 u_z u_y E_y + \left(\frac{\hat{\epsilon}_{zz}}{\epsilon_0} - \hat{n}^2\left(u_x^2 + u_y^2\right)\right) E_z = 0 \end{cases} \tag{2.33}$$

où $u_x = sin\left(\theta\right) cos\left(\phi\right)$, $u_y = sin\left(\theta\right) sin\left(\phi\right)$ et $u_z = cos\left(\theta\right)$.

Le système d'équations (2.33) possède une solution non triviale si son déterminant est nul. Dans le cadre expérimental fixé, les études d'absorption et d'émission ont été effectuées dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, pour un angle $\phi = 0^{\circ}$. Dans ce cas, le déterminant associé à (2.33) est donné par :

$$\left[n^2 - \frac{\hat{\epsilon}_{yy}}{\epsilon_0}\right]\left[\left(\frac{\hat{\epsilon}_{xx}}{\epsilon_0} sin^2(\theta) + \frac{\hat{\epsilon}_{zz}}{\epsilon_0} cos^2(\theta) + 2\frac{\hat{\epsilon}_{xz}}{\epsilon_0} cos(\theta)\, sin(\theta)\right)\hat{n}^2 + \left(\frac{\hat{\epsilon}_{xz}}{\epsilon_0}\right)^2 - \frac{\hat{\epsilon}_{xx}}{\epsilon_0}\frac{\hat{\epsilon}_{zz}}{\epsilon_0}\right] = 0 \tag{2.34}$$

Cette écriture factorisée du déterminant, dans le cas restreint aux propagations dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, met en évidence les deux indices complexes sollicités par les modes propres de polarisation ordinaire et extraordinaire respectivement.

Le mode propre de polarisation orthogonal à $(\vec{X}, \vec{Z})$ sollicite l'indice complexe ordinaire $\hat{n}_o$. Le mode propre de polarisation tangent à $(\vec{X}, \vec{Z})$ sollicite l'indice complexe extraordinaire $\hat{n}_e$. Ces indices sont décrits par l'équation :

$$\begin{cases} \hat{n}_o(\theta) = \sqrt{\dfrac{\hat{\epsilon}_{yy}}{\epsilon_0}} = \hat{n}_{yy} = n_{yy} + jn'_{yy} \\ \hat{n}_e(\theta) = \left[\dfrac{\frac{\hat{\epsilon}_{xx}}{\epsilon_0}\frac{\hat{\epsilon}_{zz}}{\epsilon_0} - \left(\frac{\hat{\epsilon}_{xz}}{\epsilon_0}\right)^2}{\left(\frac{\hat{\epsilon}_{xx}}{\epsilon_0} sin^2(\theta) + \frac{\hat{\epsilon}_{zz}}{\epsilon_0} cos^2(\theta) + 2\frac{\hat{\epsilon}_{xz}}{\epsilon_0} cos(\theta)\, sin(\theta)\right)}\right]^{1/2} \end{cases} \tag{2.35}$$

La propagation et l'évolution de l'amplitude du mode propre de polarisation ordinaire sont maintenant complètement définies dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. L'approximation des milieux faiblement absorbants permet de linéariser l'expression associée au mode propre de polarisation extraordinaire et de conserver uniquement les termes du premier ordre dépendant de la partie imaginaire des éléments du tenseur $[\hat{\epsilon}]$. Cette approximation permet, à partir de la relation (2.26), de donner une expression simplifiée de $\hat{n}_e(\theta)$ contenant les termes non diagonaux n'_{xz}, et qui s'écrit :

$$\hat{n}_e(\theta) = n_e(\theta) + jn'_e(\theta) = n_e(\theta) + jn_e(\theta)\frac{\frac{n'_{xx}}{n^3_{xx}} cos^2(\theta) + \frac{n'_{zz}}{n^3_{zz}} sin^2(\theta) - \frac{n'_{xz}(n_{xx}+n_{zz})}{n^2_{xx}n^2_{zz}} cos(\theta) sin(\theta)}{\frac{cos^2(\theta)}{n^2_{xx}} + \frac{sin^2(\theta)}{n^2_{zz}}} \tag{2.36}$$

avec $n_e = \left[\frac{cos^2(\theta)}{n^2_{xx}} + \frac{sin^2(\theta)}{n^2_{zz}}\right]^{(-1/2)}$.

Nous avons donc déterminé une expression pour la partie imaginaire de l'indice complexe pour les deux modes propres de polarisation, soit :

$$\begin{cases} n'_o(\theta) = n'_{yy} \\ n'_e(\theta) = \dfrac{\frac{n'_{xx}}{n^3_{xx}} cos^2(\theta) + \frac{n'_{zz}}{n^3_{zz}} sin^2(\theta) - \frac{n'_{xz}(n_{xx}+n_{zz})}{n^2_{xx} n^2_{zz}} cos(\theta) sin(\theta)}{\left(\frac{cos^2(\theta)}{n^2_{xx}} + \frac{sin^2(\theta)}{n^2_{zz}}\right)^{3/2}} \end{cases} \tag{2.37}$$

2.4.2 Interpolation des données expérimentales dans les différents repères

2.4.2.1 Interpolation des donnés d'absorption et d'émission - Résultats

Les développements théoriques proposés au paragraphe précédent ont permis d'établir l'expression (2.37), laquelle est maintenant appliquée pour interpoler les données expérimentales : les valeurs des indices réels aux longueurs d'onde λ_p ou λ_l sont imposées [23], et les paramètres n'_{xx}, n'_{yy}, n'_{zz} et n'_{xz} sont les paramètres d'interpolation.

Dans le cas de l'absorption, l'interprétation des données est claire, puisqu'il s'agit d'une atténuation exponentielle d'un rayonnement incident à $\lambda_p = 812$ nm, où les coefficients d'absorption et les indices imaginaires vérifient $\alpha_o(\theta) = 2\frac{n'_o(\theta,\lambda_p)\omega_p}{c}$ et $\alpha_e(\theta) = 2\frac{n'_e(\theta,\lambda_p)\omega_p}{c}$, compte tenu de (2.16). Ainsi, les coefficients d'absorption et les indices imaginaires présentent la même anisotropie relative, au facteur $\frac{2\omega_p}{c}$ près. Le tracé de l'interpolation est donné par la figure 2.15.

L'interpolation des données de la figure 2.15 conduit à la matrice suivante :

$$[\alpha\,(\lambda_p = 812nm)] = \begin{bmatrix} 3,2 \pm 0,4 & 0 & 1,9 \pm 0,3 \\ 0 & 3,5 \pm 0,4 & 0 \\ 1,9 \pm 0,3 & 0 & 5,1 \pm 0,6 \end{bmatrix} cm^{-1} \tag{2.38}$$

Compte tenu de (2.16) et (2.38), la partie imaginaire de l'indice complexe s'écrit :

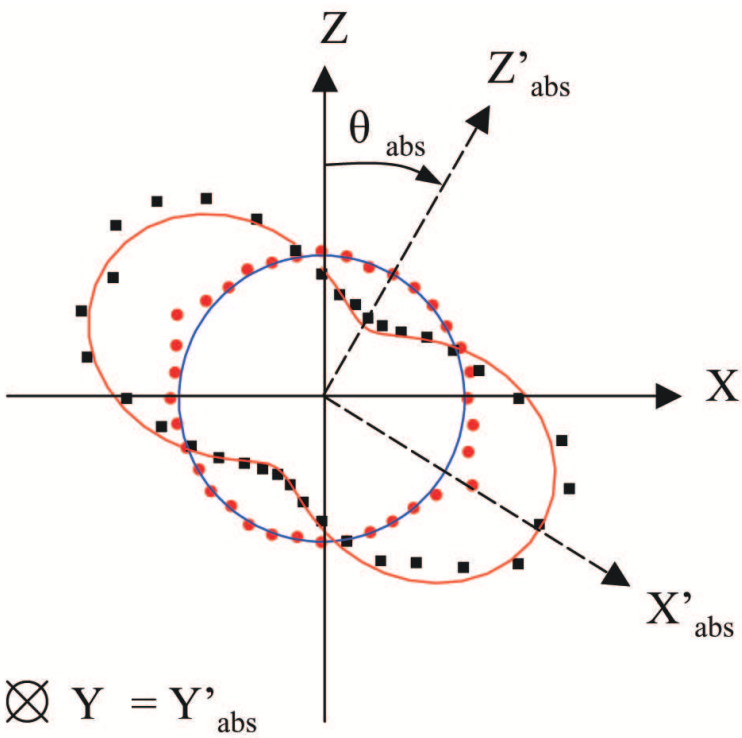


FIG. 2.15 – *Données expérimentales, $\alpha_o(\theta, \lambda_p)$ et $\alpha_e(\theta, \lambda_p)$, associées aux modes propres de polarisation ordinaire (points rouges) et extraordinaire (carrés noirs) dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ de $YCOB : Nd$. Interpolations des donnés par la constante $n'_o(\theta)$ (cercle bleu) et la fonction n'_e de l'expression (2.35) (ellipse déformée rouge).*

$$[\hat{n}'(\lambda_p = 812nm)] = 10^{-5} \begin{bmatrix} 2,1 \pm 0,3 & 0 & 1,2 \pm 0,2 \\ 0 & 2,3 \pm 0,3 & 0 \\ 1,2 \pm 0,2 & 0 & 3,3 \pm 0,4 \end{bmatrix} \tag{2.39}$$

Les données de puissance d'émission sont plus délicates à interpréter puisque que la proportion de photons à $\lambda_l = 1061$ nm émis par émission spontanée et par émission stimulée n'est pas connue. Ces données seront donc interprétées en faisant l'hypothèse que l'émission de fluorescence observée est majoritairement issue de processus d'émission spontanée, de sorte que la puissance d'émission , $P_o(\theta, \lambda_l)$ ou $P_e(\theta, \lambda_l)$ puisse être considérée comme directement proportionnelle à la partie imaginaire de l'indice complexe, respectivement $n'_o(\theta, \lambda_l)$ ou $n'_e(\theta, \lambda_l)$. Il est alors possible d'utiliser notre modèle décrit

par l'expression (2.37), pour interpoler les rapports $\frac{P_o(\theta,\lambda_l)}{<P_o(\lambda_l)>}$ et $\frac{P_e(\theta,\lambda_l)}{<P_o(\lambda_l)>}$.

La figure 2.16 donne les tracés de l'interpolation des mesures d'émission.

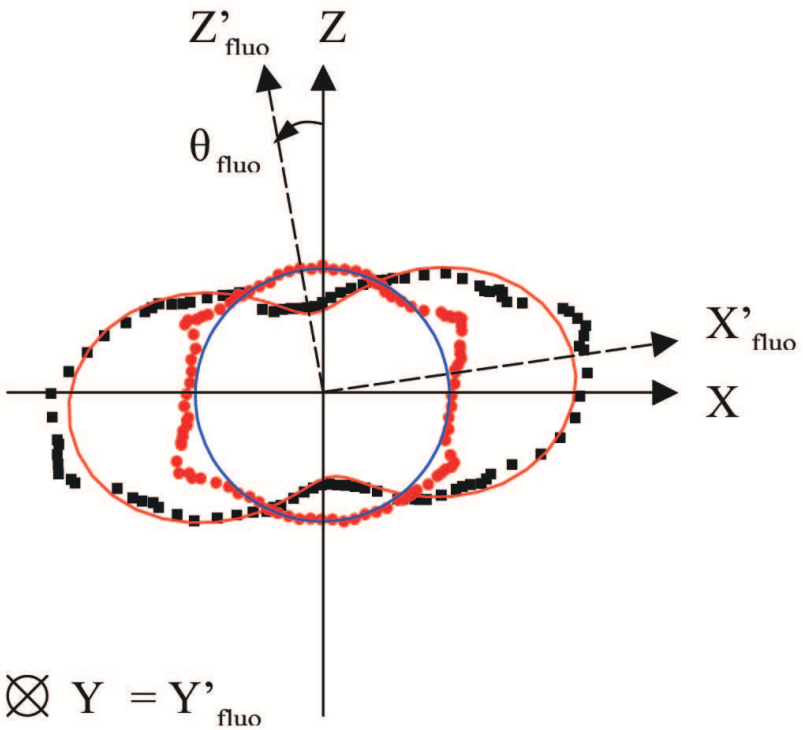


FIG. 2.16 – *Données expérimentales,* $\frac{P_o(\theta,\lambda_l)}{<P_o(\lambda_l)>}$ *et* $\frac{P_e(\theta,\lambda_l)}{<P_o(\lambda_l)>}$*, associées aux modes propres de polarisation ordinaire (points rouges) et extraordinaire (carrés noirs) dans le plan* $(\vec{X},\vec{Z})$ *dans* $YCOB : Nd$*. Interpolation par la constante* $n'_o(\theta)$ *(cercle bleu) et la fonction* $n'_e(\theta)$ *de l'expression* (2.35) *(ellipse déformée rouge).*

La matrice résultant de l'interpolation des données de la figure 2.16 est alors :

$$\left[\frac{n'(\lambda_l)}{n'_o(\lambda_l)}\right] = \begin{bmatrix} 0,67 \pm 0.02 & 0 & -0.15 \pm 0.02 \\ 0 & 1 \pm 0.02 & 0 \\ -0.15 \pm 0.02 & 0 & 1,99 \pm 0.02 \end{bmatrix} \tag{2.40}$$

Les incertitudes relatives des valeurs imaginaires liées à l'absorption sont de l'ordre de 15 %, et proviennent principalement de l'incertitude introduite par la calibration en valeur absolue des nappes d'absorption. Pour les données concernant l'émission de fluorescence, l'incertitude provient uniquement de l'interpolation, puisque ces données n'ont pas fait

l'objet d'une calibration en absolu ; ceci leur assure une meilleure précision relative.

Les équations (2.29) permettent d'obtenir les matrices (2.39) et (2.40) dans leurs repères propres respectifs, R'_{abs} et R'_{fluo}, ainsi que les décalages angulaires algébriques θ_{abs} et θ_{fluos} associés à des rotations selon l'axe $\vec{Y}$, soit :

$$[n'(\lambda_p = 812nm)] = 10^{-5} \begin{bmatrix} 1,4 \pm 1,0 & 0 & 0 \\ 0 & 2,3 \pm 0,3 & 0 \\ 0 & 0 & 4,0 \pm 0,5 \end{bmatrix}_{R'_{abs}} \quad et\ \theta_{abs} = 31,1^\circ \pm 0,7^\circ$$

$$\left[\frac{n'(\lambda_l)}{n'_o(\lambda_l)}\right] = \begin{bmatrix} 0,65 \pm 0,04 & 0 & 0 \\ 0 & 1 \pm 0,02 & 0 \\ 0 & 0 & 2,01 \pm 0.04 \end{bmatrix}_{R'_{fluo}} \quad et\ \theta_{fluo} = -6,4^\circ \pm 0,9^\circ \tag{2.41}$$

Les mesures expérimentales et leurs interpolations tendent à confirmer la validité des hypothèses effectuées dans le cadre théorique d'étude des milieux anisotropes faiblement absorbants et fluorescents. D'une part, la partie imaginaire, $n'(\lambda_p)$, est cinq ordres de grandeur inférieure à la partie réelle correspondante, ce qui valide l'approximation de linéarisation pour l'absorption ainsi que l'expression (2.35). D'autre part, l'anisotropie relative des indices réels est comprise entre $\frac{n_z - n_y}{n_z} \approx 1\%$ et $\frac{n_z - n_x}{n_x} \approx 4\%$ à $\lambda_p = 812$ nm pour l'absorption, ainsi qu'à $\lambda_l = 1061$ nm pour l'émission. A partir des valeurs diagonales de la partie imaginaire de l'indice de réfraction, les anisotropies relatives des indices imaginaires sont respectivement comprises entre 40 % et 195 % pour l'absorption, entre 35 % et 210 % pour l'émission de fluorescence. Ceci confirme que l'anisotropie de la partie imaginaire de

l'indice de réfraction est nettement supérieure à celle de la partie réelle associée. Ceci tend donc à valider l'approche suivie, qui considérait que l'anisotropie des différents processus d'absorption et d'émission est, dans un premier niveau de description, principalement pilotée par l'anisotropie de la partie imaginaire de l'indice optique complexe.

Entre une mesure classique sur cristal parallélépipédique selon les axes principaux du repère optique, et une mesure sur sphère selon les directions principales d'absorption et d'émission, les expressions (2.39), (2.40), et (2.41), mettent en évidence qu'il existe une erreur relative de l'ordre de 1 % à 3 %, et 18 % à 50 %, pour les cas traités, respectivement pour l'absorption et pour l'émission.

Remarque

A partir de la matrice $[n'(\lambda_p = 812nm)]$, traduisant l'anisotropie d'absorption dans le repère propre R'_{abs}, la matrice diagonale associée, correspondant aux valeurs prorpes des coefficients d'absorption linéaire, s'écrit :

$$[\alpha(\lambda_p = 812nm)] = \begin{bmatrix} 2,1 \pm 0,8 & 0 & 0 \\ 0 & 3,5 \pm 0,4 & 0 \\ 0 & 0 & 6,2 \pm 0,8 \end{bmatrix}_{R'_{abs}} cm^{-1} \tag{2.42}$$

- *Détermination des angles V'_z associés à l'absorption et à l'émission*

Les angles $V'_z(\lambda_p)$ et $V'_z(\lambda_l)$, définis par les intersections des nappes d'absorption et d'émission sont obtenus, dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ du repère optique, par une résolution numérique à partir des équations (2.22) et (2.37), et des éléments des tenseurs associés à $[n'(\lambda_p)]$ et $[n'(\lambda_l)]$. Dans R_{opt}, l'axe $\vec{Z}$ n'est évidemment plus un axe de symétrie pour les directions V'_z, que ce soit pour les propriétés d'absorption ou d'émission.

Dans R_{opt}, les axes d'absorption sont calculés à $V'_z(\lambda_p) = -5,0^\circ \pm 0,5^\circ$ modulo π et $V'_z(\lambda_p) = 69,5^\circ \pm 0,5^\circ$ modulo π. Ce résultat est en accord avec les données expérimentales : $V'_z(\lambda_p) = -4^\circ \pm 2^\circ$ modulo π et $V'_z(\lambda_p) = 68^\circ \pm 2^\circ$ modulo π compte tenu de la figure 2.15.

Dans le repère R'_{abs}, ceci correspond à un angle $V'_z|_{R'_{abs}} = 36^\circ \pm 2^\circ$ compté depuis l'axe $\vec{Z}'_{abs}$.

Dans R_{opt}, les axes de fluorescence sont calculés à $V'_z(\lambda_l) = 25,5^\circ \pm 0,5^\circ$ modulo π et $V'_z(\lambda_l) = -38,5^\circ \pm 0,5^\circ$ modulo π. Ce résultat est en accord avec les données expérimentales : $V'_z(\lambda_l) = 25,3^\circ \pm 1,5^\circ$ modulo π et $V'_z(\lambda_l) = -38,5^\circ \pm 1,5^\circ$ modulo π compte tenu de la figure 2.16. Dans le repère R'_{fluo}, ceci correspond à un angle $V'_z|_{R'_{fluo}} = 32,0^\circ \pm 1,5^\circ$ compté depuis l'axe $\vec{Z}'_{fluo}$.

Dans le repère optique, l'intersection des nappes s'écrit $n'_e(\theta) = n'_o(\theta)$, soit :

$$\frac{n'_{yy}}{n_e^3(\theta)} = \frac{n'_{xx}}{n_{xx}^3}cos^2(\theta) + \frac{n'_{zz}}{n_{zz}^3}sin^2(\theta) - \frac{n'_{xz}(n'_{xx}+n'_{zz})}{n_{xx}^2 n_{zz}^2}cos(\theta)sin(\theta) \tag{2.43}$$

L'équation (2.43) peut être simplement réécrite à partir des éléments diagonaux associés au repère $R' = R'_{abs}$ ou $R' = R'_{fluo}$: $[n']$ est alors diagonalisée sous la forme $\frac{n'_{y'y'}}{n_e^3(\theta+\tilde{\theta})} = \frac{n'_{x'x'}}{n_{xx}^3}cos^2(\theta) + \frac{n'_{z'z'}}{n_{zz}^3}sin^2(\theta)$, dans ce repère R' décalé angulairement de l'angle $\tilde{\theta} = \theta_{abs}$ ou $\tilde{\theta} = \theta_{fluo}$ autours de l'axe $\vec{Y}$. Compté dans R' depuis $\vec{Z}'$, ceci conduit à :

$$V'_z|_{R'} = Arcsin\left[\left(\frac{\frac{n'_{y'y'}}{n_e^3(V'_z|_{R'}+\tilde{\theta})} - \frac{n'_{x'x'}}{n_{xx}^3}}{\frac{n'_{z'z'}}{n_{zz}^3} - \frac{n'_{x'x'}}{n_{xx}^3}}\right)^{1/2}\right]_{R'} \tag{2.44}$$

- *A propos de la nature de l'émission de fluorescence observée*

Il a été mentionné au début de ce paragraphe, et au cours du paragraphe 2.3.5.2, que la proportion de photons émis par émission spontanée et stimulée n'est pas connue dans nos expériences. En faisant l'hypothèse qu'il s'agit majoritairement de l'émission spontanée, l'interpolation directe de la nappe de fluorescence associée au mode de polarisation tangent au plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, par l'expression (2.37), a conduit à un bon accord entre les courbes expérimentales et les courbes d'interpolation.

En faisant maintenant l'hypothèse que l'émission résulterait majoritairement d'une amplitication par stimulation conduisant à l'amplification de processus d'émission spontanée, les signaux mesurés sur sphère de diamètre D, dans les deux modes propres de polarisation, seraient proportionnels à : $e^{G_o(\theta,\lambda_l)D}$ avec $G_o(\theta,\lambda_l) = 2\frac{n'_o(\theta,\lambda_l)\omega_l}{c}$ et à $e^{G_e(\theta,\lambda_l)D}$ avec $G_e(\theta,\lambda_l) = 2\frac{n'_e(\theta,\lambda_l)\omega_l}{c}$, compte tenu de l'équation (2.16).

La transformation de ces données pour accéder à $G_{o,e}$, c'est-à-dire à $n'_{o,e}$ n'affecte pas significativement les profils de courbes dont la dépendance angulaire reste analogue à celle des données brutes de puissances d'émission de fluorescence. En particulier, la transformation envisagée par la fonction *Logarythme Néperien* des données expérimentales permet aussi la réalisation d'une interpolation correcte par l'expression (2.35). Ceci ne contribue pas à fournir des arguments forts afin de conclure sur la proportion d'émission spontanée et stimulée dans les mesures de fluorescence, ce qui n'est pas vraiment le propos de notre étude.

2.4.2.2 Validation du modèle analytique par calcul numérique

Comme le montrent les figures 2.15 et 2.16, les données expérimentales et leurs interpolations, à partir de l'expression analytique (2.35), sont en bon accord. Une résolution par méthode numérique de l'équation de propagation (2.31) permet également de calculer pas à pas les valeurs des parties imaginaires $n'(\theta, \lambda_p)$ pour l'absorption, et $\frac{n'(\theta,\lambda_l)}{n'_o(\theta,\lambda)}$ pour l'émission. La figure 2.17 permet la comparaison entre les interpolations effectuées sur les bases des données expérimentales d'une part, et le résultat du calcul numérique des parties imaginaires des indices à partir des valeurs obtenues suite à l'interpolation des données expérimentales. Il a été mis en évidence que les interpolations des données expérimentales et les calculs numériques qui en découlent sont en excellent accord. Ceci valide à nouveau l'approximation de linéarisation qui a conduit à l'expression analytique (2.35) à partir de l'équation de propagation.

En plus de confirmer l'approximation de linéarisation de l'équation de propagation, le calcul numérique des indices imaginaires dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ présente l'intérêt de simuler une expérience idéale de mesures d'absorption ou d'émission. En effet, au cours du calcul numérique, une unique direction de propagation est sollicitée, et la valeur calculée numériquement correspond strictement à la valeur de la direction de propagation considérée. En particulier, ceci correspond à la simulation d'une expérience idéale où les rayonnements étudiés ne présentent aucun astigmatisme ni aucune divergence alors qu'en réalité, ce n'est jamais strictement le cas au cours des expériences d'absorption, et encore moins au cours des expériences d'émission majoritairement spontanée.

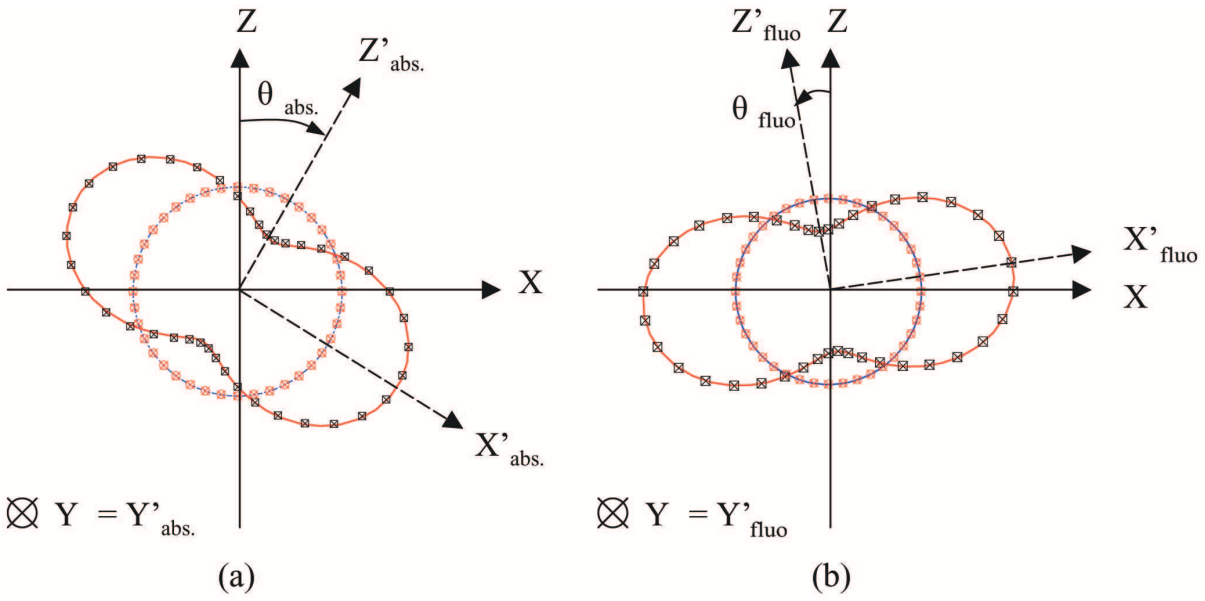


FIG. 2.17 – *Comparaison, pour les deux modes de polarisation, des courbes résultant de l'interpolation des données expérimentales (cercles et ellipses déformées en trait plein) avec les valeurs des indices imaginaires calculées à partir des paramètres obtenus suite aux interpolations en résolvant par méthode numérique l'équation de propagation (ronds rouges barrés et carrés noirs barrés) pour les modes respectivement orthogonal et tangent au plan* $(\vec{X}, \vec{Z})$. *(a) Interpolation et calcul numérique concernant l'absorption. (b) Interpolation et calcul numérique concernant l'émission.*

Les calculs numériques dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ ne présentent aucune irrégularité ni déformation des nappes au voisinage des axes optiques à l'angle V_z. En particulier, les sections circulaires calculées des nappes d'indices imaginaires ne présentent pas les *excroissances* observées pour l'émission selon des directions des quatre ombilics. L'importance de la distribution de directions de propagation considérées simultanément au cours des mesures semble se manifester principalement selon les directions associées aux discontinuités des nappes des indices réels. Ce point sera à nouveau discuté et illustré au paragraphe 2.5.3.

2.5 Bilan des aspects fondamentaux et méthodologiques

Les études expérimentales de l'absorption et de la fluorescence dans $YCOB : Nd$ en fonction de la direction de propagation dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ et du mode propre de polarisation, ont permis de développer différents aspects, tant sur le plan fondamental que sur le plan méthodologique.

2.5.1 Synthèse des aspects fondamentaux

Les travaux effectués ont permis de mettre en évidence l'influence forte de l'anisotropie de la partie réelle des propriétés optiques linéaires d'un milieu sur l'anisotropie des propriétés d'absorption et d'émission, ce qui a conduit à une description tensorielle de la partie imaginaire des indices complexes. Pour chaque processus fondamental de propagation, d'absorption, d'émission spontanée et d'émission stimulée, la description tensorielle de la partie réelle des propriétés optiques linéaires complexes correspond à l'existence d'une indicatrice composée de deux nappes fermées, associées à chacun des deux modes propres de propagation.

Ces travaux ont mis en évidence que différentes grandeurs physiques, fréquemment assimilées à des grandeurs scalaires, sont en fait correctement décrites par des grandeurs tensorielles. En particulier, dans le cas des milieux anisotropes, les coefficients d'Einstein devraient être décrits par des grandeurs tensorielles de rang deux. Les relations qui les lient sont également des relations tensorielles, et non pas simplement des relations de proportionnalité, comme le propose l'équation (2.3) dans les milieux isotropes, puisque le tenseur $[A_{21}]$ est relié au tenseur $[B_{21}]$ à travers le tenseur $[\hat{n}]^3$, où $[\hat{n}]$ peut être restreint en première approche au tenseur associé uniquement à sa partie réelle. De même, une écriture complète des relations de Kramers-Krönig liant les parties réelle et imaginaire d'un indice optique complexe en fonction de leur dispersion respective en longueur d'onde [55] nécessiterait un développement théorique afin d'en obtenir une écriture tensorielle dans les milieux anisotropes.

L'observation expérimentale dans le cristal biaxe $YCOB : Nd$, de classe d'orientation monoclinique, d'un décalage angulaire des directions propres d'absorption ou d'émission par rapport aux axes principaux du repère optique a conduit à l'introduction de nouveaux repères diagonalisant la partie imaginaire des propriétés optiques linéaires d'absorption et d'émission. Pour toutes les classes d'orientation de plus haute symétrie, les différents repères associés à la partie imaginaire des indices optiques, ainsi que le repère optique, sont confondus puisqu'ils sont imposés par symétrie selon les axes cristallographiques. Par contre, pour la classe d'orientation triclinique où il n'existe aucun lien entre le repère op-

tique et le repère cristallographique, il semble cohérent d'anticiper la situation des repères imaginaires en affirmant qu'ils sont complètement indépendants du repère cristallographique, du repère optique, mais aussi éventellement complètement indépendants entre eux. Ainsi, dans le cas d'un classe d'orientation triclinique, aucun plan principal du repère optique ne correspond à un plan principal d'un des repères liés à la partie imaginaire des indices de réfraction, ce qui en complique l'étude.

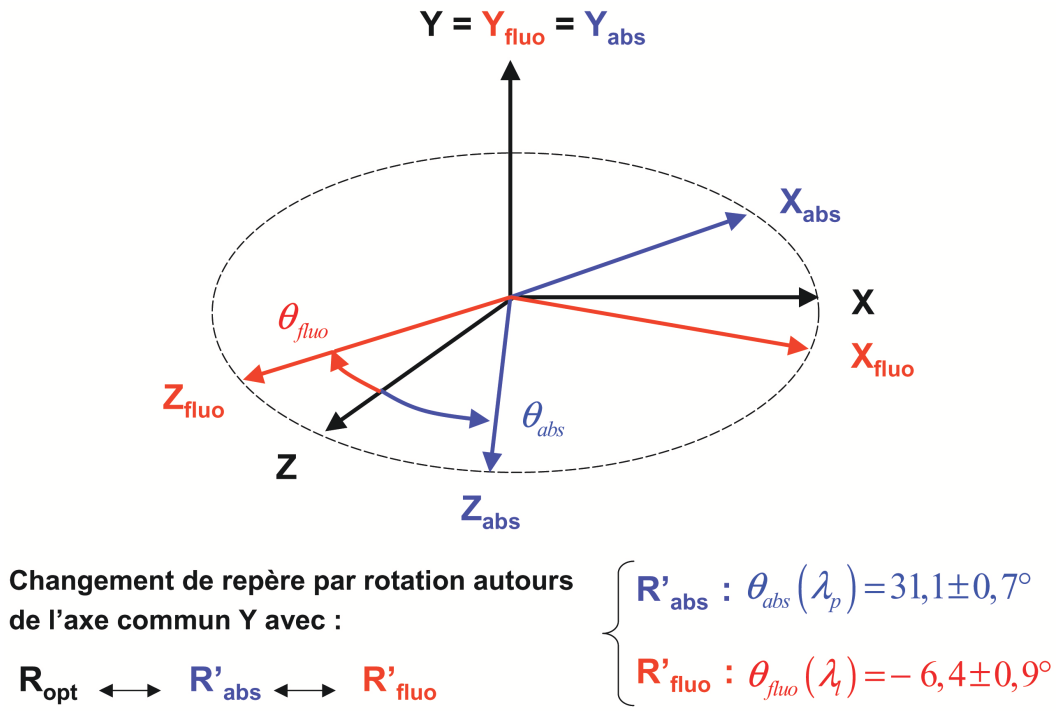


FIG. 2.18 – *Synthèse sur l'orientation relative des trois repères que sont le repère optique R_{opt}, le repère d'absorption R'_{abs} et le repère de fluorescence R'_{fluo} pour le cristal monoclinique biaxe $YCOB : Nd$, aux longueurs d'onde d'absorption $\lambda_p = 812$ nm et d'émission $\lambda_l = 1061$ nm.*

Dans $YCOB : Nd$, nos expériences d'absorption et d'émission ont mis en évidence que les deux repères associés sont distincts. Pourtant, au cours des deux expériences réalisées, ce sont les mêmes densités électroniques des ions Nd^{3+} qui ont été sollicitées. Cependant, elles ont été sollicitées entre des niveaux différents d'énergie. La description en terme d'oscillateurs électroniques associés aux deux transitions électroniques différentes, à $\lambda_p = 812$ nm et à $\lambda_l = 1061$ nm, conduit à des oscillateurs différents puisque les niveaux en énergie considérés ne sont pas les mêmes, et que les orbitales atomiques correspondant aux différents niveaux n'ont ni la même distribution de probabilité de présence, ni nécessairement les mêmes propriétés de symétrie. Il semble cohérent que, pour des transitions résonnantes

différentes, les repères qui diagonalisent les parties imaginaires associées sont distincts, ce qui contribue à expliquer l'observation expérimentale de deux repères distincts R'_{abs} avec $\theta_{abs} = 31,1^{\circ}$ et R'_{fluo} avec $\theta_{fluo} = -6,4^{\circ}$, comme le rappelle la figure 2.18.

Il serait intéressant d'effectuer des expériences d'absorption et d'émission entre les mêmes niveaux résonnants afin de définir si, pour une transition électronique donnée, les repères d'absorption et d'émission sont identiques, et constituent un unique objet physique correspondant à un unique repère diagonalisant la partie imaginaire associée à la transition considérée, ou bien s'il existe réellement trois repères a priori distincts associés à l'absorption, à l'émisssion stimulée et à l'émission spontanée de fluorescence. Puisque l'absorption et l'émission stimulée sont deux processus duals pour une même transition électronique et que les coeffients d'Einstein tensoriels $[B_{12}]$ et $[B_{21}]$ sont reliés par la relation scalaire $g_1 [B_{12}] = g_2 [B_{21}]$, il semble logique qu'il existe un unique repère diagonalisant l'absorption et l'émission stimulée pour une transition donnée. Par contre, l'émission spontanée semble à part, et la relation tensorielle qui lie $[A_{21}]$ et $[B_{21}]$ tend à suggérer que ce processus est diagonalisable dans un repère distinct de celui associé à l'absorption et à l'émission stimulée, même s'il s'agit de la même transition résonnante et du même potentiel coulombien de rappel auquel est soumis la densité électronique étudiée.

L'anisotropie des propriétés d'absorption et d'émission ont uniquement été décrites comme issue de l'anisotropie biaxiale du milieu environnant. La notion de site cristallographique d'insertion et de substitution des ions fluorescents au sein de la matrice anisotrope, ainsi que l'orientation des ions au sein de ces sites n'a pas du tout été nécessaire pour la descritpion théorique qui a été proposée. Cependant, ces questions d'occupation de sites de géométries et de symétries éventuellement différentes doivent avoir un lien avec la valeur numérique du décalage angulaire entre les repères liés à la partie imaginaire des indices et le repère optique. Il serait intéressant à l'avenir d'effectuer des expériences d'absorption ou d'émission au sein d'une même matrice, mais dans laquelle l'ion fluorescent occupe sélectivement des sites de géométries différentes afin de quantifier de manière spécifique l'influence de la géométrie des sites considérés. Il serait également intéressant d'effectuer des expériences, avec des ions fluorescents au sein d'un même site, qui sollicitent différentes transitions en absorption d'une part, et différentes transitions en émission d'autre

part : cela permettrait de faire intervenir, pour un même processus fondamental d'absorption ou d'émission, des orbitales atomiques de symétries différentes d'un même ion fluorescent, et d'étudier leur influence sur la valeur du décalage angulaire résultant entre les différents repères. Enfin, l'influence du codopage de matrices anisotropes avec plusieurs ions fluorescents distincts sur l'anisotropie des propriétés optiques linéaires d'absorption et d'émission est également un aspect riche à étudier.

Dans un premier temps, ce type de travaux ouvre un champ d'investigation sur la compréhension et la prédiction des orientations des repères associés à la partie imaginaire de l'indice optique pour un matériau donné. Au même titre que les indices de réfraction peuvent être affectés par l'insertion d'un élement luminescent et dépendre du taux de dopage [56], que les temps caractéristiques de désexcitation de niveaux excités fluorescents peuvent également varier avec la concentration en éléments dopants [17], il serait intéressant de mesurer l'influence de la concentration en ions luminescents sur l'anisotropie relative des nappes d'absorption et d'émission, ainsi que sur leur orientation et leur rotation dans le repère optique. A plus long terme, ceci pourrait déboucher sur l'investigation de la maîtrise de l'orientation des repères imaginaires en ingénierie des matériaux, afin d'optimiser simultanémment l'orientation des propriétés d'absorption et d'émission pour la réalisation de lasers ou de dispositifs auto-convertisseurs de fréquence avec des cristaux monocliniques ou tricliniques.

L'étude des propriétés d'absorption et d'émission, menée pour la première fois sur sphère, a des conséquences sur la conception de dispositifs lasers à partir de matrices cristallines dopées par des ions fluorescents. En effet, il a été mis en évidence au paragraphe 2.4.2.1 qu'il existe une erreur relative de l'ordre de 1 % à 3 %, et 18 % à 50 %, pour les cas liés respectivement à l'absorption et à l'émission dans $YCOB : Nd$, entre une mesure selon les axes principaux du repère optique et une mesure selon les directions principales d'absorption et d'émission. Suite à l'existence de repères propres qui ne coïncident pas entre eux, ni avec le repère optique, les directions optimales d'absorption et d'émission n'étant pas les mêmes, il s'avère impossible de maximiser simultanémment ces deux phénomènes, dans un dispositif, vis-à-vis de la direction de propagation dans le milieu laser. Le point de fonctionnement optimum de cristaux de basse symétrie tel que $YCOB : Nd$,

en terme de rendement ou de gain laser, n'est donc pas immédiat à déterminer ; ceci nécessite des études angulaires systématiques et détaillées des propriétés de ces cristaux. Les études sur sphère prennent alors tout leur sens en vue de l'optimisation de l'utilisation de ces cristaux dans la conception de nouvelles sources laser.

2.5.2 Synthèse des aspects méthodologiques

La mesure sur sphère de l'anisotropie des propriétés d'absorption et d'émission de $YCOB : Nd$ dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ constitue un développement méthodologique pour la caractérisation des propriétés de fluorescence des milieux anisotropes de classe de symétrie monoclinique. En effet, la sphère permet un accès expérimental direct aux directions propres et aux valeurs propres relatives aux phénomènes d'absorption et d'émission. Ceci contitue une extension de la méthode de la sphère à la métrologie de propriétés supplémentaires. La géométrie sphérique constitue ainsi la seule géométrie adaptée à l'étude de milieux anisotropes de basse symétrie, comme les classes de symétrie d'orientation monocliniques ou tricliniques.

Pour les cristaux de classe de symétrie d'orientation triclinique, la caractérisation complète des propriétés optiques linéaires d'absorption et d'émission est plus difficile puisqu'il faut effectuer différentes séries de mesures successives jusqu'à l'identification des plans principaux correspondant à la partie imaginaire sollicitée. Ceci constitue un futur challenge de l'équipe.

Dans le cas de cristaux monocliniques ou tricliniques à propriétés optiques non linéaires et à propriétés laser, la détermination du point de fonctionnement optimal pour une sollicitation simultanée des deux propriétés s'avère ainsi plus délicate que prévue, suite à l'existence des différents repères diagonalisant les parties réelle et imaginaire.

Le fort potentiel métrologique de la méthode de la sphère, qui a été étendue aux propriétés de fluorescence, apparaît comme la méthode expérimentale de choix pour la détermination des conditions optimales d'utilisation de ces cristaux dont la phénoménologie s'avère très riche.

2.5.3 Interprétations complémentaires et topologie 3D de la surface imaginaire - Perspectives

2.5.3.1 Anisotropie d'absorption et d'émission en fonction de la polarisation

Dans le cas de nos expériences actuelles, seules des mesures dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ ont été effectuées. De nouvelles campagnes de mesures sont nécessaires et prévues hors des plans principaux, afin de confirmer le modèle que nous avons proposé.

Plaçons-nous dans ce parargaphe dans le cas où tous les éléments non diagonaux sont nuls. Tous les repères sont donc superposés. En supposant que les différentes sections efficaces sont directement proprotionnelles à la partie imaginaire de l'indice optique complexe, il est alors instructif de comparer les expressions (2.21) et (2.23) en fonction de la direction de polarisation dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. L'équation (2.21) donne une dépendance avec la direction de propagation. Cependant, dans la mesure où les angles de double réfraction sont faibles et valent au plus quelques degrés, il est possible de faire l'approximation que les états de polarisation sont quasiment toujours orthogonaux à la direction de propagation. A cette approximation près, l'équation (2.21) peut alors également décrire l'anisotropie d'émission en fonction de la direction de polarisation, en remplaçant simplement θ par $\frac{\pi}{2} \pm \theta$, ce qui permute les fonctions sinus et cosinus. Les deux modèles de l'anisotropie de l'émission en fonction de l'angle θ de la polarisation du champ électrique extraordinaire $\vec{e}_e(\theta)$ dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ sont alors décrites par :

$$\begin{cases} \sigma_{stim}(\theta) = \dfrac{\sigma_{xx}\sigma_{zz}}{\left(\sigma_{xx}^2 cos^2(\theta) + \sigma_{zz}^2 sin^2(\theta)\right)^{(1/2)}} \\ n'_e(\theta) = \dfrac{\frac{n'_{xx}}{n_{xx}^3} sin^2(\theta) + \frac{n'_{zz}}{n_{zz}^3} cos^2(\theta)}{\left(\frac{sin^2(\theta)}{n_{xx}^2} + \frac{cos^2(\theta)}{n_{zz}^2}\right)^{3/2}} \end{cases} \tag{2.45}$$

L'expression (2.45) associée à $\sigma_{stim}(\theta)$ et à $n'_e(\theta)$ traduit respectivement des dépendances angulaires elliptiques et elliptiques déformées en fonction de la direction de polarisation. Indépendamment de l'éventuelle existence d'angles non nuls de rotation associés aux repères liés à la partie imaginaire de l'indice optique, les données expérimentales tendent à infirmer l'équation $\sigma_{stim}(\theta)$ au profit de la forme elliptique déformée $n'_e(\theta)$. La figure 2.19 montre clairement d'une part les différences de topologie et d'amplitude

suivant les deux modèldes.

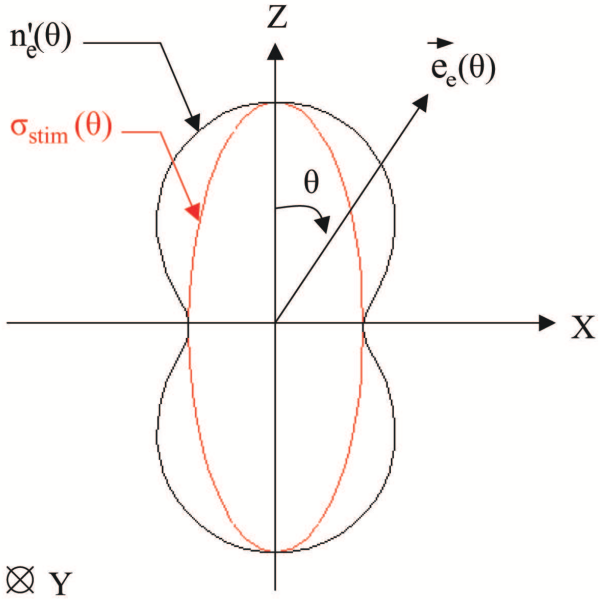


FIG. 2.19 – *Indicatrice d'émission en fonction de la direction de polarisation du champ électrique de l'onde extraordinaire $\vec{e}_e$ dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ d'un cristal biaxe. Courbe en trait noir : modèle σ_{stim}, courbe en trait rouge : notre modèle n'_e.*

2.5.3.2 Topologie 3D des surfaces imaginaires sans termes non diagonaux

- *Cas des cristaux biaxes*

Les sections des nappes liées à la partie imaginaire de l'indice complexe de cristaux biaxes ont été étudiées dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, tant au niveau expérimental que théorique. Il est possible d'explorer plus en détail la topologie des nappes imaginaires, en effectuant leurs tracés dans tout l'espace, à partir des expressions analytiques (2.19) proposées dans le paragraphe 2.2.2. Ces expressions ne font pas intervenir de termes non diagonaux, et les modélisations qui suivent sont aussi réalisées dans le cas où tous les repères propres sont superposés, ceci afin d'appréhender le plus simplement possible la topologie des nappes imaginaires.

Le tracé analytique des expressions (2.19) dans le cas de milieux faiblement absorbants est illustré par la figure 2.20 : elle décrit les nappes n'_{n^+} et n'_{n^-} en fonction de la direction de propagation. Les tracés (a) et (b) de cette figure mettent en évidence une topologie globale qui diffère fortement de celle associée aux nappes d'indices réels. En effet, il apparaît que les deux nappes sont en intersection, également de part et d'autre du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. Les

tracés (c) et (d) mettent en évidence la forte déformation de ces nappes au voisinage la direction associée à un axe optique.

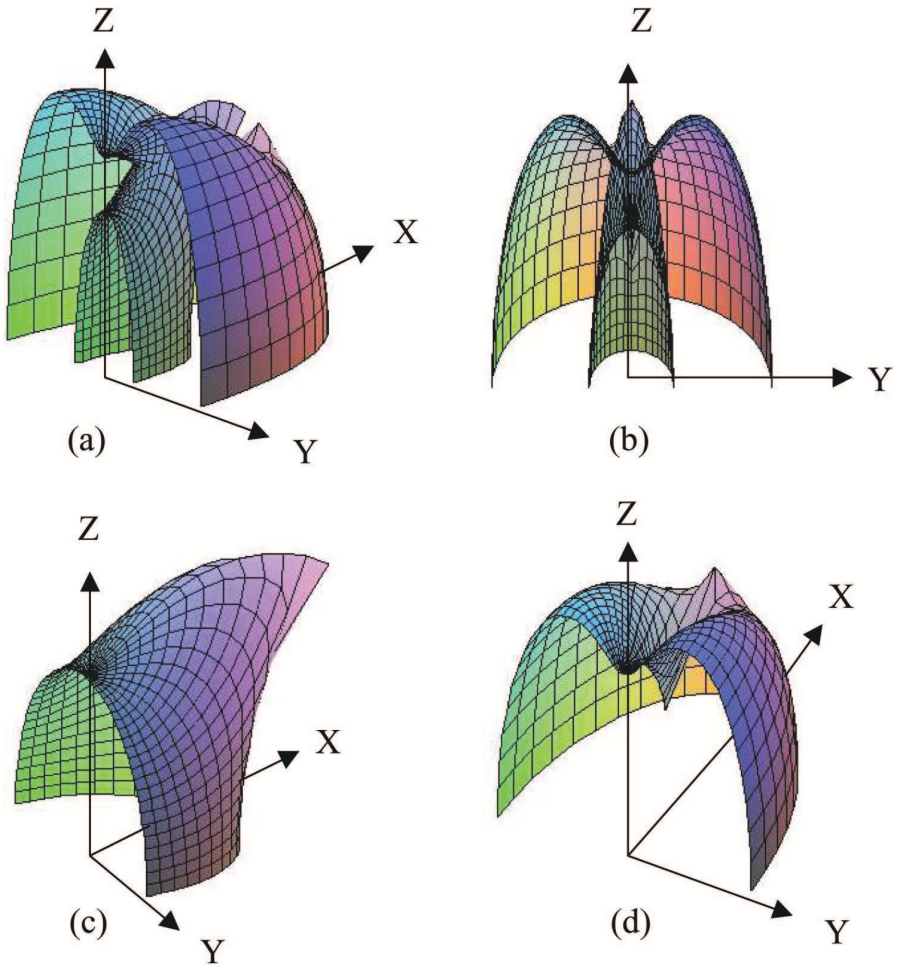


FIG. 2.20 – *Topologies des nappes associées à la partie imaginaire de l'indice complexe, sans termes non diagonaux, en fonction de la direction de propagation sur le domaine* $\phi = [-\pi/2, \pi/2]$ *et* $\theta = [0, \pi/2]$ *pour un cristal biaxe. (a) et (b) Topologies des nappes* n'_{n^+} *et* n'_{n^-} *selon deux perspectives différentes, et mise en évidence de l'intersection des deux nappes de part et d'autre du plan* $(\vec{X}, \vec{Z})$*. (c) Topologie de la nappe* n'_{n^-}*. (d) Topologie de la nappe* n'_{n^+}*.*

La topologie des nappes permet d'interpréter notamment la présence des excroissantes présentes sur les mesures d'émission associées à la polarisation ordinaire pour une propagation dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. La figure 2.21 comporte deux tracés qui illustrent l'évolution en fonction de la direction de propagation θ dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ des deux nappes associées à la partie imaginaire de l'indice.

La figure 2.21.(a) est un tracé avec $\phi = 0^\circ$ pour tout θ. Les régions où des variations très fortes des nappes ont été observées expérimentalement correspondent aux directions de

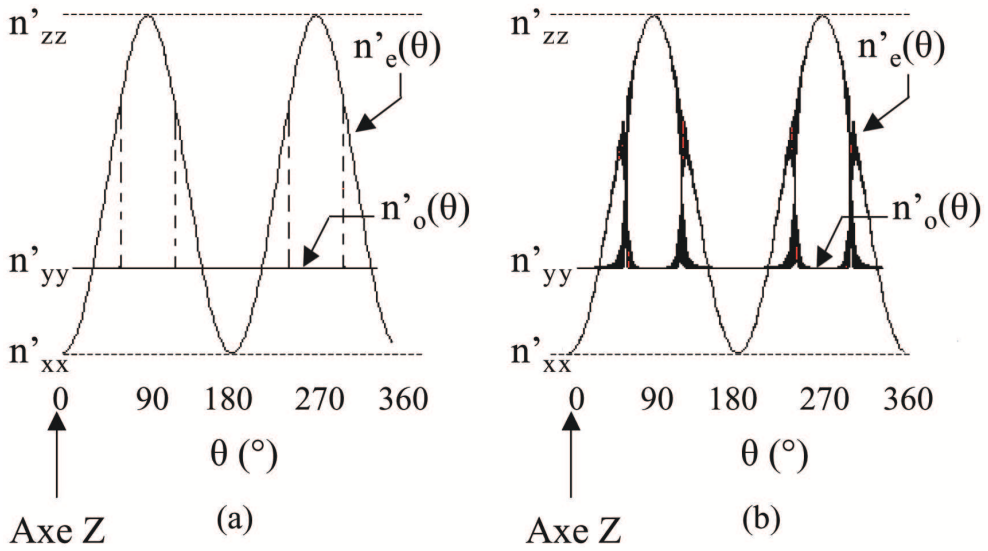


FIG. 2.21 – *Tracés en coordonnées cartésiennes des deux nappes n'_e et n'_o associées aux deux modes propres de polarisation en fonction de la direction de propagation dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ d'un cristal biaxe. (a) Propagation sans divergence en ϕ et exploration des nappes imaginaires strictement dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. (b) Propagation avec une divergence de $\phi = \pm 5^\circ$ et exploration des nappes imaginaires de part et d'autre du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$.*

propagation voisines des directions associées aux quatre ombilics. Au contraire, la figure 2.21.(b) représente le même tracé, comprenant en plus une divergence en $\Delta\phi = \pm 5^\circ$. Ce second tracé met en évidence, pour une propagation de polarisation ordinaire, la sollicitation de valeurs d'indices imaginaires plus élevées au voisinage des axes optiques que la valeur n'_y sollicitée en général par ce même mode de polarisation dans le reste du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$.

Les tracés de la figure 2.21 montrent les variations importantes des nappes n'_{n+} et n'_{n-} au voisinage des axes optiques. Ceci permet d'interpréter les excroissances observées sur la mesure du mode ordinaire d'émission comme proviennant de l'ensemble des valeurs de $n'(\lambda_l)$ sollicitées par la distribution de directions de propagation collectées par le détecteur à chaque mesure associée à une orientation de la sphère. La prise en considération de l'existence de variations importantes des nappes imaginaires au voisinage des directions correspondant aux axes optiques apporte ainsi une explication quant aux déformations fines selon ces directions de l'ellipse déformée.

Dans le cas où l'ellipse déformée associée au mode extraordinaire présente un décalage angulaire, ceci conduit à une rupture de la symétrie entre les quatre ombilics, il y a une émission plus intense pour les deux ombilics associés à l'axe optique le plus proche du

grand axe de l'ellipse déformée, tel qu'il a été observé pour l'émission de fluorescence sur la figure 2.12.

La topologie compliquée de la surface associée à la partie imaginaire de l'indice optique complexe sans termes non diagonaux ne semble pas pouvoir être déterminée par la réalisation d'une unique section dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. Afin de finaliser sa détermination et de confirmer la validité des surfaces introduites par la figure 2.20, il est nécessaire d'effectuer plusieurs coupes au voisinage du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ en fonction de θ pour différents angles ϕ. La figure 2.22 illustre l'évolution des nappes n'_{n+} et n'_{n-} pour $\theta \in [0^\circ, 90^\circ]$ et $\phi = 0^\circ, \pm 5^\circ, \pm 15^\circ, \pm 24^\circ, \pm 28^\circ$ et $\pm 90^\circ$, à partir des valeurs numériques des valeurs propres des indices optiques complexes de $YCOB : Nd$, en ayant suposé que tous les repères étaient superposés.

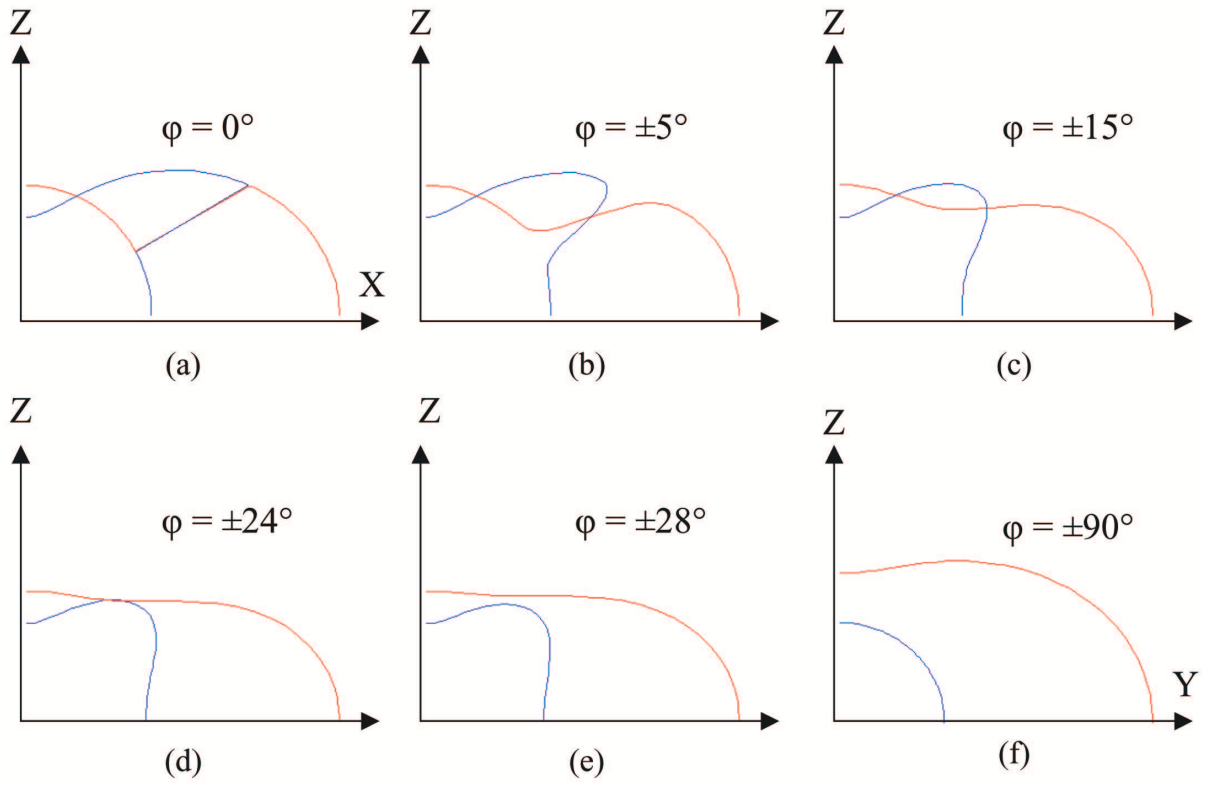


FIG. 2.22 – *Tracés numériques des sections des nappes n'_{n+} (courbe rouge) et n'_{n-} (courbe bleue) avec différents plans à ϕ constant pour un cristal biaxe. Mise en évidence de l'intersection de ces nappes de part et d'autre du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. Propagation dans les plans à $\phi = 0^\circ$ (a), à $\phi = 5^\circ$ (b), à $\phi = 15^\circ$ (c), à $\phi = 24^\circ$ (d), à $\phi = 28^\circ$ (e) et à $\phi = 90^\circ$ (f).*

A la différence de la partie réelle des indices, qui conduit à deux nappes en un contact strictement ponctuel au niveau des quatre ombilics, les nappes de la partie imaginaire sont

d'abord en intersection pour $\phi < 24^\circ$, dans l'illustration 2.22, puis en contact tangentiel dans le plan défini par $\phi = 24^\circ$ et enfin ne sont plus en contact au delà de ce plan.

Dans le cas où les repères ne seraient pas superposés, les surfaces présentées par la figure 2.20 présenteraient globalement une rotation autours de l'axe $\vec{Y}$, avec la présence de parties fortement déformées dans les directions des axes optiques. Des expériences complémentaires hors du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ de $YCOB : Nd$ sont nécessaires confirmer ou infirmer cette topologie.

- *Cas des cristaux uniaxes*

Dans le cas de cristaux uniaxes, les repères optique, d'absorption et d'émission, sont tous imposés par les propriétés de symétrie cristallographique du milieu. Ainsi, tous ces repères sont superposés entre eux et leur orientation commune ne présente pas de dispersion en longueur d'onde. Tout élément non diagonal est donc rigoureusement nul au sein du repère optique.

Le caractère uniaxial affectant autant la partie réelle que la partie imaginaire de l'indice optique complexe, il vient, dans le repère optique : $n_x = n_y = n_o$ et $n_z = n_e$ pour l'indice réel, et $n'_x = n'_y = n'_o$ et $n'_z = n'_e$ pour l'indice imaginaire. Les nappes imaginaires sont données dans les plans principaux par l'expression :

$$\begin{cases} n'_{o,xy}(\phi) = n'_e \quad et \quad n'_{e,xy}(\phi) = n'_o \\ n'_{o,yz}(\theta) = n'_o \quad et \quad n'_{e,yz}(\theta) = \dfrac{\frac{n'_o}{n_o^3} cos^2(\theta) + \frac{n'_e}{n_e^3} sin^2(\theta)}{\left(\frac{cos^2(\theta)}{n_o^2} + \frac{sin^2(\theta)}{n_e^2}\right)^{3/2}} \\ n'_{o,xz}(\theta) = n'_o \quad et \quad n'_{e,xz}(\theta) = \dfrac{\frac{n'_o}{n_o^3} cos^2(\theta) + \frac{n'_e}{n_e^3} sin^2(\theta)}{\left(\frac{cos^2(\theta)}{n_o^2} + \frac{sin^2(\theta)}{n_e^2}\right)^{3/2}} \end{cases} \tag{2.46}$$

Dans le cas d'un milieu uniaxe positif, les indices optiques complexes vérifient $n_e > n_o$ et $n'_e > n'_o$, ce qui impose que $n'_{n^+}(\theta, \phi) = n_e(\theta, \phi)$ et $n'_{n^-}(\theta, \phi) = n_o(\theta, \phi)$. Au contraire, au sein d'un milieu uniaxe négatif, les indices optiques complexes vérifient $n_o > n_e$ et $n'_o > n'_e$, ce qui impose que $n'_{n^+}(\theta, \phi) = n'_o(\theta, \phi)$ et $n'_{n^-}(\theta, \phi) = n'_e(\theta, \phi)$.

L'invariance par rotation autours de l'axe optique, parallèle à l'axe $\vec{Z}$ du repère optique, permet de restreindre l'étude des différentes nappes à un unique plan contenant l'axe

optique, tel que le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ par exemple. Dans le cadre de la description menée, l'invariance par rotation selon l'axe $\vec{Z}$ permet de conclure que la topologie des nappes imaginaires d'un milieu uniaxe est beaucoup plus simple que celle des nappes imaginaires d'un milieu biaxe. En particulier, il n'existe pas d'intersections des nappes n'_{n^+} et n'_{n^-} dans et hors du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. Au sein d'un milieu uniaxe, les nappes n'_{n^+} et n'_{n^-} sont simplement en contact tangent pour les directions de propagation selon l'axe optique. Les parties (a) et (b) de la figure 2.23 illustrent la topologie des nappes $n'_e(\theta)$ et $n'_o(\theta)$ dans les milieux uniaxes, respectivement de signe optique positif et négatif, en présentant les sections de ces nappes dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$.

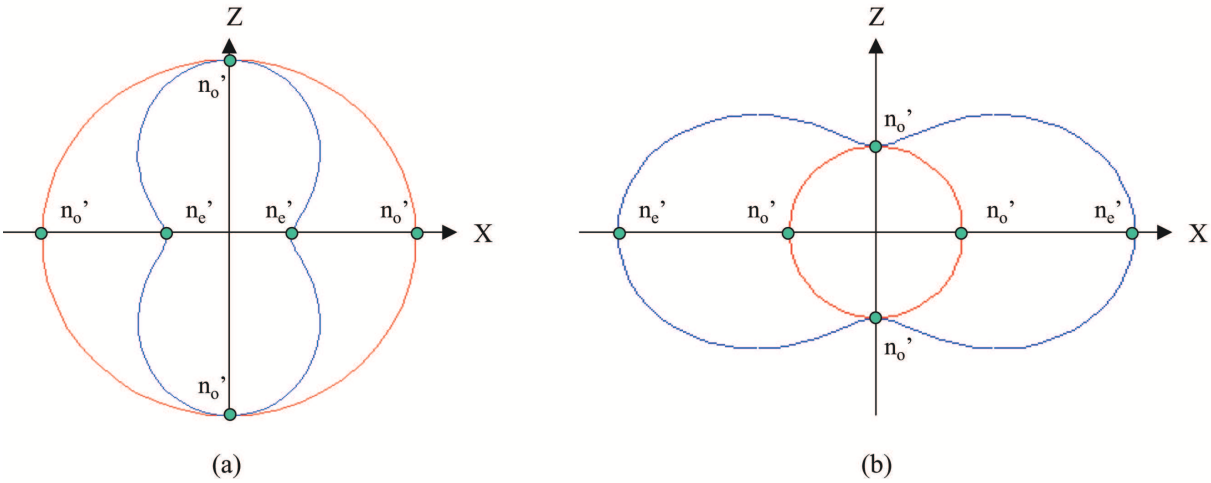


FIG. 2.23 – *Tracés analytiques des sections des nappes n'_{n^+} et n'_{n^-} dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ d'un cristal uniaxe. (a) Milieu uniaxe négatif. (b) Milieu uniaxe positif.*

Ces travaux de modélisation des surfaces d'absorption ou d'émission de fluorescence, caractérisant l'anisotropie des probabilités de réalisation de transitions résonnantes associées à des ions fluorescents, doivent être confirmés à l'avenir par de futurs travaux de l'équipe *Matière Condensée, Matériaux et Fonctions* de l'Institut Néel, au sein de milieux uniaxes à propriétés de fluorescence tels que les langasites dopées Nd^{3+}.

2.6 Conclusion

La problématique de ce chapitre porte sur l'anisotropie des propriétés d'absorption et d'émission d'ions fluorescents Nd^{3+} insérés dans une matrice biaxe de $YCOB$, de classe de symétrie d'orientation monoclinique.

Les premières mesures des surfaces d'absorption et d'émission ont été réalisées dans le plan de symétrie miroir de $YCOB : Nd$. Ces expériences ont mis en évidence le caractère biaxe de l'absorption et de l'émission des ions fluorescents placés dans la matrice, elle-même biaxe. Des développements théoriques, basés sur une équation de Fresnel complexe, ont permis d'établir des expressions qui interpolent correctement les données expérimentales, ce qui permet d'appréhender correctement les distributions angulaires de l'absorption et de l'émission.

Il a été montré que les directions propres d'absorption et d'émission ne correspondent pas aux directions propres du repère optique, ce qui nous a conduit à introduire deux nouveaux repères, l'un pour l'absorption et l'autre pour l'émission. Ainsi, les coefficients d'absorption et d'émission, qui sont classiquement mesurés selon les axes principaux du repère optique, ne correspondent pas aux valeurs propres des tenseurs d'absorption et d'émission.

D'autre part, les repères propres diffèrent entre eux par une rotation autour de l'axe $\vec{Y}$. Ainsi, les directions optimales pour l'absorption et pour l'émission ne sont pas les mêmes. La détermination de l'utilisation optimale de $YCOB : Nd$ nécessite donc une mesure complète des distributions angulaires d'absorption et d'émission. Ces résultats présentent donc un impact direct sur la conception de dispositifs laser à base de $YCOB : Nd$.

Enfin, ce travail a permis de compléter la palette métrologique de la méthode de la sphère, avec l'ajout de la mesure de la distribution angulaire de l'absorption et de la fluorescence.

Chapitre 3

Vers une métrologie directe de l'auto-doublage

3.1 Introduction

Comme exposé dans les chapitres 1 et 2, nous sommes en mesure de réaliser une métrologie complète des propriétés optiques linéaires et non linéaires des milieux anisotropes, ainsi que de leurs propriétés d'absorption et d'émission lorsque ceux-ci sont dopés par des ions fluorescents.

A titre d'illustration, ce chapitre commence par la mesure d'une portion du cône de SHG de type I à la longueur d'onde $\lambda_\omega = 1061$ nm, et du du rendement de conversion associé en unités relatives. Une fois les directions de SHG déterminées expérimentalement, quelques mesures de transmission à $\lambda_{pompe} = 812$ nm, d'émission à $\lambda_{fluo} = 1061$ nm sont réalisées, en lumière polarisée, le long des directions de SHG identifiées précédemment. Cette étude permet de repérer les directions selon lesquelles les propriétés de fluorescence et de SHG s'expriment simultanémment, et donc de sélectionner des directions susceptibles de générer un auto-doublage de fréquence, à partir de la fluorescence émise par le cristal étudié. Ce type de mesures s'inscrit complètement dans le cadre méthodologique décrit dans les chapitres 1 et 2.

Mais, nous souhaitons aller plus loin, avec une métrologie directe de l'auto-doublage sur sphère monocristalline, ce qui constitue l'objectif du travail décrit dans ce chapitre.

L'émission de fluorescence étant spontanée et incohérente, l'intensité associée est trop faible pour générer un rayonnement de second harmonique détectable. Par contre, une stimulation de la fluorescence permet d'obtenir des intensités plus élevées, susceptibles de conduire à un processus d'auto-doublage observable. Nous proposons donc d'insérer la sphère dans une cavité constituée de deux miroirs de haute réflectivité à la longueur d'onde de fluorescence, de façon à produire une émission laser [57, 58]. Dans ces conditions, la rotation de la sphère sur elle-même dans la cavité doit permettre de mettre en coïncidence les directions d'auto-doublage avec l'axe d'émission de la cavité laser. Une génération de second harmonique de l'onde laser est alors attendue selon les directions d'auto-doublage, dans la mesure où l'état de polarisation du faisceau laser est compatible avec la configuration de polarisation imposée par la condition d'accord de phase. Ainsi, l'étude complète et directe de l'auto-doublage repose sur les mesures des directions d'auto-génération de second harmonique, notées auto-SHG, mais aussi sur le rendement de conversion en énergie vis-à-vis de l'énergie de pompe injectée dans la cavité. Nous avons développé l'étude théorique d'une cavité linéaire constituée de deux miroirs plans, entre lesquels est positionnée la sphère. Cette problématique, d'un résonateur où le milieu à gain constitue une lentille épaisse, est à rapprocher de deux autres : le phénomène de lentille thermique dans les lasers solides, et les OPO à base de cristaux cylindriques.

3.2 Génération de second harmonique de type I dans $YCOB : Nd$

Une campagne de mesures des directions d'accord de phase de SHG de type I dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ a été réalisée. Les quatre directions d'accord de phase équivalentes ont été déterminées dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, ce qui a permis de donner, par symétrie, une valeur moyenne de l'angle de SHG de type I, correspondant à chaque longueur d'onde fondamentale λ_ω considérée. L'angle mesuré est l'angle θ en coordonnées sphériques entre l'axe $\vec{Z}$ et la direction d'accord de phase. Les résultats de cette mesure sur sphère de $YCOB : Nd$, et ceux obtenus précédemment sur sphère $YCOB$ [23], sont présentés dans la figure 3.1.

Le tableau 3.1 montre que les résultats de $YCOB$ et $YCOB : Nd$ sont similaires,

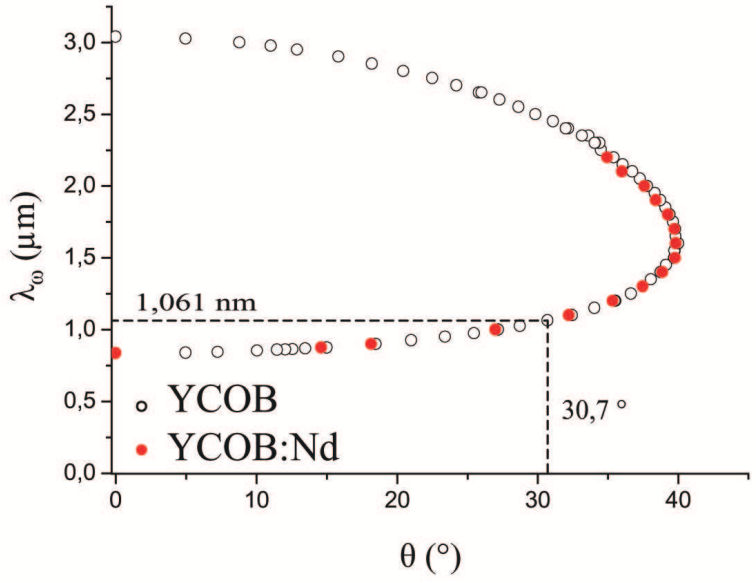


FIG. 3.1 – *Directions d'accord de phase pour la génération de second harmonique de type I dans le plan* $(\vec{X}, \vec{Z})$ *de* $YCOB$ *et* $YCOB : Nd$.

à la précision de nos mesures près. L'échantillon de $YCOB : Nd$ présente un taux de dopage molaire de l'ordre de 5 % en ions Nd^{3+} [17]. Sachant que des variations de l'ordre de 10^{-4} sur la valeur des indices de réfraction conduit à des variations de 1° sur les directions d'accord de phase, ces études comparatives montrent que les valeurs des indices de réfraction de $YCOB$ ne semblent donc pas affectées à plus de 10^{-4} par le dopage de l'échantillon sphérique de $YCOB : Nd$ à l'étude. Ainsi, dans ce qui suit, nous utiliserons les équations de dispersion déterminées préalablement pour $YCOB$ [23].

La figure 2.11 du chapitre 2 présentait une étude spectrale de la fluorescence de $YCOB : Nd$, qui rendait compte d'un maximum d'émission à la longueur d'onde $\lambda_l =$ 1061 nm. L'étude de la SHG de type I décrite par la figure 3.1 permet de mettre en évidence une direction d'accord de phase à $\theta = 30,7^{\circ}$ dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, pour la longueur d'onde fondamentale $\lambda_w =$ 1061 nm. Selon cette direction, le cristal $YCOB : Nd$ est susceptible de réaliser un auto-doublage de sa propre fluorescence. Ainsi, à partir des études menées sur sphère, portant successivement sur les propriétés de conversion de fréquence et de fluorescence, la méthode de la sphère permet la détermination des directions potentielles d'auto-doublage.

λ_ω (nm)	YCOB θ_{shg} (°)	YCOB:Nd θ_{shg} (°)
836	0	0
875	15.0	14.6
900	18.5	18.2
1000	27.2	27.0
1100	32.4	32.3
1200	35.5	35.4
1300	37.5	37.5
1400	38.8	38.9
1500	39.7	39.8
1600	40.0	39.8
1700	39.8	39.7
1800	39.4	39.3
1900	38.7	38.4
2000	37.8	37.6
2100	36.7	36
2200	35.4	34.9

TAB. 3.1 – *Tableau des directions d'accord de phase de SHG I de type dans le plan* $(\vec{X}, \vec{Z})$ *de* $YCOB$ *et* $YCOB : Nd$ *sur la plage spectrale.*

3.3 Mesures le long du cône d'accord de phase

Nous avons effectué, dans les plans principaux du repère optique, des mesures décrites dans le paragraphe 3.2, portant sur les directions d'accord de phase de SHG de type I, ainsi que les mesures de distributions angulaires en lumière polarisée de l'absorption et de l'émission décrites dans le paragraphe 2.3.5 du chapitre 2. Il apparaît maintenant naturel de vouloir prolonger la métrologie des propriétés de $YCOB : Nd$ selon n'importe quelle direction, et en particulier selon le long du cône de SHG de type I.

Les mesures présentées ci-dessous sont données à titre illustratif. En effet, la réalisation exhaustive de mesures séparées, des propriétés optiques non linéaires puis des propriétés d'absorption et d'émission, n'est pas l'objectif principal visé ici. Rappelons que notre objectif est d'aller vers une métrologie directe de l'auto-doublage, c'est-à-dire vers une une mesure simultanée des propriétés laser et non linéaires.

Le paragraphe 1.3.2 du chapitre 1 présente la possibilité de mesurer directment des cônes d'accord de phase à partir d'une sphère placée dans un cercle d'Euler. Cette méthodologie a été appliquée à la mesure d'une portion de cône d'accord de phase de SHG de type I, à la longueur d'onde fondamentale $\lambda_\omega = 1061$ nm, correspondant à la longueur

d'onde de fluorescence de $YCOB : Nd$.

La figure 3.2.(a) présente les données expérimentales correspondant aux directions d'accord de phase de SHG de type I, hors des plans principaux. La figure 3.2.(b) donne, en unités arbitraires, l'évolution du rendement de SHG de type I le long d'une portion du cône d'accord de phase présenté par la figure 3.2.(a).

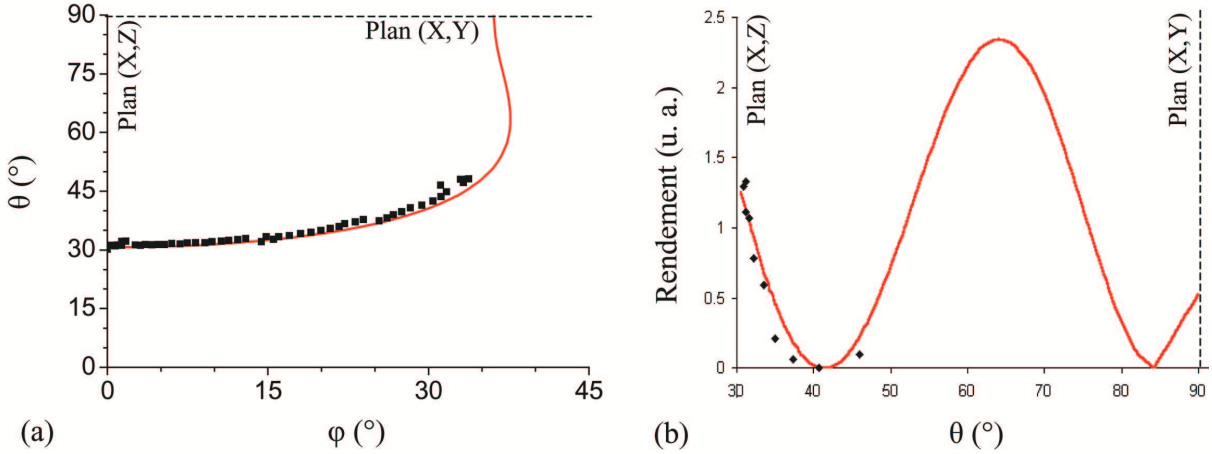


FIG. 3.2 – *Cône de SHG de type I en accord de phase dans $YCOB : Nd$ à 1061 nm. (a) Mesures expérimentales (carrés) et courbe calculée (trait continu) [23]. (b) Rendements expérimentaux mesurés (carrés) et coefficient effectif calculé (trait continu) [59].*

Le cône de SHG de type I s'étend sur les plages de valeurs extrêmes $30,6^\circ - 90^\circ$ pour θ, et $0^\circ - 37,6^\circ$ pour ϕ. Sur la plage angulaire explorée, les données expérimentales sont en bon accord avec la courbe calculée à partir de la référence [23].

Pour décrire entièrement le cône de SHG de type I, il aurait fallu décoller la sphère, la recoller, puis la réorienter sur la tête goniométrique. Cette étape est souvent coûteuse en temps, et constitue des moments risqués suite à la manipulation de la sphère.

La figure 3.2.(b) met en évidence, dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, à $\phi = 0^\circ$ et $\theta = 30,7^\circ$, une direction de SHG à 1061 nm, dont l'efficacité de conversion est acceptable, puisqu'elle n'est pas strictement nulle. En effet, le coefficient effectif associé n'est pas nul. Cette direction pourrait, par exemple, être une direction intéressante selon laquelle la réalisation de l'auto-doublage pourrait être tentée.

Sur la portion décrite du cône de SHG de type I, des mesures de transmission à $\lambda_{pompe} = 821$ nm, et d'émission à $\lambda_{fluo} = 1061$ nm ont été effectuées en lumière polarisée. Les données expérimentales sont données en unités arbitraires par la figure 3.3. L'octant

choisi n'ayant pas été noté au cours de ces mesures, il n'est pas possible de préciser l'état de polarisation le long des courbes présentées. Les symboles font alors référence, pour chaque direction de mesure le long du cône, aux transmissions maximale et minimale à 812 nm, et à l'émission maximale et minimale à 1061 nm, sans préciser la correspondance avec le mode de polarisation sollicité.

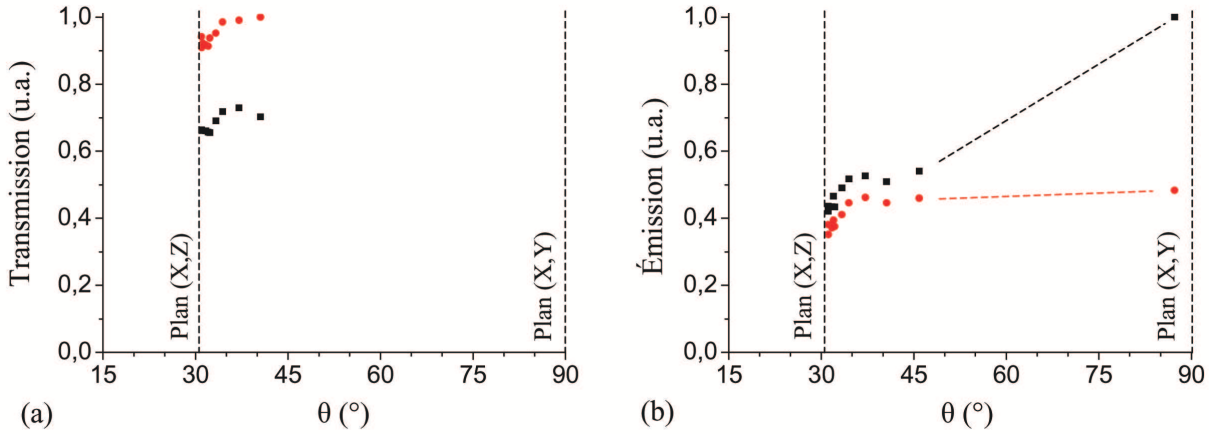


FIG. 3.3 – *Mesures en unités arbitraire le long d'une portion du cône d'accord de phase de SHG de type I dans $YCOB : Nd$, selon les deux modes de polarisation. (a) Transmission. (b) Fluorescence (avec guide en pointillé pour l'oeil).*

Remarque

Le paragraphe 2.3.4 du chapitre 2 a mis en évidence la brisure de symétrie caractérisée par l'existence des repères propres liés respectivement à l'absorption et à l'émission. Dans le cas de cristaux de même classe de symétrie d'orientation que $YCOB : Nd$, il ne subsiste qu'un seul et unique plan de symétrie miroir, le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, laissant invariantes les propriétés optiques cristallines. Cela a pour conséquence que, dans une étude successive des propriétés optiques non linéaires puis des propriétés d'absorption et d'émission le long des cônes de SHG, il n'est pas suffisant de se limiter à des mesures restreintes à un octant de l'espace, tel qu'il est généralement fait en optique non linéaire. En effet, s'il existe un unique plan de symétrie miroir, alors il faut mesurer les propriétés d'absorption et d'émission non pas dans un octant de l'espace des directions de propagation dans le repère optique, mais dans un demi-espace défini par le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, soit dans quatre octants. Ceci consitue un travail important en vue de définir le point de fonctionnement optimum de cristaux dopés de classe de symétrie d'orientation monoclinique.

En combinant les mesures des directions d'accord de phase de SHG de type I et des rendements de conversion associés avec les mesures de transmission et d'absorption, nous pouvons sélectionner, dans le repère optique, des directions susceptibles de conduire à un processus d'auto-doublage.

3.4 Rappels sur les lentilles thermiques et les OPOs à base de cristaux cylindriques

3.4.1 Les lentilles thermiques

Les processus thermiques apparaissent dans les milieux laser solides lorsque la quantité d'énergie convertie sous forme de chaleur conduit à des modifications macroscopiques du milieu, et notamment de ses indices de réfraction [60]. L'état actuel des connaissances sur l'origine des processus thermiques peut être résumé de la façon suivante [61] :

- une partie est due au défaut quantique, c'est-à-dire à l'énergie absorbée qui n'est pas restituée de manière radiative, correspondant à la différence d'énergie entre le photon pompe, de longueur d'onde λ_{pompe}, et le photon laser, de longueur d'onde $\lambda_{laser} > \lambda_{pompe}$.
- l'autre composante est attribuée aux photons pompe absorbés qui ne conduisent cependant pas à un processus radiatif.

Toute l'énergie absorbée par le cristal laser, et qui n'est pas réémise de manière radiative, est transférée à la matrice cristalline sous forme thermique. Ceci contribue à des augmentations de température, conduisant à trois effets décrits ci-dessous.

Une modification transverse de la distribution de température contribue à créer un gradient transverse d'indice de réfraction par effet thermo-optique, conduisant à la création d'une lentille épaisse, appelée lentille thermique, et dont la distance focale peut varier transversalement et longitudinalement dans le cristal. Une telle lentille est en général entachée d'aberrations sphériques.

Les contraintes thermiques peuvent aussi contribuer à une dilatation radiale du cristal, introduisant une biréfringence radiale à l'origine d'un effet de bi-focus.

Enfin, et dans une bien moindre mesure, des contraintes mécaniques peuvent apparaître et induire une légère courbure des faces du cristal initialement plan-plan.

Lorsqu'un barreau est pompé transversalement et de manière parabolique [61], tous les effets cités ci-dessus rendent le barreau optiquement équivalent à une lentille thermique, dont la focale non permanente s'établit typiquement sur des temps de l'ordre de la seconde. Pour des pompages de cavité en régime continu ou à haute-cadence, la distribution de température est stationnaire dans le cristal, et la lentille thermique est alors de focale constante dans le temps. Une telle focale est fonction de la dépendance des indices avec la température, de la puissance de pompage, ainsi que de l'efficacité du dispositif de refroidissement.

Les lentilles thermiques ont des distances focales, f_{th}, de l'ordre du mètre, voire de la dizaine de centimètres [61] ; elles peuvent donc affecter la stabilité des cavités, et il est important de prendre en compte leur existence au cours de la conception d'un laser.

Toute cavité laser linéaire peut être ramenée à une cavité équivalente, illustrée par la figure 3.4.(a), composée d'un milieu amplificateur et de deux miroirs M_1 et M_2 de rayons de courbure R_1 et R_2 [62]. Un milieu amplificateur, se comportant optiquement comme une lentille thermique épaisse, de focale f_{th}, possède deux plans principaux, respectivement placés aux distances h et h' de chacune des faces du cristal, comme l'illustre la figure 3.4.(a). Les miroirs M_1 et M_2 sont alors respectivement placés aux distances L_1 et L_2 par rapport à chacun des plans principaux.

Une transformation classique consiste à accoler les plans principaux du milieu amplificateur, ce qui revient à retrancher de la cavité linéaire, la portion de milieu amplificateur comprise entre ces deux plans [63]. La cavité équivalente, représentée par la figure 3.4.(b), est alors constituée d'une lentille mince de focale f_{th}, et des deux miroirs M_1 et M_2.

Le domaine de stabilité de la cavité laser linéaire de la figure 3.4.(b) est défini par l'inégalité suivante :

$$0 < g_1 g_2 < 1 \tag{3.1}$$

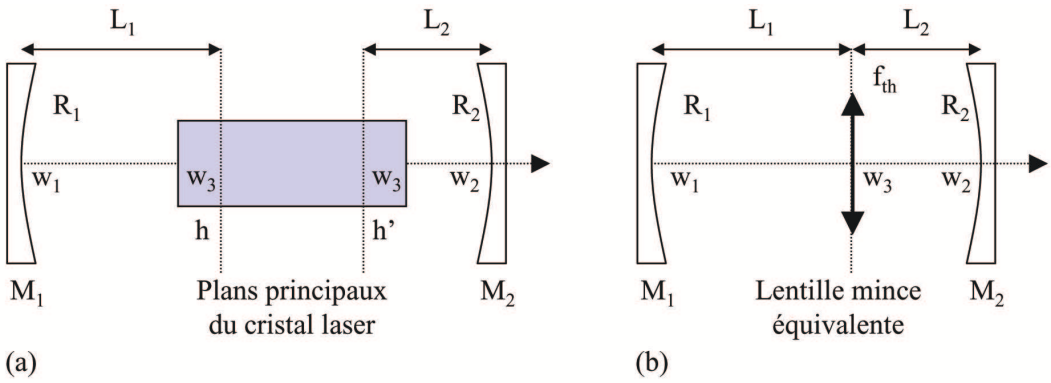


FIG. 3.4 – *Schéma d'une cavité laser linéaire comportant un milieu amplificateur optiquement équivalent à une lentille thermique de focale f_{th}. (a) Cavité réelle. (b) Cavité optiquement équivalente comprenant une lentille mince de focale f_{th}.*

avec $g_{1,2} = 1 - \frac{L_{2,1}}{f_{th}} - \frac{L'}{R_{1,2}}$, et $L' = L_1 + L_2 - \frac{L_1 L_2}{f_{th}}$

De façon très générale, le domaine de stabilité correspondant est représenté en hachuré sur la figure 3.5.

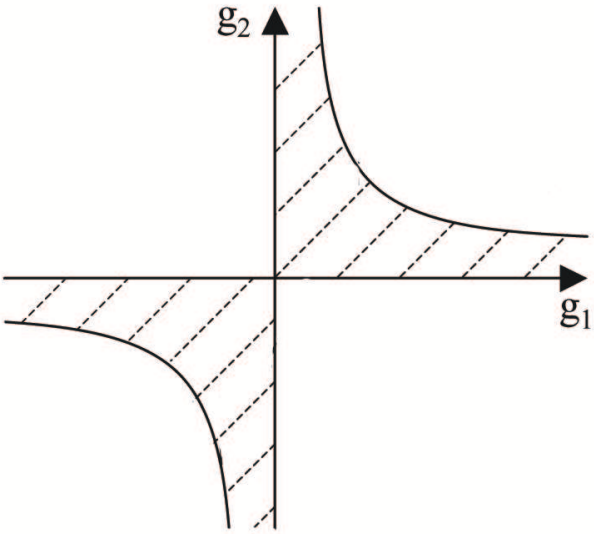


FIG. 3.5 – *Domaine de stabilité des cavités linéaires, qui peuvent toutes être ramenées à la cavité représentée par la figure 3.4.(b). Domaine de stabilité correspondant à la zone hachurée dans le plan (g_1, g_2), et dont les limites de domaine en $g_1 = 0$, $g_2 = 0$ et $g_2 = \frac{1}{g_1}$ sont exclues.*

Les représentations 3.4.(a) et 3.4.(b) conduisent à la même description du mode laser fondamental, dont les tailles du mode fondamental sont respectivement w_1 et w_2 sur les miroirs M_1 et M_2, ainsi que w_3 au niveau des deux plans principaux, c'est-à-dire au niveau

de la lentille mince de la figure 3.4.(b). Ces tailles, qui sont les rayons transverses à $1/e^2$ en intensité du mode laser fondamental, ne correspondent donc pas nécessairement à des cols de ce mode. Ces tailles sont définies par les expressions suivantes, λ_{laser} étant la longueur d'onde du mode généré dans la cavité, soit :

$$\begin{cases} w_{1,2} = \left(\dfrac{\lambda_{laser}|L'|}{\pi} \sqrt{\dfrac{g_{2,1}}{g_{1,2}\left(1 - g_1 g_2\right)}} \right)^{(1/2)} \\ w_3 = \left(\dfrac{\lambda_{laser}}{\pi} \sqrt{\dfrac{4u_1 u_2 g_1 g_2 + \left(u_1 - u_2\right)^2}{g_1 g_2 \left(1 - g_1 g_2\right)}} \right)^{(1/2)} \end{cases} \tag{3.2}$$

avec $u_{1,2} = L_{1,2}\left(1 - \frac{L_{2,1}}{R_{1,2}}\right)$.

3.4.2 Les Oscillateurs Paramétriques Optiques cylindriques

Les travaux antérieurs de l'équipe de Benoît Boulanger ont permis la conception et la réalisation d'Oscillateurs Paramétriques Optiques $\chi^{(2)}$ (OPO) basés sur des cristaux usinés sous forme de cylindres orientés et placés au sein d'une cavité constituée de deux miriors plans M_1 et M_2 [64–68]. Un schéma d'une telle source, appelée OPO cylindrique, est donné par la figure 3.6, où R est le rayon du cristal cylindrique, d_1 et d_2 sont les distances entre les surfaces du cristal à propriétés optiques non linéaires et les miroirs M_1 et M_2 respectivement.

Dans une cavité OPO $\chi^{(2)}$, deux ondes, de longueurs d'onde signal et complémentaire, notées λ_{signal} et $\lambda_{compl.}$ respectivement, sont générées à partir d'une onde pompe, à λ_{pompe}, telle que $\lambda_{pompe}^{-1} = \left(\lambda_{signal}^{-1} + \lambda_{compl.}^{-1}\right)^{-1}$. La cavité OPO peut être simplement résonnante, à λ_{signal} ou $\lambda_{compl.}$, doublement résonnante, à λ_{signal} et $\lambda_{compl.}$ [69], voire triplement résonnante, à λ_{signal}, $\lambda_{compl.}$ et λ_{pompe} [70].

La forme cylindrique permet d'accéder à toute direction d'accord de phase contenue dans le plan du cylindre, tout en restant en incidence normale. L'accordabilité angulaire de l'OPO est donc infinie, contrairement au cas de la configuration classique, où le cristal non linéaire est de forme parallélépipédique.

Le cristal à propriétés optiques non linéaires utilisé étant un milieu anisotrope, l'indice $n^{\pm}(\theta, \phi)$ sollicité, à la longueur d'onde résonnante dans la cavité OPO, dépend de la

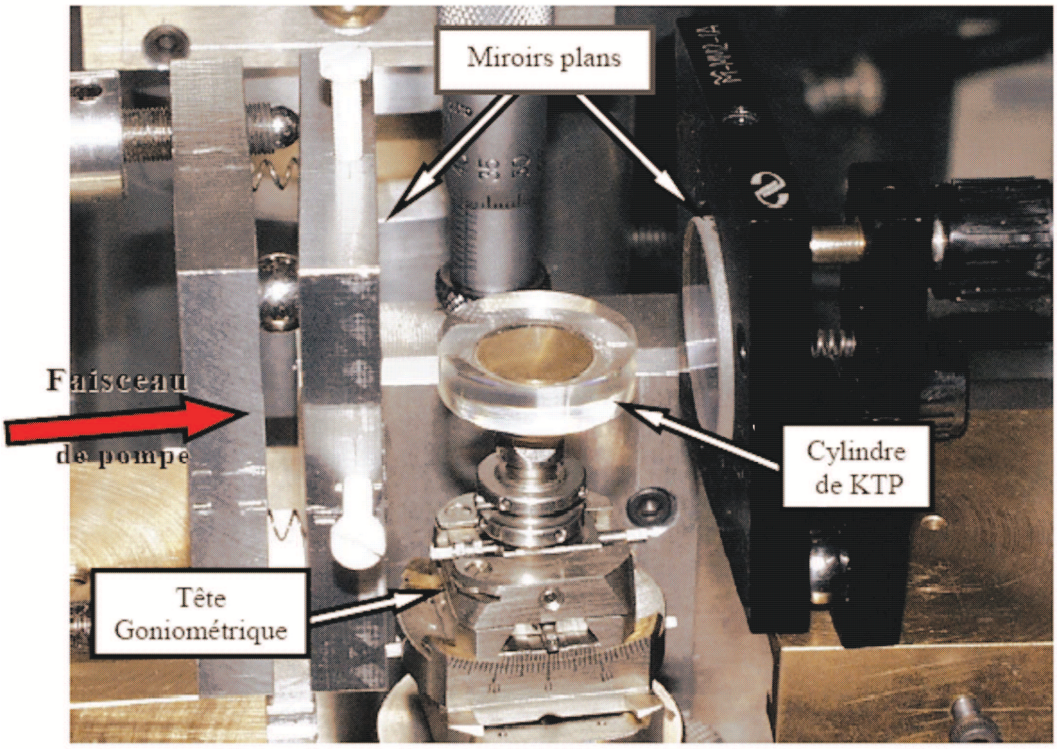


FIG. 3.6 – *Cylindre de KTP d'un diamètre de 2,5 cm placé dans une cavité OPO plan-plan. Le cristal est monté sur une tête goniométrique, facilitant les opérations de centrage et d'orientation (issu de [64]).*

direction de propagation, du mode de polarisation, tel que le décrit l'expression (1.5) du chapitre 1. Les cylindres, de rayon de courbure R, correspondent à une lentille cylindrique épaisse, de focale positive, f_{cyl}^{H}, dans le plan horizontal de la cavité OPO, soit [64] :

$$f_{cyl}^{H} = \frac{n^{\pm}(\theta,\phi)R}{2(n^{\pm}(\theta,\phi)-1)} \tag{3.3}$$

Les plans principaux de la lentille cylindrique sont confondus, et sont positionnés par symétrie au centre du cylindre. La focale cylindrique dans le plan horizontal est de l'ordre de grandeur du rayon de courbure du cristal cylindrique. Les tailles centimétriques des rayons R conduisent à des tailles typiques de focales cylindriques de quelques centimètres au plus. Ce sont donc des focales très courtes, qui peuvent facilement engendrer des phénomènes d'abérations géométriques, et pour lesquelles il est donc essentiel de s'assurer des conditions d'utilisation afin de rester dans l'approximation de l'optique paraxiale.

L'orientation du cristal dans la cavité conditionne la valeur de l'indice sollicité $n^{\pm}(\theta,\phi)$, ce qui influence donc directement la valeur de la focale f_{cyl}^{H} associée. De plus, il existe une dispersion en longueur d'onde de l'indice optique, ce qui entraîne également une dispersion

de la distance focale f_{cyl}^{H}.

Dans le cas d'une cavité OPO avec miroirs plans, la lentille f_{cyl}^{H} est le seul élément focalisant de la cavité, ce qui lui permet d'assurer seule, dans le plan horizontal uniquement, la stabilité de cette cavité. Le plan vertical, contenant l'axe de rotation du cylindre et l'axe de la cavité, ne vérifie par contre pas de condition de stabilité ; ce plan constitue alors une cavité multi-passage non résonnante.

Enfin, la configuration symétrique des cavités OPO cylindriques a été priviliégiée, en imposant l'égalité des distances entre chacun des miroirs plans et les surfaces du cristal.

Les réalisations expérimentales associées ont démontré la pertinence de l'utilisation de la réfraction induite par la courbure des faces du cristal non linéaire, en vue d'assurer la stabilité et la mise en oscillation résonnante d'une cavité simplement résonnante, à la longueur d'onde λ_{signal}. Cette approche a également permis de mettre en évidence que le cristal non linéaire peut simultanément avoir pour fonction de générer le processus de conversion de fréquence, ainsi que d'assurer la stabilité de la cavité grâce à la géométrie courbe de ses faces.

3.4.3 Bilan

Les spécificités des cavités laser avec lentille thermique, et des OPO cylindriques sont reportées dans le tableau 3.2.

Avec les puissances de pompage utilisées au cours de notre métrologie des cristaux auto-doubleurs, aucun effet thermique n'est attendu. Cependant, le formalisme développé pour caractériser l'influence des lentilles thermiques pourra être utilisé dans notre étude, en considérant alors une cavité laser fermée par deux miroirs plans, et contenant également une lentille dont l'origine physique et l'ordre de grandeur de sa focale restent à préciser.

Cependant,il est important de noter que l'approche généralement menée ne décrit pas particulièrement l'évolution du mode laser fondamental entre les plans principaux du milieu amplificateur analogue à une lentille thermique épaisse [63], ce qui constitue, dans cadre de notre étude, une insuffisance.

	Laser avec une focale thermique	OPO avec un cristal cylindrique
Milieu à gain	Cristal laser parallélépipédique	Cristal non linéaire cylindrique
Élément focalisant	Lentille thermique sphérique de focale f_{th}	Lentille géométrique cylindrique de focale f_{cyl}
Dépendance de l'élément focalisant	$n(T, \lambda_{laser})$ (pompage et refroidissement)	$n^{+,-}(\theta, \varphi, \lambda_{signal})$ rayon R
Ordre de grandeur de la lentille associée	~ 10 cm et plus	~ rayon de courbure ~ quelques cm
Stabilité de la cavité avec miroirs plans	Stabilité selon tout plan contenant l'axe de la cavité	Stabilité dans le plan du rayon de courbure

TAB. 3.2 – *Spécificités des cavités laser avec une lentille thermique, et des cavités OPO avec un cristal non linéaire cylindrique.*

Le formalisme développé pour une cavité OPO cylindrique est certainement celui qui se rapproche le plus de nos besoins. Cependant, il considère une cavité résonante, dont la stabilité n'est assurée que dans le plan contenant la courbure du cylindre qui se comporte comme une lentille épaisse.

Nous souhaitons réaliser une cavité laser, à partir de l'émission de fluorescence à λ_{laser} dans un cristal anisotrope, non linéaire et laser, usiné sous la forme d'une sphère de dimensions millimétriques. Il est donc pertinent d'utiliser le formalisme pour les lentilles thermiques, pour lequel la lentille considérée trouve son origine dans la réfraction induite par la courbure sphérique du cristal. Il nous faut ainsi considérer une lentille sphérique épaisse, dont la valeur de la distance focale est gouvernée par le rayon du cristal sphérique, et par l'indice $n^{\pm}(\theta, \phi; \lambda_{laser})$ sollicité dans la direction de propagation à la longueur d'onde λ_{laser}.

3.5 Quelle cavité laser pour l'étude des cristaux auto-doubleurs ?

Nous souhaitons concevoir une cavité laser plan-plan, dont la particularité repose sur la géométrie sphérique et les dimensions millimétriques du milieu amplificateur. A notre

connaissance, aucune étude complète dédiée à une telle cavité laser n'existe. Il est donc nécessaire de définir, pour cette cavité, la configuration géométrique la plus adaptée à l'étude des cristaux auto-doubleurs.

La cavité laser doit permettre un accès expérimental direct à la mesure des directions d'auto-accord de phase de génération de second harmonique de la fluorescence du cristal à l'étude. Cette cavité laser n'a pas vocation d'être utilisée comme source laser placée en amont d'un autre dispositif. Il n'apparaît donc pas nécessaire de rechercher une optimisation stricte de la géométrie de la cavité laser afin de la rendre très sélective vis-à-vis de la qualité spatiale du faisceau laser généré [65]. L'approche développée pour la conception et la réalisation d'un OPO cylindriques avec deux miroirs plans s'avère donc suffisante pour l'étude des cristaux auto-doubleurs [66, 67].

La configuration retenue pour la cavité laser étudiée est constituée de deux miroirs plans de haute réflexion à la longueur d'onde laser λ_{laser}, et d'un milieu amplificateur de géométrie sphérique de dimensions millimétriques. Dans ce cas, le rayon de courbure du cristal laser et non linéaire constitue le seul élément focalisant assurant la stabilité de la cavité.

Dans le cadre de l'étude des cristaux auto-doubleurs, la cavité laser doit être stable à la longueur d'onde d'émission λ_{laser}, afin de conduire à la génération d'une émission laser susceptible de s'auto-convertir de façon efficace. Il s'agit, dans un premier temps, de générer l'émission laser au sein de la cavité laser stable, puis de faire pivoter le milieu à gain sphérique sur lui-même, afin de mettre en coïncidence les directions d'auto-doublage de fréquence à λ_{laser} avec la direction d'émission du laser le long de l'axe de la cavité.

L'étude de la cavité laser retenue sera menée dans le cas le plus simple possible, pour lequel l'orientation du cristal sphérique ne conduit à aucun phénomène de double réfraction, ni sur le faisceau pompe, de longueur d'onde λ_p, ni sur le faisceau laser généré à λ_{laser}.

3.6 Domaine de stabilité de la cavité laser retenue

L'étude théorique de la cavité laser plan-plan avec milieu amplificateur sphérique est menée dans le cadre suivant :

- Seul le mode laser fondamental gaussien $TEM_{0,0}$ est considéré, en se plaçant dans l'approximation paraxiale.
- La diffraction, liée à la taille finie des différentes optiques, est négligée.
- Les deux miroirs M_1 et M_2 sont parfaitement alignés et perpendiculaires à l'axe de la cavité. Le milieu amplificateur est également idéalement sphérique. Il n'y a donc pas de processus de réfraction qui dévient les faisceaux gaussiens de l'axe de la cavité [71, 72].
- Le faisceau gaussien, de longueur d'onde λ_{laser}, ne subit aucun phénomène de double réfraction au cours de sa propagation dans le milieu sphérique, ce qui correspond à une propagation ordinaire au sens de l'optique cristalline, comme le décrit le paragraphe 1.2.1.1.
- Aucun effet thermique n'intervient dans cette étude, compte tenu des puissances de pompe considérées.

3.6.1 Configuration et motif de la cavité

Les miroirs M_1 et M_2, de haute réflexion à λ_{laser}, sont respectivement distants de d_1 et d_2 des surfaces d'entrée et de sortie de la sphère. La taille totale L_{cav} de la cavité étudiée est donc $L_{cav} = d_1 + d_2 + 2R$, où R est le rayon du cristal sphérique, où $R > 0$.

La figure 3.7 représente la configuration de la cavité laser plan-plan avec milieu à gain sphérique.

La stabilité de la cavité laser repose sur la modélisation du faisceau laser sur un aller-retour dans la cavité. Il existe une parfaite équivalence entre la représentation de la figure 3.7 et la représentation d'une suite périodique illustrée par la figure 3.8, ce qui permet de définir un motif de la cavité laser. L'origine du motif retenu est abritraire, et nous avons choisi de le positionner au niveau du miroir M_1. Le motif est alors constitué d'une propagation libre sur la distance d_1, d'une traversée de la sphère d'indice optique n, d'une propagation libre sur la distance $2d_2$, d'une deuxième traversée de la sphère, et enfin d'une

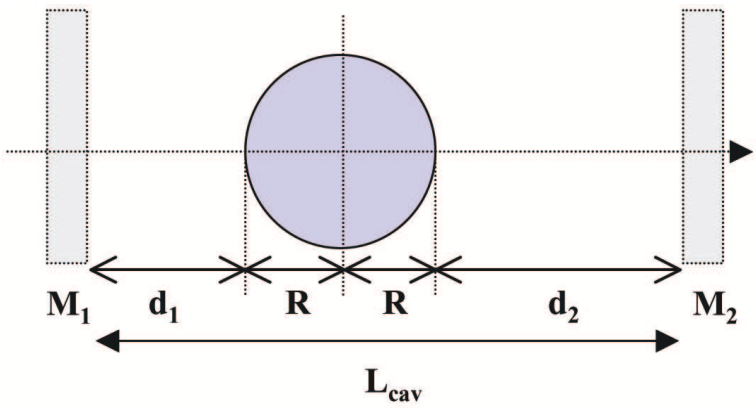


FIG. 3.7 – *Schéma de la cavité laser avec milieu amplificateur sphérique entre deux miroirs plans.*

dernière propagation libre sur la distance d_1. En effet, dans la représentation dépliée de la cavité, les miroirs plans n'ont pas d'effet sur la propagation du faisceau laser.

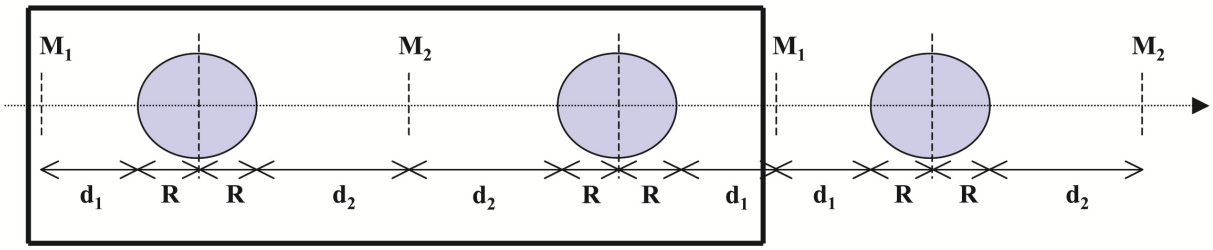


FIG. 3.8 – *Représentation dépliée de la cavité laser de la figure 3.7, et sélection d'un motif délimité par le cadre en trait plein.*

3.6.2 Représentation du motif par le formalisme de l'optique matricielle

Dans l'approximation paraxiale, une matrice de transfert, $M = \left[\begin{smallmatrix} A & B \\ C & D \end{smallmatrix}\right]$, est associée à chaque élément optique. Une telle matrice caractérise l'influence sur la propagation d'un rayon lumineux à travers cet élément [73]. Il s'agit alors de décrire les matrices de transfert de chacun des éléments optiques du motif retenu, ce que décrit la figure 3.8.

La matrice de transfert de la sphère, $M_{sphère}$, résulte des transformations successives dues au dioptre sphérique d'entrée, à la propagation sur la distance 2R dans la sphère d'indice $n > 1$, et au dioptre sphérique de sortie. Les matrices de transfert associées sont respectivement $M_e = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{n-1}{R} & 1 \end{bmatrix}$, $M_{2R,n} = \begin{bmatrix} 1 & \frac{2R}{n} \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$ et $M_s = M_e$. La matrice de transfert

$M_{sphère}$, donnée par le produit $M_{sphère} = M_s M_{2R,n} M_e$, s'écrit :

$$M_{sphère} = \begin{bmatrix} 1-a & \frac{2R}{n} \\ -\frac{a}{R} & 1-a \end{bmatrix} \tag{3.4}$$

où $a = \frac{2(n-1)}{n} > 0$. Les éléments de $M_{sphère}$ sont caractéristiques des éléments d'une lentille épaisse, placée dans le vide, d'épaisseur $2R$, et de focale positive $f_{sphère} = \frac{R}{a}$. La sphère est donc équivalente à une lentille épaisse convergente, de type boule, dont les plans principaux sont confondus en son centre. Les matrices de transfert en propagation libre sur les distances d_1 et d_2 s'écrivent respectivement $M_{d_1} = \left[\begin{smallmatrix} 1 & d_1 \\ 0 & 1 \end{smallmatrix}\right]$ et $M_{2d_2} = \left[\begin{smallmatrix} 1 & 2d_2 \\ 0 & 1 \end{smallmatrix}\right]$.

La matrice de transfert, $M_{motif} = \left[\begin{smallmatrix} A_{motif} & B_{motif} \\ C_{motif} & D_{motif} \end{smallmatrix}\right]$, associée au motif sélectionné, est donnée par le produit $M_{motif} = M_{d_1} M_{sphère} M_{2d_2} M_{sphère} M_{d_1}$. Ses quatre éléments s'écrivent :

$$\begin{cases} A_{motif} = \left((1-a)^2 + \dfrac{2a\,(a-1)}{R}\,(d_1+d_2) + \dfrac{2a^2}{R^2} d_1 d_2\right) \\ B_{motif} = (1-a)\,\dfrac{4R}{n} + 2\left(1-2a+n^2-\dfrac{2a}{n}\right)\dfrac{d_1}{R} + 2\left(1-2a+n^2\right)\dfrac{d_2}{R} + \\ \qquad (a-1)\,\dfrac{2ad_1^2}{R} + (a-1)\,\dfrac{4ad_1d_2}{R} + \dfrac{2a^2}{R^2} d_1^2 d_2 \\ C_{motif} = \dfrac{2a}{R}\left(\dfrac{ad_2}{R} + a - 1\right) \\ D_{motif} = A_{motif} \end{cases} \tag{3.5}$$

Remarques

- Les expressions des quatre coefficients dépendent du motif retenu, c'est-à-dire du choix arbitraire de l'origine du motif. L'égalité observée ici entre les coefficients A_{motif} et D_{motif} est un cas particulier, qui découle directement du motif retenu. Ceci sera discuté à nouveau dans le paragraphe 3.6.4.
- La distance focale associée au motif est $f_{motif} = -\frac{1}{C_{motif}}$.

3.6.3 Condition de stabilité et domaine de stabilité

D'un point de vue physique, la stabilité d'une cavité laser traduit le fait qu'après une propagation le long du motif de la cavité, un faisceau gaussien n'est pas affecté et se retrouve transformé en lui-même. La condition de stabilité du motif s'écrit alors [73] :

$$-1 < \frac{A_{motif} + D_{motif}}{2} < 1 \tag{3.6}$$

où les éléments diagonaux A_{motif} et D_{motif} sont donnés par les expressions (3.5). La condition de stabilité (3.6) peut alors être réecrite sous la forme (3.1), soit $0 < g_1 g_2 < 1$, où les termes g_1 et g_2 sont définis par :

$$\left\{ g_{(1,2)} = \frac{a}{R}\left(d_0 - d_{2,1}\right) = \frac{1}{f_{courb}}\left(d_0 - d_{2,1}\right) \right. \tag{3.7}$$

avec $d_0 = \frac{1-a}{a}R = \frac{2-n}{n}f_{sphère}$, ce qui impose que $d_0 > 0$ lorsque $n < 2$, et $d_0 < 0$ lorsque $n > 2$. Dans ce cas, la condition de stabilité peut s'écrire :

$$0 < g_{(1)}g_{(2)} = \frac{a^2}{R^2}\left(d_0 - d_2\right)\left(d_0 - d_1\right) < 1 \tag{3.8}$$

Remarques

- La condition de stabilité de la cavité porte sur la demi-trace de la matrice M_{motif}. Cette grandeur est un invariant de la matrice, ce qui traduit que la condition de stabilité ne dépend de l'origine arbitraire du motif retenu.
- La factorisation en $g_{(1,2)}$ des équations (3.7) et (3.8) peut aussi être réécrite sous la forme $g_{(1,2)} = \frac{a}{R}\left(d_0 - d_{2,1}\right) = 1 - \frac{d_{2,1}+R}{f_{sphère}}$. Ceci conduit alors exactement aux $g_{1,2}$ donnés par (3.1), en se plaçant dans le cas particulier où les deux miroirs M_1 et M_2 sont de géométrie plane avec des rayons de courbure infini d'une part, et où la lentille $f_{sphère}$ remplace la lentille d'origine thermique f_{th}.

Le domaine de stabilité de la cavité, représenté de manière très générale par la figure 3.5 [74], est décrit par la figure 3.9 pour notre cavité. Dans le cadre de notre étude, les paramètres variables de la cavité sont les dimensions géométriques définies par les distances d_1 et d_2, le rayon R et l'indice de réfraction dans la sphère étant fixés. La

représentation pertinente du diagramme de stabilité doit donc être réalisée à partir d'un graphe dont les axes correspondent aux variables d_1 et d_2, afin de permettre une lisibilité la meilleure possible.

Le domaine théorique de stabilité est entièrement représenté par la partie hachurée de la figure 3.9.(a). Le tracé est effectué avec les valeurs numériques correspondant à la sphère de $YCOB : Nd$ qui doit être mise en cavité, afin de réaliser l'expérience associée à cette étude, soit un rayon $R = 3,72$ mm et un indice $n(\lambda_{laser}) = 1,6904$. La figure 3.9.(b) restreint le domaine théorique complet à la portion physiquement accessible d'un point de vue expérimental, en limitant son extension aux distances d_1 et d_2 positives.

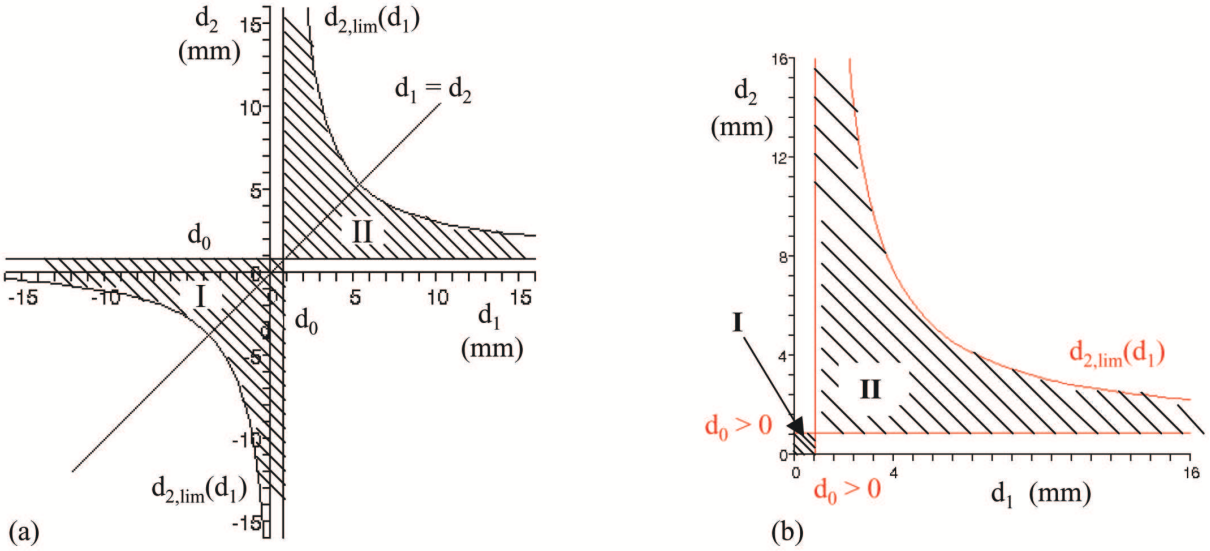


FIG. 3.9 – *Domaine de stabilité hachuré dans le plan (d_1, d_2), composé de deux domaines disjoints I et II, Tracé effectué pour $R = 3,72$ mm et $n = 1,6904$. (a) Tracé théorique complet, pour des distances d_1 et d_2 positives et négatives. (b) Tracé limité aux portions physiquement accessibles, pour des distances d_1 et d_2 positives.*

Les limites du domaine de stabilité sont déterminées successivement, à partir des deux inégalités suivantes :

- $g_{(1)}g_{(2)} < 1$, soit, en fonction de d_1 et d_2 :

$$\begin{cases} d_2(d_1) < d_{2,lim}(d_1) = \dfrac{f^2_{sphère}}{(d_1 - d_0)} + d_0 \quad pour \;\; d_1 > d_0 \\ d_2(d_1) > d_{2,lim}(d_1) = \dfrac{f^2_{sphère}}{(d_1 - d_0)} + d_0 \quad pour \;\; d_1 < d_0 \end{cases} \tag{3.9}$$

- $g_{(1)}g_{(2)} > 0$, soit, en fonction de d_1 et d_2 :

$$\begin{cases} d_2(d_1) > d_0 & pour \;\; d_1 > d_0 \\ d_2(d_1) < d_0 & pour \;\; d_1 < d_0 \end{cases} \tag{3.10}$$

où d_0 est donné par l'équation (3.7).

Le domaine de stabilité, exprimé en fonction de d_1 et d_2, est donc composé de deux domaines disjoints, notés I et II, tels que :

- le domaine I est délimité par $0 < d_2(d_1) < d_0$ pour $d_1 < d_0$;
- le domaine II est délimité par $d_0 < d_2(d_1) < d_{2,lim}(d_1)$ pour $d_1 > d_0$.

Le domaine de stabilité présente une symétrie par rapport à la droite $d_1 = d_2$, caractérisant l'invariance du problème physique par permutation des notations des distances d_1 et d_2 . De plus, il présente une extension infinie dans le plan (d_1, d_2). Les portions de ce domaine de stabilité, qui sont pertinentes pour l'étude de l'auto-doublage, vont être successivement discutées au paragraphe 3.6.4.

Remarques

- Les frontières du domaine restreint de stabilité sont des configurations exclues.
- Les expressions des frontières du domaine sont proportionnelles au rayon R de la sphère. Les dimensions du domaine de stabilité sont donc directement proportionnelles et contraintes par les dimensions de la sphère d'une part, et par son indice de réfraction d'autre part. Ceci tend à fixer des dimensions millimétriques à la cavité laser.

A $\lambda_{laser} = 1061$ nm, les trois indices principaux de $YCOB : Nd$ ont respectivement pour valeurs $n_x = 1,6376$, $n_y = 1,6904$ et $n_z = 1,7081$ [23]. Les trois valeurs sont inférieures à 2, ce qui conduit, pour chacun des indices, à un domaine de stabilité accessible, de la forme illustrée par la figure 3.9.(b). La figure 3.10 présente la variation de l'extension du domaine de stabilité physiquement accessible en fonction de l'indice principal de réfraction de $YCOB : Nd$, à $\lambda_{laser} = 1061$ nm. Chacun de ces trois indices est susceptible d'être sollicité au sein d'une cavité laser, lorsque l'axe correspond à un des axes principaux de $YCOB : Nd$

Dans le cas d'une propagation hors des plans principaux, l'indice $n^{\pm}(\theta, \phi)$, sollicité à la longueur d'onde laser λ_{laser}, vérifie : $n_x \leqslant n^{+,-}(\theta, \phi) \leqslant n_z < 2$. Les limites du

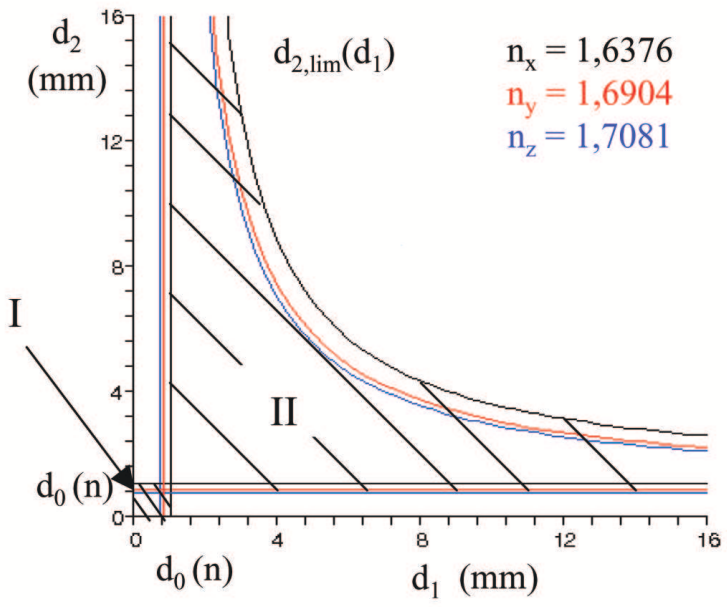


FIG. 3.10 – *Variation des domaines de stabilité I et II en fonction de l'indice principal de réfraction sollicité à $\lambda_{laser} = 1061$ nm, avec la sphère de $YCOB : Nd$.*

domaine de stabilité associé à $n^{+,-}(\theta, \phi)$ restent donc toujours comprises entre les limites des domaines associés aux indices $n_x$et n_z, ce que représente la figure 3.10. L'évolution du domaine de stabilité en fonction de l'indice est monotone, ce qui est un point positif vis-à-vis de la conception d'une cavité laser avec milieu à gain sphérique. En effet, la figure 3.10 met en évidence une zone importante pour laquelle des couples $(d_1 > 0, d_2 > 0)$ sont simultanément compatibles avec les domaines de stabilité des trois indices principaux.

3.6.4 Restriction des configurations de la cavité stable pour l'étude de l'auto-doublage

L'étude de cristaux auto-doubleurs nécessite la réalisation d'une émission laser, simultanémment convertie par auto-SHG dans le milieu laser et non linéaire sphérique. Pour réaliser une interaction non linéaire de bonne qualité spectrale, associée à un rendement de conversion optimum, il est essentiel que le processus paramétrique se déroule, pour l'onde fondamentale correspondant à l'onde laser, dans les conditions de propagation en onde plane dans la sphère. Cette contrainte rend nécessaire l'existence, à λ_{laser}, d'une zone de Rayleigh dont l'extension est supérieure à l'épaisseur de la sphère. Elle suppose donc l'existence d'un col du mode laser dans la sphère de $YCOB : Nd$, dont le rayon à $1/e^2$

en intensité, noté w_{int}, est repéré par rapport au centre de la sphère par la position Z_{int}, vérifiant $-R < Z_{int} < R$.

La planéité des miroirs M_1 et M_2 de la cavité impose à la surface d'onde laser d'être localement plane en leur surface, ce qui conduit à l'existence de deux autres cols du mode laser, notés w_1 et w_2 respectivement. Ainsi, pour un couple $(d_1 > 0, d_2 > 0)$ du domaine de stabilité, le paramètre complexe q_1, associé au faisceau laser au niveau du miroir M_1, est bien défini.

Suite au choix de l'origine du motif de la cavité, les éléments A_{motif} et D_{motif} sont égaux. La partie réelle de $1/q_1$ est alors nulle, ce qui correspond à un rayon de courbure R_1 infini à l'origine du motif, en accord avec la planéité du miroir M_1. Ainsi, pour un couple $(d_1 > 0, d_2 > 0)$ du domaine de stabilité, le col de faisceau w_1 est donné par :

$$w_1 = \left[\frac{\lambda_{laser} |B_{motif}|}{\pi \sqrt{1 - A_{motif}^2}} \right]^{1/2} \tag{3.11}$$

Entre le miroir M_1 et une position z dans le cristal amplitficateur, repérée algébriquement depuis le centre de la sphère et vérifiant $-R < z < R$, la matrice de transformation associée $M_{int} = \left[\begin{smallmatrix} A_{int} & B_{int} \\ C_{int} & D_{int} \end{smallmatrix}\right]$ vérifie $M_{int} = M_{R+z,n} M_e M_{d_1}$, à partir des matrices de transfert $M_{d_1} = \left[\begin{smallmatrix} 1 & d_1 \\ 0 & 1 \end{smallmatrix}\right]$, $M_e = \left[\begin{smallmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{n-1}{R} & 1 \end{smallmatrix}\right]$ et $M_{R+z,n} = \left[\begin{smallmatrix} 1 & \frac{R+z}{n} \\ 0 & 1 \end{smallmatrix}\right]$.

Le paramètre q_1, depuis le miroir M_1 jusqu'à une position z dans la sphère, est alors transformé en un paramètre vérifiant $\frac{q_{int}}{n} = \frac{A_{int} q_1 + B_{int}}{C_{int} q_1 + D_{int}}$ [74]. L'existence d'un col de faisceau w_{int} à la position $z = Z_{int}$ correspond à un paramètre q_{int} purement imaginaire, dont le rayon de courbure est infini. Ceci est réalisé à la position Z_{int}, lorsque la relation $A_{int}^2 + \frac{B_{int}^2}{q_1^2} = 0$ est vérifiée. La taille du mode laser au niveau du col, en Z_{int}, a alors pour expression :

$$w_{int} = \left[\frac{\lambda_{laser} |q_1|}{\pi} (A_{int}^2 + B_{int}^2 / |q_1^2|) \right]^{1/2} \tag{3.12}$$

avec

$$\begin{cases} A_{int} = 1 - \dfrac{(n-1)(R+z)}{nR} \\ B_{int} = d_1 + \dfrac{R+z}{n}\left(1 - \dfrac{n-1}{R}d_1\right) \\ |q_1| = \dfrac{\pi w_1^2}{\lambda_{laser}} \end{cases} \tag{3.13}$$

La relation $A_{int}^2 + \frac{B_{int}^2}{q_1^2} = 0$ permet de définir l'ensemble des couples $(d_1 > 0, d_2 > 0)$ qui permettent l'existence d'un col du mode laser dans la sphère, ce qui constitue une sous-partie du domaine de stabilité représenté par la figure 3.9.(b). Pour un indice de réfraction $n = 1,6904$ et un rayon $R = 3,72$ mm, les domaines I et II sont restreints aux sous-domaines notés $D-I$ et $D-II$ respectivement, et représentés par la figure (3.11).

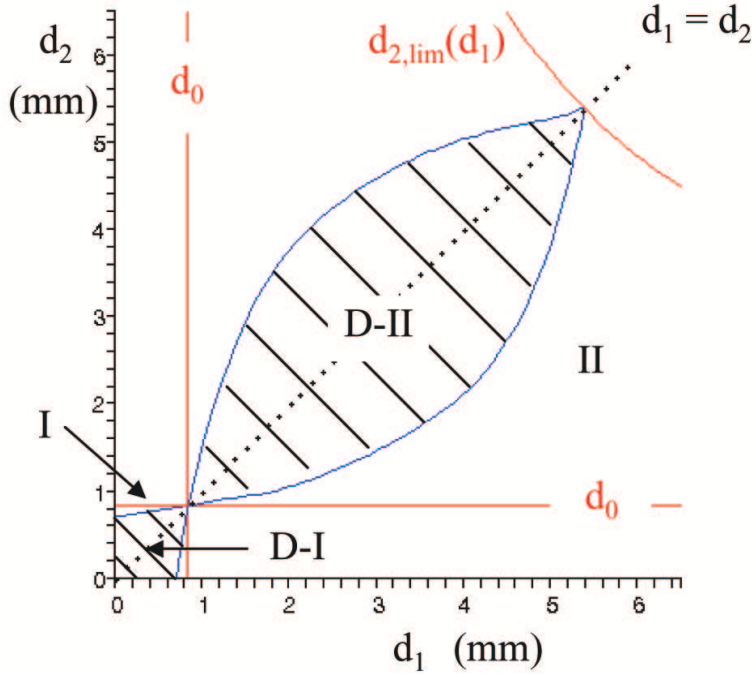


FIG. 3.11 – *Sous-domaines de stabilité $D-I$ et $D-II$ hachurés, permettant l'existence d'un col de faisceau, w_{int}, dans la sphère de $YCOB : Nd$.*

Les frontières des sous-domaines $D-I$ et $D-II$ correspondent aux cas limites pour lesquels le mode laser présente un col de faisceau dans la sphère, localisé infiniment proche d'une des surfaces de la sphère, aux positions limites $Z_{int} = \pm R$. Dans le cas de $YCOB : Nd$, les sous-domaines $D-I$ et $D-II$ sont donnés par la figure 3.12, pour chacun des indices principaux $n_x = 1,6376$, $n_y = 1,6904$ et $n_z = 1,7081$, à 1061 nm.

Selon l'orientation de la sphère de $YCOB : Nd$ dans la cavité, l'indice sollicité

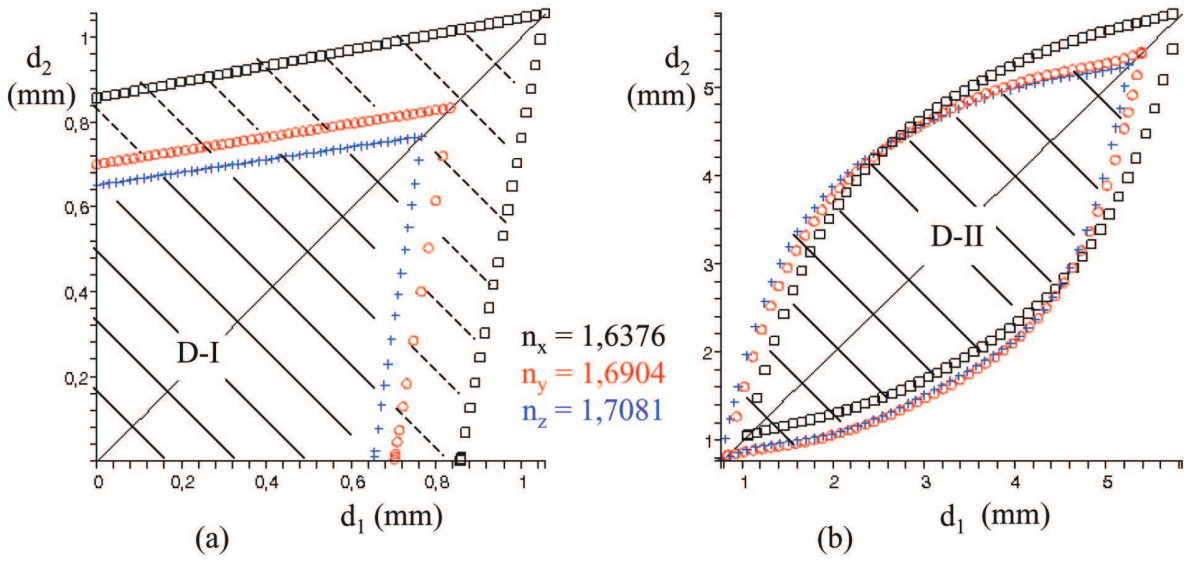


FIG. 3.12 – *Sous-domaines de stabilité hachurés, permettant l'existence d'un col de faisceau dans la sphère, pour chacun des trois indices principaux. (a) Sous-domaines $D-I$. (b) Sous-domaines $D-II$.*

$n^{+,-}(\theta,\phi)$ vérifie à nouveau $n_x \leqslant n^{+,-}(\theta,\phi) \leqslant n_z < 2$. Les limites des sous-domaines de stabilité $D-I$ et $D-II$, associées à l'indice $n^{+,-}(\theta,\phi)$, restent encadrées par les limites des sous-domaines associés aux indices n_x et n_z. L'évolution des sous-domaines de stabilité $D-I$ et $D-II$ en fonction de l'indice est faible, ce qui est un point positif vis-à-vis de la conception d'une cavité laser avec milieu à gain sphérique pour l'étude des cristaux bi-fonctionnels. En effet, la figure 3.12 met en évidence que, pour chaque sous-domaine $D-I$ et $D-II$, il existe un important recouvrement entre les sous-domaines associés aux trois indices principaux de $YCOB : Nd$.

3.7 La cavité symétrique

3.7.1 Intérêt d'une cavité symétrique

Les sous-domaines $D-I$ et $D-II$ présentent la même symétrie, par rapport à la droite $d_2 = d_1$, que les domaines I et II. Cette symétrie, déjà mentionnée au paragraphe 3.6.3, traduit l'invariance des caractéristiques d'une cavité plan-plan avec un milieu amplificateur sphérique, par permutation des distances d_1 et d_2.

Ainsi, pour un couple (d_1, d_2) du domaine de stabilité, les cols du faisceau laser sur

les deux miroirs plans vérifient $w_2(d_1, d_2) = w_1(d_2, d_1)$. De plus, pour un couple (d_1, d_2) du domaine restreint de stabilité $D - I$ ou $D - II$, la position Z_{int} vérifie $Z_{int}(d_1, d_2) = -Z_{int}(d_2, d_1)$, tandis que la taille w_{int} du col de faisceau vérifie $w_{int}(d_1, d_2) = w_{int}(d_2, d_1)$.

Pour une cavité symétrie telle que $d_1 = d_2 = d$, les cols de faisceau vérifient donc $w_2(d, d) = w_1(d, d)$ au niveau des deux miroirs plans : ils seront notés $w_1(d)$. De plus, le troisième col de faisceau, noté $w_{int}(d)$, est nécessairement positionné au centre de la sphère en $Z_{int}(d) = 0$, puisque $Z_{int}(d, d) = -Z_{int}(d, d)$.

Les figures 3.11 et 3.12 montrent que toutes les configurations stables de cavités symétriques sont incluses dans les sous-domaines $D - I$ ou $D - II$. Ainsi, les configurations stables et symétriques sont favorables à l'étude spécifique sur sphère de cristaux auto-doubleurs puisqu'elles permettent systématiquement l'existence d'un col de faisceau laser localisé au centre de la sphère, ce qui est le plus adapté à l'auto-doublage de cette onde. En effet, pour les configurations symétriques, le faisceau laser se propage en onde plane, dans le cristal sphérique, de part et d'autre du col du mode $w_{int}(d)$ placé en $Z_{int}(d, d) = 0$. Afin de réaliser une interaction d'auto-doublage la plus colinéaire possible, il est nécessaire que le faisceau laser se propage de façon la plus parallèle possible sur toute l'épaisseur de la sphère, c'est-à-dire que l'approximation de propagation en onde plane soit valable, de part et d'autre du col du mode $w_{int}(d)$, sur toute l'épaisseur de la sphère. Il reste donc à vérifier si toute configuration symétrique et stable de cavité permet l'obtention d'un col du mode laser $w_{int}(d)$ placé en $Z_{int}(d, d) = 0$, telle que l'approximation de propagation en onde plane soit vérifiée sur toute l'épaisseur de la sphère ; la figure 3.13 illustre une telle configuration symétrique de cavité.

3.7.2 Les dimensions de la cavité symétrique

La cavité symétrique est stable pour les dimensions $0 < d < d_0$ au sein du sous-domaine $D - I$, et $d_0 < d < D_{max}$ au sein du sous-domaine $D - II$, où D_{max} est la dimension maximale associée à une cavité symétrique stable, soit : $D_{max} = \frac{R}{n-1} = \frac{2}{n} f_{sphère}$.

Pour les deux sous-domaines D-I et D-II, le tableau 3.3 récapitule les tailles limites possible de la cavité symétrique stable, pour les trois indices principaux de $YCOB : Nd$.

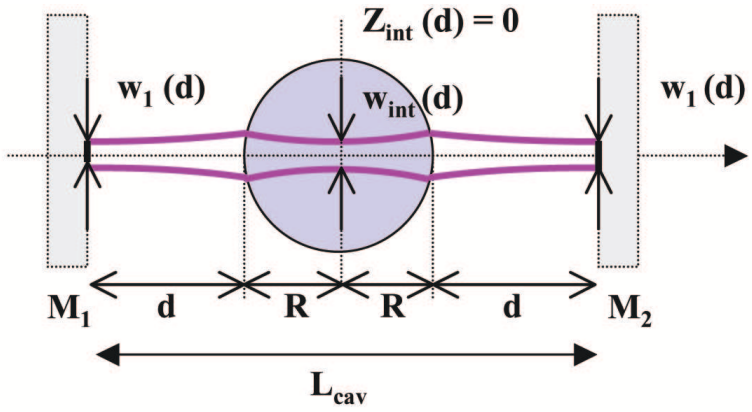


FIG. 3.13 – *Configuration et paramètres de la cavité symétrique et stable permettant l'existence du col du mode laser w_{int} situé au centre de la sphère en $Z_{int} = 0$, tel que le faisceau laser se propage en onde plane sur toute l'épaisseur de la sphère.*

	D-I	D-II
	$0 < d < d_0$	$d_0 < d < D_{max}$
$n_x = 1{,}6376$	0 mm < d < 1,06 mm	1,06 mm < d < 5,83 mm
$n_y = 1{,}6904$	0 mm < d < 0,83 mm	0,83 mm < d < 5,39 mm
$n_z = 1{,}7081$	0 mm < d < 0,77 mm	0,77 mm < d < 5,25 mm

TAB. 3.3 – *Tailles limites pour la cavité symétrique stable, à $\lambda_{laser} = 1061$ nm, pour les indices principaux de $YCOB : Nd$, et pour une sphère de rayon $R = 3,72$ mm.*

Le tableau 3.3 illustre que la taille millimétrique du rayon R de la sphère impose également des dimensions millimétriques à la distance d entre la sphère et les miroirs M_1 et M_2. Les configurations symétriques conduisent donc à des cavités de longueur totale L, telle que $L = 2R + 2d$, de l'ordre de 1 à 2 cm pour une sphère de $YCOB : Nd$ de rayon $R = 3,72$ mm.

Ainsi, pour l'étude expérimentale de l'auto-doublage sur sphère, il faut construire une cavité très courte pour laquelle les dimensions du milieu amplificateur ne sont pas du tout négligeables devant la taille totale de la cavité.

3.8 Caractéristiques spatiales des faisceaux gaussiens de la cavité laser symétrique

La sélection d'une configuration symétrique et stable a montré qu'il existe trois cols de faisceau du mode laser $TEM_{0,0}$ dans la cavité. Premièrement, il s'agit de calculer, en fonction de la dimension de la cavité symétrique, les caractéristiques spatiales du mode laser au niveau de ces cols, positionnés sur les miroirs et au centre de la sphère. D'autre part, il s'agit aussi de prédire l'évolution du profil spatial transverse du mode laser pour toute position à l'intérieur et à l'extérieur de la cavité.

Bien que le modèle de cavité laser soit développé sans inclure de phénomène de double réfraction, une proposition d'architecture de cavité est également proposée, sans modélisation supplémentaire, de manière à envisager la prise en compte de la propagation dans n'importe quelle direction du faisceau laser généré dans un milieu amplificateur anisotrope.

3.8.1 Caractéristiques géométriques et dimensions du mode laser

Les expressions w_1 et w_{int} des tailles des cols de faisceau en configuration symétrique, décrites par les équations (3.11) et (3.12), sont rappelées par la formule suivante :

$$\begin{cases} w_1(d) = \left[\dfrac{\pi}{\lambda_{laser}} \dfrac{|B_{motif}|}{\sqrt{1 - \left(\frac{A_{motif}+D_{motif}}{2}\right)^2}} \right]^{1/2} \\ w_{int}(d) = w_1(d) \left[A_{int}^2 + B_{int}^2 \left(\dfrac{\lambda_{laser}}{\pi w_1^2(d)} \right)^2 \right]^{1/2} \end{cases} \tag{3.14}$$

Il est à noter que l'expression de w_1 est équivalente à celle donnée par la formule (3.2), pour laquelle les rayons de courbures des deux miroirs sont considérés comme infinis. Au contraire, l'expression de w_{int} ne peut pas être décrite par la formule (3.2), puisque le traitement associé ne prend pas en compte le fait que le milieu amplificateur est optiquement équivalent à une lentille épaisse.

Le choix d'une configuration symétrique de cavité effectué au paragraphe 3.7 mention-

nait la nécessité de réaliser un mode permettant une propagation en onde plane au sein du milieu bi-fonctionnel. Le critère de Rayleigh, portant sur la divergence des faisceaux gaussiens dans la sphère, permet de définir si cette condition est réalisée. Le paramètre de Rayleigh, noté Z_R, associé au col w_{int}, est défini par $Z_R = \frac{n\pi w_{int}^2}{\lambda_{laser}}$. Ce paramètre devant être comparé au rayon R de la sphère, il est préféré l'écriture normalisée $\frac{Z_R}{R} = \frac{n\pi w_{int}^2}{R\lambda_{laser}}$. La propagation en condition d'onde plane sur toute l'épaisseur de la sphère correspond alors à l'inégalité $\frac{Z_R}{R} > 1$.

Les évolutions des grandeurs w_1 et w_{int} d'une part, et $\frac{Z_R}{R}$ d'autre part, en fonction du paramètre d, sur l'ensemble du domaine de stabilité $D-I$ et $D-II$ en configuration symétrique, sont respectivement décrites par les figures 3.14.(a) et 3.14.(b) pour chacun des trois indices principaux dans la sphère de $YCOB : Nd$.

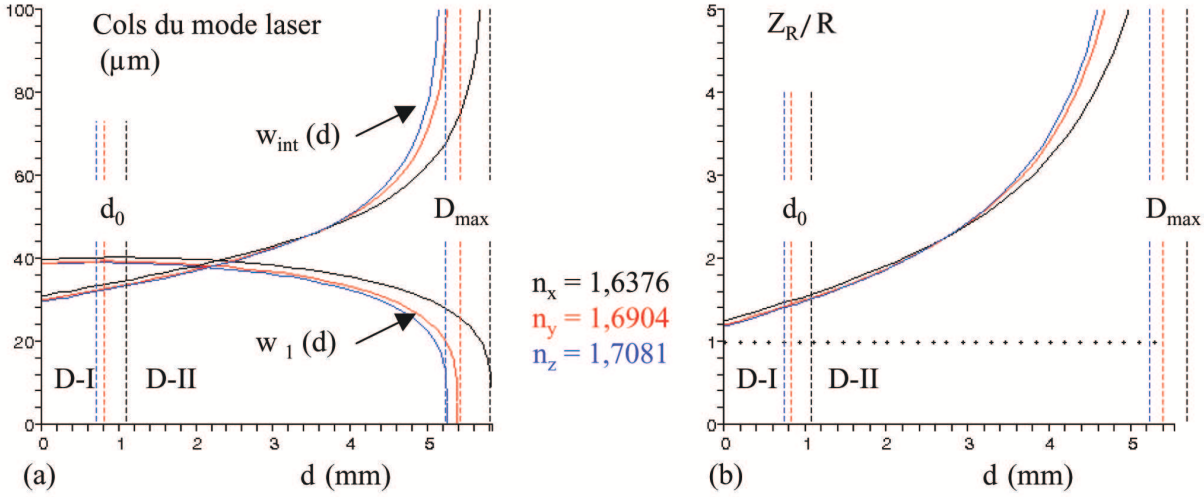


FIG. 3.14 – *Propriétés spatiales du mode laser en fonction de la distance d entre la sphère et les miroirs, sur les sous-domaines de stabilité $D-I$ et $D-II$, pour chacun des trois indices principaux de réfraction, dans le cas de configurations symétriques et stables de cavités. (a) Evolution des tailles des cols w_1 et w_{int}. (b) Evolution du paramètre de Rayleigh normalisé par R, et associé à w_{int}.*

Par exemple, en se plaçant au milieu du sous-domaine $D-II$ à $d = 3,11$ mm, les cols de faisceaux $w_1\,(d = 3,11mm)$ et $w_{int}\,(d = 3,11mm)$ ont pour dimensions 36,5 μm et 43,2 μm respectivement. Ceci conduit à un paramètre de Rayleigh, tel que $\frac{Z_R}{R}\,(d = 3,11mm) \sim 2,5$, ce qui correspond bien à une propagation en onde plane sur toute l'épaisseur de la sphère.

Il est à noter que les paramètres w_1 et w_{int} présentent des divergences physiques aux limites du domaine de stabilité, c'est-à-dire lorsque $d \rightarrow d_0$ ou $d \rightarrow D_{max}$. Cependant, la

divergence en $d = d_0$ est extrêment localisée au proche voisinage de d_0, c'est pourquoi, malgré son existence physique, elle n'apparaît pas sur la figure 3.14. Par contre, lorsque les deux miroirs sont infiniment proches de la sphère, avec $d \rightarrow 0$, la configuration symétrique est parfaitement située dans le domaine de stabilité décrit par la figure 3.9. Ceci justifie donc que les paramètres w_1 et w_{int} ne divergent pas lorsque $d \rightarrow 0$, tel qu'il est observé sur la figure 3.14.(a). Ainsi, le paramètre de Rayleigh normalisé $\frac{Z_R}{R}$, décrit par la figure 3.14.(b) présente le même comportement que w_{int}, en terme de divergence aux limites du domaine de stabilité.

La figure 3.14.(b) valide le choix de la configuration symétrique d'une cavité laser stable pour l'étude de l'auto-doublage. En effet, le critère $\frac{Z_R}{R} > 1$ est vérifié en tout point du domaine de stabilité associé à une cavité symétrique, pour chacun des trois indices principaux. Ainsi, la propagation du faisceau laser en onde plane est toujours vérifiée pour une cavité laser symétrique et stable. La configuration symétrique apparaît donc particulièrement adaptée à l'étude de la bi-fonctionnalité de $YCOB : Nd$ en vue d'une conversion de fréquence à $\lambda_{laser} = 1061$ nm, indépendamment de l'indice principal sollicité au sein de la sphère, et pour une propagation associée sans double réfraction sur ce faisceau.

Tant que les dimensions de la cavité symétrique ne sont pas proches des frontières du domaine de stabilité, au voisinage de D_{max}, l'indice principal de réfraction sollicité influence peu les propriétés spatiales des cols du mode laser. La taille du mode laser ne dépend alors pas significativement de l'indice $n^{\pm}(\theta, \phi)$.

La géométrie du mode laser w_{mode}, correspondant à un profil transverse d'un faisceau gaussien $TEM_{0,0}$ présente trois cols dans la cavité. Elle est représentée en fonction de la position ξ le long de l'axe de la cavité symétrique par la figure 3.15.(a), pour trois distances $d = 0,8$ mm, $d = 3,11$ mm et $d = 5$ mm, avec comme indice principal n_y. Ceci traduit la dépendance importante de w_{mode} vis-à-vis du paramètre d. Au contraire, w_{mode} dépend peu de l'indice principal sollicité, et donc de tout indice $n^{\pm}(\theta, \phi)$ à λ_{laser}, comme l'illustre la figure 3.15.(b). Par exemple, au centre de la sphère, pour $d = 3,11$ mm, le profil w_{mode} correspond au col w_{int}, et a pour dimensions 43,7 μm, 43,2 μm et 43,1 μm pour les indices principaux n_x, n_y et n_z respectivement.

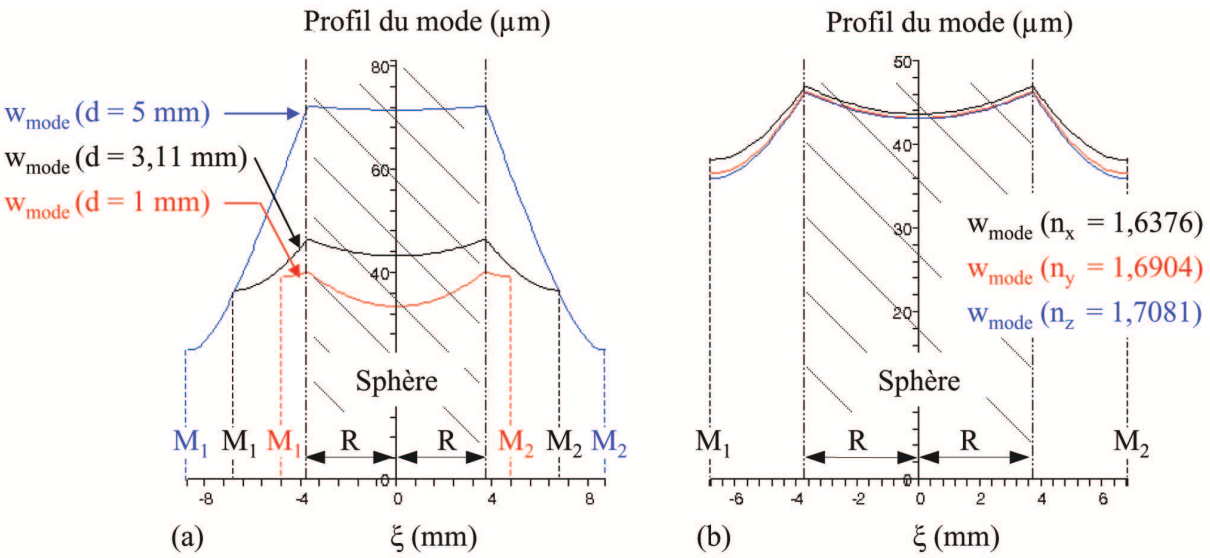


FIG. 3.15 – *Profil longitudinal du mode laser gaussien en fonction de la position ξ le long de l'axe de la cavité symétrique. (a) Profil pour différentes valeurs $d = 0,8$ mm, $d = 3,11$ mm et $d = 5$ mm parmi les sous-domaines $D - I$ et $D - II$, pour un indice $n = n_y$. (b) Profil pour les trois indices principaux, pour une taille fixée $d = 3,11$ mm.*

Les caractéristiques spatiales du mode laser hors de la cavité sont obtenues à partir de la propagation du faisceau laser depuis le miroir M_2. En négligeant l'influence de la traversée du miroir, la taille w_{out} du faisceau laser présente, en sortie de cavité de dimensions d, une évolution classique suivant la loi de propagation $w_{out}(x) = w_1(d)\sqrt{1 + \left(\frac{\lambda_{laser} x}{\pi w_1^2(d)}\right)^2}$, où x est la position du faisceau comptée depuis la sortie de la cavité, après le miroir M_2.

- *Restriction au sous-domaine $D - II$.*

La figure 3.15.(a) montre que la taille du col du mode laser dans la sphère est comprise entre 30 μm et 36 μm au sein du sous-domaine $D - I$, ce qui constitue une plage restreinte de dimensions. Au contraire, la plage des tailles du mode dans la sphère est beaucoup plus grande dans le sous-domaines $D - II$, avec des dimensions comprises entre 32 μm et 80 μm. Une telle plage de tailles de mode laser rend le sous-domaine $D - II$ plus favorable que le sous-domaine $D - I$. En effet, il sera plus facile d'adapter la taille d'un faisceau de pompage à celle du mode laser dans la sphère pour une configuration du sous-domaine $D - II$. De plus, à cause de l'encombrement géométrique des montures des optiques, les distances de $D - II$ sont plus accessibles d'un point de vue expérimental.

Enfin, la configuration stable, autorisant le plus d'imprécisions sur le positionnement des miroirs par rapport à la sphère, correspond au centre du domaine de stabilité d'une

cavité symétrique, situé au milieu du sous-domaine $D-II$. Pour la sphère de $YCOB : Nd$, en sollicitant l'indice $n_y(\lambda_{laser})$, le centre du sous-domaine de stabilité correspond aux dimensions de cavité $d = 3,11$ mm. Dans ce cas, la taille de la cavité laser a pour longueur totale $L_{cav} = 2R + 2d = 13,66$ mm. Les paramètres spatiaux du mode laser valent alors : $w_1 = 36,5\ \mu m$, $w_{int} = 43,2\ \mu m$ et $\frac{Z_R}{R} = 2,5$.

Pour chacun des trois indices principaux à λ_{laser}, le tableau 3.4 donne la distance correspondant au point de fonctionnement situé au centre du domaine de stabilité en configuration symétrique, les dimensions des cols w_1 et w_{int}, et enfin le paramètre de Rayleigh normalisé $\frac{Z_R}{R}$.

Indice	Centre du domaine de stabilité	w_1 (µm)	w_{int} (µm)	Z_R/R
n_x =1,6377	d = 3,45 mm	37,4	45,6	2,5
n_y=1,6904	d = 3,11 mm	36,5	43,2	2,5
n_z=1,7081	d = 3,05 mm	36,2	42,4	2,5

TAB. 3.4 – *Dimensions de cavité symétrique stable, pour la configuration géométrique située au centre du domaine de stabilité $D-II$, à $\lambda_{laser} = 1061$ nm, pour les trois indices principaux de $YCOB : Nd$ de la sphère $YCOB : Nd$.*

Pour une taille d de cavité donnée, les dimensions des cols de faisceaux varient peu par rapport à l'indice sollicité. Par la suite, la taille intermédiaire de cavité symétrique, pour un point de fonctionnement situé en plein centre du domaine de stabilité, pour $d = 3,11$ mm, sera ainsi privilégiée.

3.8.2 Mode laser soumis à la double réfraction

L'étude de la cavité avec un milieu amplificateur sphérique a uniquement porté sur le cas de la mise en oscillation d'un mode de polarisation ordinaire du faisceau laser à $\lambda_{laser} = 1061$ nm. Dans ce cas, la propagation de l'énergie est colinéaire au vecteur d'onde laser, lui-même colinéaire à l'axe de la cavité laser. Le faisceau laser est alors en incidence normale sur les deux faces de la sphère, ainsi que sur les deux miroirs plans.

Dans un cristal sphérique anisotrope, le faisceau laser peut également être associé à un mode de polarisation présentant un angle de double réfraction non nul. Dans ce cas, la propagation de l'énergie n'est plus colinéaire au vecteur d'onde laser dans la sphère. Il s'en suit une réfraction, au niveau de la surface de la sphère, qui a pour conséquence d'affecter l'orientation du vecteur d'onde hors de la sphère [20]. La direction de propagation de l'onde, et donc de l'énergie laser, ne correspond alors plus à l'axe de la cavité décrite par la figure 3.7. Pour palier l'effet indésirable de la double réfraction, nous proposons de modifier l'inclinaison du miroir de sortie M_2, tel que l'illustre la figure 3.16. L'objectif est alors d'orienter ce miroir orthogonalement au faisceau se propageant hors de l'axe initial de la cavité laser, en sortie de sphère.

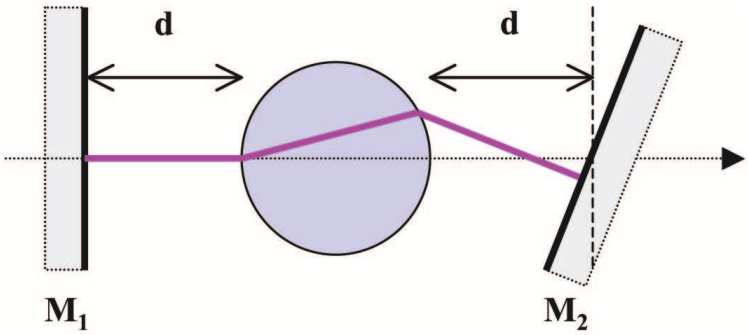


FIG. 3.16 – *Proposition de configuration de la cavité « symétrique », pour un mode de polarisation présentant un angle de double réfraction non nul.*

Afin de bien rendre compte des modifications introduites pour maintenir la stabilité de la cavité en présence d'une propagation non ordinaire dans la sphère, les angles de double réfraction, ainsi que l'inclinaison du miroir M_2, ont été volontairement exagérés sur la réprésentation de la figure 3.16.

Il est à noter que la double réfraction dépend de l'orientation du cristal considéré. Cela signifie que, pour toute direction de propagation dans le repère optique du cristal sphérique, il faut adapter l'orientation du miroir de sortie M_2. En présence de double réfraction, il est donc nécessaire de modifier l'alignement pour différentes interactions optiques considérées, ce qui constitue une réelle difficulté expérimentale. En pratique, il sera préféré de travailler dans des configurations de cavité ne présentant pas de double réfraction, quelles que soient les conséquences sur la valeur du seuil laser.

A ce jour, nous n'avons pas modélisé le comportement de la cavité décrite par la figure

3.16. Toutefois, la nécessité d'incliner un miroir pour assurer la stabilité d'un mode de polarisation avec double réfraction a pour conséquence qu'il ne sera pas possible de stabiliser simultanément les deux modes de polarisation associés à n^+ et n^- pour une direction de propagation considérée présentant une double réfraction non nulle. Ceci apparaît comme un handicap pour la réalisation de processus d'auto-doublage faisant intervenir simultanémment deux modes de polarisation orthogonaux, comme c'est le cas pour les processus d'auto-SHG de type II.

3.9 Adaptation de la taille du faisceau pompe à celle du mode laser de la cavité symétrique

Afin de réaliser l'émission laser, il est nécessaire d'optimiser le pompage de la cavité symétrique étudiée précédemment, en optimisant, dans le milieu amplificateur sphérique, le recouvrement volumique du mode laser par le faisceau pompe.

Le travail de mise en forme du faisceau pompe nécessite la caractérisation des paramètres spatiaux de la source utilisée, puis par une adaptation optimale de la position et des dimensions transverses de ce faisceau à celles du mode laser dans la sphère. Cette optimisation passe par l'étude du recouvrement du mode laser par le faisceau pompe dans la sphère.

Notre objectif est de développer une méthodologie nouvelle permettant la caractérisation directe d'un cristal auto-doubleur, quels que soient les ions fluorescents qui constituent le dopage. Il est nécessaire de pomper le milieu laser avec une source accordable sur une large plage spectrale. La source utilisée est un OPO accordable entre 0,4 μm et 2,4 μm, utilisant d'un cristal de BBO. Il s'agit d'un OPO Panther de la société Continuum, pompé à la longueur d'onde triple d'un laser $YAG : Nd$ impusionnel à 7 ns, de cadence 10 Hz.

3.9.1 Caractérisation des paramètres spatiaux du faisceau pompe

La longueur d'onde optimale de pompage de $YCOB : Nd$, est $\lambda = 812$ nm. Elle est déduite des spectres d'absorption [17]. Cette longueur d'onde est produite grâce à la source OPO utilisée.

Les caractéristiques spatiales du faisceau pompe sont assez éloignées d'un faisceau purement gaussien. Son profil spatial est très inhomogène. D'autre part, il présente un astigmatisme particulièrement important dans le plan vertical, dont l'origine est liée à l'existence de processus paramétriques non colinéaires dans le plan de l'angle de double réfraction.

- *Astigmatisme et divergence du faisceau pompe.*

La caractérisation de l'astigmatisme du faisceau pompe a été effectuée à partir de plusieurs séries de mesures afin d'obtenir une distribution statistique des données. Cette caractérisation a porté sur l'évolution du profil du faisceau de part et d'autre de la position de focalisation, suite à la travsersée d'une ou plusieurs lentilles.

En chaque position z le long de l'axe de propagation du faisceau pompe, une mesure du profil transverse a été effectuée selon les directions horizontale et verticale, qui correspondent aux deux directions principales d'astigmatisme. Les rayons, vertical et horizontal, du faisceau, définis à $1/e^2$ du maximum en intensité, ont été déterminés en effectuant une modélisation de profil transverse gaussien selon chacune de ces deux directions. Les profils longitudinaux, horizontal w_h, et vertical w_v, du faisceau pompe ont alors été modélisés le long de l'axe de propagation z par les expressions suivantes :

$$\begin{cases} w_h(z) = w_{0,h}\sqrt{1+\left(\dfrac{\lambda_p M_h^2 (z - z_{0,h})}{\pi w_{0,h}^2}\right)^2} \\ w_v(z) = w_{0,v}\sqrt{1+\left(\dfrac{\lambda_p M_v^2 (z - z_{0,v})}{\pi w_{0,v}^2}\right)^2} \end{cases} \tag{3.15}$$

où $(w_{0,h}, w_{0,v})$, (M_h^2, M_v^2), ainsi que $(z_{0,h}, z_{0,v})$ sont respectivement les rayons à $1/e^2$ en intensité des cols du faisceau, les paramètres d'écart à une structure gaussienne idéale, ainsi que les positions des cols du faisceau selon les directions d'astigmatisme horizontale (h) et verticale (v).

Le tableau 3.5 donne l'ensemble des valeurs expérimentales mesurées pour les directions d'astigmatisme. La dispersion des mesures conduit aux valeurs expérimentales moyennes $< M_h^2 >= 3 \pm 1$ et $< M_v^2 >= 16 \pm 4$, qui seront systématiquement utilisées par la suite.

M^2_h	2.3	4.5	3	2.8	3.3	-	-	-	2.9	2.8	2.7	2.5	3.2	3.3
M^2_v	16.3	-	-	-	14.9	12.7	16.3	22.7	10.5	16.3	14.4	16.2	17	21

TAB. 3.5 – *Distribution des valeurs expérimentales des paramètres M_h^2 et M_v^2.*

- *Tailles des cols du faisceau pompe pour différentes configurations de focalisation.*

Chaque mesure du profil spatial du faisceau pompe a été interpolée par les expressions de l'équation (3.15), ce qui conduit à une estimation des paramètres $w_{0,h}$ et M_h^2 d'une part, et $w_{0,v}$ et M_v^2 d'autre part. Nous avons utilisé les valeurs $< M_h^2 > = 3 \pm 1$ et $< M_v^2 > = 16 \pm 4$ déjà déterminées précédemment, pour renormer les mesures suivantes, de façon à se ramener à des mesures conduisant exactement aux valeurs $M_h^2 =< M_h^2 >$ et $M_v^2 =< M_v^2 >$. Ceci revient à renormer les facteurs M_h^2 et M_v^2, en les multipliant respectivement par les facteurs $\frac{<M_h^2>}{M_h^2}$ et $\frac{<M_v^2>}{M_v^2}$. Les tailles de faisceau $w_{0,h}$ et $w_{0,v}$ sont donc également renormées, en les multipliant respectivement par les facteurs $\sqrt{\frac{<M_h^2>}{M_h^2}}$ et $\sqrt{\frac{<M_v^2>}{M_v^2}}$.

La figure 3.17 décrit l'évolution des profils longitudinaux du faisceau pompe, suite à une focalisation par deux lentilles cylindriques orthogonales entre elles, respectivement de focale $f_v = +75$ mm et $f_h = +50$ mm dans les directions verticale et horizontale d'astigmatisme. L'interpolation des mesures, à partir des équations (3.15) et des paramètres M_h^2 et M_v^2 renormés, a conduit à $w_{0,h} = 33\ \mu m$ et $w_{0,v} = 83\ \mu m$. Grâce à un réglage minutieux de la position relative des lentilles cylindriques, la distance entre les cols associés aux deux directions d'astigmatisme est inférieure à 0,3 mm.

Le tableau 3.6 donne les valeurs expérimentales renormées des tailles, horizontale et verticale, du faisceau pompe, pour quatre configurations différentes de focalisation, à partir de jeux de lentilles disponibles dans l'équipe. La grandeur $\Delta z_{v,h} = z_{0,v} - z_{0,h}$ traduit l'écart entre les positions de focalisation des directions, verticale et horizontale, d'astigmatisme. La première série de mesures, avec une lentille sphérique de focale +100 mm, a

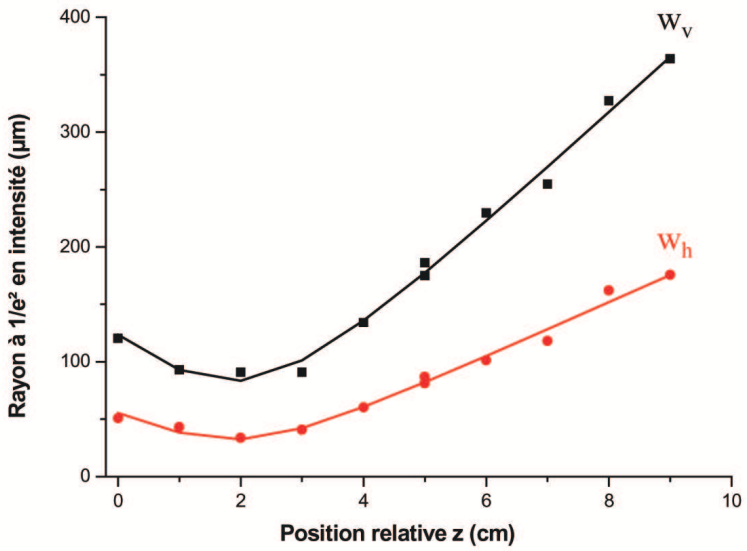


FIG. 3.17 – *Interpolation des données expérimentales associées aux profils longitudinaux, selon les directions transverses horizontale (carrés noir et courbe noire) et verticale (ronds rouges et courbe rouge) d'astigmatisme du faisceau de pompe, conduisant aux dimensions* $w_{0,h} = 33\ \mu m$ *et* $w_{0,v} = 83\ \mu m$.

conduit à deux cols de faisceau, selon les directions horizontale et verticale d'astigmatisme, qui sont distantes de 6 mm. La direction verticale, de forte divergence, est focalisée plus loin de la lentille que la direction horizontale. Cet écart important entre les distances de focalisation justifie l'utilisation simultanée, pour les autres séries de mesures, de deux lentilles cylindriques orthogonales entre elles, afin de maîtriser leur espacement et de placer à la même position les cols de faisceau de chacune des deux directions d'astigmatisme.

Lentille (mm)	$w_{0,h}$	$w_{0,v}$	$\Delta z_{v,h}$
$f_{sphérique}$ +100	78 µm	131 µm	+ 6 mm
f_h +75 et f_v +50	47 µm	62 µm	< 0.5 mm
f_v +75 et f_h +50	32 µm	83 µm	< 0.5 mm
f_v +100 et f_h +50	33 µm	115 µm	< 0.5 mm

TAB. 3.6 – *Valeurs renormées des tailles des cols du faisceau pompe, pour quatre configurations différentes de focalisation. Estimation de l'écart* $\Delta z_{v,h}$ *entre les positions de focalisation associées à* $w_{0,h}$ *et* $w_{0,v}$.

En supposant une focalisation indépendante dans chacun des plans, horizontal et vertical, à partir de lentilles cylindriques orthogonales entre elles, il est possible de corréler

la taille des cols de faisceau, en fonction de la valeur de la focale choisie pour chaque direction d'astigmatisme considérée. Les résultats sont reportés dans le tableau 3.7, que nous comptons utiliser afin de déterminer la configuration expérimentale de focalisation de la source OPO la plus favorable pour le pompage de la cavité symétrique.

	f_v +50	f_v +75	f_v +100
f_h +50		h : 33 µm v : 83 µm	h : 33 µm v : 115 µm
f_h +75	h : 47 µm v : 62 µm		h : 47 µm v : 115 µm
f_h +100	h : 78 µm v : 62 µm	h : 78 µm v : 83 µm	

TAB. 3.7 – *Taille des cols du faisceau pompe pour chaque direction d'astigmatisme en fonction de la focale de la lentille cylindrique utilisée dans le plan horizontal (f_h) et vertical (f_v) respectivement.*

3.9.2 Modélisation du recouvrement du mode laser par le faisceau pompe dans la sphère

Le caractère très astigmate du faisceau pompe ne permet pas une adaptation parfaite de ses paramètres spatiaux à ceux du mode laser sur toute l'épaisseur du milieu amplificateur. En particulier, la valeur élevée du paramètre $< M_v^2 >$ ne permet pas d'envisager une propagation parallèle dans la sphère, dans le cas de focalisations trop importantes du faisceau pompe. Il apparaît donc nécessaire de quantifier de manière globale l'efficacité du pompage à travers tout le milieu amplificateur.

La modélisation du recouvrement volumique du mode laser par le faisceau pompe dans la sphère, nécessite la définition d'un estimateur caractérisant le taux d'absorption du faisceau pompe dans le volume du mode laser, relativement à l'absorption globale dans le milieu amplificateur. Afin de traduire au mieux la réalité de ce recouvrement, il a été considéré que l'estimateur doit prendre en compte les cinq points ci-dessous :

- le profil transverse gaussien du mode laser et du faisceau pompe, dont les tailles peuvent éventuellement évoluer au cours de la propagation sur l'épaisseur de la

sphère, entre les positions comprises entre $-R$ et $+R$.

- le caractère astigmate de la propagation du faisceau pompe ;
- le recouvrement transverse, en chaque position au sein de la sphère, du mode laser par le faisceau pompe, dans chacune des deux directions principales, horizontale notée $\delta = h$, et verticale notée $\delta = v$;
- le recouvrement longitudinal, intégrant sur toute l'épaisseur du milieu amplificateur sphérique, le recouvrement transverse bidimensionnel astigmate ;
- l'atténuation en tout point de la sphère de l'intensité du faisceau pompe liée à son absorption dans le milieu à gain.

Pour une position ξ dans la sphère, le recouvrement transverse, β_δ, selon la direction principale $\delta = (h, v)$ horizontale ou verticale, du mode laser par le faisceau pompe, respectivement de tailles w_{mode} et $w_{p,\delta}$, est donné par la formule suivante :

$$\beta_\delta(\xi) = \int_{-\infty}^{+\infty} \sqrt{\frac{2}{\pi w_{p,\delta}^2(\xi)}} e^{-2u^2/w_{p,\delta}^2(\xi)} . e^{-2u^2/w_{mode}^2(\xi)} \, \mathrm{d}u = \left(1 + \frac{w_{p,\delta}^2(z)}{w_{mode}^2(z)}\right)^{-1/2} \tag{3.16}$$

Le recouvrement transverse correspond à l'intégration transverse selon la direction principale δ du faisceau pompe gaussien, en appliquant une pondération par le profil transverse, également gaussien, du mode laser à la position ξ dans la sphère.

Le recouvrement volumique, β_{vol}, du mode laser par le faisceau pompe intègre, sur toute l'épaisseur de la sphère, le recouvrement selon les deux directions d'astigmatisme du faisceau pompe, en appliquant une pondérantion par le profil gaussien du mode laser fondamental $TEM_{0,0}$. Ce recouvrement volumique est décrit par l'équation :

$$\beta_{vol} = \int_{-R}^{+R} e^{-\alpha\xi} \beta_h(\xi) \beta_v(\xi) \, \mathrm{d}\xi \tag{3.17}$$

où α est le coefficient d'absorption linéaire associé à une propagation polarisée à λ_{pompe} dans la sphère.

Dans le cas hypothétique où $w_{p,\delta}(\xi) = w_{mode}(\xi)$, pour $\delta = (h, v)$, le recouvrement volumique traduit alors un recouvrement parfait, et vaut $\int_{-R}^{+R} \frac{e^{-\alpha\xi}}{2} \mathrm{d}\xi$. Le taux de recou-

vrement volumique τ_{vol} est alors défini comme le rapport entre le recouvrement volumique β_{vol} par recouvrement volumique parfait, soit :

$$\tau_{vol} = \frac{\int_{-R}^{+R} e^{-\alpha\xi} \rho_h(\xi)\, \rho_v(\xi)\, \mathrm{d}\xi}{\int_{-R}^{+R} \frac{e^{-\alpha\xi}}{2}\, \mathrm{d}\xi} \tag{3.18}$$

Il est intéressant de noter que plus l'absorption est forte, plus il est essentiel d'effectuer un bon recouvrement géométrique du mode laser par la pompe, tant que celle-ci n'a pas encore été trop atténuée, c'est-à-dire dès le tout début de la propagation dans la sphère.

La définition de l'estimateur τ_{vol} conduit à $\tau_{vol} = 1$ pour un faisceau pompe de dimensions idéales, à $\tau_{vol} \to 0$ lorsque $w_{p,\delta} >> w_{mode}$, et enfin à $\tau_{vol} \to 2$ lorsque $w_{p,\delta} << w_{mode}$. Une utilisation directe de l'estimateur proposé peut donc conduire à des taux de recouvrement sans signification physique, tels que $\tau_{vol} > 1$, pour les situations où les dimensions du faisceau pompe deviennent plus petites que celle du mode laser. Il faut donc avoir à l'esprit qu'une utilisation directe de cet estimateur peut conduire à une sur-estimation du taux de recouvrement, lorsque une partie, voire l'ensemble du faisceau pompe est de dimension plus petite que celle du mode laser. Il convient alors d'être prudent dans l'interprétation de la valeur numérique fournie par τ_{vol}. Cet estimateur a simplement pour vocation de dégager les tendances vis-à-vis de la qualité du recouvrement pour différentes configurations de focalisation.

Remarque

En pratique, il est nécessaire d'éviter d'éventuelles sur-estimations du taux de recouvrement. Lorsqu'une des deux directions d'astigmatisme $w_{p,\delta}$ avec $\delta =$ (h et/ou v), est plus petite que les dimensions du mode laser sur une plage de positions $\Delta(\xi)$ dans la sphère, le calcul de recouvrement peut être corrigé et affiné. Sur cette plage $\Delta(\xi)$, et pour la direction $\delta =$(h et/ou v), il suffit d'attriber numériquement la taille $w_{mode}(\Delta(\xi))$ au faisceau pompe de taille réelle $w_{p,\delta}(\Delta(\xi)) < w_{mode}(\Delta(\xi))$.

3.9.3 Estimation du recouvrement du mode laser par le faisceau pompe dans la sphère

Les caratéristiques spatiales du mode laser sont imposées par le choix du point de fonctionnement de la cavité symétrique. L'estimation du recouvrement sera donc menée pour deux configurations de cavité, à $d = 3,11$ mm et $d = 5$ mm, appartenant au sous-domaine de stabilité $D-II$ décrit par figure 3.12.(b). L'indice sollicité est l'indice principal n_y à λ_{laser}, ce qui correspond à un alignement de l'axe de la cavité laser dans le plan principal $(\vec{X}, \vec{Z})$ du repère optique de la sphère de $YCOB$. De plus, il est rappelé que les paramètres intrinsèques du faisceau pompe, à $\lambda_p = 812$ nm, ont été renormés et sont fixés à : $M_h^2 = 3$ et $M_v^2 = 16$.

L'étude théorique de la cavité laser a été réalisée chronologiquement avant que les résultats du chapitre 2 ne soient obtenus. Dans l'étude de la cavité, il n'a donc pas été pris en compte l'existence des différents repères. Cette étude est donc effectuée dans le repère optique, sans prendre en compte que, selon les axes principaux de ce repère, ce ne sont pas les valeurs principales liées à l'absorption et à l'émission qui sont sollicitées. Pour ce chapitre, la valeur du coefficient d'absorption a donc été fixée à une valeur réaliste pour $YCOB : Nd$, soit à $\alpha = 3\ cm^{-1}$ [17,51].

Les cols de faisceau pompe, dans les directions horizontale et verticale d'astigmatisme, sont considérés comme étant positionnés au même endroit à une distance d_{pompe} de la surface d'entrée de la sphère. Cette distance doit être la plus petite possible afin de ne pas permettre au faisceau pompe, de fort astigmatisme, de rediverger entre son point de focalisation et la surface d'entrée de la sphère. Cependant, cette distance doit aussi être réaliste d'un point de vue expérimental, qui a conduit à fixer $d_{pompe} = 1$ mm.

Dans ces conditions, la figure 3.18.(a) décrit l'évolution du taux de recouvrement, en fonction de la taille du col de faisceau $w_{0,v}$, et pour $\alpha = 3\ cm^{-1}$ et $d_{pompe} = 1$ mm, pour différentes valeurs imposées du col de faisceau $w_{0,h}$, pour une configuration de cavité symétrique avec $d = 3,11$ mm.

La figure 3.18.(b) décrit, quant à elle, l'évolution du taux de recouvrement, en fonction de la taille du col de faisceau $w_{0,h}$, pour $\alpha = 3\ cm^{-1}$ et $d_{pompe} = 1$ mm, et pour différentes

valeurs imposées du col de faisceau $w_{0,v}$, pour la même configuration symétrique de cavité, avec $d = 3,11$ mm.

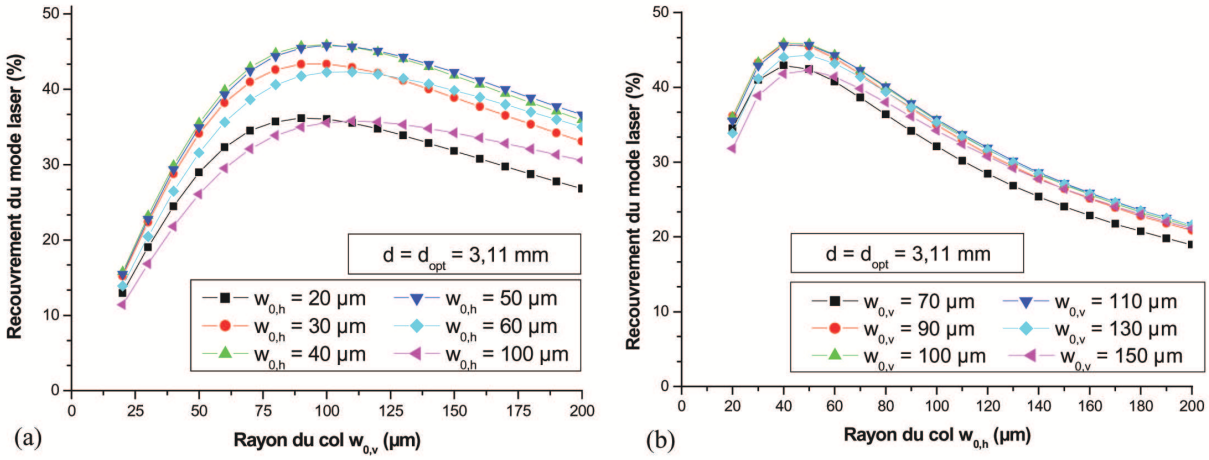


FIG. 3.18 – *Taux de recouvrement volumique du mode laser pour la cavité symétrique de taille $d = 3,11$ mm, et pour des cols de faisceau pompe, $w_{0,h}$ et $w_{0,v}$, focalisés à 1 mm en entrée de sphère. (a) Modélisation en fonction de $w_{0,v}$, pour différentes valeurs de $w_{0,h}$. (b) Modélisation en fonction de $w_{0,h}$, pour différentes valeurs de $w_{0,v}$.*

La figure 3.19 est l'analogue de la figure 3.18, mais pour une configuration symétrique avec $d = 5$ mm.

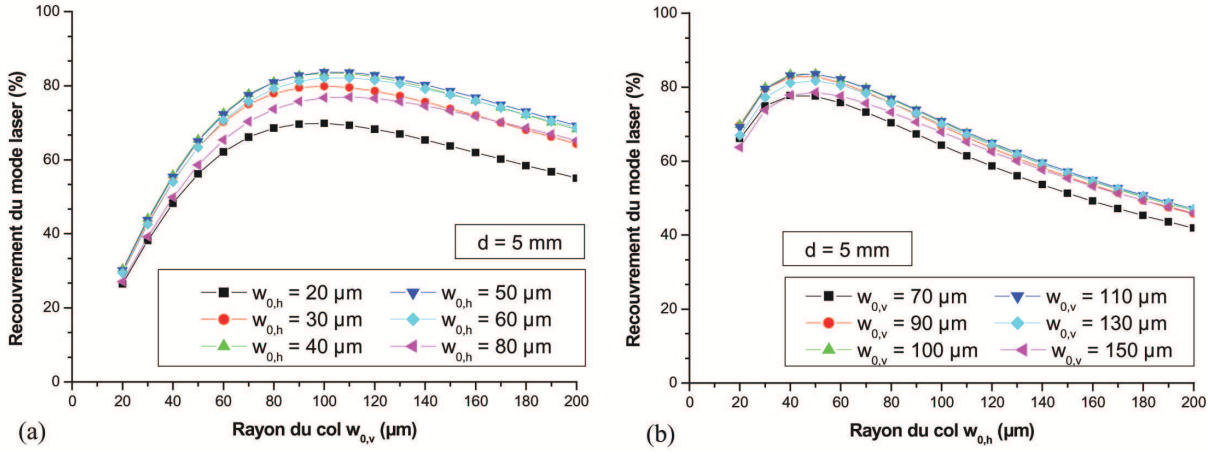


FIG. 3.19 – *Taux de recouvrement volumique du mode laser pour la cavité symétrique de taille $d = 5$ mm, et des cols de faisceau pompe, $w_{0,h}$ et $w_{0,v}$, focalisés à 1 mm en entrée de sphère. (a) Modélisation en fonction de $w_{0,v}$, pour différentes valeurs de $w_{0,h}$. (b) Modélisation en fonction de $w_{0,h}$, pour différentes valeurs de $w_{0,v}$.*

Les parties (a) et (b) des figures 3.18 et 3.19 conduisent à la même conclusion, à savoir que le recouvrement optimum est obtenu pour des tailles de col du faisceau pompe de l'ordre de $w_{0,h}^{opt} = 45 \pm 5\ \mu m$ et $w_{0,v}^{opt} = 100 \pm 10\ \mu m$. Ces taux de recouvrement n'ont pas

été pas corrigés, en vue de s'affranchir d'une éventuelle sur-estimation lorsque le faisceau pompe est de dimensions plus petites que celles du mode laser. Ceci permet toutefois de définir les ordres de grandeurs associés de ces taux de recouvrement dont les taux optimals valent 45 % pour une cavité symétrique de taille $d = 3,11$ mm, et 84 % pour une cavité de taille $d = 5$ mm.

La comparaison des valeurs des taux de recouvrement données par les figures 3.18 et 3.19 mettent en évidence le fait intuitif que, plus le mode de la cavité est de grande dimension, meilleur est son recouvrement par le faisceau pompe de fort astigmatisme. Ceci se traduit par un meilleur taux de transfert d'énergie du faisceau pompe vers le mode laser dans le cristal laser, ce qui est favorable pour passer le seuil de la cavité étudiée.

Les figures 3.18 et 3.19 montrent également que les variations du taux de recouvrement sont toujours plus faibles pour les parties de courbes à droite des maxima que pour celles situées à leur gauche. Ainsi, pour un même taux de recouvrement obtenu à partir de deux couples différents $(w_{0,h}, w_{0,v})$, il est préférable de choisir le couple $(w_{0,h}, w_{0,v})$ faisant intervenir les plus grandes valeurs de tailles de cols du faisceau pompe dans les plans horizontal et vertical. Ceci permet de se placer dans le cas où le taux de recouvrement est moins sensible à de possibles fluctuations expérimentales des dimensions transverses du faisceau pompe en entrée de sphère. De plus, le choix du couple $(w_{0,h}, w_{0,v})$ avec les plus grandes dimensions conduit aussi à propager un faisceau pompe plus proche d'une propagation en onde plane dans la sphère, parallèlement à l'axe de la cavité.

Le tableau 3.7 du paragraphe 3.9.1 décrit les tailles de faiseau pompe qui sont réalisables grâce à la transformation de l'OPO Panther avec les jeux de lentilles dont nous disposons. A partir de cette caractérisation des tailles de faisceau pompe accessibles, une estimation des taux de recouvrement associés a été réalisée, ce que rapporte le tableau 3.8. Le meilleur taux de recouvrement réalisable expérimentalement est alors obtenu pour deux lentilles cylindriques orthogonales, de focales $f_v = +100$ mm et $f_h = +75$ mm. Les taux de recouvrement, qui prennent en compte la correction d'une éventuelle sur-estimation, valent alors 45 % pour une cavité symétrique de dimension $d = 3,11$ mm, et jusqu'à 73 % lorsque $d = 5$ mm.

Ces deux taux de recouvrement sont tout à fait comparables aux taux optimals en-

visageables, qui ont été mis en évidence par les figures 3.18 et 3.19, et dont les valeurs maximales, non corrigées vis-à-vis d'une éventuelle sur-estimation, étaient 45 % pour $d = 3,11$ mm, et 84 % lorsque $d = 5$ mm. Toutefois, le tableau 3.8 met en évidence que les configurations $(f_v, f_h) = (+100, +50)$ et $(f_v, f_h) = (+75, +50)$ conduisent aussi à des focalisation du faisceau pompe très correctes.

d = 3,11 mm	f_v +50	f_v +75	f_v +100
f_h +50		44 %	44 %
f_h +75	41 %		**45 %**
f_h +100	35 %	39 %	

(a)

d = 5 mm	f_v +50	f_v +75	f_v +100
f_h +50		70 %	72 %
f_h +75	64 %		**73 %**
f_h +100	63 %	70 %	

(b)

TAB. 3.8 – *Taux de recouvrement, pour des cols horizontal et vertical de faisceau pompe situés à 1 mm en entrée de sphère, de dimensions réalisables avec deux lentilles cylindriques orthogonales, et pour un coefficient d'absorption linéaire $\alpha = 3\ cm^{-1}$,. (a) Cavité symétrique de dimension $d = 3,11$ mm. (b) Cavité symétrique de dimension $d = 5$ mm.*

A partir de la source OPO dont nous disposons, et pour des conditions d'alignement idéales entre le faisceau pompe et le mode laser, les taux de recouvrement volumiques expérimentaux vont donc être compris, en fonction de la taille du mode laser dans la sphère, entre 45 % et 73 % pour des dimensions de la cavité symétrique comprises entre 3,11 mm et 5 mm. Ceci donne la fraction utile en énergie du faisceau pompe, qui est effectivement injectée dans le mode laser.

La configuration expérimentale optimale de focalisation du faisceau pompe, avec des lentilles de focales $f_v, = +100$ et $f_h, = +75$, conduit à une propagation dont les profils longitudinaux horizontal, $w_{pompe,h}$, et vertical, $w_{pompe,v}$, sont décrits par la figure 3.20.(a) en fonction de la position ξ au sein de la cavité. Les profils du faisceau pompe sont décrits depuis la position de focalisation à 1 mm en amont de la sphère, jusqu'après la cavité. Le profil du mode laser est décrit du miroir M_1 au miroir M_2, sur toute la longueur de la cavité.

La figure 3.20.(b) illustre l'intégration du taux de recouvrement volumique τ_{vol} au cours de la propagation dans le milieu amplificateur sphérique. L'évolution du taux de

recouvrement dans la sphère met en évidence que le pompage du mode laser se fait majoritairement en début de propagation du faisceau pompe dans le milieu laser, c'est-à-dire tant que l'amplitude du faisceau pompe est encore forte, et qu'elle n'a pas été trop atténuée par l'absorption du milieu laser.

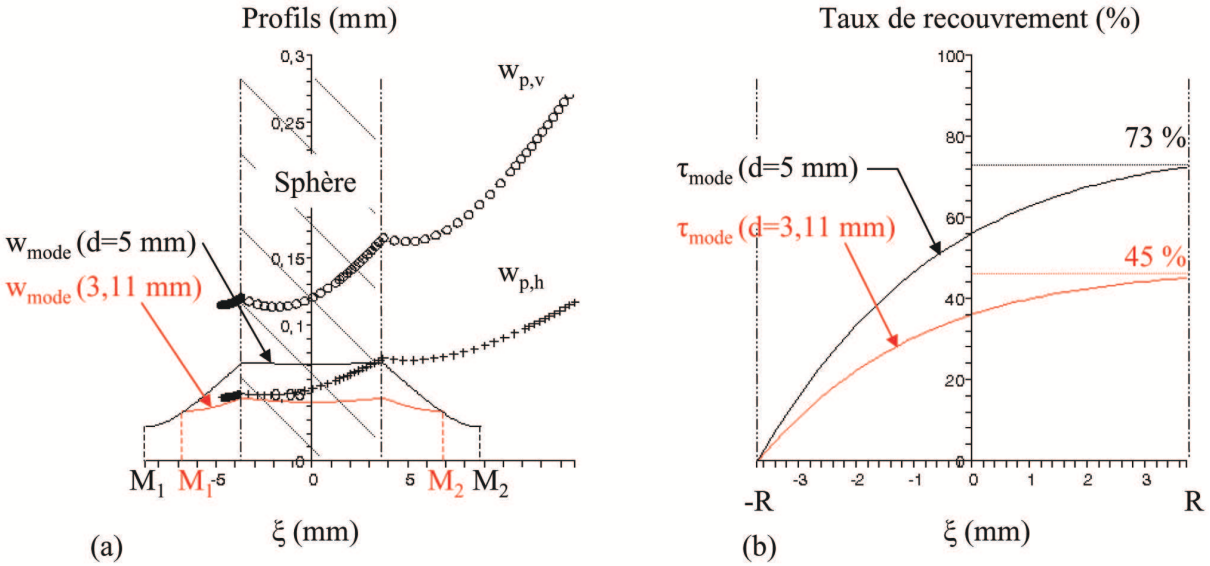


FIG. 3.20 – *(a) Profils longitudinaux $w_{p,h}$ et $w_{p,v}$ en fonction de la position ξ dans la cavité, selon les directions transverses horizontale (ronds) et verticale (croix) du faiseau pompe focalisé à $w_{0,h} = 47$ μm et $w_{0,v} = 115$ μm, à 1 mm en entrée de sphère. Mode laser dans la cavité symétrique, avec $d = 3,11$ mm (trait continu rouge) et $d = 5$ mm (trait continu noir). (b) Intégration du taux de recouvrement, pour $d = 3,11$ mm (trait continu rouge) et $d = 5$ mm (trait continu noir).*

3.10 Estimation du seuil de la cavité laser symétrique

Avant toute mise en oeuvre expérimentale de la cavité laser avec un milieu amplificateur sphérique de $YCOB : Nd$, il est indispensable d'estimer l'énergie de pompage disponible en sortie de la source OPO, et de s'assurer qu'elle est suffisante pour créer l'inversion de poulation au sein du milieu laser, afin de dépasser en particulier le seuil de mise en oscillation de la cavité étudiée.

L'estimation du seuil d'une cavité doit prendre en compte les caractéristiques spatiales et temporelles du faisceau pompe, les propriétés spectroscopiques d'absorption et d'émission du milieu à gain, et enfin les pertes existant au sein de la cavité. Dans le cas étudié, ces pertes sont principalement dues aux réflexions sur les surfaces de la sphère, qui ne

sont pas traitées anti-reflet à λ_{laser}, et à la transmission du miroir de sortie M_2.

L'estimation du seuil de la cavité laser symétrique, prenant en compte toutes les considérations citées ci-dessus, est difficile à réaliser d'un point de vue théorique. Il a donc été choisi de réaliser cette estimation à partir d'une étude expérimentale.

L'étude expérimentale a porté sur la détermination du seuil d'une cavité laser plan-convexe, avec un cristal de $YCOB : Nd$ à faces planes orientées orthogonalement à l'axe principal $\vec{Y}$. Ce cristal provient du même échantillon cristallin que celui d'où a été unisée la sphère, ce qui leur assure les mêmes propriétés spectroscopiques intrinsèques. Le cristal à faces planes a une épaisseur $e = 8,1$ mm tandis que la sphère est de diamètre $2R = 7,44$ mm : les deux longueurs d'interaction sont donc similaires. Enfin, la cavité laser plan-convexe a été réalisée avec deux miroirs dont les coefficients de transmission, à λ_{laser}, sont les mêmes que ceux des miroirs de la cavité avec le cristal sphérique, ce qui assure aux deux cavités les mêmes pertes. Les seules différences notables entre les deux cavités considérées sont d'une part les dimensions du mode laser et d'autre part celles du faisceau pompe, ce qui peut induire des différences notables des taux de recouvrement du mode laser par le faisceau pompe, et conduire à des seuils laser associés à chacune des deux cavités laser.

- Etude expérimentale de la cavité laser plan-convexe

Les miroirs utilisés sont de très haute réflexion $R_{\lambda_{laser}} > 99,99\%$ pour le miroir plan d'entrée M_1, et de faible transmission $T_{\lambda_{laser}} \approx 1\%$ pour le miroir concave de sortie M_2 dont le rayon de courbure vaut $R_{M_2} = 100$ mm. Le cristal à faces planes, dont le coefficient d'absorption linéaire est pris à la valeur intermédiaire $\alpha = 3\ cm^{-1}$, est accolé au miroir M_1.

La cavité plan-concave est stable lorsque $0 < 1 - \frac{\mathscr{L}}{R_{M_2}} < 1$, où $\mathscr{L} = L_{M_1,M_2} - e\frac{n-1}{n}$ avec L_{M_1,M_2} la distance entre les deux miroirs M_1 et M_2, e l'épaisseur du cristal à faces planes et n l'indice sollicité. Au voisinage du centre du domaine de stabilité de cette cavité, pour la distance entre les deux miroirs telle que $L_{M_1,M_2} \approx \frac{R_{M_2}}{2}$, le faisceau laser généré dans le mode gaussien $TEM_{0,0}$ présente, au niveau du miroir plan d'entrée M_1, un col de faisceau de l'ordre de $125 \pm 5\ \mu m$. Le paramètre de Rayleigh associé est de plusieurs centimètres, ce qui assure une propagation en faisceau parallèle à λ_{laser} dans le cristal amplificateur.

Un faisceau pompe a été focalisé, à partir de l'OPO Panther, à l'aide d'une lentille sphérique de focale $f = +100$ mm, et les caractéristiques spatiales obtenues sont $w_{p,h} = 78$ μm avec $M_h^2 = 3$ dans le plan horizontal, et $w_{p,v} = 131$ μm avec $M_v^2 = 16$ dans le plan vertical. Le col de faisceau pompe dans la direction verticale est focalisé 6 mm plus loin que celui dans la direction horizontale. Le recouvrement optimum du mode laser de la cavité plan-convexe est obtenu en plaçant le col vertical au centre du cristal laser. Il est alors estimé à 95 %.

La cavité plan-convexe a permis l'obtention d'une émission laser à $\lambda_{laser} = 1061$ nm, caractérisée par un seuil expérimental ; les courbes de gain laser associées sont décrites par la figure 3.21.(a) en fonction de l'état de polarisation du faisceau pompe et du faisceau laser émis. Pour une orientation de cristal correspondant à une propagation selon la direction $\vec{Y}$ dans le cristal à faces planes, les modes propres de polarisation accessibles sont des états de polarisation respectivement selon les directions $\vec{X}$ ou $\vec{Z}$.

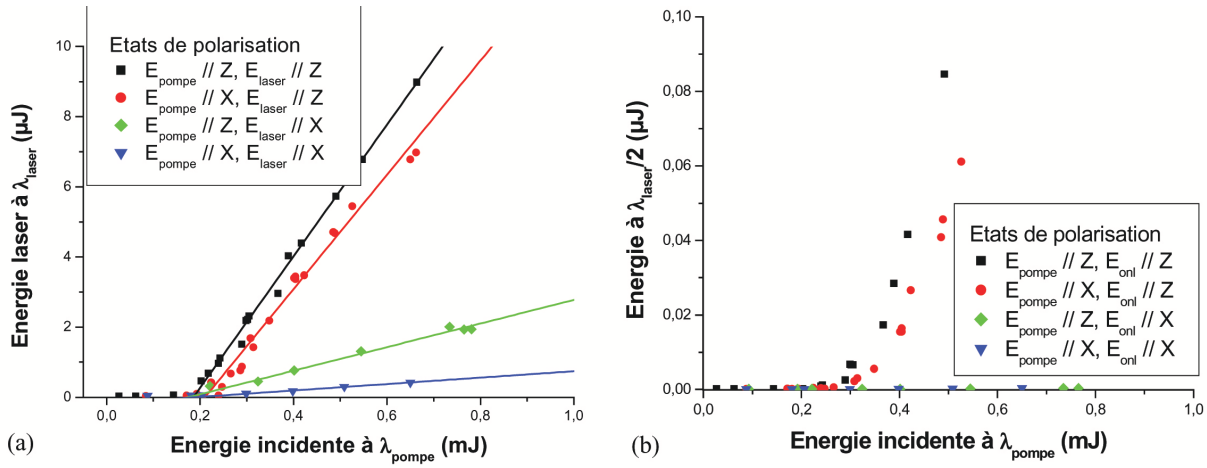


FIG. 3.21 – *Energie émise par une cavité laser plan-convexe, en fonction de l'énergie incidente du faisceau pompe par impulsion, pour différentes configurations de polarisation. (a) Emission laser à $\lambda_{laser} = 1061$ nm. (b) Emission de second harmonique à $\frac{\lambda_{laser}}{2} = 530,5$ nm en hors accord de phase.*

La figure 3.21.(a) a permis une estimation expérimentale du seuil laser de la cavité plan-convexe de $0,19 \pm 0.02$ mJ par impulsion, qui est indépendante de la polarisation de la pompe et de l'émission laser.

- Estimatin du seuil de la cavité laser de milieu amplificateur sphérique

La valeur de seuil de la cavité plan-convexe, avec un recouvrement $\tau_{vol} \approx 95$ %, peut alors être transposée à la cavité contenant le milieu sphérique. En considérant une orientation du cristal sphérique conduisant à des propriétés d'absorption et d'émission équivalentes à celles sollicitées dans le cristal à faces planes, une estimation du seuil expérimental de la cavité avec sphère, associé à un taux de recouvrement $\tau_{vol} \approx 45$ % pour $d = 3,11$ mm, peut alors être donnée. Ainsi, pour une propagation du mode laser selon la direction $\vec{Y}$ du repère optique de la sphère, la valeur du seuil expérimental, associé à une cavité de taille $d = 3,11$ mm, est alors estimée à $0,19 \times \frac{95}{45} \approx 0,4$ mJ par impulsion. Ce résultat est très encourageant, car l'énergie maximale disponible pour assurer le pompage est de l'ordre de $1,7$ mJ par impulsion, ce qui équivaut à 4 fois la valeur du seuil estimé de la cavité étudiée.

Ceci tend à prouver que le faisceau pompe utilisé devrait délivrer une énergie par impulsion suffisante pour passer le seuil de la cavité laser avec la sphère. Ceci est au moins vérifié dans le cas de l'alignement de l'axe de la cavité laser dans la direction $\vec{Y}$ du repère optique de $YCOB : Nd$. Toutefois, le seuil estimé, de l'ordre $0,4$ mJ par impulsion, est valable pour les quatre configurations de polarisation considérées, respectivement associées aux deux modes de polarisation de pompage et aux deux modes d'émission laser. Ces quatre configurations, de même seuil expérimental, explorent donc des plages importantes de valeurs caractérisant les anisotropies de l'absorption et de l'émission, dont les indicatrices ont été illustrées dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, par les figures 2.10 et 2.12 du chapitre 2. Ceci est donc très encourageant et permet d'envisager favorablement le pompage de la cavité laser avec sphère selon l'ensemble des directions correspondant aux directions d'auto-doublage.

La figure 3.21.(b) met en évidence que l'émission laser conduit également à une émission à la longueur d'onde $\frac{\lambda_{laser}}{2} = 530,5$ nm, ce qui correspond à une interaction non linéaire intracavité de doublage de fréquence, en situation de hors accord de phase. En effet, la direction de propagation selon l'axe $\vec{Y}$ n'est pas une direction d'accord de phase en SHG à la longueur d'onde fondamentale $\lambda_{laser} = 1061$ nm dans $YCOB : Nd$. De plus, ce processus fait intervenir simultanément les deux états de polarisation à λ_{laser}, et elle disparaît lorsqu'un des deux modes de polarisation de l'émission à λ_{laser} n'est plus réalisée

par la cavité.

Ces résultats conduisent à penser que, si l'émission laser est réalisée selon une direction efficace d'accord de phase d'auto-doublage, au sein la cavité laser symétrique de milieu amplificateur sphérique, alors l'émission à $\lambda_{auto-SHG} = \frac{\lambda}{2}$ devrait être observable dans de bonnes conditions.

3.11 Bilan de l'étude de la cavité laser avec milieu sphérique et première tentative de réalisation

L'étude théorique d'une cavité laser, composée de deux miroirs plans et d'un milieu amplificateur de géométrie sphérique, a permis de définir le domaine de stabilité associé. La configuration optimale pour l'étude des propriétés d'auto-doublage correspond alors à une cavité symétrique, avec les distances entre les miroirs et les surfaces de la sphère valant $d = 3,11$ mm, ce qui permet de se placer au centre du domaine de stabilité.

Pour cette configuration, le mode laser généré dans la cavité présente trois cols, dont deux sont sur chacun des deux miroirs et le troisième étant placé au centre de la sphère de rayon R. La dimension du col situé au centre de la sphère vaut 43 μm, et le paramètre de Rayleigh associé vaut $2,5R$, ce qui permet une propagation en onde plane sur toute l'épaisseur de la sphère. En modifiant les dimensions de la cavité symétrique tout en restant dans le domaine de stabilité, la taille de ce col de mode laser est accordable entre 32 μm et quelques 80 μm, tout en gardant une propagation en onde plane sur toute l'épaisseur de la sphère.

Le faisceau pompe utilisé provient d'une source OPO commerciale standard. Il présente un fort astigmatisme associé à des paramètres moyens $M_h^2 = 3 \pm 1$ et $M_v^2 = 16 \pm 4$ selon les directions principales d'astigmatisme, respectivement dans les plans horizontal et vertical. Il est alors apparu nécessaire de mettre en forme le faisceau, de manière indépendante selon chacune de ces deux directions, en utilisant deux lentilles cylindriques orthogonales entre elles. Un taux de recouvrement volumique du mode laser par le faisceau pompe focalisé par deux lentilles cylindriques orthogonales a été estimé de l'ordre de 45 % pour une cavité de dimensions $d = 3,11$ mm.

Des études expérimentales, à partir d'une cavité laser plan-concave, contenant un milieu amplificateur de $YCOB : Nd$ à faces planes, ont permis d'estimer le seuil laser de la cavité symétrique avec sphère à 0,19 mJ par impulsion, ce qui correspond à un seuil laser expérimental de 0,4 mJ en prenant en compte le recouvrement limité du mode laser par le faisceau pompe. Cette valeur reste inférieure aux 1,7 mJ délivrés par le faisceau pompe, à chaque impulsion, ce qui tend à montrer que la source OPO utilisée devrait permettre de réaliser une émission laser à partir de la cavité symétrique avec sphère, malgré des caractéristiques spatiales de pompage peu favorables.

Une photo de la cavité laser contenant la sphère de $YCOB : Nd$ est donnée par la figure 3.22. La configuration symétrique considérée est la suivante : une distance $d = 3,11$ mm entre la sphère et les miroirs plans ; une focalisation de la source OPO par deux lentilles cylindriques orthogonales, de focales $f_v = +75$ mm et $f_h = +50$ mm, afin d'assurer le pompage de la cavité. Ceci conduit alors à un taux de recouvrement théorique du mode laser de l'ordre de 44 %, qui est très proche du taux optimal accessible de 45 % pour cette taille de cavité, avec le faisceau pompe utilisé.

Les premiers essais de pompage n'ont cependant pas permis la génération d'une émission laser sur sphère de $YCOB : Nd$, bien qu'il ait été déterminé que le faisceau pompe semble présenter des propriétés énergétiques, spatiales et temporelles nécessaires pour le permettre. Sur la base de cette étude, de nouveaux essais devront être effectués, en se plaçant par exemple dans le cas de recouvrements de l'ordre de 73 %, avec un jeu de lentilles cylindriques $f_v = +100$ mm et $f_h = +75$ mm, avec une cavité laser symétrique de dimension $d = 5$ mm.

Des expériences sont en cours, et nous espérons que le travail préparatoire effectué, qui est décrit dans ce chapitre, contribuera à la réalisation, dans un futur proche, de la cavité laser symétrique contenant un milieu amplificateur laser de géométrique sphérique.

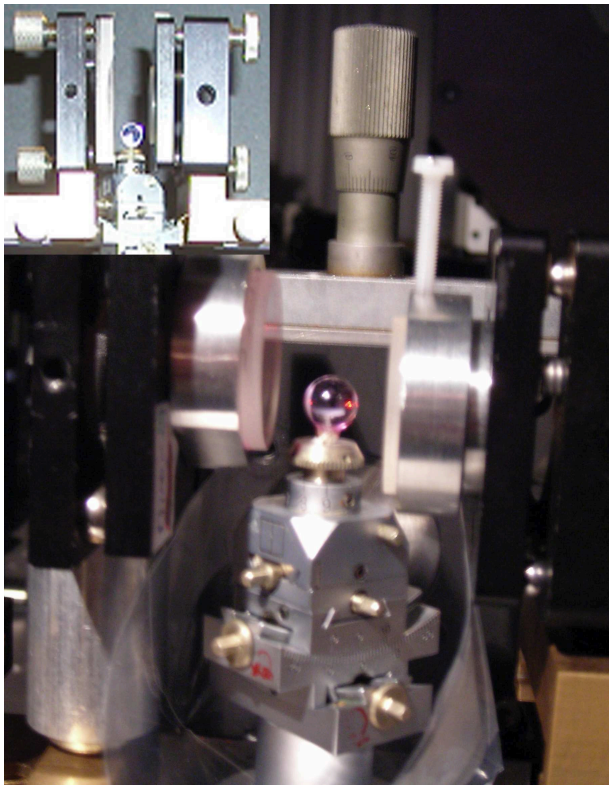


FIG. 3.22 – *Sphère de $YCOB : Nd$ entre deux miroirs plans hautement réfléchissants à la longueur d'onde λ_{laser}, dans une configuration symétrique de cavité avec des dimensions optimales $d = 3,11$ mm entre les surfaces de la sphère et celles de chacun des deux miroirs.*

Chapitre 4

Théorie du Quasi-Accord de Phase Angulaire (QAPA)

4.1 Position du problème et motivations

Dès la mise en évidence de l'existence des premiers processus de conversion de fréquence en accord de phase [10] en 1961, de nouveaux shémas d'interactions ont été proposés dans l'objectif de réaliser des interactions paramétriques constructives sur toute la longueur des cristaux utilisés, même lorsque les trois ondes en interaction ne vérifient pas la condition d'accord de phase [11]. Une des approches alors proposées, fut d'envisager des milieux à propriétés optiques non linéaires dont le signe de la susceptibilité électrique du second ordre $\chi^{(2)}$ est périodiquement inversée. Cette alternance périodique du signe des éléments du tenseur $\chi^{(2)}$ introduit un déphasage de π au cours de la propagation de l'interaction d'un domaine au domaine suivant, ce qui permet de compenser le déphasage entre la polarisation non linéaire et le champ rayonné en hors accord de phase. Ce shéma est appelé « Quasi-Accord de Phase », et sera noté QAP. Au début des années 1960, le QAP est avant tout un développement théorique, et il n'existe pas de savoir-faire technologique permettant de structurer périodiquement $\chi^{(2)}$ au sein de milieux non linéaires.

Jusqu'au début des années 1990, l'accord de phase par biréfringence est le seul moyen pratique utilisé pour obtenir des efficatés de conversion élévées au cours d'interactions à trois ondes. Les principaux matériaux permettant de réaliser la condition d'accord de

phase étaient principalement $LiNbO_3$, KH_2PO_4, $KTiOPO_4$, βBaB_2O_4 et LiB_3O_5. Cependant, l'accord de phase par biréfringence ne permet pas de solliciter les éléments de plus fortes amplitudes du tenseur $\chi^{(2)}$. Par conséquent, des techniques de structuration des matériaux ont été développées au cours des quinze dernières années afin de palier cette limitation, en réalisant des interactions efficaces en QAP [75]. Actuellement, les principaux matériaux utilisés en QAP sont $LiNb0_3$ [75,76], $KTiOPO_4$ [77,78] et $GaAs$ [79,80], au sein desquels il est possible d'inverser périodiquement le signe des coefficients non linéaires.

Des dispositifs performents sont maintenant commercialement disponibles, notamment avec des cristaux péridioquement alternés de $LiNbO_3$ et $KTiOPO_4$, respectivement notés $PPLN$ et $PPKTP$. Cependant, une accordabilité spectrale continue de ces dispositifs est difficile à réaliser. Des solutions ont toutefois été apportées, soit en juxtaposant au sein d'un même cristal plusieurs réseaux périodiques de même orientation mais de pas différents [81], soit en réalisant un réseau en « évantail » [82].

A partir des années 2000, d'importants progrès dans les procédés de structuration des milieux non linéaires par inversion périodique de leur polarisation spontanée ont permis la réalisation d'échantillons de $PPLN$ et de $PPKTP$ de plus grandes dimensions, jusqu'à obtenir des longueurs et des largeurs centimétriques. Des travaux précédents du groupe de Benoît Boulanger ont montré qu'il était possible d'augmenter l'accordabilité spectrale des interactions QAP en faisant varier l'angle de la direction de propagation des faisceaux laser par rapport à la direction normale aux domaines d'inversion au sein des matériaux $PPLN$ et $PPKTP$, dont les dimensions suffisamment grandes avaient permis un usinage cylindrique de ces cristaux [83,84]. Cependant, la faible épaisseur, de l'ordre de 500 μm pour $PPLN$ et 1 mm pour $PPKTP$, ont uniquement permis d'envisager et de réaliser des propagations de faisceaux au sein du plan orthogonal aux domaines d'inversion et à l'axe de rotation des échantillons cylindriques.

Depuis la réalisation des échantillons cylindriques, les efforts dans la fabrication de $PPLN$ se sont poursuivis [85,86], et les progrès effectués permettent aujourd'hui au groupe de T. Taira, de l'Institut des Sciences Moléculaires à Okasaki au Japon, de réa-

liser des échantillons de $PPLN$ alternés sur une épaisseur de 5 mm, tout en conservant des dimensions élevées pour la largeur et la longueur [87]. L'épaisseur des domnaines périodiquement alternés étant inversement proportionnelle au champ électrique qu'il faut appliquer localement pour vaincre le champ coercitif et renverser la polarisation du milieu ferroélectrique [88], il apparaît nécessaire de faire chuter la valeur du champ coercitif pour obtenir des échantillons d'épaisseurs de plus en plus grandes. Ce champ peut être diminué en effectuant l'inversion périodique du milieu à température élevée, tout en restant à des températures inférieures à la température de transition de la phase ferroélectrique à la phase paraélectrique [89]. Dans le cas de $PPLN$, le dopage avec MgO, à un taux molaire de 5%, diminue le champ coercitif, dont les valeurs passent de 21 kV/mm à 4,5 kV/mm [85, 90]. D'une part, ce dopage n'affecte pas significativement les valeurs des coefficients non linéaires de $MgO : PPLN$ par rapport à ceux de $PPLN$, et d'autre part, il rend $MgO : PPLN$ moins sensible aux effets photoréfractifs que $PPLN$.

La réalisation d'échantillons de $MgO : PPLN$ est une étape importante en vue de la conception de nouveaux dispositifs. Des cristaux, présentant une plus grande fenêtre d'entrée pour les faisceaux, permettent de travailler avec des énergies importantes, tout en restant sous le seuil de dommage optique [91, 92]. De plus, des cristaux de dimensions transverses suffisamment grandes présentent un autre avantage, dont l'intérêt se situe tant d'un point de vue théorique qu'en terme d'applications envisageables. En effet, à partir de cristaux périodiquement alternés de dimensions suffisamment grandes dans les trois directions de l'espace, il est possible d'envisager des interactions paramétriques selon toutes les directions de propagation par rapport à la direction normale aux domaines d'inversion.

Cette approche constitue une généralisation du QAP classique. Ce schéma d'interactions paramétriques est appelé Quasi-Accord de Phase Angulaire (et sera noté QAPA), car il correspond à un processus de QAP qui peut être réalisé selon n'importe quelle direction par rapport au vecteur réseau caractérisant la périodicité physique du milieu périodiquement alterné [93, 94].

Ce chapitre de thèse a pour objet de développer la théorie du QAPA. Tout d'abord, il explicite la condition de QAPA conduisant à des interactions paramétriques à trois ondes

en QAPA. Ensuite, une analyse de symétrie basée sur la théorie des groupes permet de présenter les topologies et les symétriques associées des cônes de solutions en QAPA. Puis, une description des classes de solutions déteminées dans les milieux uniaxes est présentée. Ensuite, l'ensemble des coefficients effectifs susceptibles d'intervenir au cours d'interactions paramétriques au sein de $MgO : PPLN$ est détaillé et déterminé. Enfin, les premiers calculs de QAPA sont présentés afin d'en illustrer les potentiels avec $MgO : PPLN$, en terme de types, de plages spectrales accessibles, et de largeurs spectrales envisageables. Ce travail doit ainsi illustrer et positionner l'intérêt du QAPA vis-à-vis du QAP [11, 75, 83, 84].

4.2 Rappels sur le QAP classique

La figure 1.4 du chapitre 1, rappelée par la figure 4.1, a mis en évidence l'évolution périodique, en $sinus^2$, de la puissance générée, en fonction de la distance d'interaction paramétrique, en hors accord de phase. Après une propagation sur une longueur de cohérence $l_c = \frac{\pi}{\Delta k}$ définie au paragraphe 1.2.2.3 du chapitre 1, le déphasage entre la polarisation non linéaire et le champ généré qu'elle rayonne vaut exactement π. Ceci conduit périodiquement à des phases d'interférences alternativement constructives, puis destructives entre la polarisation non linéaire et le champ qu'elle rayonne. En hors accord de phase, un processus paramétrique ne conduit donc pas à une interaction globalement constructive sur toute la longueur d'interaction.

Le principe du QAP repose sur l'introduction, à chaque propagation sur la distance l_c du processus paramétrique réalisé, d'un déphasage de π. Ce déphasage vient alors se rajouter au déphasage spatial issu de la propagation sur une longueur de cohérence, ce qui permet une remise en phase de la polarisation non linéaire avec le champ rayonné. Ceci permet alors de réaliser un processus paramétrique qui est constructif sur chaque longueur de cohérence. Ainsi, il y a conversion de fréquence tout au long de la propagation dans le cristal non linéaire, et ceci même si la condition d'accord de phase n'est pas réalisée comme illustré par la figure 4.1.

L'introduction, à chaque longueur de cohérence, du déphasage π peut être réalisée

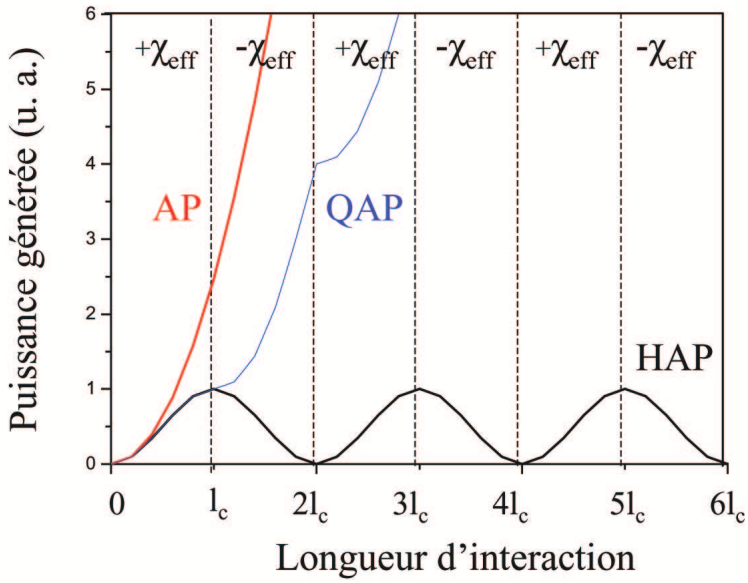


FIG. 4.1 – *Evolution de la puissance générée en fonction de la longueur d'interaction au cours d'un processus paramétrique en accord de phase (AP), en hors accord de phase (HAP), et en quasi-accord de phase (QAP) lorsque la longueur de cohérence l_c et la périodicité Λ du milieu alterné vérifient $2l_c = \Lambda$.*

grâce à différentes techniques. Les principales approches sont :

- le quasi-accord de phase par biréfringence de Fresnel, [11, 95],
- la biréfringence artificielle [96–98],
- l'accord de phase par dispersion modale [99, 100],
- l'orientation périodique de cristaux par collage moléculaire [79, 101],
- l'inversion périodique de la polarisation spontanée dans les milieux ferroélectriques [11, 78, 85].

Le QAP classiquement utilisé correspond à l'inversion périodique de la polarisation spontanée d'un cristal ferroélectrique, et donc du signe des éléments du tenseur susceptibilité électrique du second ordre. Les interactions paramétriques réalisées en QAP classique correspondent à une propagation selon l'axe $\vec{X}$, orthogonalement aux domaines d'inversion. Ainsi, ces interactions sollicitent $+\chi^{(2)}$ sur un domaine, puis $-\chi^{(2)}$ sur le domaine suivant. La distance associée à deux domaines alternés successifs constitue la périodicité de la structure artificielle, notée Λ. Selon la direction $\vec{u}_X$, la polarisation non linéaire correspondant à une interaction paramétrique dont la relation de conservation de l'énergie est donnée par l'expression 1.17 du chapitre 1, et dont les trois vecteurs d'onde sont colinéaires ; elle s'écrit :

de 0 à l_c :

$\vec{P}^{(2)}(\omega_3) = \epsilon_0 E(\omega_1) E(\omega_2) \left(+\chi^{(2)}\right) : \{\vec{e}(\omega_1) \otimes \vec{e}(\omega_2)\} e^{j(k_1+k_2)x}$

de l_c à $2l_c$:

$\vec{P}^{(2)}(\omega_3) = \epsilon_0 E(\omega_1) E(\omega_2) \left(-\chi^{(2)}\right) : \{\vec{e}(\omega_1) \otimes \vec{e}(\omega_2)\} e^{j(k_1+k_2)x}$

$= \epsilon_0 E(\omega_1) E(\omega_2) \left(+\chi^{(2)}\right) : \{\vec{e}(\omega_1) \otimes \vec{e}(\omega_2)\} e^{j((k_1+k_2)x+\pi)}$

Les expressions ci-dessus montrent bien que le renversement du signe de $\chi^{(2)}$ conduit à l'introduction de π dans la phase spatiale de la polarisation non linéaire à l'entrée du deuxième domaine. Cette compensation de déphasage, introduite par l'alternance de domaines, correspond à une relation de conservation de l'impulsion vérifiée lorsque $2l_c = \Lambda$, ce qui conduit à la relation suivante [11, 75] :

$$\vec{k_3} - \vec{k_1} - \vec{k_2} - \vec{K}_\Lambda = \vec{0} \tag{4.1}$$

où $\vec{K}_\Lambda = \frac{2\pi}{\Lambda}\vec{u}_x$ est le vecteur réseau. Comme la périodicité du milieu est unidirectionnelle, le vecteur réseau est bien orthogonal aux domaines d'inversion.

4.3 Condition de QAPA

En général, le QAP est réalisé selon une unique direction de propagation, correspondant à la direction colinéaire au vecteur réseau défini au paragraphe précédent [75, 77]. Cette configuration est notée QAP-1D, puisque la propagation de l'interaction est restreinte à la seule direction orthogonale aux domaines d'inversion. Au cours de travaux antérieurs, l'équipe de Benoît Boulanger a montré la possibilité de considérer trois ondes en interaction paramétrique, se propageant dans différentes directions du plan orthogonal aux domaines d'inversion et contenant le vecteur réseau : dans un Oscillateur Paramétrique Optique (OPO) contenant un cristal $PPKTP$ [83], et dans un Générateur Paramétrique Optique (OPG) contenant un cristal $PPLN$ [84]. Cette configuration est notée QAP-2D, puisque la propagation de l'interaction est étendue à l'ensemble des directions d'un plan. Elle a conduit à la réalisation expérimentale de la plus grande accordabilité

spectrale continue réalisable à ce jour. Ceci a également permis de démontrer que les trois faisceaux en interaction, pompe, signal, et idler, demeuraient colinéaires, ce qui est resté vérifié pour des directions de propagation faisant des angles de valeurs importantes, supérieures à 30°, par rapport au vecteur réseau. Cette propagation colinéaire a été observée dans les deux cas, c'est-à-dire, pour l'OPO à base de $PPKTP$ [83], et pour l'OPG à base de $PPLN$ [84]. Cette dernière situation est particulièrement intéressante dans la compréhension des processus de QAP. En effet, au cours d'une telle expérience d'OPG, aucune cavité ne forçe les faisceaux signal et idler à être générés de façon colinéaire au faisceau pompe. Ainsi, le couplage non linéaire des ondes a été considéré comme un processus paramétrique tels que $\vec{k}_{pompe} = \vec{k}_3$ et $(\vec{k}_{signal} + \vec{k}_{idler}) = (\vec{k}_1 + \vec{k}_2)$ sont colinéaires. La période effective sollicitée au cours de l'interaction colinéaire peut varier avec la direction de propagation, conduisant à une accordabilité spectrale de chacun des deux dispositifs, OPO et OPG : le calcul des courbes d'accordabilité à partir du modèle d'interaction colinéaire en QAP-2D étaient en excellent accord avec les données expérimentales [83, 84].

Sur la base de ce qui vient d'être présenté en QAP-1D et QAP-2D, nous proposons de généraliser l'approche colinéaire du QAP au QAP-3D, que nous avons appelé Quasi-Accord de Phase Angulaire, notée QAPA : n'importe quelle direction de propagation par rapport au vecteur réseau peut être considérée, les trois vecteurs d'onde étant colinéaires entre eux, tel que le montre la figure 4.2.

Dans le cadre du QAPA, c'est-à-dire du QAP-3D colinéaire, la relation vectorielle de conservation de l'impulsion peut être ramenée à l'écriture scalaire suivante :

$$\frac{n(\lambda_3;\theta,\phi)}{\lambda_3} - \frac{n(\lambda_1;\theta,\phi)}{\lambda_1} - \frac{n(\lambda_2;\theta,\phi)}{\lambda_2} - \frac{|cos(\phi)sin(\theta)|}{\Lambda} = 0 \tag{4.2}$$

Les angles (θ, ϕ) sont les angles en coordonnées sphériques dans le repère optique $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$, associés à la direction de propagation des trois ondes en interaction colinéaire, et satisfaisant l'équation (4.2) ; $n(\lambda_i;\theta,\phi)$ correspond à l'indice de réfraction de l'onde $i = 1, 2, 3$ décrit dans le paragraphe 1.2.1.2 du chapitre 1. Le vecteur réseau est supposé être orienté selon l'axe $\vec{X}$ du repère optique du cristal, tel que le montre la figure 4.2.(a). La relation de QAP est réalisée lorsque la période effective sollicitée, $\Lambda(\theta, \phi)$, vérifie $\Lambda(\theta, \phi) = 2l_c(\theta, \phi)$, où $l_c(\theta, \phi)$ est la longueur de cohérence de l'interaction dans la direction (θ, ϕ).

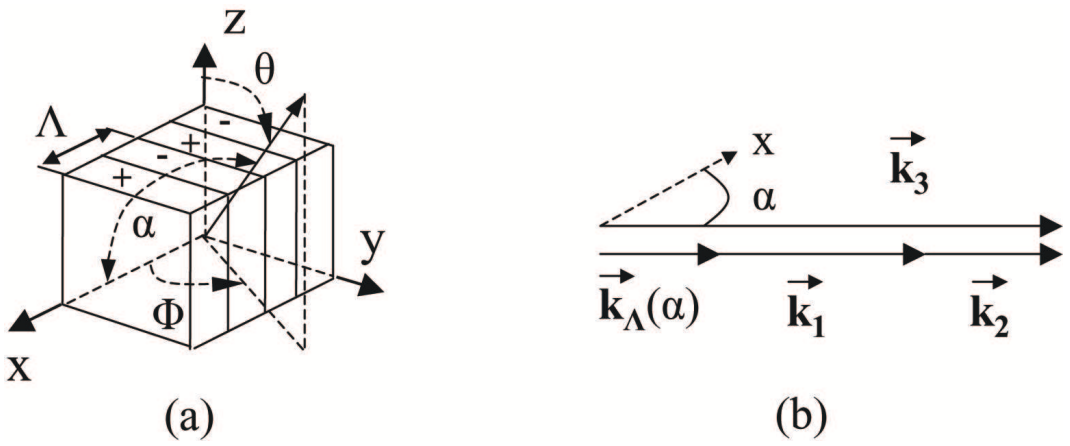


FIG. 4.2 – *Configuration de QAPA colinéaire. (a) Schéma du milieu périodiquement alterné ; Λ est la période d'inversion ; les angles (θ, ϕ) sont les angles en coordonnées sphériques, associés à la direction de propagation des trois ondes en interaction dans le repère optique $(\vec{X}, \vec{Y}, \vec{Z})$; α est l'angle entre la direction de propagation et l'axe $\vec{X}$. (b) $\vec{K}_\Lambda(\alpha)$ est le vecteur réseau effectif selon la direction de propagation, et $\vec{k}_1$, $\vec{k}_2$, $\vec{k}_3$ sont les vecteurs d'onde des ondes en interaction.*

Dans le cas du QAP-1D, le long de l'axe $\vec{X}$, il vient : $\Lambda(\theta, \phi) = \Lambda$ [11, 75]. Dans le cas du QAP-2D, $\Lambda(\theta, \phi) = \left|\frac{\Lambda}{cos(\phi)}\right|$ dans le plan principal $(\vec{X}, \vec{Y})$ [83, 84]. Enfin, dans le cas du QAP-3D, $\Lambda(\theta, \phi) = \left|\frac{\Lambda}{sin(\theta)cos(\phi)}\right|$ en QAPA pour toute direction de propagation envisageable de l'interaction paramétrique.

La possibilité de réaliser une interaction colinéaire en QAP selon n'importe quelle direction oblique par rapport au vecteur réseau peut être comprise de façon très simple, en considérant les deux premiers domaines traversés dans le milieu périodiquement alterné. Prenons l'exemple d'une somme de fréquence, tout en gardant à l'esprit que les explications sont générales et pourraient aussi s'appliquer pour n'importe quelle autre intéraction paramétrique. Deux domaines consécutifs peuvent être traités successivement dans la direction de propagation de l'interaction. Lorsque deux vecteurs d'onde $\vec{k}_1$ et $\vec{k}_2$, associés à deux ondes de pulsations respectives ω_1 et ω_2, sont colinéaires et orthogonaux à la surface d'entrée du cristal, ils sont alors tous deux réfractés à l'intérieur du premier domaine selon la même direction, elle-même identique à leur direction incidente en entrée de milieu, en vertu des lois de Snell-Descartes. Ainsi, la polarisation non linéaire résultante se propage selon la même direction, dans la mesure où le vecteur d'onde correspondant est $\vec{k}_1 + \vec{k}_2$. Si la direction considérée n'est pas une direction d'accord de phase, il existe un déphasage $\Delta\vec{k}$ entre la polarisation non linéaire et le champ qu'elle rayonne à la pulsation $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$,

et dont le vecteur d'onde est $\vec{k}_3 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 + \Delta\vec{k}$. Il est à noter que cette relation vectorielle se ramène à une relation scalaire lorsque la colinéarité entre la polarisation non linéaire et le champ rayonné est considérée, conduisant ainsi à un désaccord de phase Δk selon la même direction de propagation que celles de tous les champs en interaction. En fait, ces considérations sont exactement les mêmes que celles relatives à un milieu homogène, dans la mesure où, dans un premier temps, seul le premier domaine est considéré [11].

A la frontière entre le premier et le deuxième domaine, il n'existe pas de discontinuité en terme d'indice de réfraction, puisque la structuration périodique du milieu concerne uniquement la susceptibilité électrique du second ordre. En conséquence, toutes les ondes sont réfractées à l'entrée du second domaine selon la même direction, elle-même identique aux directions d'incidence, ceci étant vrai pour toutes valeurs des angles (θ, ϕ) entre cette direction et le vecteur réseau. Ainsi, les trois ondes en interaction sont et demeurent colinéaires. Le désaccord de phase pertinent à considérer est toujours le même que celui déterminé dans le premier domaine, c'est-à-dire : $\Delta k(\theta, \phi) = \frac{n(\lambda_3;\theta,\phi)}{\lambda_3} - \frac{n(\lambda_1;\theta,\phi)}{\lambda_1} - \frac{n(\lambda_2;\theta,\phi)}{\lambda_2}$. Le concept du QAP est alors de prendre la longueur de cohérence, $l_c = \frac{\pi}{\Delta k}$, de l'interaction considérée comme la longueur unitaire de chaque domaine [11]. Cette longueur doit nécessairement être prise selon la direction de propagation des ondes en interaction. Ainsi, dans le cas du QAPA, la période à considérer n'est pas Λ, mais une période effective selon la direction de propagation de l'interaction, c'est-à-dire : $\Lambda(\theta, \phi) = 2l_c(\theta, \phi) = \left|\frac{\Lambda}{sin(\theta)cos(\phi)}\right|$, ce qui conduit à la condition de QAPA exprimée par l'expression (4.2).

De même que pour l'accord de phase par biréfringence, il est possible de considérer une interaction où les trois vecteurs d'onde $\vec{k}_1$, $\vec{k}_2$, et $\vec{k}_3$, ne sont pas colinéaires entre eux. De plus, dans le cas du QAPA, les vecteurs $\vec{k}_1 + \vec{k}_2$ et $\vec{k}_3$ ne sont pas nécessairement colinéaires, à cause du vecteur réseau $\vec{k_\Lambda}$, ce que montre la figure 4.3.

La configuration vectorielle non colinéaire en QAPA est donc plus compliquée que dans le cas de QAPA colinéaire. La modélisation correspondante peut toutefois être réalisée à partir des développements théoriques de la référence [75]. Cependant, dans les situations habituelles associées à des dispersions spectrales typiques des indices de réfraction, les angles autorisés en QAPA non colinéaire sont très faibles, de sorte que la configuration non colinéaire est très proche de la configuration colinéaire. En effet, le calcul de la courbe

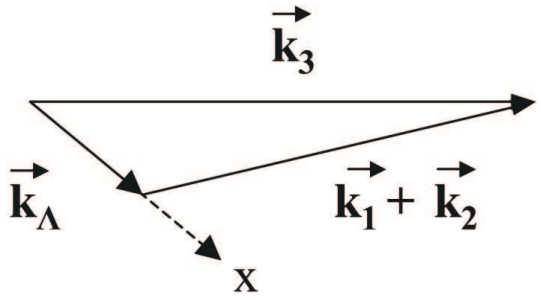


FIG. 4.3 – *Configuration de QAPA non colinéaire. $\vec{k}_\Lambda$ est le vecteur réseau ; $\vec{k}_1$, $\vec{k}_2$ et $\vec{k}_3$ sont les vecteurs d'onde des ondes en interaction.*

d'accordabilité du QAP-2D dans PPKTP conduit à des résultats très similaires pour les deux configurations colinéaire et non colinéaire, ce qui a été corroboré par des résultats expérimentaux [83].

Les valeurs des coefficients effectifs, ainsi que des acceptances spectrales et spatiales, dépendent de la direction de propagation considérée. Il est à noter que la configuration de polarisation classiquement retenue dans le cas du QAP-1D et du QAP-2D dans $PPLN$ et $PPKTP$, correspond à un type pour lequel le coefficient effectif sollicité est le plus fort coefficient non linéaire, c'est-à-dire, χ_{33} [11, 75, 83, 84]. Cependant, l'acceptance spectrale associée n'est pas nécessairement très élévée, ce qui peut limiter l'efficacité de conversion pour des interactions paramétriques réalisées en régime femtosconde. Par exemple, il a été montré que l'utilisation du type I, pour la génération de second harmonique en QAP dans $MgO : PPLN$, a permis l'obtention d'une largeur de bande d'émission de l'ordre de 4 fois supérieure à celle obtenue dans les mêmes conditions pour la configuration de polarisations des ondes en interaction en QAP-1D [102].

4.4 Types d'interaction en QAPA

Dans le cas d'interactions paramétriques à trois ondes au sein de milieux cristallins anisotropes, il y existe deux modes propres de polarisation associés à chacun des trois champs électriques en interaction, ce qui a été au paragraphe 1.2.1.3 du chapitre 1. Pour trois vecteurs d'onde donnés aux pulsations ω_1, ω_2 et ω_3, il existe donc $2^3 = 8$ configurations de polarisations envisageables. Parmi ces huit types possibles, seuls les trois types I, II et III sont réalisables en accord de phase [103]. Dans ces cas-ci, la biréfringence aux

différentes pulsations est sollicitée pour compenser la dispersion des indices de réfraction. Dans le cas des interactions en QAPA, les huit types de configurations de polarisations sont accessibles, ce qui rend le QAPA beaucoup moins restrictif que l'accord de phase en terme de schémas de polarisations, et donc en terme d'interactions envisageables. La dispersion des indices est alors compensée par l'influence du réseau périodique effectif ainsi que par la biréfringence du cristal à l'étude. Le tableau 4.1 présente les types I, II, III, IV, V, VI, VII et VIII envisageables en QAPA, les schémas de polarisations correspondants, ainsi que les équivalences entre les types, suivant qu'il s'agit d'un processus de SFG ou de DFG.

Relations de Quasi-accord de phase Angulaire	Configurations de polarisation			Types d'interaction		
	ω_3	ω_1	ω_2	SFG (ω_3)	DFG (ω_1)	DFG (ω_2)
$\omega_3 n_3^- = \omega_1 n_1^+ + \omega_2 n_2^+ + 1/\Lambda_{eff}$	$\vec{e}_3^{\,-}$	$\vec{e}_1^{\,+}$	$\vec{e}_2^{\,+}$	I	II	III
$\omega_3 n_3^- = \omega_1 n_1^- + \omega_2 n_2^+ + 1/\Lambda_{eff}$	$\vec{e}_3^{\,-}$	$\vec{e}_1^{\,-}$	$\vec{e}_2^{\,+}$	II	III	I
$\omega_3 n_3^- = \omega_1 n_1^+ + \omega_2 n_2^- + 1/\Lambda_{eff}$	$\vec{e}_3^{\,-}$	$\vec{e}_1^{\,+}$	$\vec{e}_2^{\,-}$	III	I	II
$\omega_3 n_3^- = \omega_1 n_1^- + \omega_2 n_2^- + 1/\Lambda_{eff}$	$\vec{e}_3^{\,-}$	$\vec{e}_1^{\,-}$	$\vec{e}_2^{\,-}$	IV	IV	IV
$\omega_3 n_3^+ = \omega_1 n_1^+ + \omega_2 n_2^+ + 1/\Lambda_{eff}$	$\vec{e}_3^{\,+}$	$\vec{e}_1^{\,+}$	$\vec{e}_2^{\,+}$	V	V	V
$\omega_3 n_3^+ = \omega_1 n_1^- + \omega_2 n_2^+ + 1/\Lambda_{eff}$	$\vec{e}_3^{\,+}$	$\vec{e}_1^{\,-}$	$\vec{e}_2^{\,+}$	VI	VIII	VII
$\omega_3 n_3^+ = \omega_1 n_1^+ + \omega_2 n_2^- + 1/\Lambda_{eff}$	$\vec{e}_3^{\,+}$	$\vec{e}_1^{\,+}$	$\vec{e}_2^{\,-}$	VII	VI	VIII
$\omega_3 n_3^+ = \omega_1 n_1^- + \omega_2 n_2^- + 1/\Lambda_{eff}$	$\vec{e}_3^{\,+}$	$\vec{e}_1^{\,-}$	$\vec{e}_2^{\,-}$	VIII	VII	VI

TAB. 4.1 – *Types d'interaction autorisés en QAPA, des configurations de polarisations associées aux vecteurs champs électriques unitaires $\vec{e}_{1,2,3}$ de chacune des trois ondes en interaction, ainsi que des équivalences pour chacun des trois types entre les différents processus de SFG ($\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$), de DFG ($\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$) et de DFG ($\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$).*

Lorsque la période d'inversion Λ des domaines devient infinie, la périodicité effective $\Lambda(\theta, \phi)$ sollicitée au cours des interactions paramétriques tend également vers l'infini. La contribution de l'alternance en $\chi^{(2)}$ du milieu devient alors nulle puisque la norme du vecteur $\vec{K}_{\Lambda(\theta,\phi)}$ devient nulle. Ainsi, lorsque le pas d'inversion devient infini, les conditions de QAPA tendent de manière continue vers les conditions en accord de phase, où seuls les types I, II et III sont envisageables.

4.5 Analyse en symétrie des solutions en QAPA

Les directions d'accord de phase ou de QAPA, au sein de milieux respectivement non alternés et alternés, correspondent aux directions selon lesquelles les conditions d'accord de phase ou de QAPA sont vérifiées pour un jeu de pulsations $\omega_3 > \omega_2 > \omega_1$. En accord de phase comme en QAPA, ces ensembles de directions présentent des éléments de symétrie qui dépendent d'une part de l'interaction considérée, et d'autre part du milieu non linéaire dans duquel ces interactions sont réalisées. Ce paragrapahe présente une analyse en symétrie des solutions relatives à l'accord de phase et au QAPA à partir d'une description des propriétés de symétrie basée sur la théorie des groupes.

4.5.1 Symétries des surfaces impliquées en accord de phase et symétrie des solutions associées

La condition d'accord de phase, pour trois ondes en interaction paramétrique de vecteurs d'onde colinéaires, a été introduite au paragraphe 1.2.2.3 du chapitre 1. L'expression associée, qui est rappelée ici s'écrit :

$$n^{-}(\omega_3;\theta,\phi)\omega_3 - n^{\pm}(\omega_1;\theta,\phi)\omega_1 - n^{\pm}(\omega_2;\theta,\phi)\omega_2 = 0 \tag{4.3}$$

Pour chaque terme associé à une pulsation $\omega_{i=1,2,3}$, la fonction $n^{\pm}(\omega_i;\theta,\phi)\omega_i$ correspond à une surface fermée composée d'une unique nappe directement proportionnelle à la nappe d'indice $n^{\pm}(\omega_i;\theta,\phi)$ [7]. Les directions d'accord de phase correspondent à l'intersection géométrique des trois surfaces associées aux trois ondes en interaction [103, 104].

Dans le cas des milieux isotropes, l'intersection des trois surfaces intervenant est l'ensemble vide, noté $\varnothing$, et il n'existe pas de solutions en accord de phase dans ces milieux. Dans le cas de milieux uniaxes, l'intersection des trois surfaces intervenant conduit à des cônes d'accord de phase d'angle d'ouverture θ autours de l'axe $\vec{Z}$. La valeur de θ dépend d'une part des pulsations considérées et d'autre part du type étudié. Il existe une unique topologie de cône de directions solutions en accord de phase dans les milieux uniaxes. Enfin, dans le cas des milieux biaxes, l'intersection des trois surfaces intervenant conduit à six topologies différentes de cônes d'accord de phase [103]. Les topologies des cônes

d'accord de phase pour les milieux isotropes, uniaxes et biaxes sont données dans les diagrammes de Wülff par les figures 4.4.(a), 4.4.(b) et 4.4.(c). respectivement.

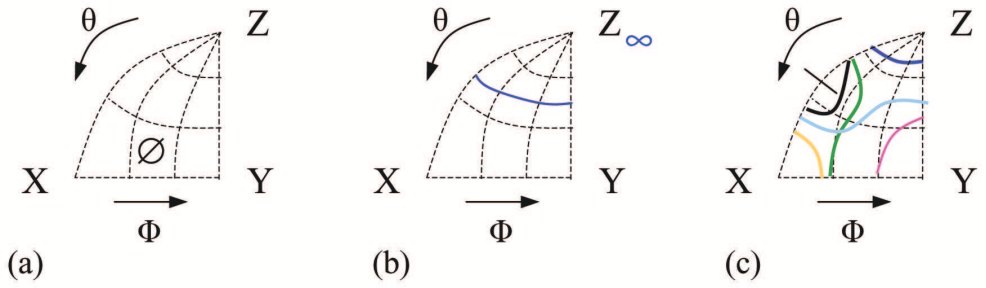


FIG. 4.4 – *Topologies des cônes d'accord de phase représentées pour chacune des trois classes optiques au sein d'un diagramme de Wülff. (a) Cas de la classe optique isotrope : pas de solutions. (b) Cas de la classe optique uniaxe : une unique topologie correspondant à des cônes de révolution à angles θ constants autours de l'axe $\vec{Z}$. (c) Cas de la classe optique biaxe : six topologies disctinctes envisageables.*

Les nappes d'indices, associées aux surfaces des indices, ont été présentées dans le paragraphe 1.2.1.2 du chapitre 1, pour chacune des trois classes optiques.

Dans le cas des cristaux isotropes, les nappes d'indice sont de géométrie sphérique. Elles appartiennent au groupe de symétrie infinie de la sphère, noté $G_o = \frac{A_\infty}{\infty m}\infty m$, où A_∞ est un axe de symétrie infinie d'orientation quelconque au sein du repère optique et où ∞m signifie qu'il existe une infinité de plans de symétrie miroir.

Dans le cas des cristaux uniaxes, il existe deux nappes d'indices : la nappe ordinaire, notée n^o, de géométrie sphérique, et la nappe extraordinaire n^e correspondant à un ellipsoïde de révolution autour de l'axe $\vec{Z}$ du repère optique. La nappe ordinaire appartient donc au groupe de symétrie infinie de la sphère, noté $G_o = \frac{A_\infty}{\infty m}\infty m$. Par contre, la nappe extraordinaire appartient au groupe de symétrie infinie du cylindre, d'axe de révolution l'axe $\vec{Z}$, noté $G_e^Z = \frac{A_\infty^Z}{m}\infty m$: A_∞^Z est l'axe de symétrie infinie correspondant à l'axe $\vec{Z}$ du repère optique ; ∞m représente une infinité de plans de symétrie miroir contenant l'axe A_∞^Z ; et m représente le plan de symétrie miroir orthogonalement à l'axe A_∞^Z.

Dans le cas des cristaux biaxes, les nappes n^+ et n^- appartiennent au groupe de symétrie finie $G_{n^\pm} = mmm$, où les trois miroirs m sont orthogonaux aux trois axes principaux du repère optique. La figure 4.5 donne les topologies des nappes d'indices sollicitées dans le cas des classes optiques isotropes, uniaxes et biaxes, ainsi que les groupes de symétrie associés.

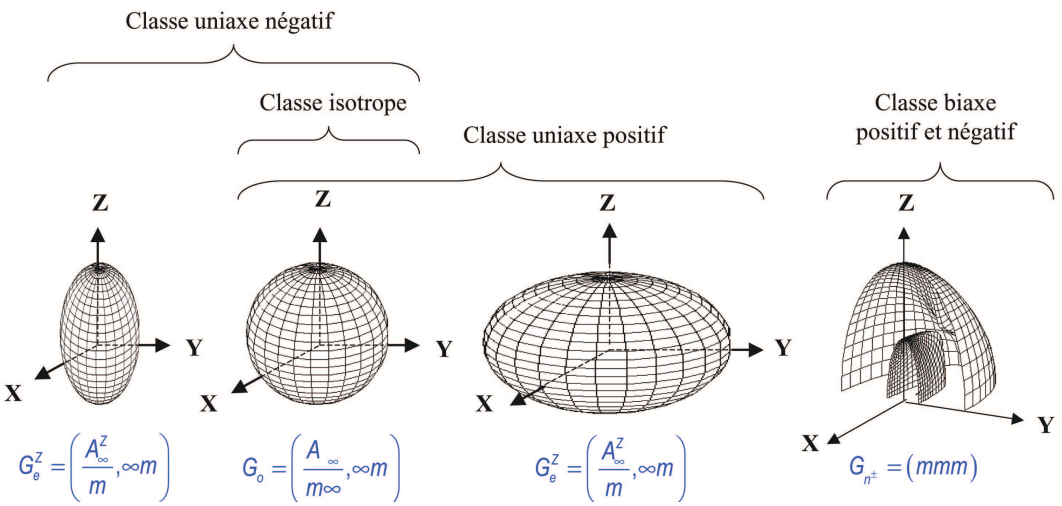


FIG. 4.5 – *Topologies et groupes de symétrie infinie des nappes d'indices sollicités au cours d'interaction paramétriques en accord de phase pour des milieux de classes optiques isotropes, uniaxes positifs et négatifs ainsi que biaxes positifs et négatifs.*

L'espace des solutions $S_{AP}(\theta, \phi)$ en accord de phase par biréfringence correspond à l'ensemble des directions de propagation permettant de vérifier la condition d'accord de phase pour tout jeu de pulsations $\omega_3 > \omega_2 > \omega_1$ assurant la relation de conservation de l'énergie. Le groupe de symétrie de l'espace des solutions en accord de phase par biréfringence est noté G_{AP}, et peut être déterminé à partir d'une analyse basée sur la théorie des groupes. Sur la base de considérations proches et comparables aux approches introduites par le principe de Neumann et les lois de Curie [105], la méthode que nous proposons pour déterminer le groupe de symétrie de l'espace de solutions $S_{AP}(\theta, \phi)$ repose sur l'intersection des trois groupes de symétrie G_1, G_2 et G_3 correspondant respectivement aux groupes de symétrie associés aux surfaces $n(\omega_1; \theta, \phi)\omega_1$, $n(\omega_2; \theta, \phi)\omega_2$ et $n(\omega_3; \theta, \phi)\omega_3$, ce qui s'écrit :

$$G_{AP} = G_3 \cap G_1 \cap G_2 \tag{4.4}$$

L'intersection des groupes de symétrie correspond aux éléments de symétrie communs à l'ensemble des groupes considérés. Le groupe réultant G_{AP} dépend d'une part du type considéré d'interaction paramétrique, et d'autre part de la classe optique. La figure 4.6 présente un exemple illustrant l'approche en terme de théorie des groupes dans le cas d'une interaction paramétrique de type III au sein d'un milieu uniaxe négatif.

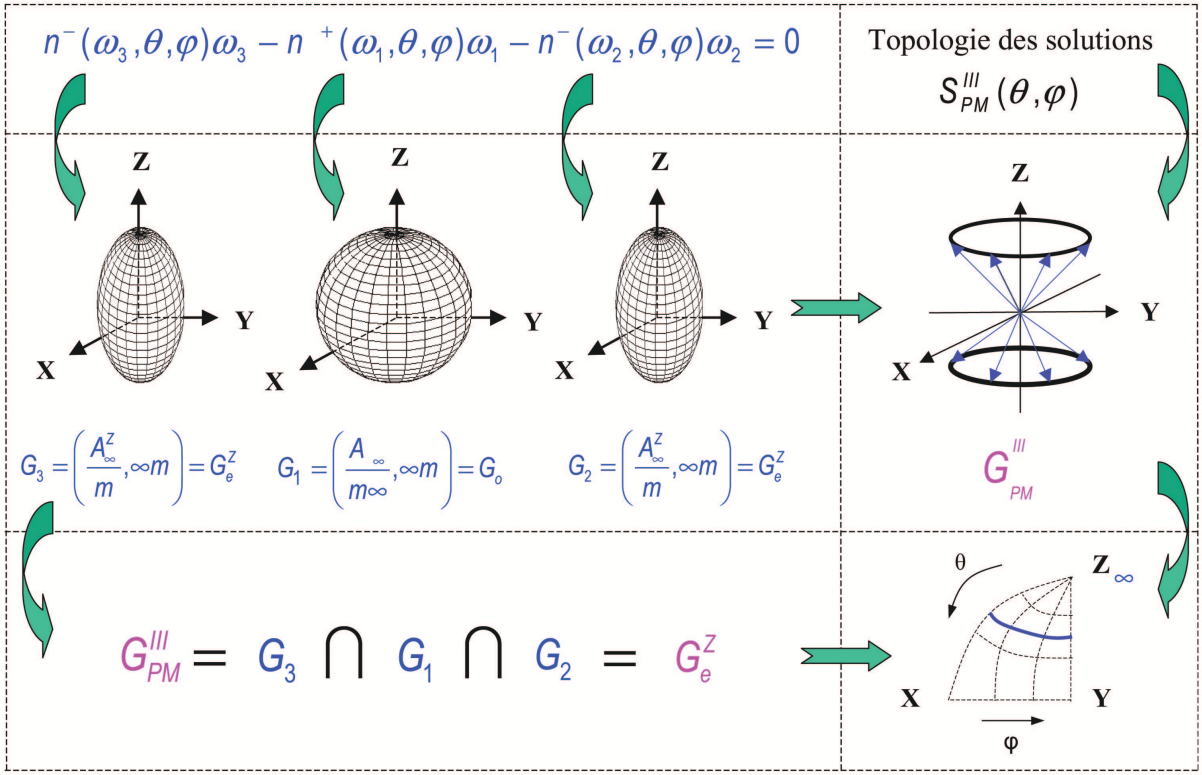


FIG. 4.6 – *Illustration de l'approche en terme de théorie des groupes pour définir le groupe de symétrie G^{III}_{AP} de l'espace de solutions S^{III}_{AP} en accord de phase dans le cas d'une interaction paramétrique de type III au sein d'un milieu uniaxe négatif. Présentation de la condition d'accord de phase, des surfaces associées à chacun des termes et des groupes de symétrie infinie correspondant, des solutions S^{III}_{AP} par intersection géométrique des surfaces et enfin du groupe résultant G^{III}_{AP} ainsi qu'une représentation dans un diagramme de Wülff des cônes de solutions S^{III}_{AP} à angle θ constant issus de l'analyse en symétrie.*

4.5.2 Symétries des surfaces impliquées en QAPA et symétrie des solutions associées

En plus des trois termes associés aux trois ondes, la condition de QAPA donnée par l'expression (4.2) fait intervenir le terme introduit par la périodicité effective sollicitée.

En plus des trois termes associés aux pulsations $\omega_{i=1,2,3}$ auxquels correspondent les surfaces $n(\omega_i;\theta,\phi)\omega_i$ détaillées dans les paragraphe précédent, le terme $\frac{|cos(\phi)sin(\theta)|}{\Lambda}$ introduit par le réseau effectif est également associé à une surface fermée composée d'une unique nappe. Sachant que le milieu alterné présente une symétrie de révolution autour de l'axe $\vec{X}$ qui est orthogonal aux domaines d'inversion, la surface introduite par la périodicité effective sollicitée présente la même symétrique, et appartient ainsi au groupe de symétrie infinie $G^X_\Lambda = \frac{A^X_\infty}{m}\infty m$: A^X_∞ est l'axe de symétrie infinie selon l'axe $\vec{X}$ du repère optique ;

∞m représente une infinité de plans miroirs contenant l'axe A_∞^X ; et m représente un plan de symétrie miroir orthogonal à l'axe A_∞^X. La topologie et le groupe de symétrie de cette nappe sont présentées par la figure 4.7. Il est intéressant de noter que l'axe de symétrie infinie A_∞^X est orthogonal à l'axe de symétrie infinie A_∞^Z intervenant dans les classes optiques isotrope et uniaxe.

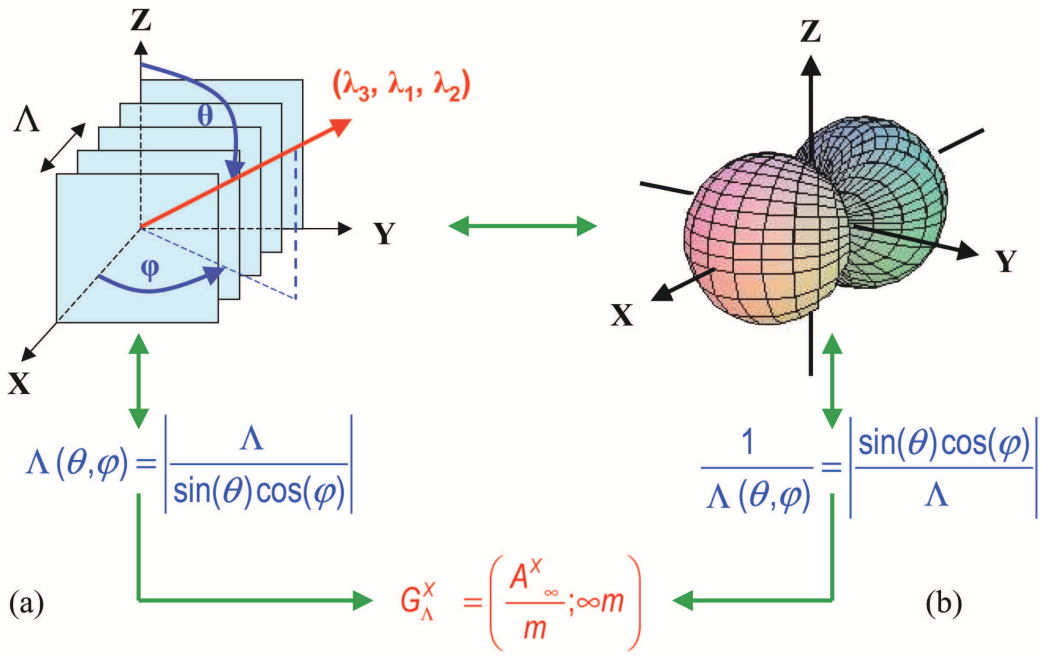


FIG. 4.7 – *(a) Milieu périodiquement alterné ; $\Lambda(\theta, \phi)$ est la période effective sollicitée en fonction de la direction (θ, ϕ) de l'interaction paramétrique quadratique colinéaire ; G_Λ^X est le groupe de symétrie résultant de l'inversion périodique de domaines. (b) Topologie et symétrie de la surface effective sollicitée et intervenant dans la condtion de QAPA.*

L'espace des solutions $S_{QAPA}(\theta, \phi)$ correspond à l'ensemble des directions de propagation permettant de vérifier la condition de QAPA pour tout jeu de pulsations $\omega_3 > \omega_2 > \omega_1$ assurant la relation de conservation de l'énergie au cours d'une interaction paramétrique à trois ondes. L'intersection géométrique des quatre surfaces correspondant aux quatre termes de l'équation (4.2) conduit aux différentes topologies des cônes de QAPA présentées par la figure 4.8.

Les topologies décrites sont déterminées, pour les trois classes optiques, pour un milieu périodiquement alterné orthogonalement l'axe $\vec{X}$ du repère optique, tel que le paragraphe 4.2 l'a introduit. Il est à noter que la figure 4.8.(c) mentionne simplement que les topologies envisageables en QAPA dans un milieu biaxe périodiquement alterné comprennent au moins les topologies accessibles pour cette classe optique en accord de phase dans les

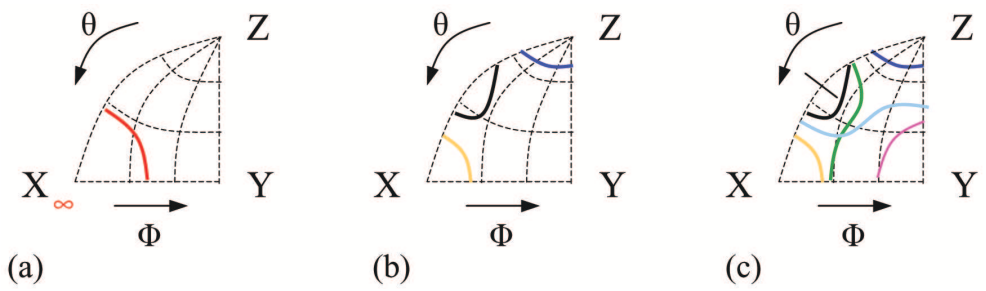


FIG. 4.8 – *Topologies des cônes de QAPA, représentées pour chacune des trois classes optiques dans un diagramme de Wülff. (a) Classe optique isotrope : une unique topologie correspondant à des cônes de révolution autours de l'axe $\vec{X}$ orthogonal aux domaines d'inversion. (b) Classe optique uniaxe : trois topologies envisageables. (c) Classe optique biaxe : au moins six topologies disctinctes envisageables correspondant aux mêmes topologies qu'en accord de phase dans un milieu de classe optique biaxe non alterné.*

milieux non alternés. D'autres topologies sont ainsi éventuellement envisageables et restent à déterminer dans le cas des milieux biaxes alternés.

De manière analogue à l'espace des solutions en accord de phase $S_{AP}(\theta, \phi)$, auquel correspond le groupe de symétrie G_{AP}, l'espace des solutions $S_{QAPA}(\theta, \phi)$ en QAPA est également caractérisé par ses éléments de symétrie décrits par le groupe de symétrie correspondant noté G_{QAPA}. La détermination de G_{QAPA} repose également sur une analyse en symétrie basée sur l'intersection des quatre groupes de symétrie G_1, G_2, G_3 et G_Λ^X, correspondant aux quatre termes présents dans la condition de QAPA, soit :

$$G_{QAPA} = G_3 \cap G_1 \cap G_2 \cap G_\Lambda^X \tag{4.5}$$

L'intersection des groupes de symétrie correspond aux éléments de symétrie commun à l'ensemble des quatre groupes considérés. Le groupe réultant, G_{QAPA}, dépend du type d'interaction considérée, et de la classe optique du milieu considéré. La figure 4.9 donne un exemple illustrant l'approche en terme de théorie des groupes en condition de QAPA. Il s'agit d'une interaction paramétrique de type VIII au sein d'un milieu uniaxe négatif.

4.5.3 Synthèse de l'analyse en symétrie

Le tableau 4.2 présente et synthétise l'ensemble des groupes de symétrie infinie envisagables dans le cas des conditions d'AP et de QAPA, correspondant aux trois classes

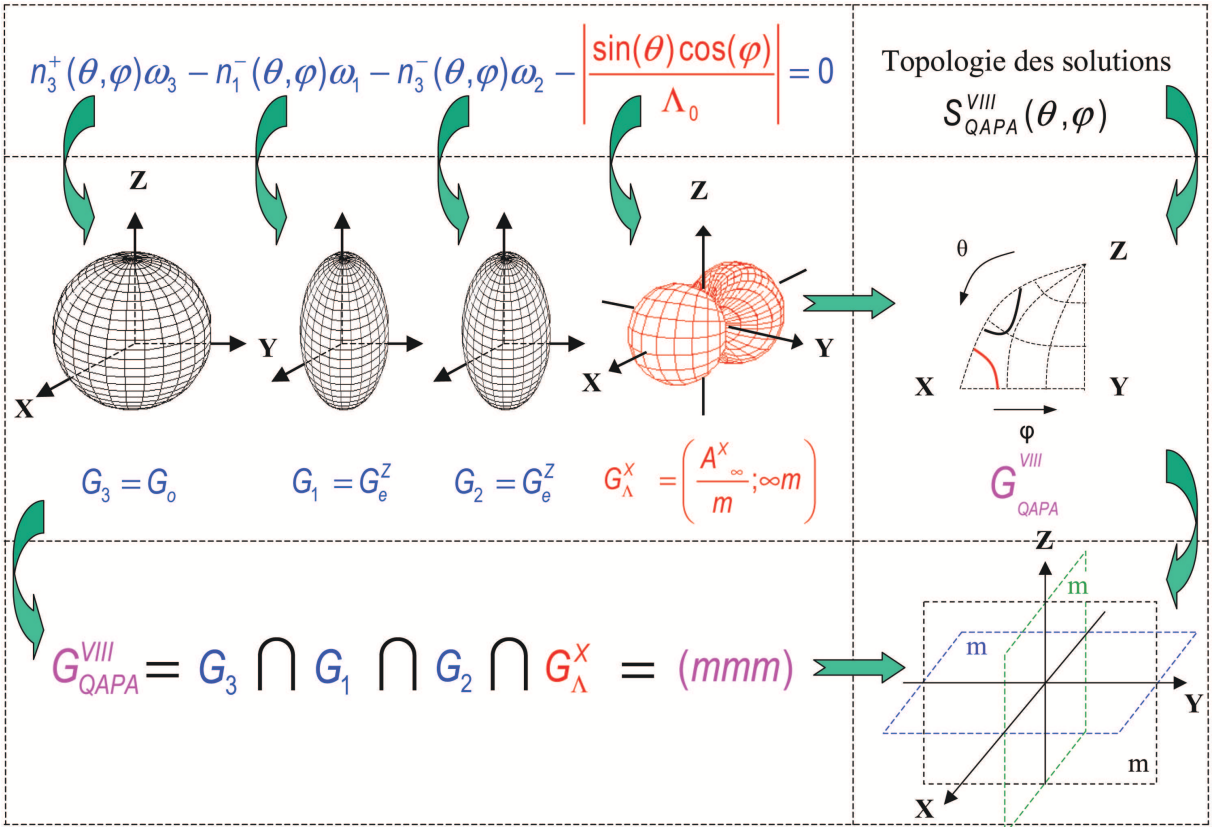


FIG. 4.9 – *Théorie des groupes, appliquée à une interaction paramétrique de type VIII dans un milieu uniaxe négatif. Présentation de la condition de QAPA, des surfaces associées à chacun des termes, et des groupes de symétrie infinie correspondant ; des solutions S_{QAPA}^{VIII} par intersection géométrique des surfaces dans un diagramme de Wülff; du groupe résultant G_{QAPA}^{VIII} et une représentation des éléments de symétrie correspondants.*

optiques.

En QAPA, il est intéressant de noter que le groupe de symétrie $G_{QAPA} = G_\Lambda^X$ correspond au groupe de symétrie du terme réseau lorsque les trois nappes d'indices sollicitées sont de géométrie sphérique au sein des milieux isotropes et uniaxes. Hormis ces cas où trois nappes ordinaires sont sollicitées, le groupe de symétrie résultant $G_{QAPA} = mmm$ correspond au même groupe de symétrie $G_{AP} = mmm$ obtenu dans le cas des milieux biaxes non périodiquement alternés. Dans le cas des milieux isotropes, les huit types sont dégénérés puisqu'il n'existe plus de modes propres de propagation définis par les propriétés optiques linéaires, et qu'il n'existe qu'une unique nappe d'indice. La colonne portant sur les milieux isotropes en condition de QAPA a toutefois été considérée dans le tableau 4.2 car il est possible de passer de manière continue d'une classe optique à une autre par déformation continue des surfaces des indices.

Types (ω_3; ω_1, ω_2)	Accord de phase		Quasi-accord de phase			
	Classe uniaxe	Classe biaxe	Classe isotrope	Classe uniaxe		Classe biaxe
I (- + +)	$\left(\frac{A_\infty^z}{m},\infty m\right)$	(m,m,m)	$\left(\frac{A_\infty^x}{m},\infty m\right)$	(m,m,m)	>0 / <0	(m,m,m)
II (- - +)	$\left(\frac{A_\infty^z}{m},\infty m\right)$	(m,m,m)	$\left(\frac{A_\infty^x}{m},\infty m\right)$	(m,m,m)	>0 / <0	(m,m,m)
III (- + -)	$\left(\frac{A_\infty^z}{m},\infty m\right)$	(m,m,m)	$\left(\frac{A_\infty^x}{m},\infty m\right)$	(m,m,m)	>0 / <0	(m,m,m)
IV (- - -)	$\varnothing$	$\varnothing$	$\left(\frac{A_\infty^x}{m},\infty m\right)$	$\left(\frac{A_\infty^x}{m},\infty m\right)$ / (m,m,m)	>0 / <0	(m,m,m)
V (+ + +)	$\varnothing$	$\varnothing$	$\left(\frac{A_\infty^x}{m},\infty m\right)$	(m,m,m) / $\left(\frac{A_\infty^x}{m},\infty m\right)$	>0 / <0	(m,m,m)
VI (+ - +)	$\varnothing$	$\varnothing$	$\left(\frac{A_\infty^x}{m},\infty m\right)$	(m,m,m)	>0 / <0	(m,m,m)
VII (+ + -)	$\varnothing$	$\varnothing$	$\left(\frac{A_\infty^x}{m},\infty m\right)$	(m,m,m)	>0 / <0	(m,m,m)
VIII (+ - -)	$\varnothing$	$\varnothing$	$\left(\frac{A_\infty^x}{m},\infty m\right)$	(m,m,m)	>0 / <0	(m,m,m)

TAB. 4.2 – *Groupes de symétrie correspondant aux classes optiques uniaxes et biaxes en accord de phase pour les types I, II et III envisageables, et aux classes optiques isotropes, uniaxes et biaxes en QAPA pour les types I à VIII. Synthèse englobant les classes optiques de signes positif (noté <0) ou négatif (noté <0).*

4.6 Topologie de QAPA dans les milieux uniaxes

Après une présentation générale au sein des trois classes optiques de la démarche associée à l'analyse en symétrie en accord de phase et en QAPA, l'attention est spécifiquement portée sur la classe optique uniaxe dans ce paragraphe. La classe optique uniaxe est particulièrement intéressante à étudier actuellement, dans la mesure où elle correspond à la classe optique du cristal $MgO : PPLN$ dont les dimensions réalisables sont telles qu'elles permettent d'envisager très prochaimenent des expériences en QAPA. Ce paragraphe a pour objectif de préparer ces futures expériences.

Les trois topologies permises au sein des milieux uniaxes présentées par la figure 4.8.(b) sont justifiées et détaillées par la figure 4.10, dans laquelle sont représentées trois types de cônes de solutions de l'équation $\Delta\vec{k}_{QAPA} = \vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2 - \vec{K}_{\Lambda(\theta,\phi)} = 0$. Les figures 4.10 ont été tracées à partir d'équations de dispersion des indices adaptées arbitrairement, de manière à réaliser un cristal théorique uniaxe négatif adapté, qui permet d'illustrer

chacune des trois topologies envisageables. Les équations de dispersion des indices n^o_{th} et n^e_{th} du cristal théorique créé proviennent des équation de dispersion de $YCOB$ [23], et vérifient les relations suivantes :

$$\begin{cases} n^o_{th}(\lambda) = n^{YCOB}_z(\lambda) \\ n^e_{th}(\lambda) = \left[\left(\dfrac{cos(\theta)}{n^{YCOB}_z(\lambda)}\right)^2 + \left(\dfrac{sin(\theta)}{n^{YCOB}_x(\lambda)}\right)^2\right]^{-1/2} \end{cases} \tag{4.6}$$

Pour réaliser toutes les topologies, une périodicité d'inversion extrêmement faible, $\Lambda = 5,2\ \mu m$, a été utilisée. L'interaction considérée est, par exemple, une différence de fréquence, à partir d'une longueur d'onde $\lambda_p = 532$ nm, générant $\lambda_s = 700$ nm et $\lambda_i = 2216$ nm.

Dans ces conditions, les figures 4.10.(a), 4.10.(b) et 4.10.(c) correspondent à des DFG en QAPA, respectivement de type I, de type V, et de type VIII.

Dans le cas des milieux uniaxes périodiquement alternés, les huit types d'interactions paramétriques en QAPA ne permettent pas tous l'accès expérimental aux trois topologies envisageables pour cette classe optique. Il existe deux critères qui restreignent les topologies accessibles pour certains types.

Le premier critère concerne la topologie reliant les plans $(\vec{X}, \vec{Z})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$. Pour cette topologie, la solution en QAPA correspondant à une direction de propagation dans le plan $(\vec{Y}, \vec{Z})$ pour laquelle le pas effectif sollicité devient infini. La solution en QAPA dans ce plan est donc identique à la solution en accord de phase dans ce même plan au sein du même milieu. Or, à cause de la dispersion normale des indices, une solution dans le plan $(\vec{Y}, \vec{Z})$ est accessible en accord de phase uniquement pour les types I, II et III. Ceci impose que les types IV à VIII introduits en QAPA ne peuvent pas réaliser cette topologie de cônes de QAPA reliant les plans $(\vec{X}, \vec{Z})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$, ce qui correspond aux croix rouges dans le tableau de synthèse 4.11.

Par exemple, une situation hypothétique pour laquelle un cône de solutions du type VI en QAPA relie les plans $(\vec{X}, \vec{Z})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$ imposerait dans un milieu uniaxe négatif : $(n^o(\omega_1)\omega_1 + n^o(\omega_2)\omega_2) > n^o(\omega_3)\omega_3 > (n^e(\omega_1)\omega_1 + n^e(\omega_2)\omega_2)$. Ceci est en contradiction avec la loi de dispersion normale des indices, qui impose $n^o(\omega_3)\omega_3 > n^o(\omega_1)\omega_1 + n^e(\omega_2)\omega_2$,

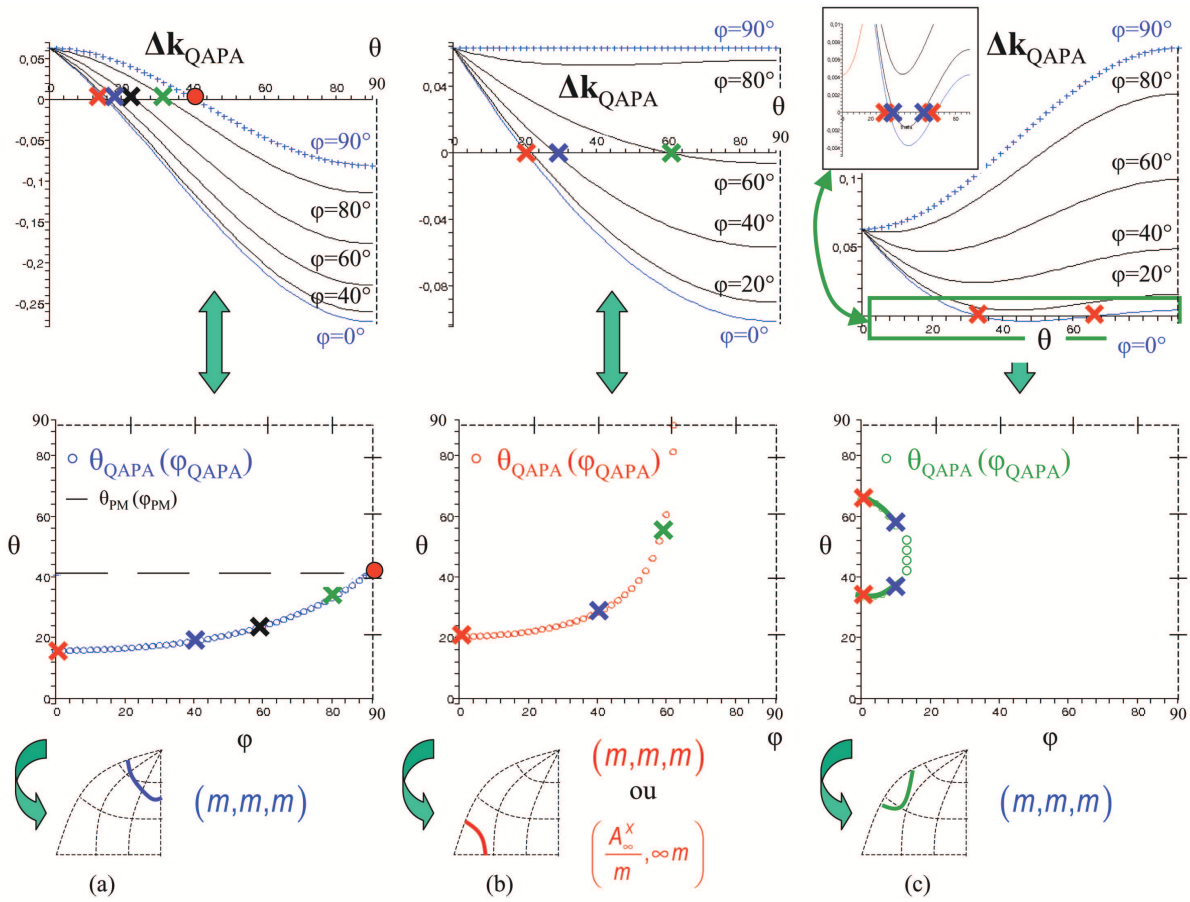


FIG. 4.10 – *Exemples de tracés de $\Delta\vec{k}_{QAPA}$ conduisant à différents cônes de solutions ; représentation des solutions $\theta_{QAPA} = f(\phi_{QAPA})$ dans un diagramme en coordonnées (θ, ϕ), représentation équivalente dans un diagramme de Wülff, et groupe de symétrie associé à chacune des trois topologies. (a) Cône reliant les plans $(\vec{X}, \vec{Z})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$. (b) Cône reliant les plans $(\vec{X}, \vec{Z})$ et $(\vec{X}, \vec{Y})$. (c) Cône se repliant sur lui-même autours du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$.*

d'où l'interdiction de la topologogie de cônes reliant les plans $(\vec{X}, \vec{Z})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$ pour les types pour lesquels la condition d'accord de phase ne peut pas être vérifiée.

Le deuxième critère concerne la topologie repliée allant du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ au plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. Pour réaliser un telle topologie, la condition de QAPA doit être vérifiée pour deux angles, θ_1 et θ_2, pour un même angle ϕ donné. Dans un plan du repère optique du milieu uniaxe défini par un angle ϕ_0 fixé et constant, il faut donc que la fonction $\Delta\vec{k}_{QAPA}(\theta, \phi_0)$ ne soit pas strictement monotome en θ sur la plage de directions $\theta = [0, \pi/2]$, ce qui revient à dire que l'évolution de $\Delta\vec{k}_{QAPA}(\theta, \phi_0)$ doit nécessairement ne pas être bijective en θ sur cette plage de directions : ceci doit conduire à deux directions θ assurant la condition de QAPA, et ceci, pour le même angle ϕ et le même jeu de longueurs d'onde. Certaines fonctions $\Delta\vec{k}_{QAPA}(\theta, \phi)$ associées à certains types d'interactions sont parfois systémati-

quement bijectives en θ pour des milieux uniaxes positifs ou négatifs, ce qui interdit alors la topologie des cônes repliés. Par exemple, pour un cristal uniaxe positif, le type IV sollicite trois nappes d'indices ordinaires ne présentant pas de dépendance en θ. La seule dépendance angulaire en θ pour ce type est introduite par le terme $2\pi\frac{|cos(\phi)\sin(\theta)|}{\Lambda}$, dont le comportement est précisément bijectif en θ sur la plage de directions $[0, \pi/2]$. Ainsi, le type IV au sein des milieux uniaxes positifs ne réalise jamais la topologie de cônes repliés autours du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. Les cas interdits par ce critère correspondent aux croix noires dans le tableau de synthèse 4.11.

Type (ω_3; ω_1, ω_2)	pp-uniaxe positif			pp-uniaxe négatif		
I (- + +)	×	(m,m,m)	(m,m,m)	×	(m,m,m)	(m,m,m)
II (- - +)	×	(m,m,m)	(m,m,m)	(m,m,m)	(m,m,m)	(m,m,m)
III (- + -)	×	(m,m,m)	(m,m,m)	(m,m,m)	(m,m,m)	(m,m,m)
IV (- - -)	×	$\left(\frac{A_\infty^X}{m}, \infty\, m\right)$	×	(m,m,m)	(m,m,m)	×
V (+ + +)	(m,m,m)	(m,m,m)	×	×	$\left(\frac{A_\infty^X}{m}, \infty\, m\right)$	×
VI (+ - +)	(m,m,m)	(m,m,m)	×	(m,m,m)	(m,m,m)	×
VII (+ + -)	(m,m,m)	(m,m,m)	×	(m,m,m)	(m,m,m)	×
VIII (+ - -)	(m,m,m)	(m,m,m)	×	(m,m,m)	(m,m,m)	×

FIG. 4.11 – *Topologies permises et symétries associées en QAPA dans les milieux uniaxes positifs et négatifs. Interdiction de la topologie reliant les plans $(\vec{X}, \vec{Z})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$ à cause de la dispersion normale des indices (notés par les croix rouges). Interdiction de la topologie se repliant autours du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ à cause d'une dépendance bijective de $\Delta\vec{k}_{QAPA}$ en fonction de l'angle θ. Non équivalence des espaces de solutions en QAPA pour les deux signes optiques (zone grisée et rectangle bleu).*

L'étude des topologies permises en fonction du type considéré dans les milieux uniaxes positifs et négatifs montre également cerains points particuliers à l'étude du QAPA qui n'interviennent pas dans les milieux uniaxes en accord de phase.

Premièrement, les cases grisées de le tableau de synthèse 4.11 mettent en évidence que, pour un type d'interaction donnée, certaines topologies ne sont pas permises simultanément pour des milieux uniaxes positifs et négatifs. Deuxièmement, le rectangle bleu entourant dans le tableau de synthèse 4.11 les cases correspondant à la topologie reliant les plans $(\vec{X}, \vec{Z})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$ pour les types IV et V met en évidence le fait qu'une même topologie de cônes de QAPA peut être associée à des groupes de symétrie différents dans le cas des milieux uniaxes, lorsque trois nappes ordinaires sont susceptibles d'être sollicitées au sein de milieux uniaxes, positifs ou négatifs.

Les deux remarques précédentes mettent en évidence la non équivalence topologique stricte des espaces de solutions en QAPA pour les milieux uniaxes positifs ou négatifs. Ceci définit une brisure de symétrie des espaces de solutions en QAPA par rapport aux espaces de solutions en accord de phase, ce qui correspond à la perte de l'invariance des espaces de solutions par rapport au signe optique des milieux uniaxes. En effet, les espaces de solutions ne dépendent pas du signe optique considéré en accord de phase [103, 104].

4.7 Classes de solutions en QAPA dans les milieux alternés uniaxes

Concernant l'accord de phase dans les milieux uniaxes, l'écriture des différentes relations d'ordre entre les termes $[n^e(\omega_3)\omega_3]$, $[n^o(\omega_3)\omega_3]$, $[n^e(\omega_1)\omega_1 + n^e(\omega_2)\omega_2]$, $[n^o(\omega_1)\omega_1 + n^e(\omega_2)\omega_2]$, $[n^e(\omega_1)\omega_1 + n^o(\omega_2)\omega_2]$ et $[n^o(\omega_1)\omega_1 + n^o(\omega_2)\omega_2]$ conduit à l'établissement des classes d'inégalités envisageables, et donc des classes de solutions permises au sein du cristal considéré. Ces classes de solutions sont associées aux lieux géométriques correspondant aux ensembles de directions d'accord de phase pour tous les types permis [104].

Dans le cas d'interactions paramétriques en QAPA au sein de milieux uniaxes, l'invariance par rotation autours de l'axe de révolution $\vec{Z}$ de la condition d'accord de phase est brisée, suite à l'introduction du terme réseau effectif en $1/\Lambda(\theta, \phi)$ qui varie de 0 à $1/\Lambda$ de l'axe $\vec{X}$ à l'axe $\vec{Z}$ dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, ainsi que de l'axe $\vec{X}$ à l'axe $\vec{Y}$ dans le plan $(\vec{X}, \vec{Y})$.

La totalité de l'étude menée concerne les classes de solutions au sein des milieux uniaxes périodiquement alternés. Elle est associée à la résolution de la condition de QAPA

pour l'ensemble des huit types. Dans le cas où les domaines d'inversion sont orientés orthogonalement à l'axe $\vec{X}$, avec une périodicité physique $\Lambda > 0$, la condition de QAPA (4.7) est notée sous la forme suivante, soit :

$$n^{\pm}(\omega_3;\theta,\phi)\omega_3 = n^{\pm}(\omega_1;\theta,\phi)\omega_1 + n^{\pm}(\omega_2;\theta,\phi)\omega_2 + \frac{|cos(\phi)sin(\theta)|}{\Lambda} \tag{4.7}$$

Avec la convention $\omega_3 > \omega_2 > \omega_1$, les relations d'ordre conduisant aux classes de solutions en QAPA font intervenir les grandeurs suivantes dans le plan $(\vec{Y},\vec{Z})$:

$a = n^{-}(\omega_1)\omega_1 + n^{-}(\omega_2)\omega_2,$

$b = n^{+}(\omega_1)\omega_1 + n^{-}(\omega_2)\omega_2,$

$c = n^{-}(\omega_1)\omega_1 + n^{+}(\omega_2)\omega_2,$

$d = n^{+}(\omega_1)\omega_1 + n^{+}(\omega_2)\omega_2.$

Dans le plan $(\vec{X},\vec{Z})$, les grandeurs qui interviennent sont :

$A = n^{-}(\omega_1)\omega_1 + n^{-}(\omega_2)\omega_2 + \frac{1}{\Lambda} = a + \frac{1}{\Lambda},$

$B = n^{+}(\omega_1)\omega_1 + n^{-}(\omega_2)\omega_2 + \frac{1}{\Lambda} = b + \frac{1}{\Lambda},$

$C = n^{-}(\omega_1)\omega_1 + n^{+}(\omega_2)\omega_2 + \frac{1}{\Lambda} = c + \frac{1}{\Lambda},$

$D = n^{+}(\omega_1)\omega_1 + n^{+}(\omega_2)\omega_2 + \frac{1}{\Lambda} = d + \frac{1}{\Lambda}.$

Les termes $n^{+,-}$ correspondent aux nappes indices $n^{e,o}$ pour les milieux uniaxes de signe optique positif, et à et $n^{o,e}$ pour le signe optique négatif. Notons de plus $\tilde{b} = Min(b,c)$, $\tilde{c} = Max(b,c)$, $\tilde{B} = Min(B,C)$ et $\tilde{C} = Max(B,C)$, où Min(p,q) et Max(p,q) correspondent aux valeurs minimale et maximale entre les deux grandeurs numériques p et q. Les termes concernant la pulsation ω_3 sont notés $\alpha = n^{-}(\omega_3)\omega_3$, et $\beta = n^{+}(\omega_1)\omega_3$. Suite à la dispersion normale des indices, les différentes grandeurs définies vérifient les inégalités suivantes :

$$\begin{cases} a < \tilde{b} < \tilde{c} < d \\ A < \tilde{B} < \tilde{C} < D \\ a < A, \quad \tilde{b} < \tilde{B}, \quad \tilde{c} < \tilde{C}, \quad \tilde{d} < \tilde{D} \\ \alpha < \beta \\ a < \alpha, \quad d < \beta \end{cases} \tag{4.8}$$

L'écriture des différentes relations d'ordre conduisant aux différentes classes de solu-

tions est obtenue en croisant de manière systématique et non redondante l'ensemble des inégalités de l'expression (4.8). Ceci permet de lister toutes les relations d'ordre associées aux différentes classes de solutions. Le schéma de principe de recherche de l'ensemble des inégalités envisageables est donné par l'expression suivante :

$$\begin{cases} a < \alpha < \tilde{b} < \tilde{c} < d < \beta < A < \tilde{B} < \tilde{C} < D \\ a < \tilde{b} < \alpha < \tilde{c} < d < \beta < A < \tilde{B} < \tilde{C} < D \\ a < \tilde{b} < \tilde{c} < \alpha < d < \beta < A < \tilde{B} < \tilde{C} < D \\ a < \tilde{b} < \tilde{c} < d < \alpha < \beta < A < \tilde{B} < \tilde{C} < D \\ \hfill \ldots \\ a < \alpha < \tilde{b} < \tilde{c} < d < A < \beta < \tilde{B} < \tilde{C} < D \\ a < \tilde{b} < \alpha < \tilde{c} < d < A < \beta < \tilde{B} < \tilde{C} < D \\ a < \tilde{b} < \tilde{c} < \alpha < d < A < \beta < \tilde{B} < \tilde{C} < D \\ a < \tilde{b} < \tilde{c} < d < A < \alpha < \beta < \tilde{B} < \tilde{C} < D \\ \hfill \ldots \\ a < \tilde{b} < \tilde{c} < d < A < \alpha < \tilde{B} < \tilde{C} < D < \beta \\ a < \tilde{b} < \tilde{c} < d < A < \tilde{B} < \alpha < \tilde{C} < D < \beta \\ a < \tilde{b} < \tilde{c} < d < A < \tilde{B} < \tilde{C} < \alpha < D < \beta \\ a < \tilde{b} < \tilde{c} < d < A < \tilde{B} < \tilde{C} < D < \alpha < \beta \end{cases} \tag{4.9}$$

La figure 4.12 illustre une classe de solutions au sein d'un milieu uniaxe négatif en mettant en évidence les intersections géométriques entre les différentes nappes susceptibles d'être sollicitées au cours d'une interaction paramétrique en QAPA. Afin de synthétiser l'écriture des cônes de QAPA, les cônes $\tilde{II}$, $I\tilde{II}$, $\tilde{V}I$ et $V\tilde{II}$ correspondent respectivement d'une part aux cônes II, III, VI et VII lorsque $b < c$ et d'autre part aux cônes III, II, VII et VI lorsque $b > c$.

La méthode d'écriture systématique des relations d'ordre envisageables permet de mettre en évidence des classes de solutions pour lesquelles les cônes de solutions pour chaque type relient deux plans principaux ; cette méthode ne discrimine pas la topologie

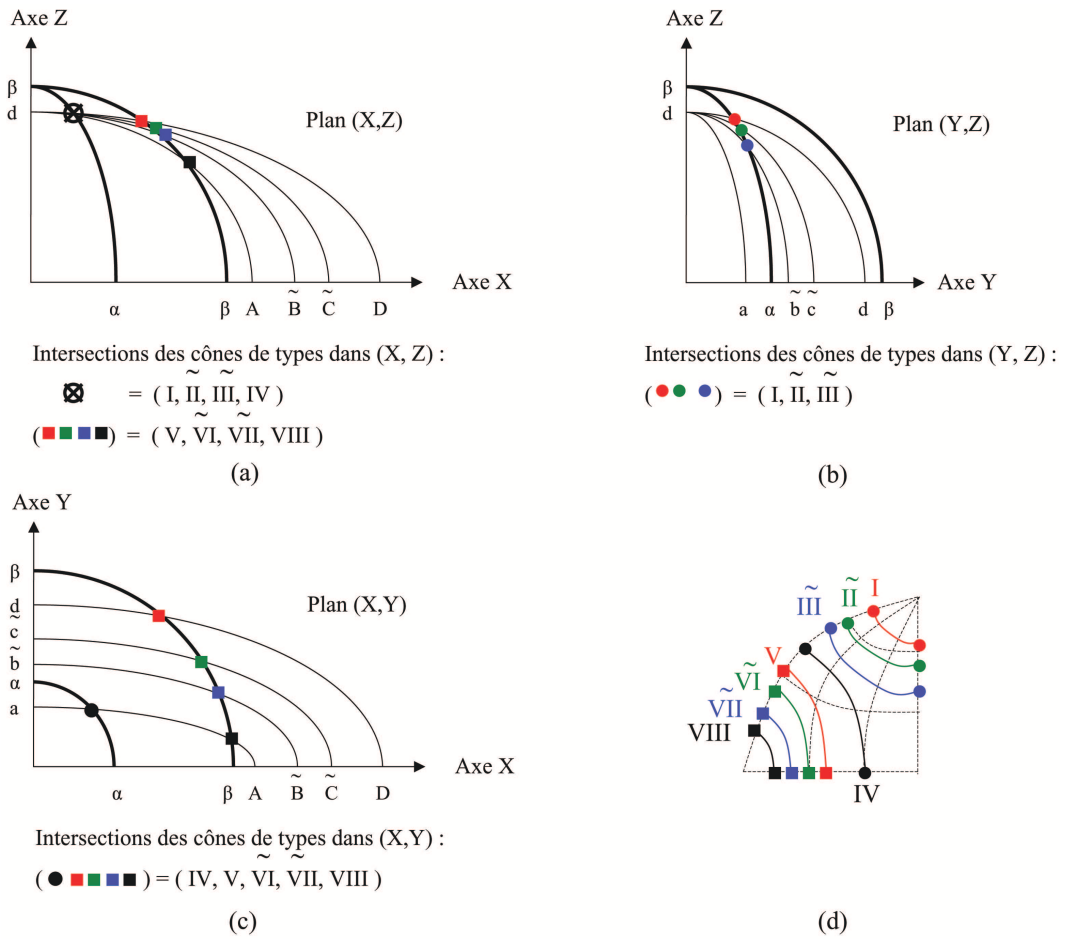


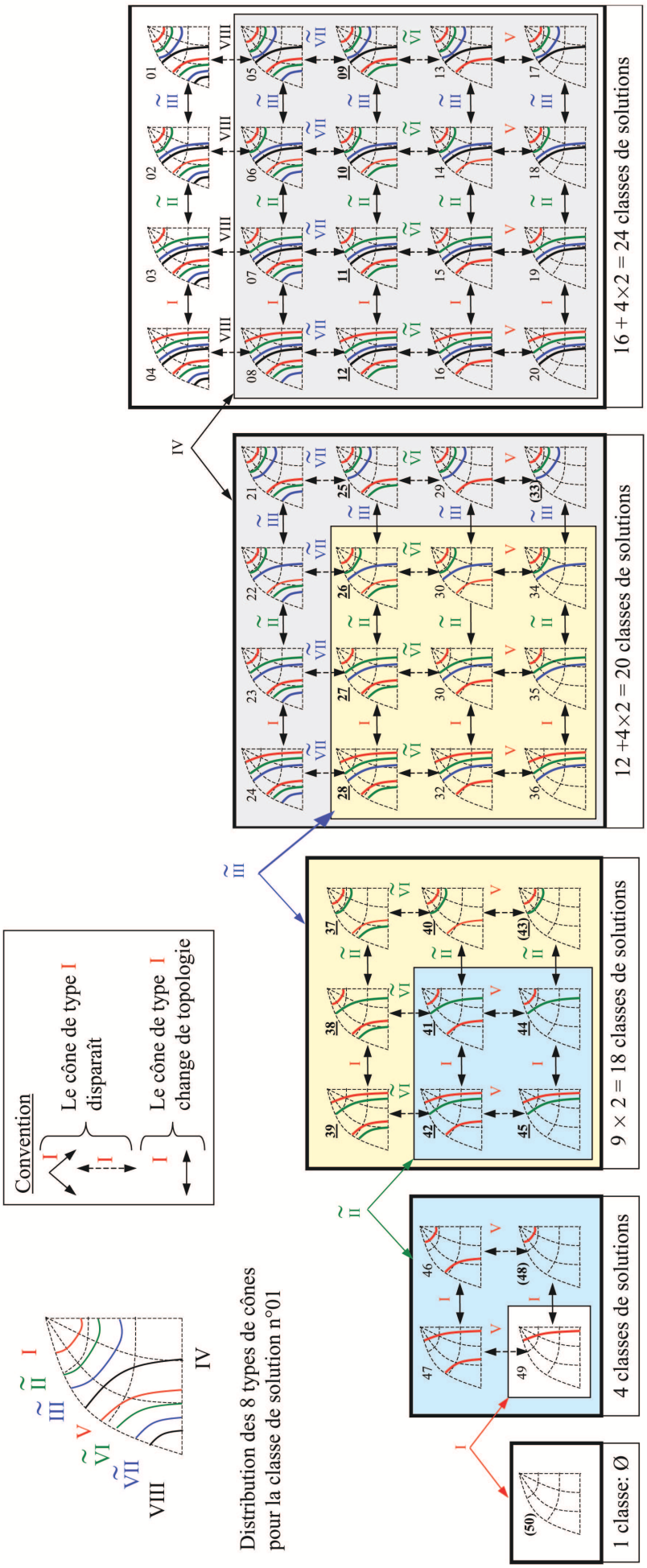
FIG. 4.12 – *Mise en évidence des directions de QAPA, dans un cristal uniaxe négatif, pour les directions associées à des intersections de nappes pour les huit types. (a) Cas du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. (b) Cas du plan $(\vec{Y}, \vec{Z})$. (c) Cas du plan $(\vec{X}, \vec{Y})$. (d) Synthèse des cônes de solutions en QAPA constituant une classe de solutions pour le milieu uniaxe négatif considéré.*

repliée sur elle-même autour du plan $(\vec{X}, \vec{Z})$. Sur la base de cette méthode d'écriture systématique, le tableau 4.3 présente une synthèse schématique de l'ensemble des classes de solutions pour des milieux uniaxes pour laquelle le passage ordonné d'une classe de solutions de cônes de QAPA sous forme de diagramme de Wülff équivaut au passage ordonné d'une classe d'inégalités à la suivante. Dans une premier temps, de manière à décrire progressivement la richesse des classes de solutions au sein des milieux uniaxes périodiquement alternés, seules les classes de solutions associées aux topologies de cônes reliant soit les plans $(\vec{X}, \vec{Z})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$ d'une part, soit les plans $(\vec{X}, \vec{Z})$ et $(\vec{X}, \vec{Y})$ d'autre part, ont été représentées. Les classes de relations d'ordre associées aux classes de solutions par le tableau 4.3 sont décrites une à une dans l'annexe A.

Le tableau 4.3 comprend deux topologies de cônes parmi les trois envisageables ; elle est

générale vis-à-vis du signe optique des milieux uniaxes. En effet, à ce stade du recensement des classes de solutions, l'espace des solutions des milieux uniaxes est indépendant du signe optique de cette classe.

La description en terme de diagramme de Wülff des différentes classes de solutions prend en compte la topologie des cônes solutions, mais également leur positionnement relatif des uns par rapport aux autres. De plus, chaque classe de solutions faisant intervenir un seul type parmi les types $\tilde{I}I$ et $\tilde{I}II$, ou un seul type parmi $\tilde{V}I$ et $\tilde{V}II$, est décomptée deux fois. En effet, cette classe est associée à deux relations possibles qui sont soit $n^+(\omega_1)\omega_1 + n^-(\omega_2)\omega_2 < n^-(\omega_1)\omega_1 + n^+(\omega_2)\omega_2$ (notée b<c), soit $n^+(\omega_1)\omega_1 + n^-(\omega_2)\omega_2 > n^-(\omega_1)\omega_1 + n^+(\omega_2)\omega_2$ (notée b>c). C'est pour cela que les 50 diagrammes de Wülff correspondent à 67 classes de solutions différentes selon la méthode de décompte employée. Ceci conduit également à réétablir les 5 classes de solutions correspondant aux solutions en accord de phase dans les milieux uniaxes décrites dans l'article [103]. Dans le tableau 4.3, il s'agit des classes de solutions 33, 43 à décompter deux fois, 49, et 50.



45 signifie que la classe de solutions n°45 est à décomptée deux fois pour les cas : $\omega_1 n^o(\omega_1) + \omega_2 n^e(\omega_2) < \omega_1 n^e(\omega_1) + \omega_2 n^o(\omega_2)$ et $\omega_1 n^o(\omega_1) + \omega_2 n^e(\omega_2) > \omega_1 n^e(\omega_1) + \omega_2 n^o(\omega_2)$

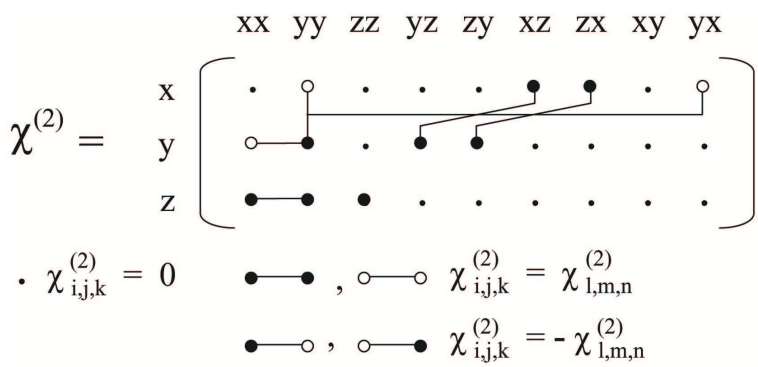
(48) signifie que la classe de solutions n°48 est accessible en accord de phase au sein de milieux non alternées.

Tab 4.3 – Synthèse schématique et ordonnée des classes de solutions en QAPA au sein de milieux uniaxes périodiquement alternés orthogonalement à l'axe **X**, dans le cas restreint où les seules topologies reliant deux plans principaux distincts sont considérées ici.

4.8 Interactions en QAPA dans le cristal $MgO : PPLN$

Nous spécifions maintenant l'étude du QAPA à $MgO : PPLN$, qui est le matériau étalon permettant actuellement d'envisager expérimentalement l'ensemble des interactions en QAPA. La suite de l'étude porte sur l'écriture des coefficients effectifs pour les huit types d'interactions au sein de milieux cristallins de classe optique uniaxe négatif et de classe de symétrie d'orientation trigonale appartenant au groupe de symétrie ponctuel $C_3(m)$, où l'axe cristallographique ternaire C_3 correspond à l'axe $\vec{Z}$ du repère optique, et où les plans orthogonaux à l'axe $\vec{X}$ sont des plans de symétrie miroir pour la maille cristalline. Les domaines d'inversion dans $MgO : PPLn$ sont orthogonaux à l'axe $\vec{X}$.

Dans le cas de la classe de symétrie d'orientation de $MgO : PPLN$, seuls 11 éléments du tenseur susceptibilité électrique $\chi^{(2)}$ sont non nuls par symétrie, et sont décrits dans le tableau 4.3, en précisant les éléments égaux entre eux ou de signes opposés. Au final, il subsiste seulement 5 éléments indépendants : $\chi^{(2)}_{yyy}$, $\chi^{(2)}_{xzx}$, $\chi^{(2)}_{xxz}$, $\chi^{(2)}_{zxx}$ et $\chi^{(2)}_{zzz}$ [9].



TAB. 4.3 – *Représentation matricielle du tenseur $\chi^{(2)}$ pour la classe de symétrie d'orientation $C_3(m)$.*

L'expression du coefficient effectif détaillée au paragraphe 1.2.2.4 est rappelée ci-après :

$$\chi_{eff}\left(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2\right) = \sum_{ijk} \chi^{(2)}_{ijk}\left(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2\right) \; F^{(2)}_{ijk}\left(\omega_3; \omega_1, \omega_2\right) \tag{4.10}$$

les facteurs de champ étant exprimés par $F^{(2)}_{ijk} = e_{3i}\, e_{1j}\, e_{2k}$, où les vecteurs $\vec{e}_1$, $\vec{e}_2$ et $\vec{e}_3$ sont les vecteurs unitaires des champs électriques correspondant aux polarisations des trois ondes en interaction, et où les indices i, j et k font référence aux indices cartésiens du repère optique.

A partir de l'expression (4.10) et du tableau 4.4, le coefficient effectif est donné par :

$$\begin{aligned}\chi_{eff} = \chi^{(2)}_{yyy}\left(F^{(2)}_{yyy} - F^{(2)}_{yxx} - F^{(2)}_{xxy} - F^{(2)}_{xyx}\right) + \chi^{(2)}_{xzx}\left(F^{(2)}_{xzx} + F^{(2)}_{yzy}\right) + \\ \chi^{(2)}_{xxz}\left(F^{(2)}_{xxz} + F^{(2)}_{yyz}\right) + \chi^{(2)}_{zxx}\left(F^{(2)}_{zxx} + F^{(2)}_{zyy}\right) + \chi^{(2)}_{zzz}F^{(2)}_{zzz}\end{aligned} \tag{4.11}$$

Dans le cas d'un cristal uniaxe négatif, pour lequel les nappes d'indices vérifient $n^+(\theta,\phi) = n^o(\theta,\phi) > n^-(\theta,\phi) = n^e(\theta,\phi)$, les composantes des champs électriques unitaires $\vec{e}_o$ et $\vec{e}_e$, sollicitant respectivement les nappe n_o et n_e, sont données par [9] :

$$\begin{cases} e^o_x = -sin(\phi) & e^e_x = -cos(\theta+\rho)cos(\phi) \\ e^o_y = cos(\phi) & e^e_y = -cos(\theta+\rho)sin(\phi) \\ e^o_z = 0 & e^e_z = -cos(\phi)cos(\theta+\rho) \end{cases} \tag{4.12}$$

où (θ,ϕ) sont les coordonnées sphériques ; ρ est l'angle de double réfraction donné par l'expression (1.8) établie au paragraphe 1.2.1.2 du chapitre 1.

L'annexe B détaille et synthétise les écritures de l'ensemble des facteurs champs pour chacun des huit types d'interactions paramétriques dans les milieux cristallins de même groupe de symétrie et de même signe optique que $MgO : PPLN$. Les expressions des huit coefficients effectifs sont rassemblées dans le tableau 4.4, où ρ_3, ρ_1 et ρ_2 sont les angles de double réfraction associés aux trois ondes en interaction avec la convention $\omega_3 > \omega_2 > \omega_1$.

4.9 Génération de second harmonique dans $MgO : PPLn$: comparaison entre le QAPA colinéaire et le QAP-1D, le QAP-2D et l'accord de phase par biréfringence

En vue d'illuster les potentialités du QAPA, nous avons pris l'exemple de la génération de second harmonique dans un cristal de $PPLN$ dopé avec 7% avec MgO, qui sera noté $MgO : PPLN$. Les calculs de cette partie ont été effectués à partir des équations de

Types (ω_3; ω_1, ω_2)	**Coefficient effectif $\chi^{(2)}_{eff}$**
I (e o o)	$\chi_{eff}^{I} = \chi^{(2)}_{yyy}\cos(\theta+\rho_3)\sin\varphi\left(1-4\cos^2\varphi\right)+\chi^{(2)}_{zxx}\sin(\theta+\rho_3)$
II (e e o)	$\chi_{eff}^{II} = \chi^{(2)}_{yyy}\cos(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_1)\cos\varphi\left(4\sin^2\varphi-1\right)$
III (e o e)	$\chi_{eff}^{III} = \chi^{(2)}_{yyy}\cos(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_2)\cos\varphi\left(4\sin^2\varphi-1\right)$
IV (e e e)	$\chi_{eff}^{IV} = -\chi^{(2)}_{yyy}\cos(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_1)\cos(\theta+\rho_2)\sin\varphi\left(1-4\cos^2\varphi\right)$ $+\chi^{(2)}_{xzx}\cos(\theta+\rho_3)\sin(\theta+\rho_1)\cos(\theta+\rho_2)+\chi^{(2)}_{xxz}\cos(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_1)\sin(\theta+\rho_2)$ $+\chi^{(2)}_{zxx}\sin(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_1)\cos(\theta+\rho_2)+\chi^{(2)}_{zzz}\sin(\theta+\rho_3)\sin(\theta+\rho_1)\sin(\theta+\rho_2)$
V (o o o)	$\chi_{eff}^{V} = \chi^{(2)}_{yyy}\cos\varphi\left(1-4\sin^2\varphi\right)$
VI (o e o)	$\chi_{eff}^{VI} = \chi^{(2)}_{yyy}\cos(\theta+\rho_1)\sin\varphi\left(1-4\cos^2\varphi\right)+\chi^{(2)}_{xzx}\sin(\theta+\rho_1)$
VII (o o e)	$\chi_{eff}^{VII} = \chi^{(2)}_{yyy}\cos(\theta+\rho_2)\sin\varphi\left(1-4\cos^2\varphi\right)+\chi^{(2)}_{xxz}\sin(\theta+\rho_2)$
VIII (o e e)	$\chi_{eff}^{VIII} = \chi^{(2)}_{yyy}\cos(\theta+\rho_1)\cos(\theta+\rho_2)\cos\varphi\left(4\sin^2\varphi-1\right)$

TAB. 4.4 – *Coefficients effectifs associés aux huit types d'interactions paramétriques à trois ondes en QAPA dans les milieux de classe optique uniaxe, de signe optique négatif, et appartenant à la classe de symétrie d'orientation $C_3(m)$.*

dispersion des indices de réfraction provenant de la référence [106].

4.9.1 Accordabilité spectrale

Les espaces des solutions de QAPA en SHG ont été calculés à partir de l'équation (4.2), en imposant l'égalité $\lambda_1 = \lambda_2 (\equiv \lambda_\omega)$, et pour une période d'inversion valant $\Lambda = 15\ \mu m$ pour chacune des différents types d'interactions en QAPA. Pour des processus de QAPA en SHG, les types II et III, ainsi que VI et VII, sont équivalents, puisque $\lambda_1 = \lambda_2$.

Différentes courbes calculées, θ en fonction de ϕ, qui sont des solutions de QAPA en SHG de type I, sont données par la figure 4.13.(a) pour différentes longueurs d'onde fondamentales λ_ω. La figure 4.13.(b) donne les courbes calculées, θ en fonction de λ_ω, solutions de QAPA en SHG de type I pour trois valeurs fixes de l'angle ϕ.

La figure 4.13.(b) montre que le QAPA en SHG de type I autorise des solutions pour

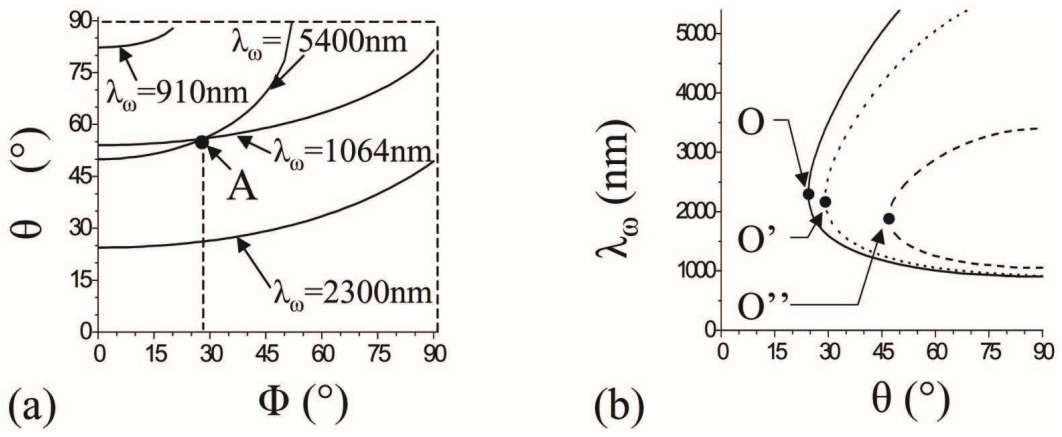


FIG. 4.13 – *Solutions de QAPA en SHG de type I. (a) Angles de QAPA θ en fonction de ϕ, pour différentes longueurs d'onde fondamentales λ_ω. (b) Angles de QAPA θ en fonction de λ_ω dans les plans à $\phi = 0^\circ$ (courbe en trait continu), $\phi = 45^\circ$ (courbe en pointillés), et $\phi = 90^\circ$ (Courbe en tirets) ; les points O, O′, et O″, correspondent aux solutions vérifiant $\frac{\partial\theta}{\partial\lambda_\omega} = 0$.*

des longueurs d'onde fondamentales appartenant à la plage spectrale $905nm - 5400nm$, où la longueur d'onde de coupure supérieure est ici imposée par la limite supérieure de la fenêtre de transparence de $MgO : PPLN$. Il est à noter que la courbe de la figure 4.13.(b), avec $\phi = 90^\circ$, correspond également à la courbe θ en fonction de λ_ω, pour une interaction en accord de phase par biréfringence, noté APB. En effet, dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, la période effective vérifie $\Lambda(\theta, \phi = 90^\circ)$ tend vers l'infini, quelque soit la valeur de θ dans ce plan.

Les plages spectrales solutions du QAPA en SHG de type I ont également été calculées pour tous les types, ce que donne le tableau 4.5.

La figure 4.13 et le tableau 4.5 permettent de comparer le QAPA et l'APB en SHG. Le type I est le seul type possible solution d'APB en SHG : la plage spectrale de longueur d'onde fondamentale est alors $1050nm - 3400nm$. La courbe d'accordabilité correspondante, θ en fonction de λ_ω est la même que celle du QAPA de type I dans le plan $(\vec{Y}, \vec{Z})$, à $\phi = 90^\circ$, de la figure 4.13.(b), tel qu'il l'a été expliqué précédemment. Il est à noter que l'expression du coefficient effectif, qui est donnée par l'équation 1.20 du chapitre 1, est la même pour le QAPA et l'APB. Le tableau 4.6 donne les expressions des coefficients effectifs pour chaque type dans le cas d'une SHG.

La comparaison du QAPA avec le QAP-2D peut être réalisée à partir du tableau 4.5.

Types ($\lambda_{2\omega}$ λ_{ω} λ_{ω})	Phase Matching		Angular Quasi-Phase-Matching	
	λ_{ω} range	Topology	λ_{ω} range	Topology
I (e o o)	1050-3400 nm		905 - 1050 nm 1050 - 3400 nm 3400 - 5400 nm	
II = III (e e o)	X	X	1075 - 5400 nm	
IV (e e e)	∅	∅	1400 - 5400 nm	
V (o o o)	∅	∅	1510 - 5400 nm	
VI = VII (o e o)	∅	∅	2490 - 4640 nm	
VIII (o e e)	∅	∅	X	X

TAB. 4.5 – *Comparaison des plages spectrales solutions de QAPA et d'APB en SHG de type I, ainsi que des topologies associées pour un crital de $MgO : PPLN$ de période $\Lambda = 15\ \mu m$. (o) et (e) font référence aux ondes respectivement ordinaires et extraordinaires. λ_{ω} et $\lambda_{2\omega}$ sont les longeurs d'ondes fondamentale et de second harmonique.* ***X*** *signifie que la dispersion des indices de $MgO : PPLN$ n'a pas permis de solutions en QAPA ou en APB. ∅ correspond à des types ne présentant jamais de solutions en APB.*

En fait, le cas du QAP-2D, correspondant à une accordabilité angulaire restreinte aux directions du plan $(\vec{X}, \vec{Y})$, est contenue dans les solutions de QAPA présentées. En effet, le QAP-2D est possible pour un type donné, lorsque le cône de QAPA intersecte le plan $(\vec{X}, \vec{Y})$. Ainsi, le tableau 4.5 montre que la plage spectrale $1050nm - 3400nm$ est interdite pour le QAP-2D en SHG de type I.

Les types II=III, et VIII, présentent un coefficient effectif systématiquement nul dans le plan $(\vec{X}, \vec{Y})$, tel que cela est donné par le tableau 4.6. Ceci interdit donc ces types pour le QAP-2D, c'est-à-dire à $\theta = 90^{\circ}$, sachant que les angles de double réfraction vérifient $\rho_{\omega} = \rho_{2\omega} = 0$ dans ce plan. En conséquence, l'efficacité de conversion associée est nulle, même lorsque la condition de conservation de l'impulsion est réalisée.

Du point de vue du coefficient effectif, il est clair que le type IV est le plus intéressant, dans la mesure où il sollicite le coefficient χ_{33} dont la valeur est un ordre de grandeur supérieur à celles des autres coefficients non linéaires [75, 83]. Cependant, le type IV n'est pas réalisable pour des longueurs d'onde fondamentales inférieures à 1400 nm, tandis

Types (2ω; ω, ω)	SHG $\chi^{(2)}_{eff}$
I (e o o)	$\chi_{yyy}\cos(\theta+\rho_{2\omega})\sin\varphi\left(1-4\cos^2\varphi\right)+\chi_{zxx}\sin(\theta+\rho_{2\omega})$
II = III (e e o)	$\chi_{yyy}\cos(\theta+\rho_{2\omega})\cos(\theta+\rho_{\omega})\cos\varphi\left(4\sin^2\varphi-1\right)$
IV (e e e)	$-\chi_{yyy}\cos(\theta+\rho_{2\omega})\cos^2(\theta+\rho_{\omega})\sin\varphi\left(1-4\cos^2\varphi\right)$ $+(\chi_{xzx}+\chi_{xxz})\cos(\theta+\rho_{2\omega})\sin(\theta+\rho_{\omega})\cos(\theta+\rho_{\omega})+$ $\chi_{zxx}\sin(\theta+\rho_{2\omega})\cos^2(\theta+\rho_{\omega})+\chi_{zzz}\sin(\theta+\rho_{2\omega})\sin^2(\theta+\rho_{\omega})$
V (o o o)	$\chi_{yyy}\cos\varphi\left(1-4\sin^2\varphi\right)$
VI = VII (o e o)	$\chi_{yyy}\cos(\theta+\rho_{\omega})\sin\varphi\left(1-4\cos^2\varphi\right)+\chi_{xzx}\sin(\theta+\rho_{\omega})$
VIII (o e e)	$\chi_{yyy}\cos(\theta+\rho_1)\cos(\theta+\rho_2)\cos\varphi\left(4\sin^2\varphi-1\right)$

TAB. 4.6 – *Coefficient effectif de SHG dans PPLN, correspondant à toutes les configurations permises de polarisation. Les types IV, V, VI, VII et VIII ne sont pas autorisés en APB. Les coefficients χ_{ijk} sont les éléments indépendants du tenseur susceptibilité électrique du second ordre de PPLN. Les angles ρ_ω et $\rho_{2\omega}$ sont les angles de double réfraction des ondes de pulsations fondamentale et de second harmonique.*

que le QAPA est possible en type I à partir de 905 nm. Une comparaison complète entre QAPA et QAP-2D doit également prendre en compte l'acceptance spectrale des interactions paramétriques, ce qui sera fait au paragraphe 4.9.2.

La même approche peut être menée afin de comparer le QAPA et le QAP-1D, sachant que le QAP-1D constitue une restriction du QAP-2D à la seule direction de propagation selon l'axe $\vec{X}$. Dans le cas du QAP-1D, l'accordabilité spectrale est réalisée, non pas en tournant le cristal, mais en considérant des échantillons alternés multi-réseaux, ou dont les réseaux sont en forme d'évantail [81, 107]. Pour une période $\Lambda = 15\ \mu m$, les longueurs d'onde fondamentales de QAP-1D en SHG sont les limites inférieures des plages spectrales d'accordabilité de types I, IV et V, c'est-à-dire 905 nm, 1400 nm et 1510 nm respectivement, ainsi que les deux limites du type VI=VII à 2490 nm et 4640 nm.

Les dipositifs accordables classiques sont basés sur le QAP-1D associé au type IV selon la direction $\vec{X}$. Dans ce cas, pour réaliser une accordabilité spectrale en QAP-1D qui soit

identique à l'accordabilité réalisée en QAPA par le type I, c'est-à-dire de 905 nm à 5400 nm, il faudrait considérer une plage de période continûment accessible allant de 4,2 μm à 30,7 μm. Des périodes inférieures à 15 μm, sur des échantillons de $PPLN$ de plusieurs millimètres d'épaisseur selon $\vec{Z}$, ne sont, à ce jour, pas réalisables.

Ceci conduit à mettre en évidence l'intérêt par le QAPA : en terme de plages de longueurs d'onde fondamentales en SHG, par rapport au QAP-1D, et aussi par rapport au QAP-2D.

4.9.2 Acceptance spectrale

Une acceptance spectrale élevée est nécessaire pour réaliser des processus de conversion de fréquence dans le régime femtoseconde [108]. L'allure des courbes de SHG en QAPA, θ en fonction de λ_ω, qui sont décrites par la figure 4.13.(b) permettent d'appréhender l'évolution de l'acceptance spectrale, $L.\delta\lambda_\omega$, en fonction de λ_ω, dans la mesure où l'acceptance est liée à la fonction $\frac{\partial\theta}{\partial\lambda_\omega}$ en tout point de la courbe de QAPA. Les trois courbes de la figure 4.13.(b), relatives aux solutions de SHG en QAPA de type I dans les plans $\phi = 0^\circ$, $\phi = 45^\circ$, et $\phi = 90^\circ$ (plan $(\vec{Y}, \vec{Z})$), montre une tangente verticale, et donc une valeur maximale de l'acceptance spectrale à une valeur donnée de λ_ω, respectivement : 2310 nm (point O), 2230 nm (point O'), et 1910 nm (point O''). L'acceptance spectrale est alors définie comme étant la largeur totale à 0,405 du maximum de la courbe du $sinc^2(\Delta kL/2)$ en fonction de λ_ω. Les valeurs calculées correspondantes sont : 117 nm.cm, 118 nm.cm, et 86 nm.cm. De part et d'autre de chacune des longueurs associées aux points O, O', O'', l'acceptance spectrale décroit et atteint des valeurs minimales au niveau des limites des plages spectrales solutions du QAPA. Cette évolution de l'acceptance est montrée par la figure 4.14 dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$, où $\phi = 0^\circ$: la plage de longueur d'onde fondamentale correspond alors à une rotation du cristal dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ de l'angle $\theta = 90^\circ$ pour $\lambda_\omega = 905$ μm, jusqu'à l'angle $\theta = 24^\circ$ pour $\lambda_\omega = 2310$ nm, ce qui est en accord avec la figure 4.13.(b). Il est à noter que les points O, O', et O'' constituent des situations non critiques du QAPA vis-à-vis de la longueur d'onde λ_ω, et critiques par rapport à la dépendance angulaire en θ.

Tel qu'il l'a été exposé précédemment, la courbe d'accordabilité de SHG en APB de

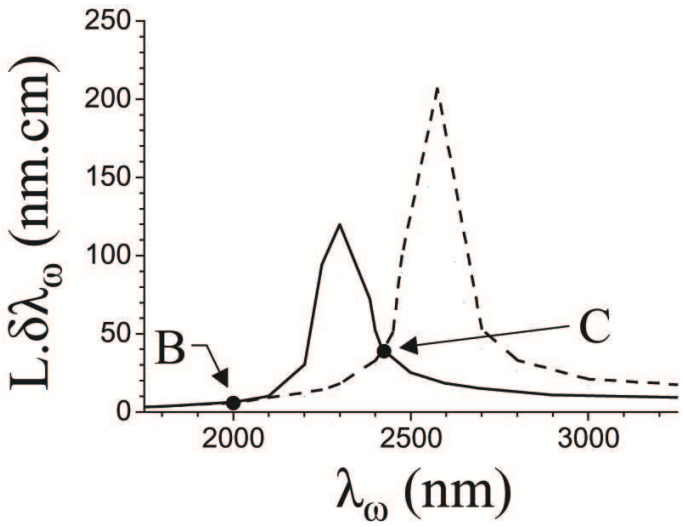


FIG. 4.14 – *Acceptance spectrale $L.\delta\lambda_\omega$ dans $MgO : PPLN$, calculée en fonction de λ_ω, pour une interaction de SHG. Courbe continue : acceptance spectrale du QAPA en type I dans le plan $(\vec{X}, \vec{Z})$ d'un cristal composé d'un unique réseau de période $\Lambda = 15$ μm, et mis en rotation entre les angles $\theta = 24^\circ$ et $\theta = 90^\circ$. Courbe en tirets : acceptance spectrale du QAP-1D selon l'axe $\vec{X}$ dans un cristal à réseaux multiples de périodes allant de $\Lambda = 15$ μm à $\Lambda = 30,7$ μm, ainsi que du QAP-2D dans le plan $(\vec{X}, \vec{Y})$ pour un cristal à réseau unique de période $\Lambda = 15$ μm mis en rotation entre les angles $\phi = 0^\circ$ et $\phi = 29^\circ$.*

type I est donnée par la courbe associée au QAPA dans le plan $(\vec{Y}, \vec{Z})$, où $\phi = 90^\circ$. Ainsi, dans ce plan, les acceptances spectrales du QAPA et de l'APB sont nécessairement les mêmes, ce qui indiquent, selon les calculs réprésentés, que le QAPA en type I présente des acceptances spectrales qui sont toujours supérieures à celle de l'APB, dès lors que le QAPA en type I est considéré hors du plan $(\vec{Y}, \vec{Z})$.

Les acceptances spectrales ont également été calculées pour le QAP-1D, en SHG de type IV, sur la plage spectrale permise par un cristal multi-réseaux dont les périodes sont comprises entre $\Lambda = 15$ μm et $\Lambda = 30,7$, ce qui correspond à l'interval 1400 nm à 5400 nm pour la SHG de type IV selon l'axe $\vec{X}$. La courbe d'acceptance spectrale correspondante est donnée par la figure 4.14, mettant en évidence une valeur maximale de 207 nm.cm à $\lambda_\omega = 2575$ nm, ce qui correspond à une période $\Lambda = 30,7$ μm. Cette courbe est également celle du QAP-2D en SHG de type IV, à partir d'un cristal présentant une unique période, $\Lambda = 15$ μm, mis en rotation de $\phi = 0^\circ$ à $\phi = 29^\circ$, pour l'angle θ fixé à 90°. En effet, il est équivalent de faire varier la périodicité d'un cristal multi-réseau en QAP-1D de type IV, ou de mettre en rotation un cristal présentant une unique périodicité en SHG de type IV en QAP-2D, dans la mesure où la période effective en QAP-2D est $\Lambda(\phi) = \left|\frac{\Lambda}{cos(\phi)}\right|$.

Notons que le maximum d'acceptance spectrale est associé à une tangente verticale de la courbe λ_ω en fonction de Λ, pour le QAP-1D de type IV, ainsi que de la courbe λ_ω en fonction de ϕ pour le QAP-2D de type IV.

La figure 4.14 montre que la SHG en QAPA de type I présente une acceptance spectrale supérieure à celle du QAP-1D, et donc également du QAP-2D, pour des longueurs d'onde fondamentales comprises entre 2000 nm (point B) et 2400 nm (point C). Par contre, le QAP-1D de type IV, et donc le QAP-2D de type IV, est meilleur que le QAPA en terme d'acceptance spectrale, pour des longueurs d'onde supérieures à 2400 nm. Sur ce dernier domaine de longueurs d'onde, le QAP-1D et le QAP-2D sont clairement plus intéressants à utliser. Pour des longueurs d'onde inférieures à 2400 nm, le choix entre le QAP-1D, le QAP-2D et le QAPA dépend de ce qui est recherché : en terme d'efficacité de conversion, le QAP-1D sera plus avantageux que le QAPA car l'acceptance spectrale moindre sera largement compensée par un coefficient effectif nettement plus élevé ; en terme de conservation de durée d'impulsion, il sera meilleur d'utiliser le QAPA en type I, tant que l'acceptance spectrale associée demeure supérieure à celle du QAP-1D.

4.10 Conclusion

En conclusion, nous avons introduit le concept du QAPA colinéaire, ce qui constitue une généralisation du QAP colinéaire. L'approche topologique que nous proposons montre que la symétrie de l'espace des solutions du QAPA dépend des symétries de la surface des indices et du réseau périodique réciproque. Des calculs réalisés dans le cas de la SHG dans $MgO : PPLN$ ont clairement mis en évidence que le QAPA peut élargir significativement la plage spectrale des processus paramétriques, ainsi que les valeurs des acceptances spectrales associées, par rapport à ce que permet l'APB et le QAP classique. Ces calculs contituent un exemple qui vise à illustrer les potentiels du QAPA, mais il sera important de mener de nouveaux calculs pour d'autres interactions, en particulier dans le cas des OPO.

La même approche peut également être appliquée aux milieux périodiquement alternés de classe optique biaxe comme $PPKTP$ [77], aux cristaux isotropes tels que les milieux périodiquement orientés $GaAs$ [79] et $ZnSe$ [101] périodiquement orientés, et cela peut également concerner les cristaux photoniques [109, 110].

Conclusion

Ce travail de thèse s'incrit dans la continuité du travail théorique, méthodologique et métrologique qui est développé par l'équipe de Benoît Boulanger depuis une quizaine d'années. Ce travail présente de nouvelles approches en optique cristalline, qui portent sur trois thématiques distinctes : l'étude de l'anisotropie des propriétés d'absorption et d'émission d'ions fluorescents insérés dans un cristal monoclinique ; la caractérisation des propriétés d'auto-doublage de fréquence ; et enfin le développement de la théorie du « quasi-accord de phase angulaire ».

L'étude des propriétés d'absorption et d'émission a permis de réaliser sur sphère monocristalline de $YCOB : Nd$, les premières mesures des indicatrices d'absorption et d'émission des ions Nd^{3+} dans le plan principal contenant les ombilics d'un milieu biaxe. Ces expériences ont produit des résultats originaux, mettant en évidence des indicatrices composées de deux nappes, et dont les axes principaux ne correspondent pas à ceux du repère optique. Ceci a notamment conduit à l'introduction de deux nouveaux repères distincts, correspondant aux repères propres relatifs à l'absorption et à l'émission. Outre les aspects fondamentaux, ce travail a également une portée importante vis-à-vis des applications, en montrant que les valeurs propres de l'absorption et de l'émission d'un cristal monoclinique ne peuvent déterminées que selon des axes propres spécifiques. D'autre part, les propriétés d'absorption et d'émission ne sont pas optimales pour les mêmes directions, ce qui nécessite au préalable une métrologie de la distribution angulaire complète des propriétés spectroscopiques du cristal monoclinique ; la géométrie sphérique s'avère alors indispensable pour mener à bien de telles études.

L'extension de la méthode de la sphère à la mesure des propriétés d'absorption et d'émission permet de caractériser successivement les propriétés laser et non linéaires des

cristaux auto-convertisseurs. Toutefois, la volonté de caractériser de façon directe les propriétés d'auto-doublage de fréquence a conduit à la conception d'une cavité laser originale : le milieu à gain, $YCOB : Nd$, est de géométrie sphérique, la mise en rotation de la sphère au sein de la cavité devant permettre la mesure directe des directions d'auto-doublage. Le domaine de stabilité de ce laser a été calculé, et une configuration de cavité symétrique a été identifiée comme devant permettre la réalisation d'un tel laser. La réalisation de ce laser est en cours, et le travail expérimental continue en vue d'atteindre cet ojectif méthodologique et métrologique.

Enfin, une généralisation des processus de quasi-accord de phase a été développée, en envisageant l'ensemble des directions de propagation possibles de l'interaction paramétrique par rapport au vecteur réseau. Nous avons appelé ceci « quasi-accord de phase angulaire », dont l'acronyme est QAPA. Sur la base de la théorie des groupes, une analyse de la symétrie des solutions du QAPA a été menée dans le cas des milieux uniaxes et biaxes. Ceci a conduit à la mise en évidence des topologies de solutions accessibles, et à la détermination de nombreuses classes de solutions envisageables. Une illustration des potentialités du QAPA a été réalisée sur la base de calculs relatifs à la génération de second harmonique dans le milieu périodiquement alterné $7\%MgO : PPLN$. Nous avons pu comparer le QAPA avec l'accord de phase, puis le quasi-accord de phase classique. Il a ainsi été mis en évidence que le QAPA permet un élargissement du domaine spectral autorisant des conversions de fréquences. De plus, il a été montré que le QAPA pouvait conduire, sur certaines plages spectrales, à des acceptances spectrales supérieures à celles obtenues en accord de phase ou en quasi-accord de phase classique. Ceci illustre bien l'intérêt du QAPA dans le cas d'intéractions en régime femtoseconde, pour lesquelles il est essentiel de solliciter une acceptance spectrale la plus grande possible, de manière à conserver au mieux le caractère ultra-bref de l'onde générée par le processus paramétrique.

En conclusion, ce travail a porté sur des développements en optique cristalline. Il a contribué, à sa mesure, à développer des outils méthodologiques et théoriques, afin de tendre vers une utilisation optimale des nouveaux cristaux pour l'optique, et de favoriser ainsi la conception de futures sources laser et paramétriques de plus en plus performantes.

Bibliographie

[1] J.D. Jackson. *Electrodynamique Classique.* Editions Dunod, 2001.

[2] R. Carles et R. Fleckinger J.P. Pérez. *Electromagnétisme : fondements et applications avec 300 excercices et problèmes résolus.* Editions Masson, 1996.

[3] D.A. Roberts. Dispersion equations for nonlinear optical crystals : KDP, $AgGaSe_2$, and $AgGaS_2$. *Applied Optics*, 35(24) :4677–4688, 1996.

[4] A. Hadni. *Essentials of Modern Physics Applied to the Study of the Infrared.* Pergamon Press, 1967.

[5] J.F. Nye. *Physical Properties of Crystals : Their Representation by Tensors and Matrices.* Oxford University Press, 1985.

[6] M. Born, E. Wolf, and A.B. Bhatia. *Principles of Optics : electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light.* Cambridge University Press, 1999.

[7] J.Q. Yao and T.S. Fahlen. Calculations of optimum phase match parameters for the biaxial crystal $KTiOPO_4$. *Journal of Applied Physics*, 55 :65, 1984.

[8] A. Yariv and P. Yeh. *Optical Waves in Crystals : Propagation and Control of Laser Radiation.* New York : Wiley, 1984.

[9] B. Boulanger and J. Zyss. *Chapter 1.7 : Nonlinear optical properties.* Kluwer Academic Publisher, 2003.

[10] P.A. Franken, A.E. Hill, C.W. Peters, and G. Weinreich. Generation of Optical Harmonics. *Physical Review Letters*, 7(4) :118–119, 1961.

[11] J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P.S. Pershan. Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric. *Physical Review*, 127(6) :1918–1939, 1962.

[12] T.H. Maiman. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187(4736) :493–494, 1960.

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

[14] N. Bloembergen. *Nonlinear Optics.* World Scientific, 1996.

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

[16] B. Boulanger and J.P. Fève. *Caractérisation des propriétés optiques non linéaires de conversion de fréquence des cristaux*, volume 8. Editeur scientifique B. Boulanger, 2005.

[17] F. Mougel. Les oxoborates de calcium et de terres rares (TR) $Ca_4TRO(BO_3)_3$. Une nouvelle famille de matériaux à fonctions multiples pour l'optique : Croissance cristalline, propriétés non linéaires et laser. *Thèse de l'Université Pierre et Marie Curie - Paris VI*, 2006.

[18] J.P. Pérez. *Optique géométrique, ondulatoire et polarisation, avec exercices et problèmes résolus.* Masson, 1991.

[19] I. Shoji, T. Kondo, A. Kitamoto, M. Shirane, and R. Ito. Absolute scale of second-order nonlinear-optical coefficients. *J. Opt. Soc. Am. B*, 14(9) :2268–2294, 1997.

[20] B. Boulanger. Synthèse en flux et étude des propriétés optiques cristallines linéaires et non linéaires par la méthode de la sphère de $KTiOPO_4O_4$ et des nouveaux composés isotypes et solutions solides de formule générale (K, Rb, Cs) Ti O (P, As) O_4. *Thèse de l'Université de Nancy I*, 1989.

[21] G. Marnier and B. Boulanger. The sphere method : A new technique in linear and non-linear crystalline optical studies. *Optics Communications*, 72(3-4) :139–143, 1989.

[22] P. Segonds, Y. Petit, B. Boulanger, C. Félix, B. Ménaert, and J. Zaccaro. Méthode de la sphère : dernières étapes pour une caractérisation complète des propriétés optiques cristallines. *Journées Nationales des Cristaux pour l'Optique (JNCO - 2005)*, 2005.

[23] P. Segonds, B. Boulanger, J.P. Fève, B. Ménaert, J. Zaccaro, G. Aka, and D. Pelenc. Linear and nonlinear optical properties of the monoclinic $Ca_4YO(BO_3)_3$ crystal. *Journal of the Optical Society of America B*, 21(4) :765–769, 2004.

[24] F. Mougel, K. Dardenne, G. Aka, A. Kahn-Harari, and D. Vivien. Ytterbium-doped $Ca_4GdO(BO_3)_3$: an efficient infrared laser and self-frequency doubling crystal. *J. Opt. Soc. Am. B*, 16 :164–172, 1999.

[25] J.M. Eichenholz, D.A. Hammons, L. Shah, Q. Ye, M.C. Richardson, B.H. Chai, A.K. Chin, and J.D. Cary. Diode-pumped laser action and self-frequency doubling in Nd^{3+} : YCOB. *Proc. SPIE*, 3613 :30–37, 1999.

[26] B. Boulanger and G. Marnier. Study of the wave propagation near optical axes of $KTiOPO_4$ by the sphere method. *Optics Communications*, 72(3-4) :144–147, 1989.

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

[28] P. Segonds, B. Boulanger, L. Ferrier, B. Ménaert, and J. Zaccaro. Refractive indices determination of a small-size nonlinear biaxial crystal by use of double-refraction measurements with a laser beam. *Journal of the Optical Society of America B*, 23(5) :852–856, 2006.

[29] J.P. Fève, B. Boulanger, O. Pacaud, I. Rousseau, B. Ménaert, G. Marnier, P. Villeval, C. Bonnin, G.M. Loiacono, and D.N. Loiacono. Phase-matching measurements and Sellmeier equations over the complete transparency range of $KTiOAsO_4$, $RbTiOAsO_4$, and $CsTiOAsO_4$. *J. Opt. Soc. Am. B*, 17(5) :775–780, 2000.

[30] Y. Guillien, B. Ménaert, J.P. Fève, P. Segonds, J. Douady, B. Boulanger, and O. Pacaud. Crystal growth and refined Sellmeier equations over the complete transparency range of $RbTiOPO_4$. *Optical Materials*, 22(2) :155–162, 2003.

[31] B. Boulanger, J.P. Fève, 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.

[32] B. Boulanger. *Optique Laser*. Cours de Master II Optique et Radio-Fréquence.

[33] B. Diu, C. Guthmann, D. Lederer, and B. Roulet. Physique Statistique. *Hermann, Paris*, page 704, 1989.

[34] F. Mougel, A. Kahn-Harari, G. Aka, and D. Pelenc. Structural and thermal stability of Czochralski grown GdCOB oxoborate single crystals. *Journal of material chemistry*, 8(7) :1619–1623, 1998.

[35] B.R. Judd. Optical Absorption Intensities of Rare-Earth Ions. *Physical Review*, 127(3) :750–761, 1962.

[36] G.S. Ofelt. Optical absorption intensities of rare-earth ions. *J. Chem. Phys*, 37(3) :511, 1962.

[37] A.J. Alfrey, O.M. Stafsudd, B. Dunn, and D.L. Yang. Analysis of the absorption spectrum of neodymium : sodium beta double prime alumina. *The Journal of Chemical Physics*, 88 :707, 1988.

[38] T.S. Lomheim and L.G. De Shazer. Optical-absorption intensities of trivalent neodymium in the uniaxial crystal yttrium orthovanadate. *Journal of Applied Physics*, 49 :5517, 1978.

[39] T.S. Lomheim and L.G. De Shazer. Optical absorption and fluorescence intensities of Nd^{3+} in the garnets CaY_2Mg_2 Ge_3O_{12} and $Gd_3Ga_5O_{12}$ and the biaxial crystal $La_2Be_2O_5$. *Physical Review B*, 20(10) :4343–4356, 1979.

[40] H. Dai and OM Stafsudd. Poparised absorption spectrum and intensity analysis of trivalent neodymium in sodium β alumina. *J. Phys. Chem. Solids*, 52(2) :367–379, 1991.

[41] W.T. Carnall, P.R. Fields, and K. Rajnak. Electronic energy levels of the trivalent lanthanide aquo ions. I. *J. Chem. Phys*, 49(10) :4424–4442, 1968.

[42] W.T. Carnall, P.R. Fields, and K. Rajnak. Electronic energy levels of the trivalent lanthanide aquo ions. II. *J. Chem. Phys*, 49(10) :4412–4423, 1968.

[43] D.E. McCumber. Einstein relations connecting broadband emission and absorption spectra. *Phys. Rev*, 136(4A) :A954–A957, 1964.

[44] L.D. DeLoach, S.A. Payne, L.L. Chase, L.K. Smith, W.L. Kway, and W.F. Krupke. Evaluation of absorption and emission properties of Yb^{3+} doped crystals for laser applications. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 29(4) :1179–1191, 1993.

[45] S.A. Payne, L.L. Chase, L.K. Smith, W.L. Kway, and W.F. Krupke. Infrared cross-section measurements for crystals doped with Er^{3+}, Tm^{3+}, and Ho^{3+}. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 28(11) :2619–2630, 1992.

[46] W.F. Krupke, M.D. Shinn, J.E. Marion, J.A. Caird, and S.E. Stokowski. Spectroscopic, optical, and thermomechanical properties of neodymium- and chromium-doped gadolinium scandium gallium garnet. *Optical Society of America, Journal, B : Optical Physics*, 3 :102–114, 1986.

[47] J.M. Eichenholz, D.A. Hammons, L. Shah, Q. Ye, R.E. Peale, M. Richardson, and B.H.T. Chai. Diode-pumped self-frequency doubling in a Nd^{3+} : $YCa_4O(BO_3)_3$ laser. *Applied Physics Letters*, 74 :14, 1999.

[48] Q. Ye, L. Shah, J. Eichenholz, D. Hammons, R. Peale, M. Richardson, A. Chin, and B.H.T. Chai. Investigation of diode-pumped, self-frequency doubled RGB lasers from Nd : YCOB crystals. *Optics Communications*, 164(1) :33–37, 1999.

[49] G. Aka and A. Brenier. Self-frequency conversion in nonlinear laser crystals. *Optical Materials*, 22(2) :89–94, 2003.

[50] D.A. Hammons, M.C. Richardson, B.H. Chai, A.K. Chin, and R.A. Jollay. Scaling diode-pumped Nd^{3+} and Yb^{3+} doped $YCa_4O(BO_3)_3$ (YCOB) self-frequency doubling lasers. *Laser diodes and LEDs in industrial, measurement, imaging, and sensors applications II*, pages 50–62, 2000.

[51] D.A. Hammons, M. Richardson, B.H.T. Chai, A.K. Chin, and R. Jollay. Scaling of longitudinally diode-pumped self-frequency-doubling Nd : YCOB lasers. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 36(8) :991–999, 2000.

[52] AA Kaminskii. Laser Crystals, Their Physics and Properties, translation edited by HF Hvey Springer-Verlag, 1981.

[53] R. Moncorgé. Cristaux laser à ions de terres rares. *Collection de la Société Fraçaise d'Optique*, 8 :69–98, 2005.

[54] C. Maunier, J.L. Doualan, G. Aka, J. Landais, E. Antic-Fidancev, R. Moncorge, and D. Vivien. Excited state absorption of the self-frequency doubling laser material : Nd : GdCOB. *Optics Communications*, 184(1) :209–214, 2000.

[55] C. Kittel. *Introduction to solid state physics.* Wiley New York, 1986.

[56] A. Peña Revellez. Ytterbium and erbium doped $RbTi_{1-x}M_xOPO_4$ (M = Nb or Ta) crystals. New laser and non linear bifunctional materials. *Thèse de l'Université Rovira i Virgili - Tarragona*, 2007.

[57] Y. Petit, P. Segonds, and B. Boulanger. Développements métrologiques pour cristaux lasers non linéaires. *Journal de Physique IV France*, 135 :299–300, 2006.

[58] Y. Petit, P. Segonds, and B. Boulanger. A new tool for the characterization of self-doubling crystals. *Optical Materials*, 30 :37–39, 2007.

[59] M.V. Pack, D.J. Armstrong, A.V. Smith, G. Aka, B. Ferrand, and D. Pelenc. Measurement of the $\chi^{(2)}$ tensor of $GdCa_4O(BO_3)_3$ and $YCa_4O(BO_3)_3$ crystals. *Journal of the Optical Society of America B*, 22(2) :417–425, 2005.

[60] W. Koechner. *Solid-State Laser Engineering.* Springer, 1999.

[61] A. Montmerle Bonnefois. Etude théorique et expérimentale d'un laserà solide de forte puissance moyenne, délenché à haute- cadence et possédant une bonne qualité de faisceau. *Thèse de l'Université Paris XI*, 2006.

[62] G. Herziger and H. Weber. Equivalent optical resonators. *Applied Optics*, 23 :1450–1452, 1984.

[63] V. Magni. Resonators for solid-state lasers with large-volume fundamental mode and high alignment stability. *Applied Optics*, 25(1) :107–117, 1986.

[64] O. Pacaud. Oscillateurs Paramétriques Optiques basés sur des cristaux de géométrie cylindriques. *Thèse de l'Université Joseph Fourier de Grenoble*, 2001.

[65] J.P. Fève, O. Pacaud, B. Boulanger, B. Ménaert, and M. Renard. Tunable phase-matched optical parametric oscillators based on a cylindrical crystal. *Journal of the Optical Society of America B*, 19(2) :222–233, 2002.

[66] O. Pacaud, B. Boulanger, J.P. Fève, and B. Ménaert. First optical parametric oscillator based on a cylindrical KTP crystal. *Adv. Solid State Lasers, Davos*, 2000.

[67] O. Pacaud, J.P. Fève, B. Boulanger, and B. Ménaert. Cylindrical $KTiOPO_4$ crystal for enhanced angular tunability of phase-matched optical parametric oscillators. *Opt. Lett*, 25(10) :737–739, 2000.

[68] B. Boulanger, J.P. Fève, B. Ménaert, and G. Marnier. October 6, 1999, French patent 2,771,519 and Means for generating optical radiations tuneable at least in frequency. *International PCT WO99/28785*.

[69] C. Drag, A. Desormeaux, M. Lefebvre, and E. Rosencher. Entangled-cavity optical parametric oscillator for mid-infrared pulsed single-longitudinal-mode operation. *Opt. Lett*, 27 :1238–1240, 2002.

[70] C. Richy, K.I. Petsas, E. Giacobino, C. Fabre, and L. Lugiato. Observation of bistability and delayed bifurcation in a triply resonant optical parametric oscillator. *Journal of the Optical Society of America B : Optical Physics*, 12(3) :456–461, 1995.

[71] A.A. Tovar and L.W. Casperson. Generalized beam matrices : Gaussian beam propagation in misaligned complex optical systems. *J. Opt. Soc. Am. A*, 12(7) :522–1533, 1995.

[72] V. Magni. Multielement stable resonators containing a variable lens. *J. Opt. Soc. Am. A*, 4(10) :1962–1969, 1987.

[73] H. Kogelnik and T. Li. Laser beams and resonators. *Appl. Opt*, 5(10) :1550–1567, 1966.

[74] A.E. Siegman. Lasers. *University Science Books*, pages 744–760 et 782–785, 1986.

[75] M.M. Fejer, GA Magel, D.H. Jundt, and R.L. Byer. Quasi-phase-matched second harmonic generation-Tuning and tolerances. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 28(11) :2631–2654, 1992.

[76] L.E. Myers, R.C. Eckardt, M.M. Fejer, R.L. Byer, W.R. Bosenberg, and J.W. Pierce. Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO 3. *J. Opt. Soc. Am. B*, 12(11) :2102–2116, 1995.

[77] H. Karlsson and F. Laurell. Electric field poling of flux grown $KTiOPO_4$. *Applied Physics Letters*, 71 :3474, 1997.

[78] J. Hellström, V. Pasiskevicius, H. Karlsson, and F. Laurell. High-power optical parametric oscillation in large-aperture periodically poled $KTiOPO_4$. *Opt. Lett*, 25(3) :174–176, 2000.

[79] L.A. Eyres et al. All-epitaxial fabrication of thick, orientation-patterned GaAs films for nonlinear optical frequency conversion. *Applied Physics Letters*, 79(7) :904, 2001.

[80] X. Yu, L. Scaccabarozzi, A.C. Lin, M.M. Fejer, and J.S. Harris. Growth of GaAs with orientation-patterned structures for nonlinear optics. *Journal of Crystal Growth*, 301 :163–167, 2007.

[81] L.E. Myers, R.C. Eckardt, M.M. Fejer, R.L. Byer, and W.R. Bosenberg. Multigrating quasi-phase-matched optical parametric oscillator in periodically poled LiNbO3. *Opt. Lett*, 21(8) :591–593, 1996.

[82] M. Katz, A. Englander, and D. Eger. Continuous, wide-band tuning of a periodically poled KTP opticalparametric oscillator by means of a fan-shaped grating. *Lasers and Electro-Optics Europe, 2000. Conference Digest. 2000 Conference on*, page 1, 2000.

[83] J.P. Fève, O. Pacaud, B. Boulanger, B. Ménaert, J. Hellström, V. Pasiskevicius, and F. Laurell. Widely and continuously tunable optical parametric oscillator based on a cylindrical periodically poled $KTiOPO_4$ crystal. *Opt. Lett*, 26(23) :1882–1884, 2001.

[84] J.P. Fève, B. Boulanger, B. Ménaert, and O. Pacaud. Continuous tuning of a microlaser-pumped optical parametric generator by use of a cylindrical periodically poled lithium niobate crystal. *Optics Letters*, 28(12) :1028–1030, 2003.

[85] H. Ishizuki, T. Taira, S. Kurimura, J.H. Ro, and M. Cha. Periodic poling in 3-mm-thick MgO : $LiNbO_3$ Crystals. *Japanese J. of Appl. Phys*, 42 :108–110, 2003.

[86] H. Ishizuki, I. Shoji, and T. Taira. Periodical poling characteristics of congruent MgO : $LiNbO_3$ crystals at elevated temperature. *Applied Physics Letters*, 82 :4062, 2003.

[87] H. Ishizuki and T. Taira. Fabrication and characterization of 5-mm-thick periodically poled MgO : $LiNbO_3$ device. *Lasers and Electro-Optics, 2005 (CLEO) Conference on*, 3, 2005.

[88] G. Rosenman and A. Skliar. Ferroelectric domain engineering for nonlinear optical devices. *Crystallography Reports*, 44 :112, 1999.

[89] G. Rosenman, P. Urenski, A. Arie, M. Roth, N. Angert, A. Skliar, and M. Tseitlin. Polarization reversal and domain grating in flux-grown $KTiOPO_4$ crystals with variable potassium stoichiometry. *Applied Physics Letters*, 76(25) :3798–3800, 2000.

[90] A. Kuroda, S. Kurimura, and Y. Uesu. Domain inversion in ferroelectric MgO : $LiNbO_3$ by applying electric fields. *Applied Physics Letters*, 69 :1565, 1996.

[91] H. Ishizuki, I. Shoji, and T. Taira. High-energy quasi-phase-matched optical parametric oscillation in a 3-mm-thick periodically poled MgO : $LiNbO_3$ device. *Optics Letters*, 29(21) :2527–2529, 2004.

[92] H. Ishizuki and T. Taira. High-energy quasi-phase-matched optical parametric oscillation in a periodically poled MgO : $LiNbO_3$ device with a 5 mm $\times$ 5 mm aperture. *Optics Letters*, 30(21) :2918–2920, 2005.

[93] B. Boulanger, Y. Petit, P. Segonds, and T. Taira. Angular Quasi Phase-Matching. *French-Israeli Workshop, Jerusalem, Israël, 10th-17th December*, 2006.

[94] B. Boulanger, Y. Petit, P. Segonds, and T. Taira. Angular Quasi Phase-Matching. *Journées Scientifiques de l'ONERA (JSO) : Sources optiques paramétriques pour l'infrarouge, Clamart, France, 5-6 Février*, 2007.

[95] R. Haïdar, N. Forget, P. Kupecek, and E. Rosencher. Fresnel phase matching for three-wave mixing in isotropic semiconductors. *Journal of the Optical Society of America B*, 21(8) :1522–1534, 2004.

[96] J.P. van der Ziel. Phase- matched harmonic generation in a laminar structure with wave propagation in the plane of the layers. *Applied Physics Letters*, 26 :60, 1975.

[97] A. Fiore, V. Berger, E. Rosencher, P. Bravetti, and J. Nagle. Phase matching using an isotropic nonlinear optical material. *Nature(London)*, 391(6666) :463–466, 1998.

[98] A. Fiore, S. Janz, L. Delobel, P. van der Meer, P. Bravetti, V. Berger, E. Rosencher, and J. Nagle. Second-harmonic generation at λ= 1.6 μm in AlGaAs/AlO waveguides using birefringence phase matching. *Applied Physics Letters*, 72 :2942, 1998.

[99] E. Rosencher and B. Vinter. Optoelectronics. *Optoelectronics*, 2002.

[100] D. Yang, J.B. Khurgin, and Y.J. Ding. Cascaded waveguide phase-matching arrangement. *Opt. Lett*, 25 :496–498, 2000.

[101] A. Mustelier, E. Rosencher, P. Kupecek, A. Godard, M. Baudrier, M. Lefebvre, M. Poulat, G. Mennerat, C. Pasquer, and P. Lemasson. Midinfrared difference frequency generation in quasi-phase matched diffusion bonded ZnSe plates. *Applied Physics Letters*, 84 :4424, 2004.

[102] N.E. Yu, J.H. Ro, M. Cha, S. Kurimura, and T. Taira. Broadband quasi-phase-matched second-harmonic generation in MgO-doped periodically poled $LiNbO_3$ at the communications band. *Opt. Lett*, 27 :1046–1048, 2002.

[103] J.P. Fève, B. Boulanger, and G. Marnier. Calculation and classification of the direction loci for collinear types I, II and III phase-matching of three-wave nonlinear optical parametric interactions in uniaxial and biaxial acentric crystals. *Optics Communications*, 99(3-4) :284–302, 1993.

[104] M.V. Hobden. Phase-Matched Second-Harmonic Generation in Biaxial Crystals. *Journal of Applied Physics*, 38 :4365, 2004.

[105] A. Authier. Chapter 1.A : Introduction to the properties of tensors. *International tables for cristallography*, 2003.

[106] *http : //www.casix.com/product/prodcrylinbo$_3$.html.*

[107] P.E. Powers, K.W. Aniolek, T.J. Kulp, B.A. Richman, and S.E. Bisson. Periodically poled lithium niobate optical parametric amplifier seeded with the narrow-band filtered output of an optical parametric generator. *Optics Letters*, 23 :1886–1888, 1998.

[108] N. Forget. Des amplificateurs laser aux amplificateurs paramétriques : études de l'amplification paramétrique à dérive de fréquence et du blocage de modes dans les oscillateurs paramétriques optiques. *Thèse de doctorat de l'Ecole Polythechnique*, 2005.

[109] V. Berger. Nonlinear Photonic Crystals. *Physical Review Letters*, 81(19) :4136–4139, 1998.

[110] R. Lifshitz, A. Arie, and A. Bahabad. Photonic Quasicrystals for Nonlinear Optical Frequency Conversion. *Physical Review Letters*, 95(13) :133901, 2005.

[111] J.P. Fève, B. Boulanger, and J. Douady. Specific properties of cubic optical parametric interactions compared to quadratic interactions. *Physical Review A*, 66(6) :63817, 2002.

[112] J.P. Fève, B. Boulanger, B. Menaert, and O. Pacaud. Continuously tunable optical parametric generator using a cylindrical ppLN. *Lasers and Electro-Optics Europe, 2003. CLEO/Europe. 2003 Conference on*, 2003.

ANNEXES

Annexe A

Classes de solutions en QAPA dans les cristaux uniaxes

L'équation suivante permet de définir l'ensemble des classes de relations d'ordre correspondant à l'ensemble des classes de solutions en QAPA, pour les topologies de cônes reliant deux plans principaux distincts dans les milieux uniaxes dont les parois des domaines d'inversion sont orientées orthogonalement à l'axe $\vec{X}$.

$$n^{\pm}(\omega_3;\theta,\phi)\omega_3 - n^{\pm}(\omega_1;\theta,\phi)\omega_1 - n^{\pm}(\omega_2;\theta,\phi)\omega_2 - \frac{|cos(\phi)sin(\theta)|}{\Lambda} = 0 \tag{A.1}$$

De manière à alléger les écritures dans le cas d'une interaction paramétrique à trois ondes, avec la convention $\omega_3 > \omega_2 > \omega_1$, les notations employées sont les mêmes que celles introduites dans le paragraphe 4.7 portant sur les classes de solutions en QAPA. Ces notations sont rappelées ci-dessous :

$\alpha = n^{-}(\omega_3)\omega_3$,

$\beta = n^{+}(\omega_3)\omega_3$,

$a = n^{-}(\omega_1)\omega_1 + n^{-}(\omega_2)\omega_2$,

$b = n^{+}(\omega_1)\omega_1 + n^{-}(\omega_2)\omega_2$,

$c = n^{-}(\omega_1)\omega_1 + n^{+}(\omega_2)\omega_2$,

$d = n^{+}(\omega_1)\omega_1 + n^{+}(\omega_2)\omega_2$,

avec $\tilde{b} = Min(b,c)$ et $\tilde{c} = Max(b,c)$, où Min(p,q) et Max(p,q) correspondent respec-

tivement aux valeurs minimale et maximale entre les deux grandeurs numériques p et q.

$A = n^-(\omega_1)\omega_1 + n^-(\omega_2)\omega_2 + \frac{1}{\Lambda} = a + \frac{1}{\Lambda}$,

$B = n^+(\omega_1)\omega_1 + n^-(\omega_2)\omega_2 + \frac{1}{\Lambda} = b + \frac{1}{\Lambda}$,

$C = n^-(\omega_1)\omega_1 + n^+(\omega_2)\omega_2 + \frac{1}{\Lambda} = c + \frac{1}{\Lambda}$,

$D = n^+(\omega_1)\omega_1 + n^+(\omega_2)\omega_2 + \frac{1}{\Lambda} = d + \frac{1}{\Lambda}$,

avec $\tilde{B} = Min(B, C)$ et $\tilde{C} = Max(B, C)$

Avec les notations choisies, la dispersion normale des indices impose les relations d'ordre suivantes :

$a < \tilde{b} < \tilde{c} < d$

$A < \tilde{B} < \tilde{C} < D$

$a < A, \quad \tilde{b} < \tilde{B}, \quad \tilde{c} < \tilde{C}, \quad \tilde{d} < \tilde{D}$

$\alpha < \beta$

$a < \alpha, \quad$ et $\quad d < \beta$

Les classes de solutions déterminées dans les milieux uniaxes alternés orthogonalement à l'axe $\vec{X}$ sont les suivantes :

N° 01 : $a < \alpha < \tilde{b}$ et $d < \beta < A$ avec $\alpha < A$

N° 02 : $\tilde{b} < \alpha < \tilde{c}$ et $d < \beta < A$ avec $\alpha < A$

N° 03 : $\tilde{c} < \alpha < d < \beta < A$

N° 04 : $d < \alpha < \beta < A$

N° 05 : $a < \alpha < \tilde{b}$ et $(d, A) < \beta < \tilde{B}$ avec $\alpha < A$

N° 06 : $\tilde{b} < \alpha < \tilde{c}$ et $(d, A) < \beta < \tilde{B}$ avec $\alpha < A$

N° 07 : $\tilde{c} < \alpha < d$ et $(d, A) < \beta < \tilde{B}$ avec $\alpha < A$

N° 08 : $d < \alpha < A < \beta < \tilde{B}$

N° 09 : $a < \alpha < \tilde{b}$ et $(d, \tilde{B}) < \beta < \tilde{C}$ avec $\alpha < A$ (à décompter 2 fois)

N° 10 : $\tilde{b} < \alpha < \tilde{c}$ et $(d, \tilde{B}) < \beta < \tilde{C}$ avec $\alpha < A$ (à décompter 2 fois)

N° 11 : $\tilde{c} < \alpha < d$ et $(d, \tilde{B}) < \beta < \tilde{C}$ avec $\alpha < A$ (à décompter 2 fois)

N° 12 : $d < \alpha < A < \tilde{B} < \beta < \tilde{C}$ (à décompter 2 fois)

N° 13 : $a < \alpha < \tilde{b}$ et $(d, \tilde{C}) < \beta < D$ avec $\alpha < A$

N° 14 : $\tilde{b} < \alpha < \tilde{c}$ et $(d, \tilde{C}) < \beta < D$ avec $\alpha < A$

N° 15 : $\tilde{c} < \alpha < d$ et $(d, \tilde{C}) < \beta < D$ avec $\alpha < A$

N° 16 : $d < \alpha < A$ et $\tilde{C} < \beta < D$

N° 17 : $a < \alpha < \tilde{b}$ et $D < \beta$ avec $\alpha < A$

N° 18 : $\tilde{b} < \alpha < \tilde{c}$ et $D < \beta$ avec $\alpha < A$

N° 19 : $\tilde{c} < \alpha < d$ et $D < \beta$ avec $\alpha < A$

N° 20 : $d < \alpha < A$ et $D < \beta$

N° 21 : $a < \alpha < \tilde{b}$ et $(d, A) < \beta < \tilde{B}$ avec $A < \alpha < \tilde{B}$

N° 22 : $\tilde{b} < \alpha < \tilde{c}$ et $(d, A) < \beta < \tilde{B}$ avec $A < \alpha < \tilde{B}$

N° 23 : $\tilde{c} < \alpha < d$ et $(d, A) < \beta < \tilde{B}$ avec $A < \alpha < \tilde{B}$

N° 24 : $(d, A) < \alpha < \beta < \tilde{B}$

N° 25 : $a < \alpha < \tilde{b}$ et $(d, \tilde{B}) < \beta < \tilde{C}$ avec $A < \alpha < \tilde{B}$ (à décompter 2 fois)

N° 26 : $\tilde{b} < \alpha < \tilde{c}$ et $(d, \tilde{B}) < \beta < \tilde{C}$ avec $A < \alpha < \tilde{B}$ (à décompter 2 fois)

N° 27 : $\tilde{c} < \alpha < d$ et $(d, \tilde{B}) < \beta < \tilde{C}$ avec $A < \alpha < \tilde{B}$ (à décompter 2 fois)

N° 28 : $(d, A) < \alpha < \tilde{B} < \beta < \tilde{C}$ (à décompter 2 fois)

N° 29 : $a < \alpha < \tilde{b}$ et $(d, \tilde{C}) < \beta < D$ avec $A < \alpha < \tilde{B}$

N° 30 : $\tilde{b} < \alpha < \tilde{c}$ et $(d, \tilde{C}) < \beta < D$ avec $A < \alpha < \tilde{B}$

N° 31 : $\tilde{c} < \alpha < d$ et $(d, \tilde{C}) < \beta < D$ avec $A < \alpha < \tilde{B}$

N° 32 : $(d, A) < \alpha < \tilde{B}$ et $\tilde{C} < \beta < D$

N° 33 : $a < \alpha < \tilde{b}$ et $D < \beta$ avec $A < \alpha < \tilde{B}$ (accessible en AP)

N° 34 : $\tilde{b} < \alpha < \tilde{c}$ et $D < \beta$ avec $A < \alpha < \tilde{B}$

N° 35 : $\tilde{c} < \alpha < d$ et $D < \beta$ avec $A < \alpha < \tilde{B}$

N° 36 : $(d, A) < \alpha < \tilde{B}$ et $D < \beta$

N° 37 : $\tilde{b} < \alpha < \tilde{c}$ et $(d, \tilde{B}) < \beta < \tilde{C}$ avec $\tilde{B} < \alpha < \tilde{C}$ (à décompter 2 fois)

N° 38 : $\tilde{c} < \alpha < d$ et $(d, \tilde{B}) < \beta < \tilde{C}$ avec $\tilde{B} < \alpha < \tilde{C}$ (à décompter 2 fois)

N° 39 : $(d, \tilde{B}) < \alpha < \beta < \tilde{C}$ (à décompter 2 fois)

N° 40 : $\tilde{b} < \alpha < \tilde{c}$ et $(d, \tilde{C}) < \beta < D$ avec $\tilde{B} < \alpha < \tilde{C}$ (à décompter 2 fois)

N° 41 : $\tilde{c} < \alpha < d$ et $(d, \tilde{C}) < \beta < D$ avec $\tilde{B} < \alpha < \tilde{C}$ (à décompter 2 fois)

N° 42 : $(d, \tilde{B}) < \alpha < \tilde{C} < \beta < D$ (à décompter 2 fois)

N° 43 : $\tilde{b} < \alpha < \tilde{c}$ et $D < \beta$ avec $\tilde{B} < \alpha < \tilde{C}$ (à compter 2 fois, accessible en AP)

N° 44 : $\tilde{c} < \alpha < d$ et $D < \beta$ avec $\tilde{B} < \alpha < \tilde{C}$ (à décompter 2 fois)

N° 45 : $(d, \tilde{B}) < \alpha < \tilde{C} < D < \beta$ (à décompter 2 fois)

N° 46 : $\tilde{c} < \alpha < d$ et $(d, \tilde{C}) < \beta < D$ avec $\tilde{C} < \alpha < D$

N° 47 : $(d, \tilde{C}) < \alpha < \beta < D$

N° 48 : $\tilde{c} < \alpha < d$ et $D < \beta$ avec $\tilde{C} < \alpha < D$ (accessible en AP)

N° 49 : $(d, \tilde{C}) < \alpha < D < \beta$

N° 50 : $D < \alpha < \beta$ (accessible en AP)

Ce sont donc 50 classes de relations d'ordre, correspondant à 50 représentations schématiques en diagrammes de Wülff, qui sont mises en évidence. En prenant en compte le fait que certaines relations d'ordre sont à décompter deux fois, ce sont alors 67 classes de solutions qui sont déterminées dans les milieux uniaxes à domaines périodiquement alternés orthogonalement à l'axe $\vec{X}$, dans le cas où seules les topologies reliant respectivement les plans $(\vec{X}, \vec{Z})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$ d'une part, et $(\vec{X}, \vec{Z})$ et $(\vec{X}, \vec{Y})$ d'autre part, sont prises en compte. Ceci illustre la richesse topologique des solutions du QAPA.

Annexe B

Facteur champ sollicité en QAPA dans $MgO : PPLN$

Type I (e o o)	**Facteur champ** $\mathbf{F}^{(2)}_{\mathbf{ijk}}$
$\chi^{(2)}_{yyy}$	$F^{(2)}_{yyy} = -F^{(2)}_{xxy} = -F^{(2)}_{xyx} = -\cos(\theta+\rho_3)\sin\varphi\cos^2\varphi$ $F^{(2)}_{yxx} = -\cos(\theta+\rho_3)\sin\varphi\sin^2\varphi$
$\chi^{(2)}_{xzx}$	$F^{(2)}_{xzx} = F^{(2)}_{yzy} = 0$
$\chi^{(2)}_{xxz}$	$F^{(2)}_{xxz} = F^{(2)}_{yyz} = 0$
$\chi^{(2)}_{zxx}$	$F^{(2)}_{zxx} = +\sin(\theta+\rho_3)\sin^2\varphi$ $F^{(2)}_{zyy} = +\sin(\theta+\rho_3)\cos^2\varphi$
$\chi^{(2)}_{zzz}$	$F^{(2)}_{zzz} = 0$

TAB. B.1 – Facteurs champs d'un processus paramétrique de type I dans un milieu uniaxe négatif de classe de symétrie d'orientation $C_3(m)$.

Type II (e e o)	**Facteur champ** $\mathbf{F}^{(2)}_{\mathbf{ijk}}$
$\chi^{(2)}_{yyy}$	$F^{(2)}_{yyy} = -F^{(2)}_{yxx} = -F^{(2)}_{xyx} = +\cos(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_1)\cos\varphi\sin^2\varphi$ $F^{(2)}_{xxy} = +\cos(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_1)\cos^3\varphi$
$\chi^{(2)}_{xzx}$	$F^{(2)}_{xzx} = -F^{(2)}_{yzy} = +\cos(\theta+\rho_3)\sin(\theta+\rho_1)\cos\varphi\sin\varphi$
$\chi^{(2)}_{xxz}$	$F^{(2)}_{xxz} = F^{(2)}_{yyz} = 0$
$\chi^{(2)}_{zxx}$	$F^{(2)}_{zxx} = -F^{(2)}_{zyy} = +\sin(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_1)\cos\varphi\sin\varphi$
$\chi^{(2)}_{zzz}$	$F^{(2)}_{zzz} = 0$

TAB. B.2 – Facteurs champs d'un processus paramétrique de type II dans un milieu uniaxe négatif de classe de symétrie d'orientation $C_3(m)$.

Type III (e o e)	**Facteur champ** $\mathbf{F}^{(2)}_{\mathbf{ijk}}$
$\chi^{(2)}_{yyy}$	$F^{(2)}_{yyy} = -F^{(2)}_{yxx} = -F^{(2)}_{xxy} = +\cos(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_2)\cos\varphi\sin^2\varphi$ $F^{(2)}_{xyx} = +\cos(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_2)\cos^3\varphi$
$\chi^{(2)}_{xzx}$	$F^{(2)}_{xzx} = F^{(2)}_{yzy} = 0$
$\chi^{(2)}_{xxz}$	$F^{(2)}_{xxz} = -F^{(2)}_{yyz} = +\cos(\theta+\rho_3)\sin(\theta+\rho_2)\cos\varphi\sin\varphi$
$\chi^{(2)}_{zxx}$	$F^{(2)}_{zxx} = -F^{(2)}_{zyy} = +\sin(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_2)\cos\varphi\sin\varphi$
$\chi^{(2)}_{zzz}$	$F^{(2)}_{zzz} = 0$

TAB. B.3 – Facteurs champs d'un processus paramétrique de type III dans un milieu uniaxe négatif de classe de symétrie d'orientation $C_3(m)$.

Type IV (e e e)	**Facteur champ** $\mathbf{F}^{(2)}_{\mathbf{ijk}}$
$\chi^{(2)}_{yyy}$	$F^{(2)}_{yyy} = -\cos(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_1)\cos(\theta+\rho_2)\sin^3\varphi$ $F^{(2)}_{yxx} = F^{(2)}_{xxy} = F^{(2)}_{xyx} = -\cos(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_1)\cos(\theta+\rho_2)\sin\varphi\cos^2\varphi$
$\chi^{(2)}_{xzx}$	$F^{(2)}_{xzx} = +\cos(\theta+\rho_3)\sin(\theta+\rho_1)\cos(\theta+\rho_2)\cos^2\varphi$ $F^{(2)}_{yzy} = +\cos(\theta+\rho_3)\sin(\theta+\rho_1)\cos(\theta+\rho_2)\sin^2\varphi$
$\chi^{(2)}_{xxz}$	$F^{(2)}_{xxz} = +\cos(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_1)\sin(\theta+\rho_2)\cos^2\varphi$ $F^{(2)}_{yyz} = +\cos(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_1)\cos(\theta+\rho_2)\sin^2\varphi$
$\chi^{(2)}_{zxx}$	$F^{(2)}_{zxx} = +\sin(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_1)\cos(\theta+\rho_2)\cos^2\varphi$ $F^{(2)}_{zyy} = +\sin(\theta+\rho_3)\cos(\theta+\rho_1)\cos(\theta+\rho_2)\sin^2\varphi$
$\chi^{(2)}_{zzz}$	$F^{(2)}_{zzz} = +\sin(\theta+\rho_3)\sin(\theta+\rho_1)\sin(\theta+\rho_2)$

TAB. B.4 – Facteurs champs d'un processus paramétrique de type IV dans un milieu uniaxe négatif de classe de symétrie d'orientation $C_3(m)$.

Type I (e o o)	**Facteur champ** $\mathbf{F}^{(2)}_{\mathbf{ijk}}$
$\chi^{(2)}_{yyy}$	$F^{(2)}_{yyy} = -F^{(2)}_{xxy} = -F^{(2)}_{xyx} = -\cos(\theta+\rho_3)\sin\varphi\cos^2\varphi$ $F^{(2)}_{yxx} = -\cos(\theta+\rho_3)\sin\varphi\sin^2\varphi$
$\chi^{(2)}_{xzx}$	$F^{(2)}_{xzx} = F^{(2)}_{yzy} = 0$
$\chi^{(2)}_{xxz}$	$F^{(2)}_{xxz} = F^{(2)}_{yyz} = 0$
$\chi^{(2)}_{zxx}$	$F^{(2)}_{zxx} = +\sin(\theta+\rho_3)\sin^2\varphi$ $F^{(2)}_{zyy} = +\sin(\theta+\rho_3)\cos^2\varphi$
$\chi^{(2)}_{zzz}$	$F^{(2)}_{zzz} = 0$

TAB. B.5 – Facteurs champs d'un processus paramétrique de type V dans un milieu uniaxe négatif de classe de symétrie d'orientation $C_3(m)$.

Type VI (o e o)	**Facteur champ** $\mathbf{F}^{(2)}_{\mathbf{ijk}}$
$\chi^{(2)}_{yyy}$	$F^{(2)}_{yyy} = -F^{(2)}_{yxx} = -F^{(2)}_{xxy} = -\cos(\theta+\rho_1)\sin\varphi\cos^2\varphi$ $F^{(2)}_{xyx} = -\cos(\theta+\rho_1)\sin^3\varphi$
$\chi^{(2)}_{xzx}$	$F^{(2)}_{xzx} = +\sin(\theta+\rho_1)\cos^2\varphi$ $F^{(2)}_{yzy} = +\sin(\theta+\rho_1)\sin^2\varphi$
$\chi^{(2)}_{xxz}$	$F^{(2)}_{xxz} = F^{(2)}_{yyz} = 0$
$\chi^{(2)}_{zxx}$	$F^{(2)}_{zxx} = F^{(2)}_{zyy} = 0$
$\chi^{(2)}_{zzz}$	$F^{(2)}_{zzz} = 0$

TAB. B.6 – Facteurs champs d'un processus paramétrique de type VI dans un milieu uniaxe négatif de classe de symétrie d'orientation $C_3(m)$.

Type VII (o o e)	**Facteur champ** $\mathbf{F}^{(2)}_{\mathbf{ijk}}$
$\chi^{(2)}_{yyy}$	$F^{(2)}_{yyy} = -F^{(2)}_{yxx} = -F^{(2)}_{xyx} = -\cos(\theta+\rho_2)\sin\varphi\cos^2\varphi$ $F^{(2)}_{xxy} = -\cos(\theta+\rho_2)\sin^3\varphi$
$\chi^{(2)}_{xzx}$	$F^{(2)}_{xzx} = F^{(2)}_{yzy} = 0$
$\chi^{(2)}_{xxz}$	$F^{(2)}_{xxz} = +\sin(\theta+\rho_2)\sin^2\varphi$ $F^{(2)}_{yyz} = +\sin(\theta+\rho_2)\cos^2\varphi$
$\chi^{(2)}_{zxx}$	$F^{(2)}_{zxx} = F^{(2)}_{zyy} = 0$
$\chi^{(2)}_{zzz}$	$F^{(2)}_{zzz} = 0$

TAB. B.7 – Facteurs champs d'un processus paramétrique de type VII dans un milieu uniaxe négatif de classe de symétrie d'orientation $C_3(m)$.

Type VIII (o e e)	**Facteur champ** $\mathbf{F}^{(2)}_{\mathbf{ijk}}$
$\chi^{(2)}_{yyy}$	$F^{(2)}_{yyy} = -F^{(2)}_{xxy} = -F^{(2)}_{xyx} = +\cos(\theta+\rho_1)\cos(\theta+\rho_2)\cos\varphi\sin^2\varphi$ $F^{(2)}_{yxx} + \cos(\theta+\rho_1)\cos(\theta+\rho_2)\cos^3\varphi$
$\chi^{(2)}_{xzx}$	$F^{(2)}_{xzx} = -F^{(2)}_{yzy} = +\sin(\theta+\rho_1)\cos(\theta+\rho_2)\sin\varphi\cos\varphi$
$\chi^{(2)}_{xxz}$	$F^{(2)}_{xxz} = -F^{(2)}_{yyz} = +\cos(\theta+\rho_1)\sin(\theta+\rho_2)\sin\varphi\cos\varphi$
$\chi^{(2)}_{zxx}$	$F^{(2)}_{zxx} = F^{(2)}_{zyy} = 0$
$\chi^{(2)}_{zzz}$	$F^{(2)}_{zzz} = 0$

TAB. B.8 – Facteurs champs d'un processus paramétrique de type VIII dans un milieu uniaxe négatif de classe de symétrie d'orientation $C_3(m)$.

Annexe C

Condition généralisée de QAPA

Considérons trois ondes de vecteurs d'ondes $\vec{k}_1$, $\vec{k}_2$, et $\vec{k}_3$, en interaction paramétrique, et vérifiant la relation de conservation de l'énergie $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. La longueur de cohérence, décrite dans les parargaphes 1.2.2.3 du chapitre 1, et 4.2 du chapitre 4, est une grandeur physique scalaire, nécessairement positive. Pour un processus paramétrique selon la direction $\vec{u}(\theta, \phi)$, elle s'écrit donc :

$$l_c(\theta, \phi) = \frac{\pi}{|(\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta, \phi)|} \tag{C.1}$$

Le dénominateur $(\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta, \phi)$ peut être de signe positif ou négatif. Ainsi, la longueur de cohérence vaut :

$$\begin{cases} l_c(\theta, \phi) = +\dfrac{\pi}{(\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta, \phi)} & lorsque \quad (\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta, \phi) > 0 \\ l_c(\theta, \phi) = -\dfrac{\pi}{(\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta, \phi)} & lorsque \quad (\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta, \phi) < 0 \end{cases} \tag{C.2}$$

La condition de QAPA est réalisée, selon la direction (θ, ϕ), lorsque la périodicité effective sollicitée vérifie $\Lambda(\theta, \phi) = 2l_c(\theta, \phi)$. La périodicité $\Lambda(\theta, \phi)$ est également une grandeur scalaire nécessairement positive. Les deux écritures scalaires décrites par l'expression (C.2) peuvent être réécrits de la façon suivante :

$$\begin{cases} \dfrac{\Lambda(\theta,\phi)}{2} = \dfrac{\pi}{(\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta,\phi)} & lorsque \quad (\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta,\phi) > 0 \\ \dfrac{\Lambda(\theta,\phi)}{2} = \dfrac{-\pi}{(\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta,\phi)} & lorsque \quad (\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta,\phi) < 0 \end{cases} \tag{C.3}$$

Ainsi, en condition de QAPA, un déphasage $(\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta,\phi)$ positif doit être compensé par l'introduction d'un déphasage de valeur π, grâce à l'alternance des signes des coefficients non linéaires du tenseur $\left[\chi^{(2)}\right]$. Par contre, toujours en condition de QAPA, un déphasage $(\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta,\phi)$ négatif devra être compensé par l'introduction d'un déphasage de valeur $-\pi$. Or, l'inversion du signe des coefficients non linéaires introduit un terme de phase π, qui est défini à 2π près. Puisque les termes de phase π et $-\pi$ sont identiques à 2π près, cela démontre que l'inversion périodique des domaines permet bien de compenser aussi des déphasages $(\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta,\phi)$ négatifs, en accord le fait que les grandeurs $\Lambda(\theta,\phi)$ et $l_c(\theta,\phi)$ soient des grandeurs sclaires positives.

Les deux écritures scalaires de l'expression (C.3) peuvent être réécrits de façon vectorielle, soit :

$$\begin{cases} \vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2 = +\dfrac{2\pi}{\Lambda(\theta,\phi)}.\vec{u}(\theta,\phi) & lorsque \quad (\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta,\phi) > 0 \\ \vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2 = -\dfrac{2\pi}{\Lambda(\theta,\phi)}.\vec{u}(\theta,\phi) & lorsque \quad (\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta,\phi) < 0 \end{cases} \tag{C.4}$$

Le vecteur $\vec{K}_{\Lambda(\theta,\phi)} = \frac{2\pi}{\Lambda(\theta,\phi)}.\vec{u}_{(\theta,\phi)}$ correspond ainsi au terme vectoriel provenant de l'inversion périodique des domaines, et qui est introduit dans la relation vectorielle de QAPA associée à la conversion de la quantité de mouvement. Ce vecteur $\vec{K}_{\Lambda(\theta,\phi)}$ est défini en module, à partir de la périodicité effective sollicitée par la polarisation non linéaire selon sa propre direction de propagation ; ce vecteur est orienté colinéairement à la direction de propagation de la polariation non linéaire et dans le même sens que le sens de propagation de la polarisation non linéaire.

Pour un champ rayonné se propageant dans le même sens que le sens de propagation de la polarisation non linéaire, les deux schémas de conservation de l'impulsion, décrits par

les expressions $\vec{k}_3 - \vec{K}_{\Lambda(\theta,\phi)} - \vec{k}_1 - \vec{k}_2 = \vec{0}$ et $\vec{k}_3 + \vec{K}_{\Lambda(\theta,\phi)} - \vec{k}_1 - \vec{k}_2 = \vec{0}$ sont respectivement présentés par les figures C.1.(a) et C.1.(b).

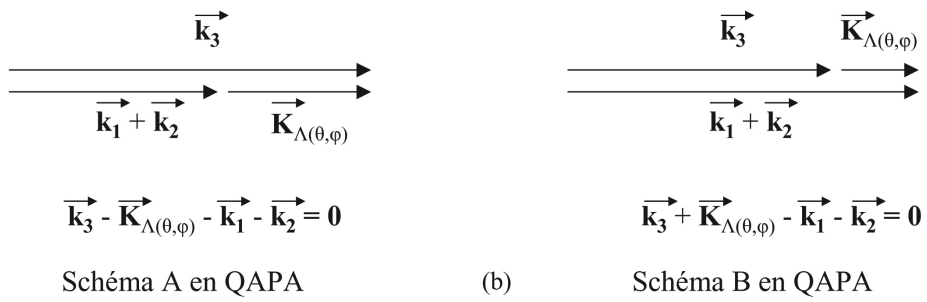


FIG. C.1 – *Shémas A et B envisageables en QAPA pour des propagations de la polarisation non linéaire et du champ rayonné selon la même direction et dans le même sens.*

Il faut noter que les deux schémas ne peuvent pas être pas réalisés simultanémment, c'est-à-dire qu'ils ne peuvent pas être réalisés pour une seule et unique direction de propagation (θ, ϕ) de la polarisation non linéaire, sauf dans le cas où le pas effectif devient infini et où le module du vecteur $\vec{K}_{\Lambda(\theta,\phi)}$ devient nul. Les cas où $\vec{K}_{\Lambda(\theta,\phi)} = \vec{0}$ correspondent à des situations où les conditions de QAPA sont équivalentes à des conditions d'accord de phase.

La conservation de l'impulsion au cours d'une interaction paramétrique au sein d'un milieu périodiquement alterné peut être réinterprétée d'un point de vue corpusculaire comme une interaction à quatre particules comprenant trois photons d'énergies $\hbar\omega_{1,2,3}$ et d'impulsions $\hbar\vec{k}_{1,2,3}$, ainsi qu'une quasi-particule d'énergie nulle et de pseudo-impulsion $\hbar\vec{K}_{\Lambda(\theta,\phi)}$. L'existence de deux schémas associés à la conservation de l'impulsion au cours d'une interaction à quatre particules en QAPA est analogue à l'existence de deux schémas au cours d'une interaction paramétrique à quatre ondes sollicitant la susceptibilité électrique non linéaire du troisème ordre $\chi^{(3)}$ [111].

Le shéma A a été entièrement traité au sein des milieux uniaxes positifs et négatifs en terme de topologies enviageables des cônes de solutions en QAPA, en fonction des huit types d'interactions paramétriques. Le schéma A contribue notamment à réaliser la condition de QAPA alors que la condition d'accord de phase correspondante ne serait pas vérifiée dans le même milieu non périodiquement alterné.

Lorsqu'il existe une condition d'accord de phase pour les types I, II ou III, dans

les milieux uniaxes, les cônes de solutions, de symétrie $\frac{A^Z_\infty}{m}\infty m$, relient les plans $(\vec{X},\vec{Z})$ et $(\vec{Y},\vec{Z})$ à angle θ constant. Dans ces cas où l'accord de phase est réalisé, il existe nécessairement des cônes de solutions en QAPA associés au shéma A, dont la topologie de symétrie mmm relie également les plans $(\vec{X},\vec{Z})$ et $(\vec{Y},\vec{Z})$.

Le schéma B correspond à la compensation d'une différence de projections des trois vecteurs d'onde $\Delta k(\theta,\phi) = (\vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2).\vec{u}(\theta,\phi) < 0$ négative dans la direction de propagation (θ,ϕ). Or, la dispersion normale des indices de réfraction impose le plus souvent que $\Delta k_{(\theta,\phi)} > 0$. Toutefois, la biréfringence compense parfois la dispersion normale des indices, et permet d'obtenir $\Delta k_{(\theta,\phi)} < 0$. Puisque la fonction $\Delta k_{(\theta,\phi)}$ est continue en (θ,ϕ), la réalisation de $\Delta k_{(\theta,\phi)} < 0$ impose nécessairement qu'il existe une direction particulière (θ,ϕ) selon laquelle $\Delta k_{(\theta,\phi)} = 0$, ce qui correspond à une contidion d'accord de phase. Ainsi, le shéma B en QAPA au sein d'un milieu uniaxe périodiquement alterné nécessite l'existence d'un accord de phase au sein du même milieu uniaxe non périodiquement alterné. Cependant, bien que chaque réalisation d'une condition d'accord de phase conduise à l'obtention de $\Delta k_{(\theta,\phi)} < 0$ sur une plage de directions de propagation, ceci n'est pas systématiquement une condition suffisante pour envisager une condition en QAPA selon le schéma B selon la direction de propagation considérée.

La topologie des cônes de solutions associées au shéma B relie également les plans $(\vec{X},\vec{Z})$ et $(\vec{Y},\vec{Z})$ et le groupe de symétrie correspondant est le groupe mmm.

Ainsi, l'existence d'une condition d'accord de phase en milieu uniaxe non alterné pour les types I, II ou II est d'une part une condition suffisante pour que le shéma A en QAPA soit réalisé au sein du même milieu uniaxe périodiquement alterné, et d'autre part une condition nécessaire pour que le shéma B en QAPA soit également réalisé au sein du même milieu uniaxe périodiquement alterné.

La figure C.2 illustre l'existe éventuelle de solutions selon les shémas A et/ou B en SHG de type I, dans le cristal uniaxe négatif $Mg0 : PPLN$ de période $\Lambda = 30$ μm, pour deux longueurs d'onde fondamentales différentes $\lambda_\omega = 1$ μm et $\lambda_\omega = 1,064$ μm. La figure C.2.(a) montre l'existence, dans le plan $(\vec{X},\vec{Z})$, d'une solution en QAPA associée au shéma A. La figure C.2.(b) montre également l'existence, dans le plan $(\vec{X},\vec{Z})$, d'une solution en QAPA associée au shéma A, mais présente en plus une solution en accord de

phase et une solution en QAPA associée au schéma B.

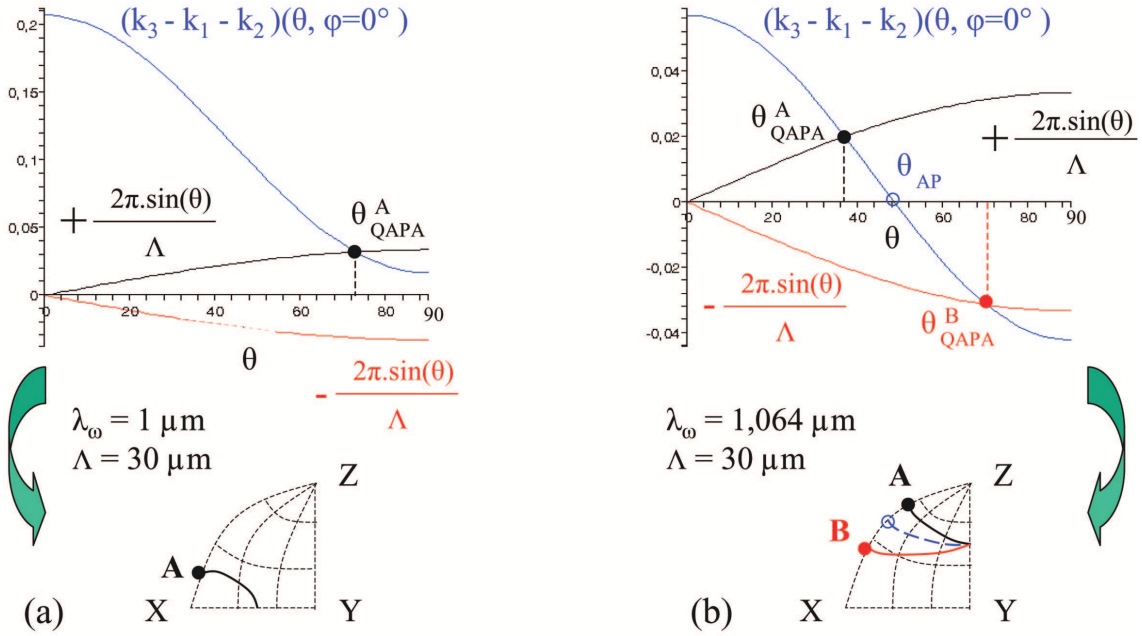


FIG. C.2 – *Illustration de la condition généralisée de QAPA en SHG de type I dans le plan* $(\vec{X}, \vec{Z})$ *au sein de* $MgO : PPLN$*, de période* $\Lambda = 30$ *µm. (a) Interaction pour une longueur d'onde fondamentale* $\lambda_\omega = 1$ *µm. (b) Interaction pour une longueur d'onde fondamentale* $\lambda_\omega = 1,064$ *µm.*

Les milieux uniaxes non alternés, qui présentent des cônes de solutions en accord de phase pour les types I, II ou III, conduisent nécessairement à des cônes de solutions en QAPA au sein des mêmes milieux périodiquement alternés. La topologie de ces directions solutions en QAPA est composée d'une branche correspondant aux cônes de solutions associées au shéma A, voire de deux branches lorsque le shéma B est également réalisé. Ces deux branches, qui relient les plans $(\vec{X}, \vec{Z})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$, possèdent un point commun dans le plan $(\vec{Y}, \vec{Z})$, ce qui correspond à une interaction en QAPA analogue à une interaction en accord de phase. En effet, dans ce plan, la périodicité effective sollicitée est infinie, et les solutions de QAPA tendent de façon continue vers celles de l'accord de phase au voisinage de ce plan. La symétrie des cônes de solutions en QAPA composés de deux branches est une symétrie mmm. La figure C.2 illustre le fait que la branche associée aux solutions du shéma A en QAPA est nécessairement obtenue pour des angles $\theta^A_{QAPA} \leqslant \theta_{AP}$, tandis que la branche associée aux solutions du shéma B en QAPA correspondent nécessairement à des angles $\theta^B_{QAPA} \geqslant \theta_{AP}$, où θ_{AP} correspond à l'angle d'accord de phase réalisé dans le même milieu non alterné.

Les topologies autres que celle reliant les plans $(\vec{X}, \vec{Z})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$ en QAPA au sein de milieux uniaxes ne présentent pas de solutions associées au schéma B et sont uniquement réalisées à partir de la condition de QAPA en shéma A.

L'existence de cônes présentant une topologie de symétrie mmm composée de deux branches reliant chacune les plans $(\vec{X}, \vec{Z})$ et $(\vec{Y}, \vec{Z})$ devra être confirmée avec MgO : $PPLN$ par des expérience correspondant à des interactions sollicitant des types susceptibles de fournir des solutions en accord de phase, dans le cas où le milieu ne serait pas alterné. Ce type d'interaction n'a encore pas été réalisé puisque les interactions menées en QAP bi-dimensionnel au sein des cristaux $PPKTP$ et $PPLN$ correspondaient uniquement au type IV sollicitant le coefficient $\chi^{(2)}_{33}$, et pour lequel aucun accord de phase n'est permis [83, 112].

La condition de QAPA généralisée constitue une double condition de QAPA exprimée ci-dessous :

$$\frac{n(\lambda_3;\theta,\phi)}{\lambda_3} - \frac{n(\lambda_1;\theta,\phi)}{\lambda_1} - \frac{n(\lambda_2;\theta,\phi)}{\lambda_2} \mp \frac{|cos(\phi)sin(\theta)|}{\Lambda} = 0 \tag{C.5}$$